

# 第 8 章 磁気光学研究の新しい展開

## 第 8 章の内容

この章では、本書初版の刊行以降に出現した磁気光学研究の新しい展開の中から重要なものをピックアップして紹介する。試料作製技術の進歩により組成変調多層膜、人工超格子、人工規則合金などが作製されるようになり、メゾスコピック系特有の磁気光学現象が見られるようになってきた。また、測定技術の進歩によって、近接場における磁気光学効果、非線形磁気光学効果、内殻磁気光学効果などが実際に観測されるようになって、微小領域磁性の情報が得られるようになってきた。ここでは、これらの新しい展開を概説する。

### 8.1 メゾスコピック系の磁気光学効果

#### 8.1.1 Fe/Cu 組成変調多層構造膜の磁気光学スペクトル

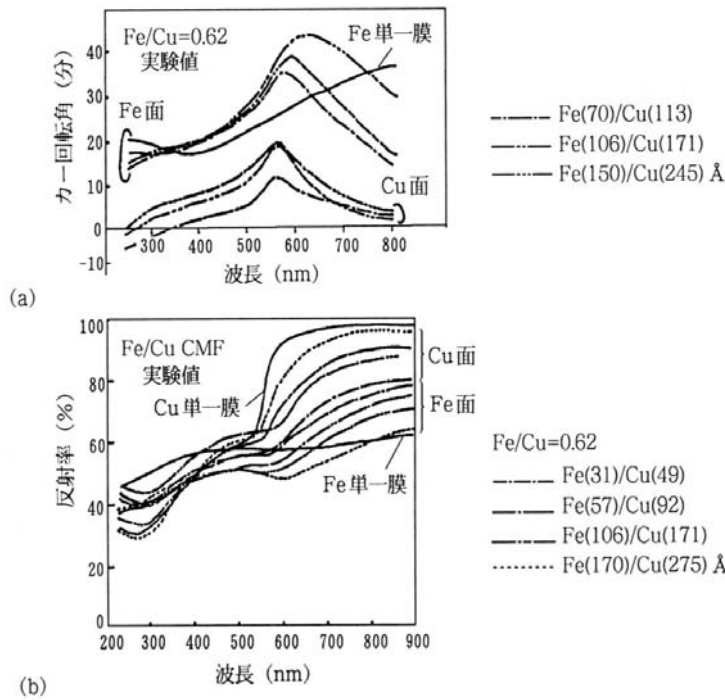


図8.1. Fe(xÅ)と Cu(xÅ)からなる組成変調多層構造膜のカー回転スペクトルと反射スペクトルの実験値 (金属人工格子(アグネ)図 4.54)

