

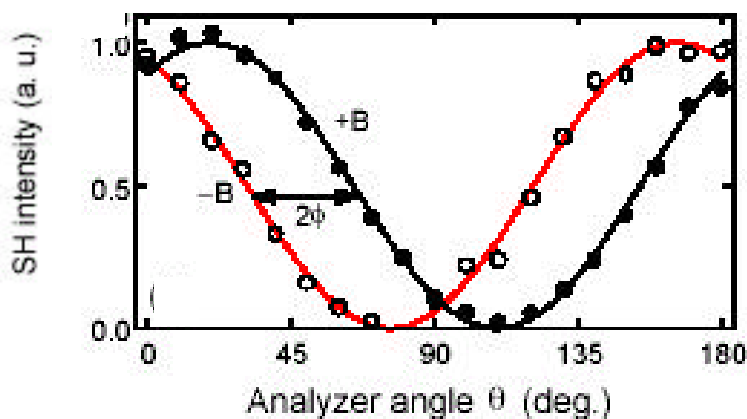
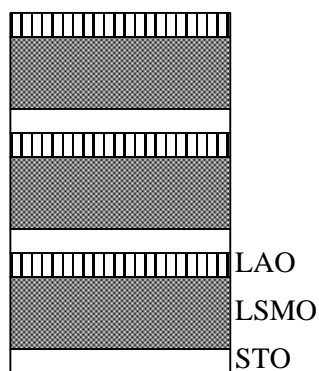
対称心のない磁性超格子における第二高調波発生

科技団 ERATO 有馬孝尚

レーザー光 (角振動数 ω) の照射によって第二高調波 (2ω の光) が発生する現象 (Second Harmonic Generation: SHG) はよく知られており、実際にレーザーの波長変換に用いられている。SHG を起こす系は空間反転対称性が破れている必要がある。電気分極を有する系では必然的に空間反転対称性が破れているので、強誘電体は化合物半導体とともに SHG 実用材料として広く用いられている。また、物質に強電場を印加することで強制的に空間反転対称性を破り SHG を観測した例も多い。

一方、SHG と磁性の結びつきも研究されてきている。具体的には、SHG を磁場や磁化によって制御したり SHG によって局所的な磁化の検出をしたりすることが期待される。ところが、強磁性体は強誘電体と異なり SHG 材料としての条件を満たしていない。すなわち、磁気双極子はミクロな回転電流であり空間反転操作を行っても反転しない。この点が電気双極子と全く異なる。よって、磁性イオンが反転対称心にある限り磁性体は SHG の舞台とならない。したがって、これまで磁気 SHG の研究対象として、強磁性体の表面や、磁性イオンが反転対称位置にないような特殊な結晶構造の反強磁性体が選ばれてきた。

われわれは、磁性体を含む 3 種類のペロブスカイト型酸化物を ABCABC... と積層した超格子を作製することで空間反転対称性を人工的に破り SHG を観測することに成功した。さらに、磁化方向を反転させることによって高調波の偏光状態が大きく変化することを確認し、磁気的な SHG であることの証拠を得た。また、界面の磁化の温度変化が超格子全体の磁化の温度変化と異なることを明らかにし、界面磁化測定手法としての有用性を示唆した。



作製した超格子はソフトな強磁性体 $\text{La}_{1-x}\text{Sr}_x\text{MnO}_3$ を非磁性の LaAlO_3 と SrTiO_3 ではさんだものであり、それが 10 周期繰り返されている。この超格子について、縦カー配置で SHG の実験を行なった。励起光は 800 nm のパルスレーザーで S 偏光である。強磁性転移温度より十分低温で、高調波の偏光状態を測定した結果を図に示す。横軸は高調波光用の検光子の角度であり P 偏光の場合を 0 度、S 偏光の場合を 90 度としている。図の 2 つの曲線は、磁場の向きを逆転させたときの結果を示している。これより磁化の向きに依存しない原子配列由来の P 偏光の高調波と、磁化の向きで符号を変える磁性由来の S 偏光の高調波が生じていることがわかる。

なお、本研究は科技団 ERATO スピン超構造プロジェクト (小川、十倉) と産総研 CERC (山田、川崎、小笠原、岡本、十倉) との共同研究によるものである。