

磁気光学効果の測定法

佐藤勝昭 (独)科学技術振興機構

はじめに

ここでは、磁気光学効果の具体的な測定の方法について述べる。単に測定の方法を示すだけでなく、その原理についての理解が得られるように配慮した。原理を知っていると測定法を改善したり、さらに広い応用を考えたりするときの助けになる。最初はスペクトルのことは考慮せず述べ、続いて分光測定の方法を述べる。最後に測定によって得られたデータからどのようにして誘電率などのパラメータを計算するかについて述べる。また、非線形磁気光学効果の測定法、近接場における磁気光学効果の測定法について触れる。

1. ファラデー効果とカー効果の測定¹

磁気光学効果の基礎理論で述べたように、ファラデー効果は透過光に対する磁気光学効果、磁気光学カー効果は反射光に対する磁気光学効果である。両者は、透過か反射かが違うだけで、直線偏光を入射したとき、透過光または反射光（一般には楕円偏光になっている）の主軸の回転角と楕円率角を測定する点はいずれもおなじである。

1.1 回転角のみの評価法

(1) クロスニコル法

最も簡単に磁気光学効果の回転角を評価する方法はクロスニコル法と呼ばれる方法である。すなわち、図1(a)に示すように偏光子と検光子を直交させておき、この間に試料をおき、光の進行方向に磁化する。光検出器に現れる出力 I は、ファラデー回転を θ_F として、

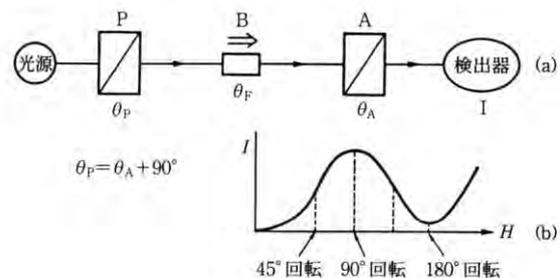


図1 クロスニコル法

$$I = I_0 \cos^2(\theta_P + \theta_F - \theta_A) \quad (1)$$

と表される。ここに θ_P 、 θ_A はそれぞれ偏光子と検光子の透過方向の角度を表している。直交条件では、 $\theta_P - \theta_A = \pi/2$ となるので、この式は

$$I = I_0 \sin^2 \theta_F = (I_0/2)(1 - \cos 2\theta_F) \quad (2)$$

となる。 θ_F が磁界 H に比例するとき、 I を H に対してプロットすると図1(b)のようになる。 θ_F が 180° の整数倍のとき I は 0 になるはずであるが、実際には、楕円偏光性のために図のように右上がりの曲線となる。この方法は手軽であるが、回転角を精度よく評価する目的には適していない。このため以下に述べるようなさまざまな変調法が考案されている。

(2) 振動偏光子法

図2のように偏光子と検光子を直交させておき、偏光子を図のように

$$\theta = \theta_0 \sin pt \quad (3)$$

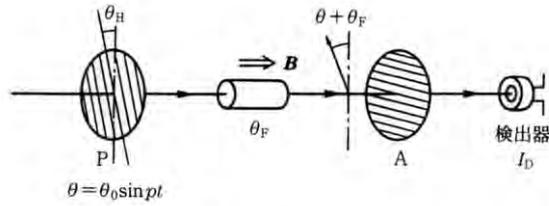


図2 振動偏光子法

で表される小さな角度 θ_0 の振幅で角周波数 p で振動させると、信号出力 I_D は、

$$\begin{aligned}
 I_D &\propto I_0 \sin^2(\theta + \theta_F) = (I_0/2)\{1 - \cos 2(\theta + \theta_F)\} \\
 &= I_0 \{1 - J_0(2\theta_0) \cos 2\theta_F\} / 2 \\
 &\quad - I_0 J_2(2\theta_0) \cos 2\theta_F \cdot \cos 2pt \\
 &\quad - I_0 J_1(2\theta_0) \sin 2\theta_F \cdot \sin pt
 \end{aligned}
 \tag{4}$$

となる．ここに、 $J_n(x)$ は n 次のベッセル関数である． θ_F が小さければ、角周波数 p の成分が光強度 I_0 および θ_F に比例し、角周波数 $2p$ の成分はほぼ光強度 I_0 に比例するので、この比をとれば θ_F を測定できる．

(3) 回転検光子法

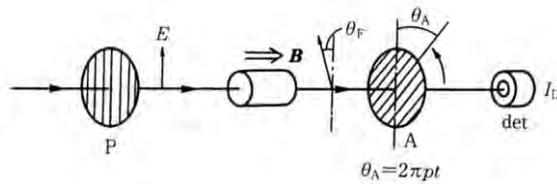


図3 回転検光子法

図3に示すように、検光子が角周波数 p で回転するならば、 $\theta_A = pt$ と書けるので、検出器出力 I_D は、

$$\begin{aligned}
 I_D &= I_0 \cos^2(\theta_F - \theta_A) \\
 &= (I_0/2)\{1 + \cos 2(\theta_F - pt)\}
 \end{aligned}
 \tag{5}$$

と表されるので、角周波数 $2p$ の成分の位相のズレを位相検出形のロックインアンプによって測定すれば、 θ_F が求められる．フーリエ変換によって位相を求めることもできる．

(4) ファラデーセル法

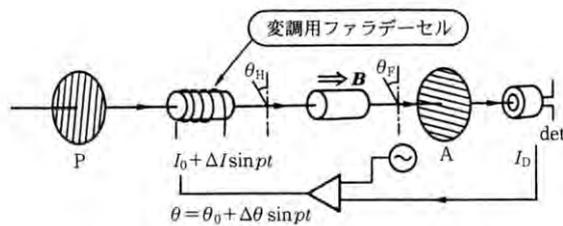


図4 ファラデーセル法

図4に示すように、ファラデーセルを用い直線偏光に

$$\theta = \theta_0 + \Delta\theta \sin pt$$

だけの回転を与える．ここに、 θ_0 は直流成分、 $\Delta\theta$ は角周波数 p の交流成分の振幅である．

このとき検出器出力 I_D は、

$$\begin{aligned}
I_D &= I_0 \sin^2(\theta_0 - \theta_F + \Delta\theta \sin pt) \\
&= (I_0/2) \{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F + \Delta\theta \sin pt)\} \\
&= (I_0/2) \{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F) \cos(2\Delta\theta \sin pt) + \sin 2(\theta_0 - \theta_F) \sin(2\Delta\theta \sin pt)\} \quad (6) \\
&\approx (I_0/2) \{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F) J_0(2\Delta\theta)\} \\
&\quad + I_0 \sin 2(\theta_0 - \theta_F) J_1(2\Delta\theta) \sin pt \\
&\quad - I_0 \cos 2(\theta_0 - \theta_F) J_2(2\Delta\theta) \cos 2pt
\end{aligned}$$

となって、 p 成分の強度は $\sin(\theta_0 - \theta_F)$ に比例する。もし、この信号を0にするように $(\theta_0 = \theta_F)$ となるようにファラデーセルに流す電流の直流成分にフィードバックすると、この直流成分は回転角に比例する。この方法は、零点法なので精度の高い測定ができるという利点をもつが、コイルに流す直流電流による発熱によって、変調振幅がドリフトすること、試料に加える磁界をファラデーセルが感ずること、ヴェルデ定数の波長依存性のため、スペクトルの測定がむずかしいことなどの欠点もある。

1.2 楕円率の評価法

1.1 に記した方法で楕円率を評価するためには、4分の一波長板 ($\lambda/4$ 板と略称) を用いて楕円率角を回転に変換して測定する。以下にはその原理について述べる。図5に示すように楕円率角 η (rad)の楕円偏光が入射したとすると、その電気ベクトルは $\vec{E} = E_0(\cos\eta\vec{i} + i\sin\eta\vec{j})$ で表される。