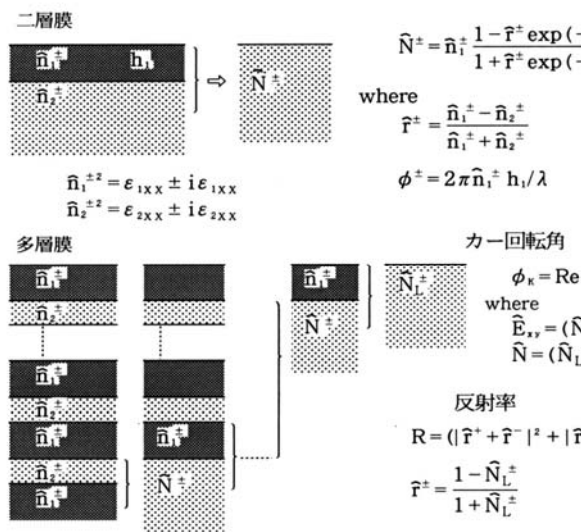


図8.2. 仮想光学定数の方法の原理

1980年代の後半になり、磁性体/非磁性体の組成変調多層構造膜が作製されるようになりその磁気光学効果が論じられるようになった。はじめに問題提起をしたのは、片山らであった。Fe(xÅ)とCu(xÅ)からなる組成変調多層構造膜を作製し磁気光学効果を測定したところ、図 8.1(a)に示すようなカー回転スペクトルを得た<sup>1)</sup>。すなわち、カースペクトルは、磁気光学効果の起源であるFeのスペクトルとは形状が異なり、明瞭なピークを生じる。このピーク値はFeのカー回転よりも増大している。ピーク位置は図 8.1(b)の反射スペクトルに見られる反射率の立ち上がる波長、すなわち、Cuの吸収端、に対応している。この効果は、当初、ミクロスコピックな効果、すなわち、Cuの 3d バンドがFeによるスピン偏極を受けて生じた効果ではないかと考えられた。しかし、その後筆者らにより誘電率の対角成分の実効的な磁率で、マクロな取扱)によって説

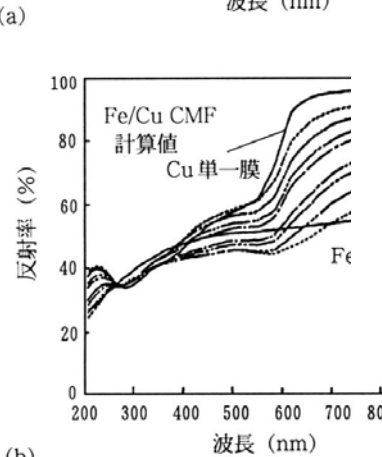
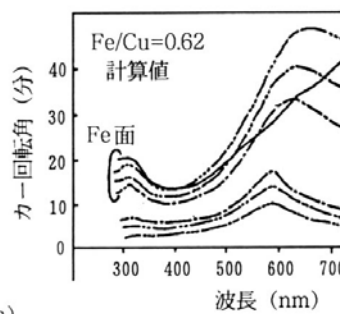


図8.3. Fe(xÅ)と Cu(xÅ)からなる回転スペクトルと反射スペクトル

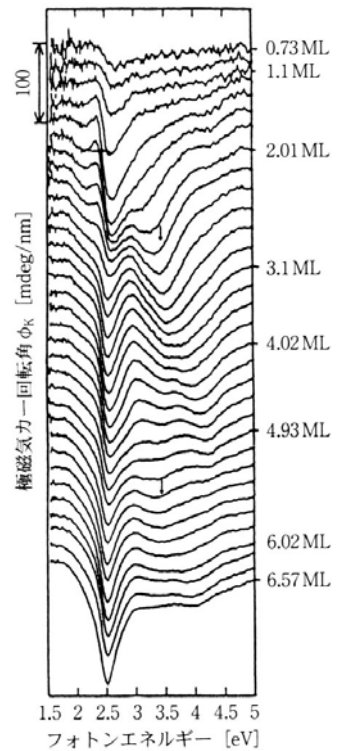


図8.4. Au(100)面にエピタキシャル成長した楔状のFe超薄膜にAuの薄いキャップ層をかぶせた膜における磁気光学スペクトルのFe層厚依存性(丸善磁気測定I 図 6-31)

図8.3. Fe(xÅ)と Cu(xÅ)からなる回転スペクトルと反射スペクトル(アグネ)図 4.56)

る。この計算においては、Feについて報告された誘電率の非対角成分および、Fe、Cuの光学定数を用いただけで、一切フィッティング・パラメータを用いていない。両者の対応は極めてよく、変調周期 50 Å以上では層間の混じりの効果や後で述べる量子閉じこめの効果がほとんど起きていないことを示している。

### 8.1.2 磁性超薄膜の磁気光学効果 5.6)

1990年代に至って、原子層オーダーで制御されたエピタキシャル薄膜作製技術が飛躍的に進歩した。1992年鈴木らはAu(100)面にエピタキシャル成長したFe超薄膜にAuの薄いキャップ層をかぶせた膜における新しい光学遷移を見いだした<sup>7)</sup>。その後、さらに精密化した実験が行われた。図 8.4 は、Au(100)面にエピタキシャル成長した楔状のFe超薄膜にAuの薄いキャップ層をかぶせた膜における磁気光学スペクトルのFe層厚

