УДК 537.9

# СВЕРХБЫСТРАЯ МОДУЛЯЦИЯ СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКОЙ ПОЛЯРИЗАЦИИ В ПЛЕНКЕ Ва<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>TiO<sub>3</sub> ИНТЕНСИВНЫМ СУБОДНОПЕРИОДНЫМ ТЕРАГЕРЦОВЫМ ИМПУЛЬСОМ

© 2020 г. В. Р. Билык<sup>1, \*</sup>, Е. Д. Мишина<sup>1</sup>, А. В. Овчинников<sup>2</sup>, М. Б. Агранат<sup>2</sup>

<sup>1</sup>МИРЭА — Российский технологический университет, Москва, Россия <sup>2</sup>Объединенный институт высоких температур РАН, Москва, Россия \*E-mail: vrbilyk@mail.ru Поступило в редакцию 17.05.2020 г.

После доработки 17.09.2020 г. Принято к публикации 14.10.2020 г.

Представлен результат экспериментального и теоретического исследования воздействия интенсивного однопериодного терагерцового импульса на сегнетоэлектрическую поляризацию в пленке титаната бария—стронция. Методом генерации второй оптической гармоники продемонстрирована модуляция сегнетоэлектрической поляризации в поле терагерцового импульса напряженностью до 23.2 MB/см. Показано наличие нелинейной зависимости интенсивности второй оптической гармоники от напряженности электрического поля TГц-импульса.

DOI: 10.31857/S0040364420060058

## введение

Поиск способов управления состоянием параметра порядка (намагниченности или поляризации) среды с максимальной скоростью важен как с точки зрения фундаментальной физики, так и для создания элементов памяти, оперирующих на частотах от десятков гигагерц до единиц терагерц. Наибольшим потенциалом с точки зрения скорости воздействия является управление параметром порядка короткими электромагнитными импульсами.

На сегодняшний день успешно реализовано управление состоянием намагниченности в металлах использованием фемтосекундных лазерных импульсов с циркулярной поляризацией [1], а также в прозрачных средах путем воздействия лазерных импульсов с линейной поляризацией [2]. В то же время устойчивого сверхбыстрого переключения сегнетоэлектрического параметра порядка с использованием фемтосекундных импульсов на сегодняшний день не реализовано. Для достижения сверхбыстрого управления поляризацией можно применить излучение терагерцового диапазона, способное когерентно воздействовать на колебательные моды кристаллической решетки твердого тела и, в частности, на колебания полярной моды в сегнетоэлектриках [3, 4].

#### ДЕТАЛИ ЭКСПЕРИМЕНТА, РЕЗУЛЬТАТЫ И ОБСУЖДЕНИЕ

Исследуемым материалом являлась сегнетоэлектрическая пленка титаната бария—стронция  $(Ba_{0.8}Sr_{0.2}2TiO_3)$ , осажденная на подложке MgO (111) путем высокочастотного катодного распыления стехиометрической мишени [5]. Толщина пленки составляла 400 нм, температура фазового перехода  $T_c = 80^{\circ}$ C [5].

Эксперимент проведен с использованием хромфорстеритовых фемтосекундых лазерных систем, работающих на частоте повторения импульсов 10 [6] и 100 Гц [7] и производящих импульсы с энергиями до 90 и 2.5 мДж. Динамика индуцированных изменений исследовалась методом терагерцового возбуждения – нелинейно-оптического зондирования [8]. Генерация терагерцового излучения происходила в нелинейно-оптическом кристалле ОН1 за счет эффекта оптического выпрямления фемтосекундного лазерного импульса на длине волны  $\lambda = 1240$  нм [9]. Оценка напряженности электрического поля терагерцового импульса производилась комплексным способом с использованием методики терагерцовой спектроскопии с временным разрешением (рис. 1а) и интегрального измерения энергии в импульсе с использованием ячейки Голея [9]. Индуцированные воздействием электрического поля ТГцимпульса изменения сегнетоэлектрической поляризации в пленке отслеживались с помощью детектирования излучения на частоте второй оптической гармоники (ВГ) ( $\lambda = 620$  нм), чувствительной к изменению пространственного параметра порядка [10].