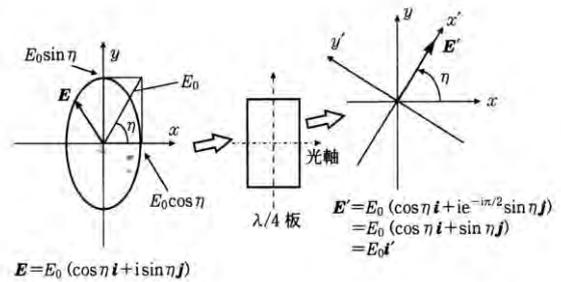


図5 4分の1波長板を用いた楕円率の測定

(\vec{i}, \vec{j} はそれぞれ x, y 方向の単位ベクトル) x 方向に光軸をもつ $\lambda/4$ 板を通すと、 y 方向の位相は 90° 遅れるので、出射光の電界は

$$\vec{E}' = E_0(\cos\eta\vec{i} + i \exp(-i\pi/2)\sin\eta\vec{j}) = E_0(\cos\eta\vec{i} + \sin\eta\vec{j}) \quad (7)$$

となるが、これは、 x 軸から η (rad) 傾いた直線偏光を表している。従って、入射楕円偏光の長軸の方向に $\lambda/4$ 板の光軸をあわせれば、1.1 に述べたいずれかの回転角を測定する方法で楕円率角を測定できる。 $\lambda/4$ 板は、通常結晶の屈折率の異方性を用いているので、原則として波長ごとに変える必要であるが、最近では、屈折率の分散を利用したアโครマティックな (波長に依存しない) $\lambda/4$ 板も市販されている。

広い波長範囲で楕円率を測定するには、バビネソレイユ板とよばれる光学素子がある。これはくさび形の複屈折素子を2個使って、光路長をネジマイクロメータで調整することによって、位相差の調整ができるようになっているので、波長にあわせて、順次マイクロメータを調整すれば、広い波長範囲を追跡できる。

しかし、楕円率を評価するのに最も適しているのは下記の方法である。

1.3 光学遅延変調法：回転角，楕円率角の同時測定^{4,5)}

図6のように偏光子のすぐ後にピエゾ光学変調器 (商品名 PEM=光弾性変調器) をおき、光学遅延 (リターデーション) を変調する。偏光子の偏光角は PEM の光学軸と 45° になるように、また、検光子の角度は光学軸と平行

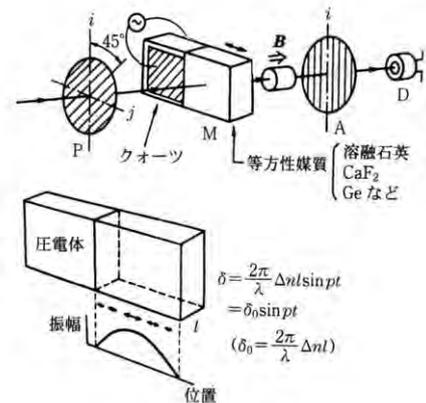


図6 光学遅延変調法

になるようにセットする. 変調器による光学遅延 δ が

$$\delta = \delta_0 \sin pt$$

となるならば, 光検出器の出力 I_D は

$$\begin{aligned} I_D &= (I_0/2)\{1 + 2\eta_K \sin(\delta_0 \sin pt) - \sin 2\theta_K \cos(\delta_0 \sin pt)\} \\ &\approx (I_0/2)\{1 - 2\theta_K J_0(\delta_0)\} + I_0 \cdot 2\eta_K J_1(\delta_0) \sin pt - I_0 \cdot 2\theta_K J_2(\delta_0) \cos 2pt \end{aligned} \quad (8)$$

となり, p 成分が楕円率に, $2p$ 成分が回転角に比例する. 変調器による複屈折の変調振幅を Δn とすると, $\delta_0 = 2\pi\Delta n \ell / \lambda$ であるから, もし Δn が一定であれば, δ_0 は波長依存性を持ち, 従って, 上式の $J_1(\delta_0)$, $J_2(\delta_0)$ は波長依存性を持つてしまう. しかし, PEMでは, 複屈折の変調振幅 Δn を外部から電圧制御できるので, $0.2\mu\text{m}$ から $2\mu\text{m}$ の広範囲にわたって, リターデーションの変調振幅 δ_0 を一定に保つことができる.

この方法は, 1つのセッティングによって回転角と楕円率の両者のスペクトルを広い波長範囲で測定できるので便利な方法である.

1.4 ファラデー効果と電磁石

ファラデー効果を測定するには, 磁界と光の進行方向が平行になるよう配置する. これをファラデー配置という. 磁束密度が数十mT以下の弱い磁界であれば空心ソレノイドを用いることができるが, 100 mT~2 Tの磁

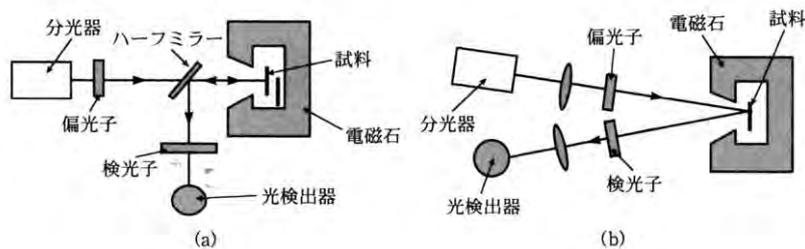


図7 極カー効果測定配置図

界を必要とする場合, 磁極を貫通する孔をもった鉄心の電磁石を用いる. さらに強い磁界 (1~10 T) が必要なときには超伝導電磁石を用いる. 数十 Tの強磁界についてはパルス電磁石が用いられる.

1.5 磁気光学カー効果の光学素子の配置について

(1) 極カー効果

極カー効果は垂直入射の反射についての磁気光学効果である. この測定のための最も簡便な方法は, 図7(a)に示すようにハーフミラーを用いる方法である. この方法は, 入射光と反射光が同一軸上にあるので, 磁極にあける孔は小さくてすむという利点をもつ. しかし, ハーフミラーを使って光を曲げるため, 使用波長領域に制限があること, 斜め反射されてくる光の偏光性が乱れるため, 限られた波長領域でしか用いることができないなどの欠点がある. Crの蒸着ミラーを用いた場合, 回転角の誤差を5%以内に抑えるには, 波長範囲を400-800 nmに限らなければならない. He-Neレーザの波長では, ハーフミラー使用することによる誤差は1%以下である.

広い波長範囲にわたってカー効果を正確に測定するには, 偏光子-変調器-試料-検光子の間の光路には, レンズ, ミラーなどの光学素子は一切挿入しないようにしなければならない. しかし, これを守ろうとすると, どうしても図7(b)に示すように, 斜め入射の配置をとる必要がある. このことによる誤差は, 斜め入射の場合の極カー効果を表す式,

$$\begin{aligned} \tan \Phi_K &= \frac{r_{sp}}{r_{pp}} = \frac{\varepsilon_{xy} \cos \varphi_0}{\sqrt{\varepsilon_{xx}} (\cos \varphi_0 + \sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_2) (\cos \varphi_2 - \sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_0)} \\ &= \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}} \left(1 + \sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_2 / \cos \varphi_0\right) \left(1 - \sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_0 / \cos \varphi_2\right) \cos \varphi_2} \end{aligned} \quad (9)$$

がどの程度垂直入射の式に近いかで評価できる。例として、磁性体の屈折率を2.5とすると、入射角 φ_0 を 6° , 8° , 10° , 12° と変えたとき $\cos\varphi_0$ は0.9945, 0.9902, 0.9848, 0.9781, $\cos\varphi_2=0.9991$, 0.9984, 0.9976, 0.9965となり, $\cos\varphi_2/\cos\varphi_0$ はそれぞれ, 1.005, 1.008, 1.013, 1.019となりこれを $1+\Delta$ と置くと, 上式は

$$\tan\Phi_K \approx \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}(1-\varepsilon_{xx}+2\sqrt{\varepsilon_{xx}\Delta})}\cos\varphi_2} \approx \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}(1-\varepsilon_{xx})}\left(1+2\sqrt{\varepsilon_{xx}\Delta}/(1-\varepsilon_{xx})\right)\cos\varphi_2}$$