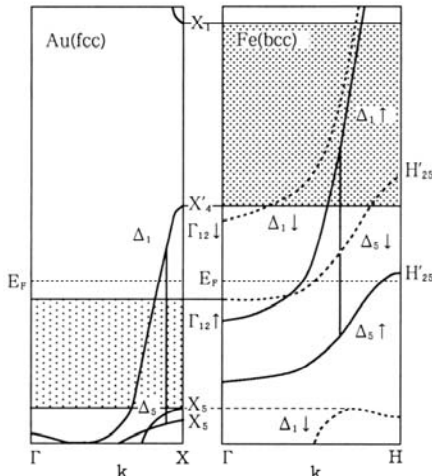


図 8.6. Fe/Au 接合のバンドダイアグラム (鈴木ら)

にかけて、バルクの Fe には観測されないようなピークが現れて、層厚が大きくなるに従って高エネルギー側にシフトする。4eV 付近における Fe1 層あたりのカー楕円率は図 8.5 のように Fe の層厚の増加とともに大きく振動する。この構造は、図 8.6 に示すように Au との接合を作ったことによって、Fe の空いた多数スピンバンドの電子が、Au のバンドギャップ内には入り込めなくなるため、Fe 層内に定在波を作って閉じこめを受けることによって生じた量子井戸準位によるものと解釈されている。このような量子サイズ効果は逆光電子分光にも観測されている。

一方、Au や Cu などの非磁性金属層を 2 つの強磁性層で挟んだ交換結合膜において、層間の交換結合の層厚依存性が GMR の振動として観測されるが、これに似た振動現象が磁気光学効果にも観測されている。8)。

### 8.1.3 金属人工規則合金の磁気光学効果

Fe と Au は非固溶の状態図をもち合金を作らない。しかし、MBE法で作製した Fe(1ML) と Au(1ML) (ML = monolayer) からなる人工格子は、Fe と Au の単純な積層ではなく、天然には存在しない L1<sub>0</sub> 型の規則合金構造になることが見いだされている<sup>9)</sup>。Fe(xML)/Au(xML) 人工格子では、図 8.7 に示されるような磁気光学効果スペクトルが観測された<sup>10,11)</sup>。x が 10 より大きいところでは、Au のプラズマ端による増強効果が 2.5eV 付近にはっきりと観測されるが、その他には顕著な構造を示さない。ところが、x が 8, 6 では、4eV 付近に明瞭な構造が現れ、x の減少とともに低エネルギー側にシフトしていく様子がはっきりと観測される。バンド計算に基づいて求めた磁気光学スペクトルは、図 8.8 に示すように 4eV 付近の構造を予言し、実験結果をほぼ説明することができた<sup>12)</sup>。どの電子状態がどの光学遷移に対して寄与するかを見ることにより、4eV 付近のスペクトル構造は、Au の ↓ スピンの 5d バンドから、Fe の 3d 軌道と Au の励起状態の 5f 軌道が混成した ↓ スピンのバンドへの遷移が主として寄与していることが明らかになった。

### 8.1.4 Pt/Co, Pd/Co 人工格子

#### (a) Pt/Co 人工格子

1999 年に InGaN 系の短波長レーザー (405nm) が出現し、現行の波長 670nm の約 3 倍の密度の光磁気記録の見通しがでてきた。しかし、現行の光磁気材料である TbFeCo および GdFeCo は短波長ではカー効果が小さくなる傾向をもつ。Co/Pt 多層膜は、短波長で非常に大きな極カー効果を示すこと、垂直磁気異方性を示すこと、および、耐食性が高いので first surface recording に適することなどから、次世代光磁気材料として注目される<sup>13,14)</sup>。このベースになった仕事は、オランダの Buschow による膨大な仕事である。彼