Результат экспериментального исследования представлен на рис. 1. Интенсивность ВГ как мера сегнетоэлектрической поляризации чувстви-



**Рис. 1.** Динамика интенсивности ВГ (а) в момент воздействия ТГц-импульса при напряженностях электрического поля ТГц-импульса: *1* – 20 кВ/см, *2* – 150, *3* – 460, *4* – 820, *5* – 940; на вставке – временной профиль ТГц-импульса и его частотный спектр; (б) – зависимость интенсивности ВГ в момент воздействия пикового значения поля ТГц-импульса.



**Рис. 2.** Динамика интенсивности ВГ (а) в момент воздействия ТГц-импульса при напряженностях электрического поля ТГц-импульса: *1* – 4.7 МВ/см, *2* – 9.6, *3* – 14.4, *4* – 22.3, *5* – 23.2; (б) – зависимость интенсивности ВГ в момент воздействия пикового значения поля ТГц-импульса.

тельна к знаку напряженности электрического поля ТГц-импульса и следует практически без запаздывания профилю ТГц-импульса в пределах погрешности эксперимента (рис. 1а). Зависимость интенсивности ВГ при воздействии пикового значения напряженности электрического поля ТГц-импульса (временная задержка 0 пс) на рис. 16 проявляет два существенно различающихся участка, демонстрирующих линейную и квадратичную зависимость от величины прикладываемого электрического поля.

Рассмотрим процесс генерации излучения на частоте ВГ в электродипольном приближении. Во время действия ТГц-импульса появляется слагаемое, зависящее от внешнего поля, в рассматриваемом случае на терагерцовой частоте Ω. Отметим, что в случае воздействия ТГц-импульса генерация

нелинейно-оптического отклика описывается нелинейной восприимчивостью третьего порядка  $\chi^{(3)}(2\omega + \Omega; \omega, \omega, \Omega)$ . Однако, принимая во внимание малость частоты терагерцового поля по отношению к оптическому  $\Omega$ ,  $\omega$  и 2 $\omega$ , можно допустить, что нелинейная поляризация генерируется на частоте 2 $\omega$ . Поскольку в сегнетоэлектрике на ненулевой кристаллографический  $P_{\rm крист}^{(2\omega)}$  накладывается индуцированный полем  $P_{\rm инд}^{(2\omega)}(E_{\Omega})$  вклад, то суммарная нелинейно-оптическая поляризация на частоте ВГ в таком случае принимает вид

$$P^{(2\omega)}(E_{\Omega}) = P^{(2\omega)}_{\kappa\rho\mu\sigma\tau} + P^{(2\omega)}_{\mu\mu\pi}(E_{\Omega}) =$$
  
=  $\chi^{(2)}E_{\omega}E_{\omega} + \chi^{(3)}E_{\Omega}E_{\omega}E_{\omega}.$  (1)

Нелинейно-оптический отклик на воздействие электрического поля ТГц-импульса в сегнетоэлектрических материалах может иметь различный характер. Когда индуцированная электрическим полем ВГ существенно превышает собственный кристаллографический вклад в ВГ, нелинейно-оптический отклик следует профилю ТГц-импульса из-за наличия интерференционного слагаемого в режиме вынужденных колебаний:

$$I^{(2\omega)}(E_{\Omega}) \propto (\chi^{(2)})^2 + 2\chi^{(2)}\chi^{(3)}E_{\Omega} + (\chi^{(3)}E_{\Omega})^2.$$
(2)

Согласно (2), нелинейно-оптический отклик имеет слагаемые, линейно и квадратично зависящие от величины внешнего электрического поля. Путем аппроксимации найдены диапазоны напряженностей электрического поля, в которых зависимость интенсивности ВГ следует тому или иному закону (рис. 16). В диапазоне полей до 400 кВ/см модуляция сигнала ВГ проявляет линейную зависимость (коэффициент угла наклона  $k = 1.09 \pm 0.04$  в логарифмическом масштабе шкал), а при превышении порогового значения в 400 кВ/см – близкую к квадратичной ( $k = 2.477 \pm 0.012$ ).

Воздействие более высоких напряженностей (рис. 2a) электрического поля приводит к преобладанию в результирующем выражении интенсивности ВГ слагаемого, квадратично зависящего от поля, над слагаемым, отвечающим кристаллографическому и линейно зависящему от поля вкладам генерации ВГ.