と書くことができる。誘電率を10としたとき, 入射角 φ_0 を 6° , 8° , 10° , 12° に対し計算すると, それぞれ0.59%, 0.39%, 0.67%, 0.97%の誤差で垂直入射とみなせることがわかる。実用上入射角 10° 程度ならば1%以下の誤差で垂直入射とみなすことができる。

(2) 縦カー効果

図8には, 縦カー効果の測定のための斜め入射磁気光学スペクトル測定用の配置が示されている。縦カー効果は, 磁性体が面内磁化を持つ場合に適しているので多くの磁性体薄膜の表面の磁化評価法としてよく用いられる。特に, 高真空の成膜装置においてin situで磁化を観察する手段として用いられる。これをSMOKE (surface magneto-optical Kerr effect)と称する。

また, 磁気ヘッドなどの磁化の状態を観測するための顕微鏡にも縦カー効果が用いられている。

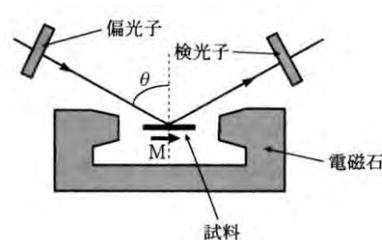


図8 縦カー効果測定系

1.6 スペクトルの測定

図9に, 磁気光学スペクトル測定系の模式図を示す。システムは, 光源, 分光器, 偏光子, 電磁石, クライオスタット, 検光子, 検出器から構成される。

(1) 光源

光源としては, 可視～赤外領域

(400-2000nm) にはハロゲンランプ, 近紫外～可視～近赤外 (200-1000nm) には, キセノンランプを用いることができる。ハロゲンランプはスペクトル分布が平坦で, かつ, 時間的に変動が少ないので分光測定に適しているが, 短波長の強度が弱いのが欠点である。

キセノンランプは, 波長200nmくらいの短波長でも十分な強度がとれるが, 赤外部には輝線があるので, 細かい測定をする場合, 注意が必要である。キセノンランプには紫外光を出さないような窓材が使われているオゾンレスというタイプと広帯域用として売られている熔融石英窓を使ったものがあるので, 注意が必要である。200 nmより短波長の測定には重水素ランプが使用される。このランプは大変強度が弱い, 可視光の出力がほとんどないので, キセノンと違って, 次に述べるような迷光の心配はない。

(2) 分光器

分光器は, 測定する目的が高分解能を必要とする特殊な場合 (たとえば, 不純物として添加された希土類や遷移元素における多重項間の遷移の磁気光学効果) を除いて, 分解能よりも明るさに重点を置き

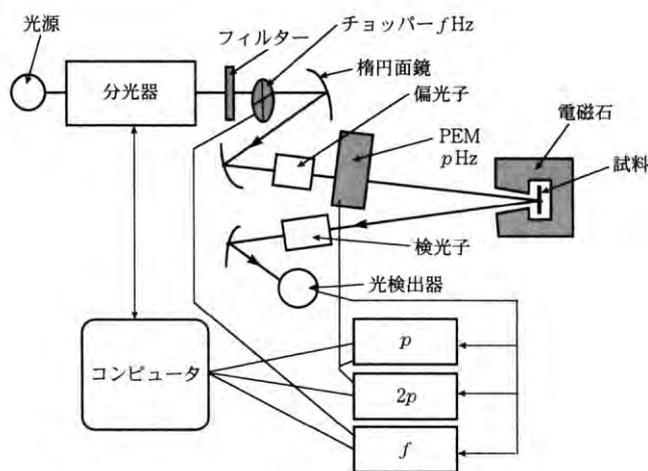


図9 磁気光学スペクトルの測定系模式図

て選ぶ必要がある。焦点距離25cm程度で、 f ナンバーが3-4のものが望ましい。また、キセノンランプを光源として紫外領域の測定を行う場合、シングルモノクロメータでは迷光の可視光が強いため、誤った測定結果をもたらす心配がある。バンドパスフィルタを注意深く選択するか、ダブルモノクロメータを使用することをお勧めする。また、回折格子のブレイズ波長より短波長側では、回折能率が急落しているので測定に注意が必要である。紫外光の光源に長時間曝されると回折格子、ミラーなどが劣化するので注意が必要である。

(3) 光学系

集光に用いる光学系は、測定波長範囲が狭いとき（たとえば、可視光領域400-800nm）はレンズで十分である。しかし、近紫外から近赤外におよぶ広い波長範囲（たとえば、200-1000nm）では色収差が大きく、焦点位置のずれは1cm以上に達する。このような場合には楕円面鏡を用いるとよい。楕円面鏡は色収差がなく、像のゆがみも少ないという利点をもつが、高価であることが欠点である。また、きちんと調整しないと十分な性能を発揮しない。また、表面コーティング（通常ふっ化マグネシウム）の厚みを正確に制御しないと、反射率が悪くなることもある。

(4) 偏光子

偏光子の選択は、磁気光学効果の測定においては重要である。ポラロイド板などの二色性偏光子は、安価であること、狭い場所に挿入できることなどの利点があるが、消光比がせいぜい1/100程度なので、精密な測定には不向きである。また、使用できる波長範囲は異方性吸収帯の存在域に限られるためかなり狭い。

高い消光比を得るには、方位の異なるプリズム型の2つの複屈折結晶を貼り合わせた偏光子を用いる。最も、古くから知られているのはニコルプリズムと呼ばれるものであるが、現在はあまり使われない。近紫外-可視-赤外領域(300-2000nm)で最もよく用いられるのは、方解石のグラントムソンプリズムである。この偏光子は、単像（一方の偏光のみ透過）で、視野角も比較的大きいので使いやすい。しかし、均質で大きな方解石の入手が困難なため、口径の大きなものは高価である。

250nmより短波長では、方解石に含まれる不純物のために光が通らない。このため、石英やふっ化マグネシウムを用いたロションプリズムが使用される。この偏光子は複像であり、常光線と異常光線の分離角がかなり小さいため、不要な偏光を取り除くためのスリットなどが必要である。

(5) 光検出器

光検出器は、紫外から近赤外までの範囲で、光電子増倍管(PMT)が用いられる。分光感度特性がなるべく広いものが望ましい。親和力を下げた半導体(GaAs, GaInAsなど)を光陰極として有するPMTが特に広い波長特性をもつ。現在では1.8 μ mの赤外線まで使えるPMTが市販されている。PMTの場合、光陰極と陽極の間にかかる電圧を増減することによって、感度を制御できるので、変調法の測定では、DC成分が一定になるように、フィードバックをかけて用いると、信頼性のある磁気光学信号が得られることが知られている。赤外領域に関しては、半導体のフォトダイオードが用いられるが、PMTに比べ有効なフィードバック方法がないため、光源の明るさを制御するなどの方法が採られることもある。フォトダイオードとしては、Si, Ge, InSb, CdHgTeなどが用いられている。

1.7 絶対値の校正について

ファラデーセルのような零位法による測定の場合には、フィードバックして0にするのに必要な電流とファラデーセルの回転角との関係をあらかじめ校正しておく必要がある。

光学遅延変調法の場合、回転角の校正には、試料の代わりに鏡をおき、検光子を45°回転して通常と同様に測定し、係数などのパラメータを決定する方法⁴⁾や、検光子をわずかな角度回転したときの信

号の変化をあらかじめ調べておき、それとの比較から決めるという方法が用いられる⁵⁾。また、楕円率の校正には、適当な厚みのサファイア板を使う。波長を変えた測定を行った場合、光学遅延が $\pm 90^\circ$ のときに信号が正負のピークをもつことからその包絡線関数を校正に用いることができる⁶⁾。