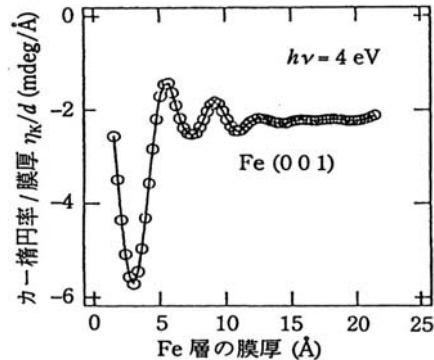


図 8.5. Au/Fe/Au サンドイッチ構造膜における磁気光学効果の Fe 層厚依存性 (鈴木ら)

依存性を示している。(キャップ層は酸化を防ぐためのもので、非常に薄いため磁気光学効果にあまり影響をもたない。)このような系の磁気光学効果は、下地層 (Au) の誘電率テンソルの対角成分を  $\epsilon_{xx}^S$ 、Fe 層の誘電率テンソルの非対角成分を  $\epsilon_{xy}$  として、 $d$  が十分小さいとき

$$\theta_K + i\eta_K = \frac{2d\omega}{c} \cdot \frac{i\epsilon_{xy}}{1 - \epsilon_{xx}^S} \quad (8.1)$$

で表される。下地の Au のプラズマ共鳴の周波数でこの式の分母が小さくなるため、磁気光学スペクトルに構造が現れる。さらに 3.5~4.5eV

は、室温で磁性をもつ 200 種以上の合金・金属間化合物についての磁気光学効果の研究を通じ、 $Pt_xCo_{1-x}$  や  $Pt_xFe_{1-x}$  合金が大きな磁気光学効果を示すことを明らかにしたが (15), これらの合金は面内磁気異方性を示すので光磁気記録膜としては用いられなかった。中村ら (16) および橋本ら (17) は、Pt/Co 多層膜が対応する合金の単一膜とよく似た磁気光学スペクトルをもつことを報告し界面付近で Pt と Co のミクシングが起きていることを示唆した。Pt/Co, Pt/Fe の詳細な磁気光学スペクトルの研究は Zeper ら (18) および筆者ら (19) によってなされた。

図 8.10(a) は層厚が Pt(10 Å)/Co(5 Å), Pt(18)/Co(5), Pt(40)/Co(20) の磁気光学スペクトルを  $Pt_{60}Co_{40}$  合金と比較して示してある。この形状は、Pt(10)/Co(5) 人工格子について、Co の  $\epsilon_{xx}$ ,  $\epsilon_{xy}$  と Pt の  $\epsilon_{xx}$  とを用い、急峻な界面を仮定した場合には、形状、大きさともに実験結果を再現できない。界面に  $Pt_{60}Co_{40}$  合金層が存在すると仮定し、合金層の厚みをパラメータとして Pt(10)/Co(5) 人工格子のスペクトルを仮想光学定数法で計算した。フィッティングから、合金化していない Pt 層 0.82 Å, Co 層 0.38 Å, 合金層 6 Å 程度という数値が導き出された。同様に、Pt(18)/Co(5) では、Pt 5.5 Å, Co 0.26 Å, 合金層 7.8 Å という値が得られた。図 8.10(b) は、各試料につき最もよくフィットした場合のシミュレーション結果を示してある。(20)

ここでは、合金層があるとして説明したが、この解析だけでは界面合金層の形成と Pt の磁気偏極効果を区別できない。Schütz らは、円偏光放射光を用い、Pt-Co 系合金の Pt の吸収端に明瞭な X 線吸収端の MCD (磁気円二色性) があることを見いだした (21)。彼らはその解析に基づき、Pt がスピン偏極を受けておりその符号は Co と逆方向であることを明らかにした。また、Fe にわずかに固溶した 5d 遷移金属もスピン偏極をもつことが明らかにされ (22)、近接効果による 5d 遷移金属のスピン偏極の問題が急速にクローズアップされてきた。

Ebert, Akai らは相対論バンド計算によって Pt-Fe 合金の Pt がスピン偏極を受けることを明らかにし (23)、伝導率テンソルの対角および非対角要素のスペクトルを計算した。また Pt/Fe 人工格子における偏極は合金の 60% 程度であることを導き、Pt の X 線吸収端の MCD スペクトルを説明した。