Динамический отклик ВГ в таком случае проявляет квадратичную зависимость, поскольку сигнал ВГ нечувствителен к знаку внешнего поля и может принимать только положительные значения. Таким образом, приложение электрического поля с отрицательной полярностью также выражается в росте сигнала ВГ. С другой стороны, зависимость интенсивности ВГ от величины напряженности поля (рис. 26) проявляет близкую к квадратичной, но уже заметно более слабую зависимость от поля. Такое поведение может свидетельствовать о насыщении поляризации при воздействии высоких напряженностей полей.

## ЗАКЛЮЧЕНИЕ

Посредством детектирования сигнала на частоте второй оптической гармоники продемонстрирован высокочастотный отклик сегнетоэлектрической поляризации в пленке Ba<sub>0.8</sub>Sr<sub>0.2</sub>TiO<sub>3</sub>, индуцированный субоднопериодными терагерцовыми импульсами с напряженностью электрического поля, лежащей в диапазоне от 18 кВ/см до 23.2 МВ/см. В исследуемом диапазоне полей наблюдалась существенно нелинейная зависимость интенсивности ВГ от напряженности поля в ТГц-импульсе, которая может быть описана в рамках электроиндуцированной генерации второй оптической гармоники.

Исследование выполнено при финансовой поддержке РФФИ и госкорпорации "Росатом" в рамках научного проекта № 20-21-00043, а также гранта РФФИ № 18-02-40027.

## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

- 1. Stanciu C.D., Hansteen F., Kimel A.V., Kirilyuk A., Tsukamoto A., Itoh A., Rasing Th. All-Optical Magnetic Recording with Circularly Polarized Light // Phys. Rev. Lett. 2007. V. 99. № 4. P. 047601.
- Stupakiewicz A., Szerenos K., Afanasiev D., Kirilyuk A., Kimel A.V. Ultrafast Nonthermal Photo-magnetic Recording in a Transparent Medium // Nature. 2017. V. 542. № 7639. P. 71.
- 3. Mankowsky R., von Hoegen A., Först M., Cavalleri A. Ultrafast Reversal of the Ferroelectric Polarization // Phys. Rev. Lett. 2017. V. 118. № 19. 197601.
- Chen F, Zhu Y., Liu S. et al. Ultrafast Terahertz-fielddriven Ionic Response in Ferroelectric BaTiO<sub>3</sub> // Phys. Rev. B. 2016. V. 94. № 18. 180104.
- Анохин А.С., Разумная А.Г., Юзюк Ю.И., Головко Ю.И., Мухортов В.М. Фазовые переходы в пленках титаната бария-стронция на подложках MgO различной ориентации // ФТТ. 2016. Т. 58. № 10. С. 1956.
- Vicario C., Jazbinsek M., Ovchinnikov A., Chefonov O., Ashitkov S., Agranat M., Hauri C. High Efficiency THz Generation in DSTMS, DAST, and OH1 Pumped by Cr:forsterite Laser // Opt. Express. 2015. V. 23. P. 4573.
- Овчинников А.В., Чефонов О.В., Ситников Д.С., Ильина И.В., Ашитков С.И., Агранат М.Б. Источник терагерцевого излучения с напряженностью электрического поля свыше 1 МВ/см на основе фемтосекундного хром-форстеритового лазера с частотой следования импульсов 100 Гц // Квантовая электроника. 2018. Т. 48. № 6. С. 554.
- Mishina E., Grishunin K., Bilyk V., Sherstyuk N., Sigov A., Mukhortov V., Ovchinnikov A., Kimel A. Ultrafast Polarization Switching of (BaSr)TiO 3 Thin Film by a Single-period Terahertz Pulse in a Vicinity of Phase Transition // Ferroelectrics. 2018. V. 532. № 1. P. 199.
- Bilyk V.R., Grishunin K.A. Complex Refractive Index of Strontium Titanate in the Terahertz Frequency Range // Russ. Technol. J. 2019. V. 7. № 4. P. 71.
- Denev S.A., Lummen T.T.A., Barnes E., Kumar A., Gopalan V. Probing Ferroelectrics Using Optical Second Harmonic Generation // J. Am. Ceram. Soc. 2011. V. 94. № 9. P. 2699.