1.8 磁気光学スペクトルから誘電率テンソルの非対角成分を求める方法

本節では、前節の測定によって磁気旋光角 θ と磁気楕円率角 η （または、磁気円二色性）が得られた場合に、誘電率テンソルの非対角成分のスペクトルを計算する方法について述べる。

巨視的に見た場合、磁気光学効果は誘電率テンソル（または導電率テンソル）の非対角成分に由来するが、前項の(33)式（ファラデー効果）および(40)式（カー効果）に示すように、複素旋光角 Φ は誘電率テンソルの非対角成分 ε_{xy} だけでなく、対角成分 ε_{xx} にも依存する。

従って、誘電率テンソルによる解析のためには、何らかの方法で光学定数 n 、 κ または、誘電率の対角成分 ε_{xx} の実数部および虚数部のスペクトルが必要である。

光学定数 n 、 κ のスペクトルを直接求める方法としては、分光エリプソメトリという方法がある。エリプソメトリというのは、斜め入射での反射の際に、p偏光とs偏光が受ける光学的応答の違いを利用して、物質の光学定数を求める方法で、偏光解析とも呼ばれる。ある物質のp偏光に対するフレネル係数を r_p 、s偏光に対するそれを r_s とすると、 $r_p/r_s = \rho \exp i\Delta = \tan \Psi \exp i\Delta$ と書けるが、エリプソメトリ装置で直接測定できるのはこの Ψ と Δ である。入射角がわかるとこれらの値から計算によって光学定数を求めることができる。分光エリプソメトリは、この操作を波長を変えて行うものである。

市販の分光エリプソメータのカバーする領域は800nm(近赤外)~300nm(近紫外)の狭い波長範囲である。これより広い波長範囲で光学定数を求めるためによく用いられるのが反射スペクトルのクラマース・クローニヒ解析から求める方法である。この方法は、測定した反射スペクトル $R(\omega)$ に適当な外挿を行って、クラマース・クローニヒの関係式、

$$\Delta\theta(\omega) = \frac{\omega}{\pi} \oint_0^\infty \frac{\ln R(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad (10)$$

を用いて反射の際の位相変化（移相量） $\Delta\theta(\omega)$ を求め、 $R(\omega)$ と $\Delta\theta(\omega)$ から $n(\omega)$ 、 $\kappa(\omega)$ を計算する。実際に測定されるエネルギー範囲は有限であるから、それ以上のエネルギーの範囲については外挿を行う。このパラメータを適当に調節して分光エリプソメータの実験値を再現するようにしている。

$$n(\omega) = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega) + 2\sqrt{R(\omega)} \cos \Delta\theta(\omega)} \quad (11)$$

$$\kappa(\omega) = \frac{2\sqrt{R(\omega)} \sin \theta}{1 + R(\omega) + 2\sqrt{R(\omega)} \cos \Delta\theta(\omega)}$$

このようにして求めた $n(\omega)$ 、 $\kappa(\omega)$ を用いて、磁気旋光角 θ および楕円率角 η から ε_{xy} が次のように計算できる。ファラデー効果の場合、

$$\varepsilon'_{xy} = -\frac{2c}{\omega\ell} (\kappa\theta_F + n\eta_F) \quad (12)$$

$$\varepsilon''_{xy} = \frac{2c}{\omega\ell} (n\theta_F - \kappa\eta_F)$$

極カー効果の場合、

$$\varepsilon'_{xy} = n(1 - n^2 + 3\kappa^2)\theta_K - \kappa(1 - 3n^2 + \kappa^2)\eta_K \quad (13)$$

$$\varepsilon''_{xy} = \kappa(1 - 3n^2 + \kappa^2)\theta_K + n(1 - n^2 + 3\kappa^2)\eta_K$$

によって計算できる。

2 コットンムートン効果の測定

コットンムートン効果は、光の進行方向と磁界（磁化）の方向が垂直である場合の磁気光学効果である。この効果は、光学遅延として現れる。

図10は、PEM(光弾性変調器)を用いた磁気複屈折の測定装置である。この測定装置は基本的には4.4.1(c)に述べた光学遅延変調法によるファラデー効果、磁気光学カー効果の測定法と同じである。偏光子の偏光角はPEMの光学軸と45°になるように配置する。違う点は、ファラデー効果の場合、検光子の角度は光学軸と平行になるようにセットしたのに対し、コットンムートン効果の場合は光学軸と45°の方向にセットすることである。

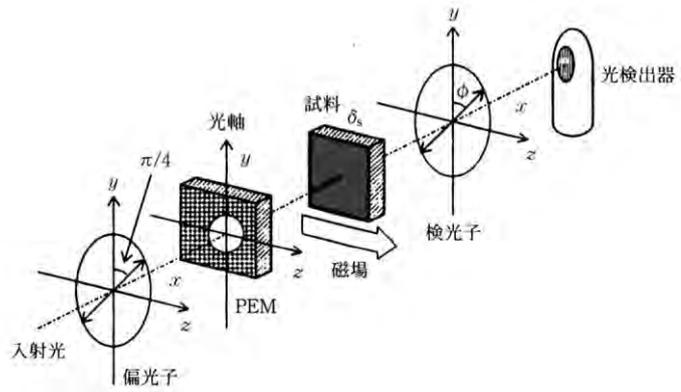


図 10 コットンムートン効果測定系

PEMによる光学遅延 δ が

$$\delta = \delta_0 \sin pt \quad (14)$$

で表されると仮定し、試料による光学遅延を δ_s と仮定するならば、光検出器の出力 I_D は

$$I_D = I_0 \{1 + \cos \delta_s \cos(\delta_0 \sin pt) - \sin \delta_s \sin(\delta_0 \sin pt)\} \approx I_0 + I_p \sin pt \quad (15)$$

ここに直流成分 I_0 および交流成分 I_p は

$$\begin{aligned} I_0 &= 1 + J_2(\delta_0) \cos \delta_s \approx 1 + J_2(\delta_0) \\ I_p &= -J_1(\delta_0) \sin \delta_s \approx -J_1(\delta_0) \delta_s \end{aligned} \quad (16)$$

で表される。従って、 p 成分と直流成分の比をとることによって光学遅延 δ_s がえられる。

3. 非線形磁気光学効果の実験的検証

3.1 MSHG の大きさの評価と実験^{2,3}

非線形磁気光学効果のうち、磁気誘起第2高調波発生(MSHG)とは、磁性体に強いレーザ光を当てることによって生じた第2高調波(SHG)が磁界に依存する効果である。通常、磁性体は反転対称性をもつのでバルクではMSHGが生じないが、表面や、人工格子・多層膜の界面では対称性が破れ、MSHGを観測することができる。

初期の実験はNd:YAGのQスイッチパルスレーザを用いて測定された。従って、生のデータはかなりのノイズを含んだものであった。その後、繰り返し周期の高いチタンサファイアレーザが使われるようになって、実験の信頼性は遙かに向上し研究