次に述べるように、Co/Pd の磁気光学スペクトルは、Pd が磁気偏極していると仮定しなければシミュレーションによって説明できない。同様のことは Co/Pt でも生じているはずであると考えられる。

#### (b) Pd/Co 人工格子

Pd/Co 人工格子について中村らは、Pd/Co 多層膜の磁気光学スペクトルを Pd と Co が混じりあわない単純な多層膜であるとして解析したが、実験をよく説明できなかった (24)。筆者のグループでは、Pd/Co の人工格子と PdCo 合金について、磁気光学効果を測定し、それぞれ、図 8.11(a), および、(b) に示すようなスペクトルを得た (25)。Pt/Co の場合と同様の仮想光学定数法による解析を行ったが、図 8.12(a) に示すように、合金の厚さとしてどのようなものを仮定しても、実験で得たスペクトル (実線) に見られるような 3eV 付近の肩を再現できなかった。異なった組成の Pd-Co 系合金のスペクトルの差スペクトルから「磁気偏極した Pd」の磁気光学スペクトルを推定し、Pd/Co 界面に “magnetic Pd” が存在するとしてシミュレーションを行った結果を図 8.12(b) に示す。実験で得られた 3eV 付近と 4.5eV 付近に肩を示すスペクトル構造が比較的よく再現されていることがわかった。“magnetic Pd” の磁気光学効果を強磁界下の磁気光学スペクトルから推定することは今後の課題である。

### 8.1 節のまとめ

- 人工格子・多層膜においては、試料のもつ構造的サイズが(試料中における)光の波長程度であれば多重反射や干渉に基づく巨視的なエンハンス効果を生じる。
- サイズが電子のドブロイ波長程度になると、電子の閉じ込めや干渉による量子サイズ効果を受けるが、磁性体と非磁性体の界面ではスピンの依存する閉じ込めが起き、これによる磁気光学効果が生じる。
- サイズが原子のオーダーになると、人工的な規則格子ができ、新たなバンド構造を示すため、その磁気光学効果は単なる構成物質の積層では説明できず、新しいバンドにおける遷移として解釈される。
- 磁性体・非磁性体人工構造においては、非磁性体に磁化が誘起されるため、非磁性体の磁気光学効果を考慮しなければならぬ。

### 8.2 近接場磁気光学効果

磁気光学効果を用いると、磁区の観察ができるが、通常のレンズ光学系を用いて識別できる最小距離  $d$  は、回折限界で決まる値  $d=0.6\lambda/NA$  より小さくすることができない。回折限界以下の微小な磁区の磁気光学イメージを得る方法として、近接場光学顕微鏡 (near field optical microscope) を紹介する。

全反射光学系において媒質 1 の屈折率が媒質 2 の屈折率より小さいとき、媒質 2 から入射した光のうち臨界角より大きな入射角をもつものは、媒質 1 へ伝播することができず、全反射する。このとき、媒質 1 側には、境界面から垂直方向に指数関数的に減衰する電磁界 (エバネセント波) が存在する。このような光の場を近接場とよぶ。この場の存在領域は光の波長より遙かに短い。

近接場が観測されるのは、全反射系に限ったことではない。図 8.21 に示すように伝播する光の場の中に波長より小さな微小物体 (直径  $d$  の球とする) を置くと、この物体中には電気双極子が誘起されるが、この双極子が作る振動電界のうち、小球の直径程度のごく近傍には伝播せず距離とともに減衰する電磁界が存在する。この光の場が近接場である。この近接場の中に光の波長より小さな微小散乱体を置くと、近接場光は散乱されてふたたび伝播光となるので、波長より小さな散乱体を観測することが可能になる。

このような近接場を用いて、光の波長より小さな物体を観測する近接場顕微鏡のアイディアはかなり

以前から提案されていたが、技術的困難さのため長い間実現しなかった。実用的なSNOMの原型となったのは、1984年のPohlらの論文であった<sup>27)</sup>。SNOMによる最初のイメージングは1985年になされ、20nmという高分解能が得られた<sup>28)</sup>。その後、細く引き伸ばされたマイクロピペットを用い、液体を満たすことによって空間分解能が向上し、実用レベルのSNOMが実現した<sup>29)</sup>。最近では、マイクロピペットの代わりに細く引き伸ばして絞った光ファイバをプローブとして用いるのが主流となった。

