

研究奨励事業報告書

(理学研究科・研究科長裁量経費)

強誘電体結晶の特徴は、外部電場をかけることで $\sim 10^{23}$ もの数の電気分極を一齐に整列および反転させられる(強誘電分極スイッチング)ことにある。この劇的な応答は物性研究として興味深いだけでなく、強誘電メモリなどの応用面においても重要である。本研究の目的は、超高速(ピコ秒未満 = 一兆分の一秒未満)なスイッチングの実現である。超短パルスレーザー技術を駆使し、電氣的制御(ギガヘルツ周波数領域)より桁違いに速いテラヘルツ(THz)制御に挑む。目的達成ために二種類のパルスを組み合わせた新手法の開拓を進めている: 近赤外光を照射して光誘起相転移を起こして秩序を融解させ(「スクラップ」)、タイミングを合わせて THz 強電場を印加することで分極を整列させる(「ビルド」)。

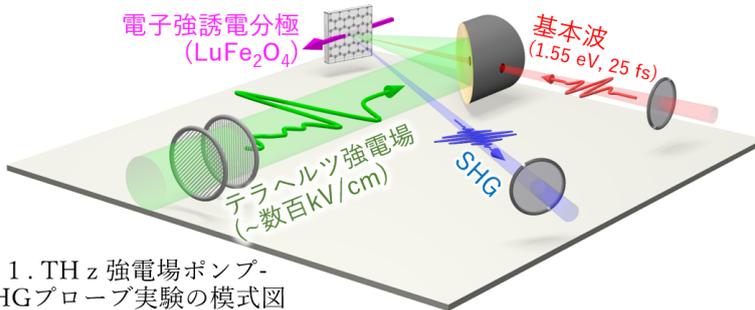


図1. THz 強電場ポンプ-SHGプローブ実験の模式図

その第一歩として、後者の THz 強電場光源(非線形光学結晶 LiNbO₃ を用いた傾斜パルス法)を用いたポンププローブ実験装置を構築して(図1)、強誘電分極の超高速ダイナミクスを調べた。

本研究では鉄酸化物 LuFe₂O₄ に注目した(図2a)。この物質ではルテチウム原子層に挟まれた鉄原子層において電荷が整列しており(電荷秩序)、そのクーロン反発の効果で分極が生じている: このような電子強誘電分極は高速かつ巨大な光応答を示すと期待される [Itoh *et al.*, *Phys. Rev. Res.* **3**, L032043 (2021)]。単結晶試料に THz 強電場 E_{THz} を印加し(図2b)、分極から発生する光第二高調波(SHG) [Fujiwara *et al.*, *Sci. Rep.* **11**, 4277 (2021)] の時間変化を調べた。

図2c左は SHG 強度 I_{SHG} の時間変化を表しており、基本波/SHG/ E_{THz} の偏光が a 軸(分極に平行)の際の結果である。電場の符号を反転させた時の結果を青線と赤線で重ねた。分極によって生じる I_{SHG} は、電場印加後ピコ秒未満で 100%以上もの巨大変化を示すと解った。他の物質の変化量は同程度の電場強度で数%-50%程度であり [Li *et al.*, *Science* **364**, 1079 (2019) など]、電子強誘電分極は THz 電場に極めて敏感であると言える。さらに、右のパネルは分極のない b 軸方向についての結果であるが、SHG 禁制な方位であるにもかかわらず、 E_{THz} 印加に伴って a 軸の場合に匹敵する I_{SHG} を観測した。つまり、THz 電場によって強制的に電子分極を整列できることが明らかとなった。近赤外光励起と組み合わせることで、さらに多彩な制御が可能になり、超高速スイッチングへの道が拓かれると期待される。本研究は岡山大と東工大との共同研究として行われた。

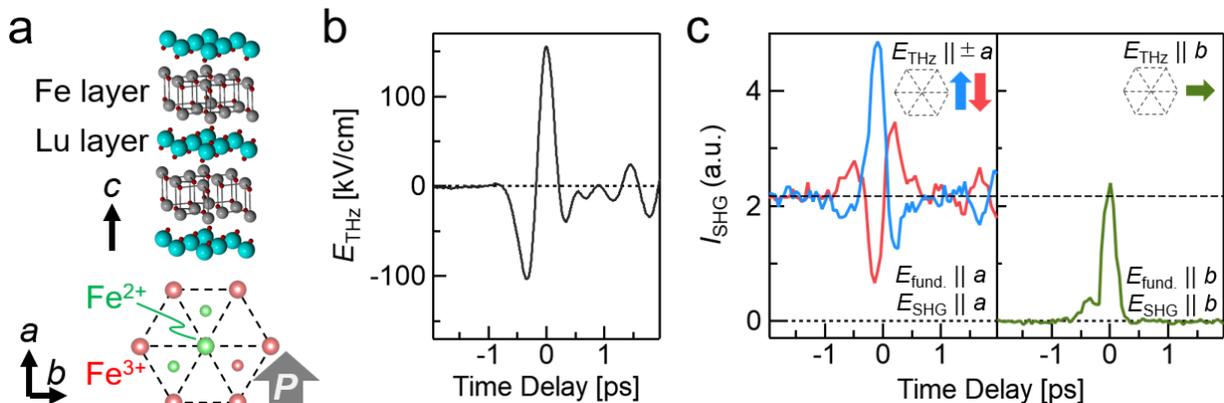


図2. a: LuFe₂O₄ の結晶構造。b: THz 強電場の時間波形。c: THz 強電場による SHG 変化。