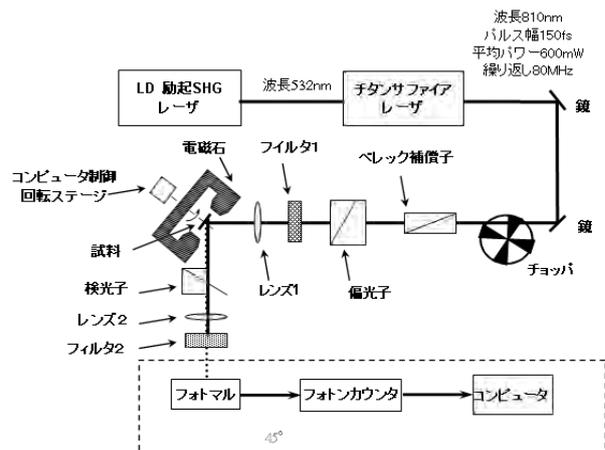


図 11 非線形磁気光学効果測定系

の幅も広がった。

装置の概略を図 11 に示す。使用した光源はモードロックパルス Ti-サファイアレーザ(波長 810 nm, 繰り返し 80 MHz, パルス幅 150 fs)である。偏光方向はベレック補償子を回転することにより任意の方向に設定される。レーザビームはレンズ 1 によって試料上に $50\mu\text{m}$ 程度のスポットに絞られる。レンズで集光したときのピーク光密度は試料面上で $0.5\text{GW}/\text{cm}^2$ に達する。色フィルタ 1 は 650nm より短い波長をすべてカットすることにより、試料で生成されたのではない 2 次高調波を取り除く。試料は電磁石の磁極の間におかれ縦カー配置(入射面内に平行に磁界を印加)をとる。反射されてきた 1 次光と発生した SHG 光の強度比が非常に大きいので、フィルタの選択が非常に重要な意味を持つ。図では 1 次光を取り除くために色フィルタ 2 (HOYA-Schott BG39) を 2 枚用いている。レンズ 2 は紫外線透過レンズで、SH 光をフォトマルに集光する。チョッパは試料に当たる平均光強度を下げ、試料の損傷を防ぐためのものである。SH 光は色ガラスフィルタで選択され光子カウンティング法で測定される。試料付近の様子を図 12 に掲げる。試料は、SH 光強度の方位角依存性を測定するため、コンピュータ制御の回転ステージに取り付けられた。また、非線形カー効果の測定のために、検光子もコンピュータ制御で回転できるようになっている。

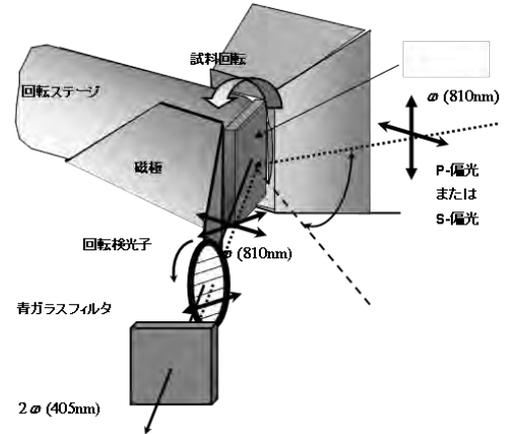


図 12 試料付近の詳細図

3.2 磁気誘起第 2 高調波発生(MSHG)と非線形カー効果

磁性体に強い光を入射したときに射出される第 2 高調波(SH)光が受ける磁気光学的応答を磁気誘起第 2 高調波発生(MSHG)と呼んでいる。MSHG の実験データは、1990 年の Aktsipetrov の Bi 添加磁性ガーネット薄膜についての研究⁴および 1991 年の Reif らの Fe 表面についての研究⁵が最初である。しかし、この頃のデータはばらつきが多く必ずしも信頼性が高いとはいえなかった。Spierings らは 1993 年埋め込まれた Co/Au の境界面における非線形磁気光学効果を測定している⁶。Reif らは 1993 年 PtMnSb について 14° という大きな値を報告した⁷。

図 13 は Fe(110)の横磁気カー配置の MSHG ヒステリシス・ループ(a)を線形横カー効果のヒステリシス・ループ(b)と比較したものである。MSHG の方が線形カー効果より高い SN 比が得られている。

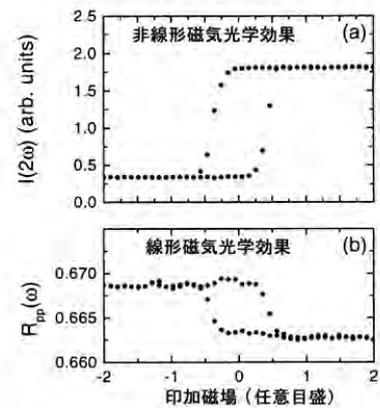


図 13 MSHG ヒステリシス・ループ

MSHG は 1994 年以降急速に研究が進み、次々に信頼性のあるデータが報告されるようになった。ここではその数例を紹介する。

(1) Fe 超薄膜および単結晶の非線形カー効果

Pustogowa らは、バンド計算に基づいて Fe の非線形磁気光学スペクトルを理論的に導き、線形の場合に比べかなり大きな値を持つことを予言した⁸。これを受けて、Rasing らは、スパッタ法で作製した Fe/Cr 膜において非線形磁気光学効果を測定し

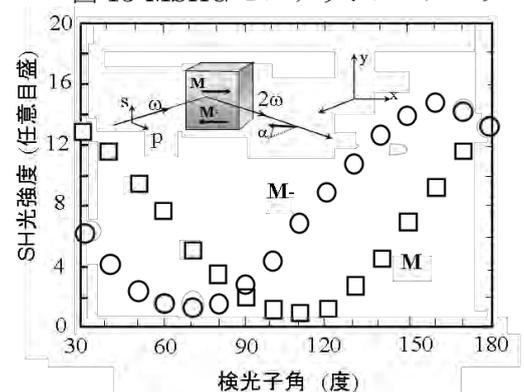


図 14 Fe/Cr 界面からの SH 光強度の検光子角依存性

た⁹。測定にはチタンサファイアレーザを用いた測定系を使用した。図 14 は縦カー効果の配置で s 偏光 (波長 770 nm) を 45° 斜め入射したときの出射光の第 2 高調波成分の偏光性を、検光子回転により測定した出力の偏光依存性である。この曲線は磁化の向きに依存して大きなシフトを示す。M+と M-の 2 つの曲線が極小をとる角度の差は、カー回転角 $\theta_K^{(2)}$ の 2 倍を与える。図の場合、非線形カー回転角 $\theta_K^{(2)}$ は 17° であることがわかる。同じ配置で線形の縦カー回転角 $\theta_K^{(1)}$ を測定したところ 0.03° であったという。非線形カー効果は、線形カー効果に比べ大きな値をもつことが証明された。

非線形磁気光学効果の入射角依存性が、Fe のひげ (ウィスカー) 単結晶を用いて測定された。図 15 は表面に Cr のキャップをつけた Fe (▲)、Au のキャップをつけた Fe (●) およびキャップをつけない Fe (■) の線形および非線形カー回転角の入射角依存性を示している。線は理論的にフィットした曲線である。80° という巨大な非線形磁気光学効果が観測された。縦磁気カー効果は、図の上段のように線形の場合には入射角が 0 に近づくとき減少するのに対し、非線形の場合には図の下段のように入射角が減少するとともに増加し、垂直入射 (入射角 0) 付近では非常に大きな値になる。

(2) サンドイッチ膜の MSHG の量子振動

Cu/Co/Cu(001) サンドイッチ構造膜における量子井戸状態の電子が関与する非線形磁気光学効果のあらましのみを紹介する。

Rasing らは Cu(001) 基板上に成長した Co(10ML) に Cu キャップ層を付けた 2 層膜について、非線形磁気光学応答 $\rho^{(2)}$ (pp)、および $\rho^{(2)}$ (sp) の Cu 層厚依存性を測定した¹⁰。図 16 に示すようにこれらの応答には人工格子の巨大磁気抵抗効果 (GMR) に見られるような振動構造が観測された。しかし、線形磁気光学効果には振動構造は見られなかった。この振動には、5ML と 2-3ML の 2 つの振動周期が見られる。長い周期は光電子スペクトルに見られるものと同じであり、短い周期は以前に Co/Cu/Co 系で線形カー効果に見られているものと同じであることから、Cu 層にスピン偏極量子閉じこめをうけることによって誘起された磁化が原因であると解釈される。線形効果では見られないものが非線形効果で見られたことについては、超薄膜における量子効果が界面付近の状態密度に主に影響することが原因であると考えられている。非線形磁気光学効果はスピン依存量子サイズ効果の感度の高い測定手段である。Vollmer らはさらに詳細な実験を行い、理論的に論じている¹¹。

(3) 反強磁性体の非線形磁気光学効果

線形磁気光学効果は反強磁性体では観測されないが、非線形磁気光学効果は有限の値をもつことが報告されている。Fiebig らは、図 17 に示すような反強磁性体 Cr₂O₃ の SHG スペクトルを報告している¹²。SHG スペクトルは左右円偏光に対し異なる応答を示したが、ネール温度 (T_N) 以上では一致した。反強磁

