第二次高調波発生による電子強誘電体薄膜の分極構造解明

[1] 要旨

電子強誘電体 $YbFe_2O_4$ 薄膜において、第二高調波発生（SHG）の入射角および偏光方位角依存性が調べられた。結果がこの系の対称性（点群 m）に基づき解析されることによって、$YbFe_2O_4$ の非線形感受率テンソルの全ての成分比が初めて決定された。これまで、バルク結晶では強誘電分極の相関長（分極がそろっている長さ）が短く、分極軸方向のテンソル成分が不明であった。今回のエピタキシャル薄膜はバルク単結晶よりも c 軸方向の電子分極配列が揃っているため、すべての成分比が決定されたただけでなく、電子強誘電体の分極軸方向の非線形感受率が極めて大きいことが初めて明らかになった。

[2] 本文

誘電体材料は、記憶素子、アクチュエータ、メモリなど幅広い分野で利用されているが、従来のイオン変位や分子運動に基づく強誘電体では、その応答特性が分子の質量やサイズに制約されるという課題が存在する。この課題を克服するため、電子の電荷不均化によって分極が生じる電子強誘電体が注目を集めている。特に、今世紀初頭に発見された鉄複電荷酸化物 RFe_2O_4（R：希土類イオン）は、Fe^{2+}と Fe^{3+}間の実空間電荷不均化に起因する分極を有する電子強誘電体として知られている。

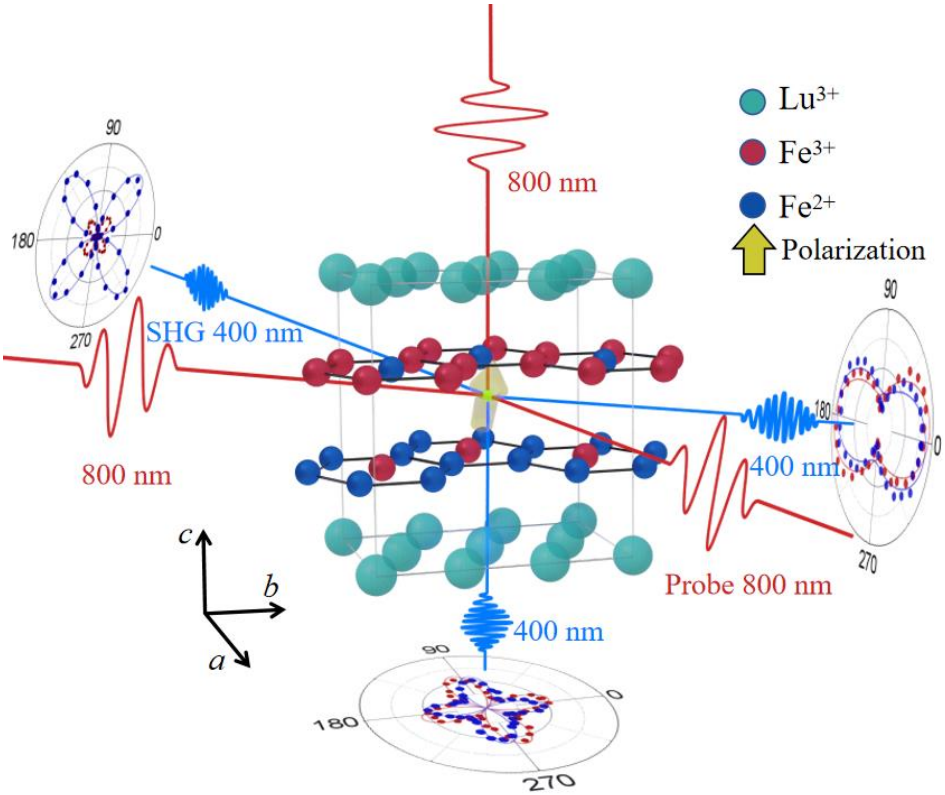

図 1. YbFe2O4 薄膜結晶における SHG 測定概略と分極構造解析の概念図

これまで $YbFe_2O_4$ の分極構造に関する研究では、バルク単結晶を用いた第二次高調波発生（SHG）測定が主流であった。しかしバルク単結晶では、c 軸方向の分極の相関長がマクロなサイズに到達するのが困難であり（50 nm 程度）、そのため c 軸方向の SHG は相殺され、正確な測定が困難であった。この問題を解決するため、本研究では c 軸配向した厚さ約 50 nm のエピタキシャル成長した

$YbFe_2O_4$ 薄膜結晶を使用し、薄膜に対する入射角度と入射偏光方位角度を系統的に変化させながら SHG の測定が実施された。図 1 に示すように、様々な入射角度（入射レーザビームと薄膜表面の角度）で 800nm のレーザパルスを薄膜に照射し、発生する 400nm の SHG 光の偏光方位角依存性が測定された。得られた結果は、すべての入射角、偏光方位角に対して点群 m（系の空間群は Cm）の対称性に基づいて矛盾なく解析することができ、$YbFe_2O_4$ 薄膜の二次の非線形感受率テンソル成分 d_{ij} の d_{11} に対する相対比が決定された。d_{31}、d_{32}、d_{33}、d_{35} などの c 軸に関係する成分は、他の成分と比較して一桁以上大きな値を示している。これは、薄膜結晶内では電子分極が c 軸方向においてバルク単結晶よりもきれいに配列していることを強く示唆するものであり、電荷不均化によって生じる分極構造を初めて裏付けるものである。

この成果は、電子強誘電体の起源解明と薄膜デバイス応用において重要な指針を与えるものであり、今後の材料開発への貢献が期待される。なお、本成果は JPSJ の 2025 年 9 月号に掲載された。

原論文（2025 年 8 月 4 日公開済）

Polarization Structure Probed by Incident Angle Dependence of Second Harmonic Generation in Electronic Ferroelectric $YbFe_2O_4$

X. Wang, H. Yu, T. Ishikawa, S. Koshihara, N. Ikeda, M. Nasu, T. Fujii, and Y. Okimoto, J. Phys. Soc. Jpn. **94**, 094802 (2025).

＜情報提供：沖本洋一（東京科学大学　理学院）＞