細く絞ったファイバ光学系の先端に設けられた波長より小さな開口(aperture)から漏れ出している近接場中に置かれた微小な構造が散乱体となり散乱光を検出する。このファイバプローブを物質の表面上で走査することにより、光の回折限界以下の画像化を行うのが、走査型近接場光学顕微鏡(scanning near-field optical microscope=SNOM)である。この場合は、ファイバプローブを光源側に使っているため、照射モード(illumination mode)のSNOMとよばれる。逆に、光を直接物質に照射し、試料表面付近に生じた近接場に置かれたファイバプローブ先端の開口で散乱され伝播光に変換されたものを検出する方法がある。これを出検モード(detection mode)のSNOMという。一本のプローブを照射・検出モードの両方に使う場合もある。

近接場顕微鏡においては、プローブと物体との距離をどのように保つかが問題になる。最もよく使われるのが剪断力(shear force)を用いた方法で、プローブを水晶振動子などによって試料面と平行な方向に振動させておき、プローブを試料に近づけて生じた横方向の剪断力による振動数変化を、高さ調整用圧電アクチュエータにフィードバックすることによって、試料・プローブ間距離を一定に保ち浮上させる。もう一つの方法は光ファイバを折り曲げ原子間力顕微鏡(AFM)のカンチレバーとして用い、ファイバの背につけた鏡面状の平坦部を反射鏡として光挺子法で高さを制御する方法である。この場合にはファイバを試料面に対して垂直に振動させ、試料との接近で共振曲線のスロープが変化することを利用して、アクチュエータにフィードバックする。いずれのモードにおいても、アクチュエータにフィードバックすることによってプローブの上下移動を行っているため、この信号を利用すれば光学像と同時にトポグラフィ像も測定できる。SNOMに磁気光学を適用して微小な磁気構造を観察する研究は1992年のBetzigらによる報告<sup>30)</sup>以来、盛んに行われるようになり、その後、数多くの研究が報告されるようになった。ファイバプローブを用いて高コントラストの磁気光学偏光像を得ることは非常に難しい。なぜなら、一般にファイバを通る偏光は光弾性のため曲げによる応力や機械的な振動による複屈折を生じ偏光度が低下するからである。筆者らは、図8.21の構成図に示すような近接場磁気光学顕微鏡(MO-SNOM)を開発した<sup>31)</sup>。このSNOMはベントタイプのプローブ(図8.22)を照射モードで用い、AFMモードにより制御している。磁気光学効果に対する感度を向上するため、第6章で述べた光弾性変調器(PEM)による光学遅延変調法<sup>32)</sup>を用いた。さらに、ストークスパラメータを用いて光ファイバプローブの偏光性をチェックした結果、偏光度が1に近い良質のプローブは、たとえ複屈折による光学的遅延(retardation)があったとしても、光学的に補償可能であり、きれいな偏光画像を得ることができることを示した<sup>33)</sup>。図8.23は、Pt/Co多層膜を記録媒体とする光磁気ディスクに記録された矢羽根型記録マーク(幅1 $\mu$ m、長さ6 $\mu$ m)のAFMトポグラフィ像(a)およびMO-SNOM像(b)である。AFMトポグラフィ像には、右下部に案内溝(groove)のイメージが見えるのみであるが、MO-SNOM像には、案内溝のない部分に記録磁区形状が明瞭に見られている。解像度は0.1 $\mu$ m程度である。この実験に使用したプローブ先端の開口径は80nmである。プローブ先端と試料表面の距離は約20nmであった。溝のある部分では、磁区像に黒い線状の像が重畳しているが、これは案内溝のゴーストで、プローブが凹凸をなぞっていく際の過渡現象が信号に現れているものと解釈され、近接プローブ装置特有のアーティファクト(artifact)といわれる。このプローブを用いて観測した長さ0.2 $\mu$ mの記録マークのMO-SNOM像を図8.24に示す。ラインスキャンより求められた分解能は約130nmである<sup>6,35)</sup>。

