

科学研究費助成事業（学術研究助成基金助成金）研究成果報告書

平成 24 年 5 月 31 日現在

機関番号：14401

研究種目：挑戦的萌芽研究

研究期間：2011～2011

課題番号：23656219

研究課題名（和文） 局所場強誘電分極光制御

研究課題名（英文） Optical control of local ferroelectric polarity

研究代表者

斗内 政吉 (TONOUCHI MASAYOSHI)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・教授

研究者番号：40207593

研究成果の概要（和文）：

量子常誘電体である SrTiO₃ に格子歪みを与え歪み誘起強誘電相が形成されていることを、テラヘルツ分光法を用いて確認した。また、強誘電相がナノドメインを形成し配向分極成分として振る舞うと仮定すると実験結果を矛盾なく説明できることを示した。その他、従来のテラヘルツ放射顕微鏡を改良し、イメージングとポンププローブ法を同時に行い、励起キャリアのダイナミクスを詳細に計測可能なダイナミックテラヘルツ放射顕微鏡を開発した。

研究成果の概要（英文）：

We studied the temperature dependence of the dielectric dispersion of SrTiO₃ thin films on MgAl₂O₄ by broadband THz-TDS and we found evidence of a ferroelectric phase transition at around 170 K. Furthermore, the increase of ϵ'' in the gigahertz frequency region and the increase of γ_{TO1} below T_c imply the existence of polar nanoregions that have been observed in other ferroelectric materials with a perovskite structure and relaxor ferroelectrics.

交付決定額

(金額単位：円)

	直接経費	間接経費	合計
2011 年度	3,200,000	960,000	4,160,000

研究分野：光学

科研費の分科・細目：電気電子工学、電子・電気材料工学

キーワード：テラヘルツ放射、強誘電分極、ナノドメイン

1. 研究開始当初の背景

強誘電体の電子材料としての応用は広く行われている。一方、現在、強誘電体の光機能材料としての研究は、未開拓領域にある。近年、RameshらがBiFeO₃ (BFO) の太陽電池材料としての可能性を報告した。(Nature nanotech, 5,143,2010) また、研究代表者は、BFOからのテラヘルツ波発生現象を見出し (PRL 96, 117402, 2006)、その発生機構が強誘電自発分極光変調に由来するものであることを明らかにした (Adv.Mater. 21,2881,2009)。それらは世界的にも評価され、マルチフェロイック研究の第一人者の一人である、J.Scottのレビュー論文にも、新しい機能として紹介され、メモリー応用への可能性を開くものとして解説されるとともに、(Adv.Mater. 21,1, 2009、ChemPhysChem 10,1761, 2009) 多くの国際会議で招待講演を

行っている。また、研究代表者は、僅かなフォトン注入により、大きな反転分極スイッチングが起こることも見出した (APL 90, 0562908, 2007)。その現象は、巨大な、光励起アバランシェドメイン反転を誘発するもので、その機構解明はいまだ不明である。それら光誘起ドメイン制御やテラヘルツ波発生によるドメイン可視化を、特殊材料ではなく、一般化することは学術的に大きな意義があり、また、応用を新たに開拓する萌芽となる。また、SrTiO₃(STO)は強誘電体特有のソフトフォノンモードが存在し、温度を下げるとソフトモード周波数が低周波にシフトする理想的な変位型強誘電体の振る舞いを示すが、絶対零度においてもソフトモードが凍結せず、強誘電相転移を起こさない、いわゆる量子常誘電体と言われる物質である。しかしな

がら、不純物や講師歪みを加えることにより、強誘電転移を起こすことが知られていた。さらに、基板に DyScO₃ を用い、適切な面内伸張性の格子歪みを与えることにより、ほぼ室温で強誘電転移することが Hanei らによって確認され(Nature, 430, 752, 2004)、活発な研究対象となっている。このように、歪み誘起された強誘電体の分極構造は、準安定な状態にあり、非常に小さい摂動により分極反転を起こす可能性があり、本研究課題の目指す、少数フォトンによる分極反転を起こすための材料として、有望であると考えている。また、このような歪み誘起強誘電性のドメイン形成機構や光物性は基礎科学として興味深いだけでなく、新たなメモリやスイッチングデバイス材料としての可能性も考えられる。

以上のことから、本研究では、BFOより一般的な強誘電材料である BaTiO₃ (BTO) における、フェムト秒レーザー励起自発分極光変調によるテラヘルツ波発生・ドメイン可視化・ドメイン制御を科学し、強誘電フォトンクス分野の開拓を目指すものである。