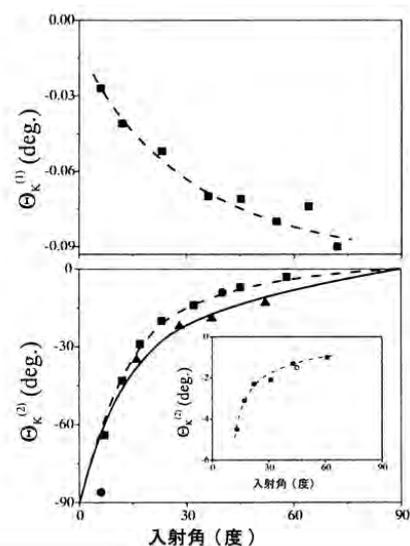


図 15 S-偏光入力の際の Fe 表面の縦カー回転角の入射角依存性：▲：Fe/Cr、●：Fe/Au、■：キャップなし Fe。挿入図は P 偏光入力の際の非線形カー回転

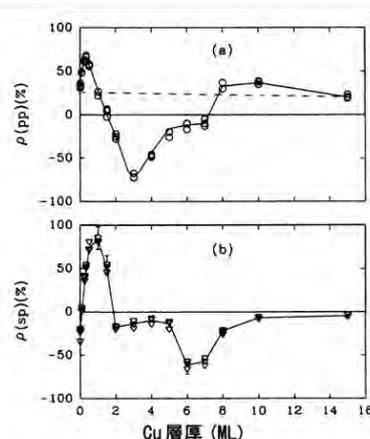


図 16 Cu/Co 2 層膜における非線形磁気光学効果の Cu 層厚 (単位 ML=monolayer) 依存性

(a) ρ (pp) : Pin-Pout の振幅反射率、
(b) ρ (sp) : Sin-Pout の振幅反射率

性ベクトルの異なる磁区では、左右の応答は逆転した。磁気対称性を考慮した理論によれば、SH強度は非線形磁化にもとづく3階の磁気双極子感受率による項、非線形分極にもとづく3階の電気双極子感受率、および、両者の干渉項でからなり、左右円偏光を逆転するか、時間を反転する（つまり反強磁性ベクトルを反転）ことによって符号を変える。反強磁性体の非線形磁気光学のスペクトルは、Tanabeらにより、磁気点群を考慮した理論によって説明された¹³。

4. 近接場における磁気光学効果¹⁴

4.1 原子間力制御 SNOM(SNOAM)

本研究で開発した近視野磁気光学顕微鏡の基礎となった SNOM 装置システムは、走査プローブ顕微鏡（セイコーインスツルメンツ（株）SPI3700）である。プローブとサンプル間の制御は原子間力顕微鏡（Atomic Force Microscope: AFM）の原理を用いているため、走査型近視野原子間力顕微鏡（Scanning Near-Field Atomic Force microscope: SNOAM）と呼称している（エラー! ブックマークが定義されていません。、エラー! ブックマークが定義されていません。、エラー! ブックマークが定義されていません。）。

Ar イオンレーザから照射されたレーザ光(波長 488nm、出力 50mW 以下)を、光ファイバカップラーのレンズで集光し、プローブへ導入する。プローブは、先端を金属被覆し微少開口(開口径 100nm 以下)を持たせたベントタイプの光ファイバ・プローブである。導入されたレーザ光は、光ファイバのコア層内で全反射を繰り返し、開口部へ向かう。開口部では、全反射光学系で存在するエバネッセント波と伝播光の両方の光が漏れ出

す。微小開口における近接場光学理論より、エバネッセント波は、開口から距離の指数関数的に減衰する非伝播光で、開口から波長より短い距離に強く存在する。図 18 に本研究で用いた透過型の SNOM/AFM 装置システムの概略図を示す。

プローブ先端とサンプル間の距離は、光てこ方式の原子間力顕微鏡（AFM）によって制御される。このためプローブはベントタイプのプローブを使用する。AFM によってサンプルとプローブ先端の距離を近づけ、サンプルがエバネッセント波の存在する近接場に置かれると、エバネッセント光はサンプルによって散乱され伝播する光に変換され、レンズ、反射ミラー、と導かれ、フォトマルで検出され、電気信号に変換され、光の回折限界以上の分解能を得ることができる。

一方、伝播光成分は、回折限界以上の分解能は与えない。AFM でプローブとサンプル間の距離を近接場内に保ったままサンプル表面を走査すれば、エバネッセント波成分による透過光学像と AFM によるトポ像を同時に得ることができる。

4.2 装置構成

(1) 光源

光源として、Ar イオンレーザ (ION LASER TECHNOLOGY 社製;ILT5000、波長 488nm,514.5nm、

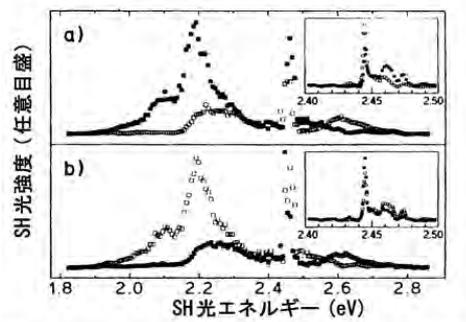


図 17 反強磁性体 Cr₂O₃ の第 2 高調波スペクトル (●右円偏光, ○左円偏光) (a)と(b)とは異なる反強磁性磁区に対応。

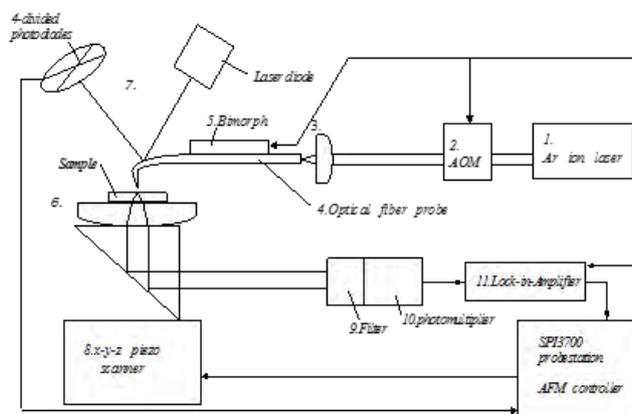


図 18 ベースになった SNOM システム

最大出力 50mW)を用いる。波長は、レーザ内部のミラーのアライメントより、2つの波長が得られるが、本研究では、488nm を選択している。

(2) 音響光学変調器(Acousto-Optic modulator:AOM)

光源から照射されたレーザ光を変調するため、音響光学変調器 AOM(NEOS 社製 ; N21080-1DS)を用いる。AOM は、変調器の結晶に音響波を発生させると、結晶がグレーティングのように働く音響光学効果を利用している。AOM を通過したレーザ光は、回折される。測定では、もっとも効果が高い1次回折光を用いる。また、ドライバのモードを **NORMAL** にしリファレンス信号を入力することにより、それと同期して、レーザ光をチョップし変調することができる。モードを **CW(Continuous Wave)**にすると、チョップせず連続したレーザ光が出射される。AOM のドライバには通常、プローブの固有周波数を入力する。

(3) カップラ、集光レンズ

AOM を通過し変調されたレーザ光を光ファイバ・プローブへ導入するため、倍率 20 倍のレンズでカップラへ集光する。

(4) 光ファイバ・プローブ

通常のシングルモード光ファイバ (コア径 $3.2\mu\text{m}$ 、クラッド外形 $125\mu\text{m}$) を曲げて先端を尖らせたもの (図 19) をプローブとして用いる。上述したように、プローブは、その制御に原子間力顕微鏡を用いているので、AFM 用のカンチレバーも兼ねている。そのためこのようなベントタイプ形状にする。

このような形状を作るには、まず、ファイバの曲げる位置に CO_2 レーザを照射する。レーザ光が当たった部分のコア層は熱で軟らかくなり、レーザ光の当たっている部分と逆側の表面張力の差により、ファイバを曲げることができる。