2. 研究の目的

光誘起強誘電反転分極スイッチングによる局所場ドメイン光制御の実現と発現機構の解明を主たる目的とする。本研究では、その目的のため、新たな短波長フェムト秒励起テラヘルツ波発生システムを開発し、本質的光強誘電相互作用を露わにするとともにその機構を解明する。このとき、僅かなフォトンで巨大な反転分極を誘発する光アシストアバランシェ反転分極スイッチングを実現し、1つのフォトンで、10¹⁰個の分極制御を目指す。このような現象を観測するための材料として、マルチフェロイック BFO や典型的な強誘電体である BTO、また歪み誘起強誘電性を示す STO 薄膜を併用している。最終的には、新しい工学分野“強誘電フォトンクス”の創成と誘電フォトンクスデバイス応用の可能性を見出すことにチャレンジする。

3. 研究の方法

光誘起強誘電反転分極スイッチングによる局所場ドメイン光制御の実現と発現機構の解明を主たる目的とする。本研究では、その目的のため、歪み誘起した STO 薄膜の誘電的な振る舞いをテラヘルツ時間領域分光法をもちいて測定し、強誘電ドメインの性質を評価する。そのために、DSO よりもさらに面内格子定数が大きく STO と約 3.5% の格子ミスマッチのある MgAl₂O₄ (MAO) を基板として用い、歪み誘起強誘電性の発現を目指す。歪みをうまく与えることにより、DSO 上の STO よりもさらに高い T_c をもつ強誘電体を作成できる可能性がある。

また、新たな短波長フェムト秒励起テラヘルツ波発生システムを開発し、本質的光強誘電相互作用を露わにするとともにその機構を解明する。

4. 研究成果

本研究の目的は、光およびテラヘルツ波による強誘電相の観測および制御である。今年度は主に行った研究の概略について以下に記載する。

(1) STO 薄膜における歪み誘起強誘電性の観察
これまで STO よりも面内の格子定数約 1% 大きな DyScO₃ (DSO) 基板上に STO 薄膜を成長させることにより、面内に伸張性の歪みがかかり、室温付近で強誘電性を発現することが知られていた。今回、さらに面内格子定数の大きな MgAl₂O₄ 基板に STO 薄膜を成長させた。これにより、理想的には約 3.5% の伸張性歪みがかかることとなり室温より遙かに高温で強誘電転移する可能性がある。この STO 薄膜を THz 分光法で観察し、強誘電性発現に密接に関係しているソフトフォノンモードの挙動を、測定により得られた誘電分散から解析した。図 1 は MAO 基板上に作製した STO 薄膜の複素誘電率の温度依存性である。ソフトモードによる誘電分散が明瞭に観察されており、室温では約 2.3 THz にピークがある。温度を下げるに従いフォノンピークは定数は側にシフトするいわゆるソフト化が見られる。その後、ピークは再度高周波側にシフトしていく。このことをより詳しく解析するために、古典的な減衰振動モデルで誘電関数をフィッティングし、誘電強度 $\Delta \epsilon$ 、共鳴周波数 ω_{TO1} 、制動係数 γ のを見積もった。図 2 はそ

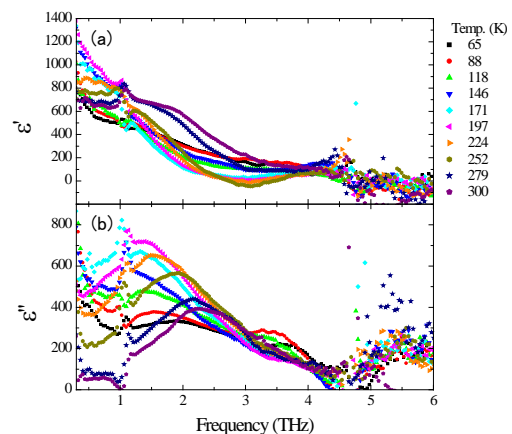


図 1 MAO 基板上に作製した STO 薄膜の複素誘電率の温度依存性

れぞれの値の温度依存性である。その結果、共鳴周波数は 170K で極小値をとり、逆に誘電強度は 170K で極大値をとっている。これは強誘電体に特徴的な振る舞いであり、MAO 基板

上のSTOは約 170Kで強誘電転移していることが明らかになった。

また、今回の試料では、強誘電転移した 170 度以下の温度領域では、低周波における誘電率が単純な調和振動子モデルよりも増大するという現象が見られた。それとほぼ同時に、制動係数も上昇している。これは、セントラルモードと呼ばれ、リラクサなどに見られる現象と類似している。セントラルモードは、配向分極セブンによって引き起こされると考えられており、今回 STO で見られる低周波領域の誘電率の上昇は、典型的な変位型強誘電体と思われる STO に配向成分が重要な役割を果たしていることを示唆する。これは、STO に強誘電性が発現すると同時に、強誘電分極ドメインが配向分極的成分として振る舞うことによると考えている。

(2) 高強度テラヘルツ波による STO の非線形分光計測

この研究では、横浜国立大学の片山郁文と協力して、高強度のテラヘルツ波を用いて STO 薄膜のテラヘルツ時間領域分光を行い、高強度のテラヘルツでソフトフォノンモードを制御することを試みた。本研究では、テラヘルツ強度を大きくするに従い、ソフトモードのピークは高周波数側にシフトするいわゆるブルーシフトが起こっていることを見い

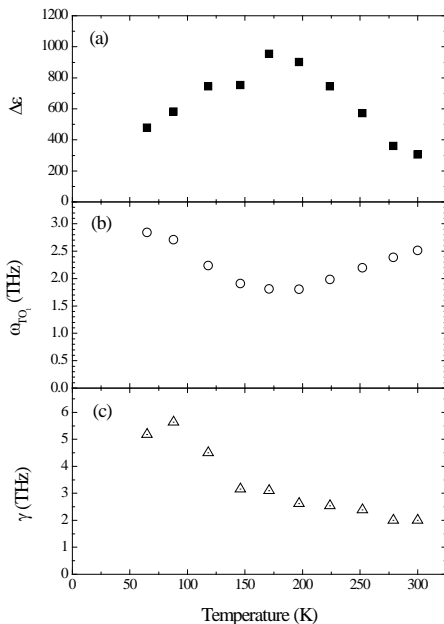


図 2 フィットングにより求めた誘電強度 $\Delta\epsilon$ 、共鳴周波数 ω 、制動係数 γ の温度依存性

出した。これは、テラヘルツ波の強電場によるイオン変位により振動モードが調和振動

子から外れ非線形な振る舞いをしているためであり、フォノンモードのレーザーによるコヒーレントなコントロールが可能であることを示している。

(3) テラヘルツ放射を用いた新規な強誘電分極イメージングシステムの開発

我々はこれまでも、BFO に超短パルスレーザーを照射することにより、テラヘルツ波が放射される現象を見出し、その発生機構が強誘電自発分極光変調に由来するものであることを明らかにしてきた。さらに、電荷のダイナミクスをサブピコ秒の時間分解能で計測するために、ポンプ・プローブ法を取り入れたダイナミックテラヘルツ放射顕微鏡を開発した。予備実験として、半導体光スイッチを試料にもちい計測した結果、キャリア励起によるスクリーニング効果と電荷蓄積効果が同時に起こり、光伝導スイッチの正極と負極付近から発生するテラヘルツ強度は非対称であることを見いだした。今後、このシステムを用いて強誘電部局構造の計測を行う予定である。最後に、紫外領域のレーザーを用いた LTEM 開発を試みた。これは、標準的なフェムト秒パルスレーザーの 3 倍波である、波長 266nm のレーザー光を用いたテラヘルツ放射・検出システムである。しかしながら、このシステムでは高強度のレーザーが必要であるため、繰り返し周波数を 80MHz から 1kHz に落とす必要がある。そのため、従来の検出法では十分な SN 比で測定できなかった。現在ボックスカー検出器と組み合わせるなどシステムを改良する予定である。

5. 主な発表論文等

(研究代表者、研究分担者及び連携研究者には下線)

[雑誌論文] (計 2 件)

① I. Katayama, H. Aoki, J. Takeda, H. Shimosato, M. Ashida, R. Kinjo, I. Kawayama, M. Tonouchi, M. Nagai, and K. Tanaka. “Ferroelectric soft mode in a SrTiO₃ thin-film impulsively driven to the anharmonic regime using intense picosecond terahertz pulses”, Phys. Rev. Lett., 108, pp. 097401-1-5, February 28, 2012

② Ryuhei Kinjo, Iwao Kawayama, Hironaru Murakami, and Masayoshi Tonouchi, “Strain-Induced Ferroelectricity of a SrTiO₃ Thin Film on a MgAl₂O₄ Substrate Observed by Terahertz Time-Domain Spectroscopy”, Journal of Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves, Vol. 33,

No. 1, 2012, pp.67-73

〔学会発表〕(計3件)

①R. Kinjo, X. Weiming, I. Kawayama, H. Murakami, M. Tonouchi,” Strain induced conductivity change of SrRuO₃ thin films observed by terahertz time-domain spectroscopy”, 36th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves(IRMMW-THz), 2011年10月3日、ヒューストン(米国)

②R. Kinjo, I. Kawayama, H. Murakami, M. Tonouchi,” Observation of In-Plane Strained SrTiO₃ Thin Films by Terahertz Time-domain Spectroscopy”, International Symposium on Terahertz Nanoscience (TeraNano 2011), 2011年11月28日、大阪

③ M. Tonouchi,” Cutting-edge terahertz technology and prospect of its application”, SPIE Photonics West, 2012年1月21日、サンフランシスコ(米国)

6. 研究組織

(1) 研究代表者

斗内 政吉 (TONOUCHI MASAYOSHI)

大阪大学・レーザーエネルギー学研究センター・教授

研究者番号：40207593