先端を先鋭化する方法には 2 通りあり、一つは、曲げる場合と同様に CO_2 レーザを照射し、融解させる。あらかじめプローブは引っ張られた状態にしており、ファイバは、細く引き伸ばされ切断される。これは熱引き法と呼ばれる。もう一つは、エッチング法で、フッ酸などが混合されたエッチング溶液にファイバを浸し、先鋭化させる。エッチング時間によって、プローブの特性が変化すると考えられている。

プローブの先鋭化した開口部分には、真空蒸着によって金属を被覆する。金属の被覆によりクラッド層からの漏れ光を防ぎ、伝搬光が散乱されることを防いでいる。被覆する金属膜はアルミや金が用いられている。

本研究で用いたプローブでは被覆する金属として Al を用いている。Al 被覆の厚みは 100-150nm、先端部の開口の直径は 80-100nm である。Al は酸化しやすいのでプローブの保存には注意が必要である。

(5) プローブ・ホルダ

プローブは、プローブ・ホルダに固定される。ホルダには、バイモルフ(振動子)があり、プローブをその固有周波数(約 15kHz)で振動させるために用いる。プローブの彎曲部が鉛直方向を向くよう取り付けるが、この装着には若干の習熟を要する。図 20 の写真は試料付近の拡大図である。プローブ・ホルダに



図 19 ベントタイプのファイバ・プローブ



図 20 試料付近の拡大図

取り付けられたベントタイププローブが試料の上に置かれているさまを示している。電線はバイモルフに 15kHz の交流電圧を印加するためのものである。

(6) ステージ、集光レンズ、反射ミラー

サンプルを透過した光を集光するのに、集光レンズを用いる。このレンズは、ステージになっており、 x - y - z ピエゾスキャナーによって制御される。反射ミラーは、サンプルを透過した光を光電子増倍管へ導くのに用いる。反射ミラーとしては、 s , p 偏光依存性を無くすためダイクロイックミラーを用いた。

(7) 光てこ (半導体レーザ、ディテクタ)

プローブ・ホルダ上に光てこ部のアセンブリがすっぽりと覆うように乗る。プローブと試料との間の原子間力による変位の差を検出するために、光てこを用いる。プローブの直線部の背の部分には反射ミラーが作られており、半導体レーザを照射し、反射光を 4 分割型ディテクタで検出する。プローブが原子間力を受け、たわむと光の反射角が変化するのでそれを検出する。

(8) AFM ユニット

この透過型 SNOM 装置は、AFM 装置に基礎が置かれており、プローブとサンプル間の距離の制御に光てこタイプ原子間力顕微鏡を用いている。

サンプルとプローブ間の距離を制御するのに、チューブ型 x - y - z ピエゾスキャナーを用いる。プローブはバイモルフ (水晶振動子) によって固有周波数で振動しており、プローブがサンプルに近づき、原子間力を受けると、その固有周波数が変化するので、この変化を光てこで検出し、スキャナーにフィードバックをかけ、位置を制御する。サンプル表面上の走査もピエゾスキャナーでステージを動かすことによって行われている。

(9) 受光系

プローブから出たエバネセント光は試料表面で伝播する光に変換され試料を透過する。光は集光レンズで集光される。レンズは試料ステージを兼ねており、 xyz ピエゾアクチュエータで微動することができる。透過光は偏光無依存のダイクロイックミラーで反射され、光てこ用の半導体レーザの光 (波長 633nm) をカットし Ar イオンレーザの光 (波長 488nm) だけを透過させるフィルタ (レーザラインフィルタ) と検光子を通して光電子増倍管に導かれる。ヘッドオン型でケーブル出力タイプである。感度波長 300~820nm で 10% 以上の量子効率を持つ。

(10) ロックインアンプ

フォトマルからの電気信号を、プローブの固有周波数をリファレンス信号にして出力し、コンピュータに入力する。これによって、AOM によるチョップと合わせて、固有周波数で振動しているプローブは、サンプルに最も近づいたときに光を照射し、コンピュータは、良い S/N 比で検出光成分を画像化することができる。後で述べるが、偏光変調のために PEM を用いるときは、このロックインアンプは PEM のリファレンス周波数にロックさせて用いる。

4.3 基本性能

本装置を用いてクロム薄膜標準試料 (石英基板上に成膜された膜厚 20 nm、 $2\mu\text{m} \times 2\mu\text{m}$ のクロスハッチ) を観察した結果を図 21 に示す。(a) は AFM によるトポ像、(b) は近接場像である。走査範

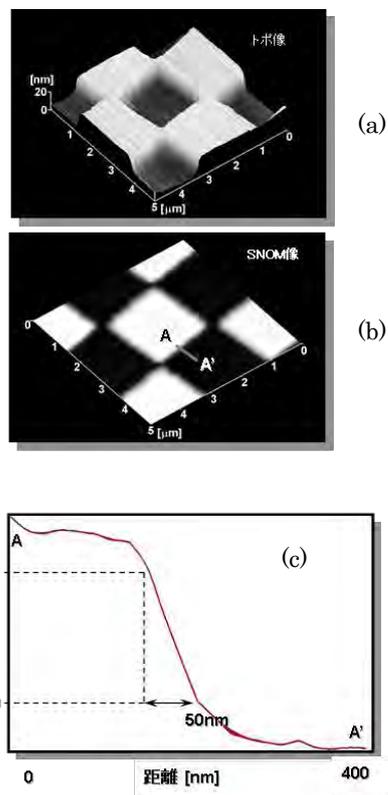


図 21 標準試料を用いた性能評価

囲は $5\mu\text{m} \times 5\mu\text{m}$ である。プローブの振動振幅は 10 nm 、試料-プローブ間の距離は $20\text{-}30\text{ nm}$ である。(a)のトポ像の高い部分はクロムのパターンを表しており、対応する近接場像では黒くなっている。これは、クロム薄膜の部分の透過率が低いことによる。図 21(b)において A-A'と記された線に沿っての光強度のプロファイルを示したのが図 21(c)である。プロファイルの光強度は、石英基板の平均強度で規格化されている。20%-80%を閾値として測った明部・暗部間のスロープの幅は 50 nm であった。なお、使用したファイバ・プローブの開口径は 70 nm であった。

4.4 偏光子・検光子法による磁気光学イメージング

直線偏光をプローブに入射し、試料の磁気光学効果による偏光の回転を検光子により検出すれば磁気光学効果を用いたイメージングができるはずである。しかし、実際にやってみると大変難しいことがわかる。まず、単なる光学像に比べ磁気光学像はコントラストが大変低いのである。一般にプローブ光の波長において十分な光の透過強度を保った場合、ファラデー回転としてはせいぜい $1\text{-}2^\circ$ と小さいためである。もう一つの原因は光ファイバ・プローブの偏光特性にある。ファイバを彎曲させたことおよび先端部を絞ったことにより、入射偏光は光学遅延(optical retardation)を受け楕円偏光になる。楕円の長軸と短軸の比の2乗が消光比と呼ばれるが、これが当初は9程度のものから400程度まで大きくばらついていて、これを補償するために2分の1波長板と4分の1波長板を組み合わせ、最適化すると消光比10程度のプローブでも70程度に改善される。ファイバの詳細な偏光特性については、後述する。

この方法により、磁性ガーネット薄膜に光磁気記録された磁気マークの観測を行った^{15,16}。図 22 は、Bi 置換ディスプロシウム鉄ガーネット(DyIG)薄膜 MO ディスクに光強度変調により光磁気記録された微小磁区($3\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$ および $0.7\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$)の MO-SNOM 像である。コントラストとしては0.3程度が得られたが、図 22 の拡大図に示すようにマーク形状がはっきりしておらず、十分な解像度が得られなかった。

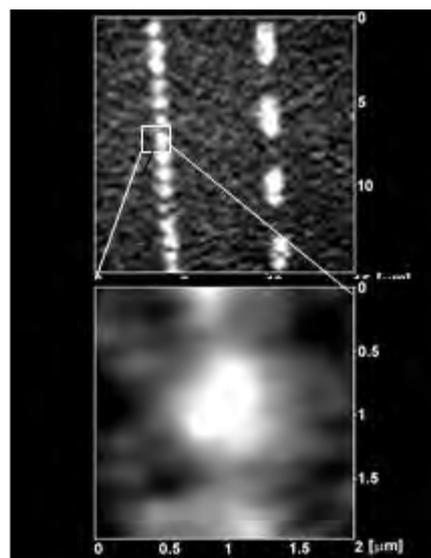


図 22 Bi 置換磁性ガーネットに記録された微小マーク($0.7\mu\text{m} \times 1\mu\text{m}$)の MO-SNOM 像

4.5 円偏光変調法による磁気光学イメージング

磁気光学効果は非常に小さいため偏光子・検光子法では検出感度が低いという問題があった。そこで、われわれは光弾性変調器(PEM)による円偏光変調法を適用することによって高感度化することを目指した。図 23 にこの方法のブロック図を示す。鉛直から 45° の方位の直線偏光を PEM に入射すると、光の電界の鉛直成分と水平成分との間に pHz で変調された光学遅延を与える。光学遅延量の変調振幅を4分の1波長に設定すれば左右円偏光が交互に現れる。この変調光を磁性体試料に入射し、透過光を鉛直方向に向いた検光子を通すと、変調周波数(p : $p=50\text{kHz}$)成分 $I(p)$ が楕円率を、その2倍の周波数($2p$)の成分 $I(2p)$ が回転角を与える¹⁷。

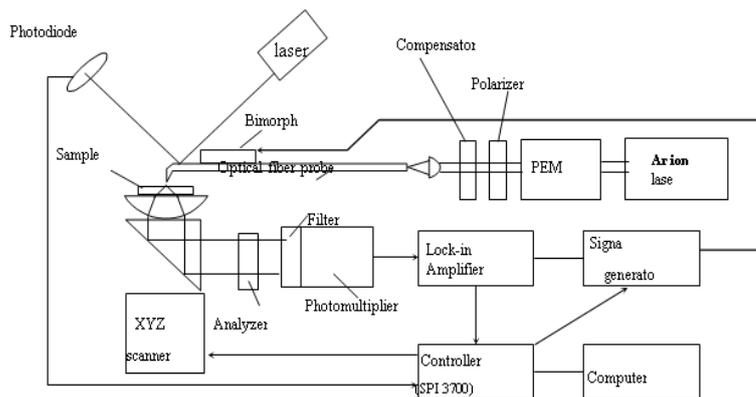


図 23 PEM を用いた SNOM システム

$$I(0) = I_0 R \{1 - 2\theta_k \cdot J_0(\delta_0)\}$$

$$I(p) = I_0 R \cdot 2\eta_k \cdot 2J_1(\delta_0)$$

$$I(2p) = -I_0 R \cdot 2\theta_k \cdot 2J_2(\delta_0)$$

PEMによる円偏光変調法をSNOMに適用する場合、AOMは変調を止め連続光がでるようにしている。これは、AOMの変調周波数の高調波とPEMの変調周波数との間でビートが生じ画像に縞模様が生じることを防ぐためである。このSNOM装置を用いて、Pt/Co人工格子薄膜MOディスクに光磁気記録された記録マークを観察した。記録マークは、パルス光ストロブ方式磁界変調法で光磁気記録されており、矢羽形状となることがわかっている。MOディスクには、グルーブ(溝)が刻まれているが、グルーブの無い平坦な部分にも光磁気記録されているものを用いた。図24は、この記録マークを上記の円偏光変調法を用いたMO-SNOMでイメージングした磁気光学楕円率の画像である¹⁸。ラインスキャンより求められた分解能は約130nmである。

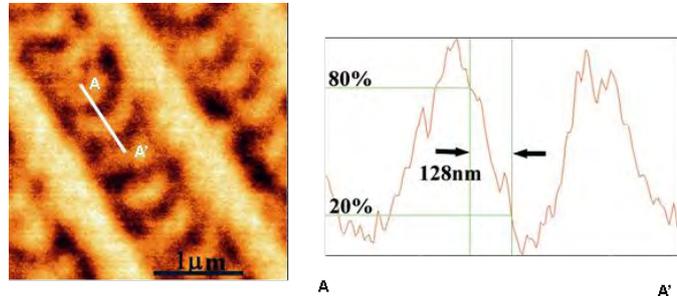


図 24 Pt/Co ディスクに記録された $0.2 \mu\text{m}$ のマークの MO-SNOM 像とラインスキャン

おわりに

この小稿では、磁気光学効果の測定法の基本について紹介した。ファラデー効果、磁気光学カー効果、コットンムートン効果などのスペクトルの測定には、光学遅延変調法が有用であることを述べた。また、非線形磁気光学効果、近接場における磁気光学効果の測定法について簡単に触れた。

- 1 佐藤勝昭「光と磁気」改訂版 (朝倉書店、2001)
- 2 佐藤勝昭: 日本応用磁気学会誌 21 (1997) 879.
- 3 佐藤勝昭: 「新しい磁気と光の科学」菅野暁・小島憲道・佐藤勝昭・対馬国郎編(講談社サイエンティフィック 2001.4.20) 第6章「非線形磁気光学効果による Fe/Au 人工格子の研究」 pp.141-174,
- 4 O.A. Aktsipetrov, O.V. Braginskii and D.A. Esikov: J. Quantum Electron. 20 (1990) 259.
- 5 J. Reif, J.C. Zink, C.M. Schneider and J. Kirschner: Phys. Rev. Lett. 67 (1991) 2878.
- 6 G. Spierings, V. Koutsos, H.A. Wierenga, M.W.J. Prins, D. Abraham and Th. Rasing: J. Magn. Magn. Mater. 121 (1993) 109.
- 7 J. Reif, C. Rau and E. Matthias: Phys. Rev. Lett. 71 (1993) 1931.
- 8 U. Pustogowa, W. Hübner, K.H. Bennemann: Phys. Rev. B49 (1994) 10031.
- 9 G. Spierings, V. Koutsos, H.A. Wierenga, M.W.J. Prins, D. Abraham and Th. Rasing: J. Magn. Magn. Mater. 121 (1993) 109.
- 10 Th. Rasing: J. Mgn. Soc. Jpn. 20 (1996) Suppl. S1, 13
- 11 R. Vollmer: Nonlinear Optics of Metals, K.H.Bennemann ed. (Oxford University Press, Oxford, 1998) Chap.2, p.42
- 12 M. Fiebig, D. Fröhlich, G. Sluyterman, R. V. Pisarev: Appl. Phys. Lett. 66 (1995) 1016.
- 13 Y. Tanabe, M. Fiebig, and E. Hanamura: Magneto-Optics, Ed. S.Sugano and N.Kojima, (Springer, Berlin, 1999) Chap. 4, p.107
- 14 佐藤勝昭: 「新しい磁気と光の科学」菅野暁・小島憲道・佐藤勝昭・対馬国郎編(講談社サイエンティフィック 2001.4.20) 第8章「近接場における磁気光学効果」 pp.205-228.
- 15 Y. Mitsuoka, K. Nakajima, K. Honma, N. Chiba, H. Muramatsu and T. Akita: J. Appl. Phys. 83 (1998) 3998.
- 16 K. Nakajima, Y. Mitsuoka, N. Chiba, H. Muramatsu, T. Ataka, K.Sato and M. Fujihira: Ultramicroscopy 71 (1998) 257.
- 17 K. Sato: Jpn. J. Appl. Phys. 20 (1981) 2403.
- 18 K.Sato, T.Ishibashi, T.Yoshida, J.Yamamoto, A.Iijima, Y.Mitsuoka, and K.Nakajima: J. Magn. Soc. Jpn. 23, Suppl. S1 (1999) 201.