## 8.2 節のまとめ

- 近接場光とは、微小な電気双極子のごく近傍に存在する電磁界で、伝搬せず距離とともに急速に減衰する。近接場がそこに置かれた微小物体により散乱を受けると伝搬光に変換される。これを用いて光の回折限界を超えた微小領域の観察ができる。これを走査型近接場顕微鏡(SNOM)という。
- 細く絞った光ファイバから洩れ出す近接場を用い、光の波長の1/5程度の分解能で微小磁区を磁気光学効果により観測することができる。

## 8.3 非線形磁気光学効果

### 8.3.1 非線形磁気光学効果の基礎<sup>36)</sup>

通常の光学現象(透過、反射、屈折)においては、物質中に誘起される電気分極 $\mathbf{P}$ が光の電場 $\mathbf{E}$ に比例し、 $\mathbf{P} = \hat{\chi} \epsilon_0 \mathbf{E}$ と表される。ここに $\hat{\chi}$ は電気感受率で、 $\mathbf{P}$ も $\mathbf{E}$ もベクトルであるから一般に $\hat{\chi}$ はテンソル量である。数学的にはテンソルの成分を用いて、

$$P_i^{(1)} = \chi_{ij}^{(1)} \epsilon_0 E_j \quad (8.3)$$

と書き表すことができる。ここに繰り返される添え字については和をとるというテンソル計算の約束に従う。光の電場が十分に弱いときには、分極は(8.3)式のように扱っても差し支えないが、光の電場が強くなると\*、もはや(8.3)式は成り立たず、一般的に電気分極 $\mathbf{P}$ は電場 $\mathbf{E}$ のべき級数で展開することができ、

\*入射光の強度(単位時間あたりのエネルギー密度)が10MW/cm<sup>2</sup>くらいから非線形効果が観測可

$$P_i = \varepsilon_0 \left( \chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \right) \quad (8.4)$$

と表すことができる． $\chi^{(n)}$ は $n$ 次の電気感受率である．この効果を非線形光学効果とよぶ<sup>37)</sup>．

2つの電磁波 $E_j(t)$ (角周波数 $\omega_1$ )と $E_k(t)$ (角周波数 $\omega_2$ )が時刻 $t=0$ で物質に印加されたとする．このときの2次の非線形分極 $P^{(2)}(t)$ は、2次の電気感受率を用いて

$$P_i^{(2)}(t) = \int d\tau_1 d\tau_2 \chi_{ijk}^{(2)}(\tau_1, \tau_2) E_j(t - \tau_1) E_k(t - \tau_2) \quad (8.5)$$

のように畳み込み積分で与えられる．この式に

$$E_j(t) = \{E_{1j} \exp(i\omega_1 t) + E_{2j} \exp(i\omega_2 t) + cc.\} \quad (8.6)$$

を代入すると、2次の非線形分極として次式が得られる．

$$P_i^{(2)}(t) = P_i^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) \exp\{i(\omega_1 + \omega_2)t\} + P_i^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) \exp\{i(\omega_1 - \omega_2)t\} \\ + P_i^{(2)}(0) + P_i^{(2)}(2\omega_1 t) \exp\{i2\omega_1 t\} + P_i^{(2)}(2\omega_2 t) \exp\{i2\omega_2 t\} + cc. \quad (8.7)$$

ここに、各項の係数は $P(t)$ のフーリエ変換となっており、

$$P_i^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (8.8a)$$

$$P_i^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (8.8b)$$

など書くことができる．ここに一般化された2次の電気感受率の表式 $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2)$ は、角周波数 $\omega_1, \omega_2$ の2つの波が入射し、角周波数 $\omega_3$ の分極が生じた場合の感受率を表している．式(8.7)の第1項と第2項はそれぞれ和と差の周波数が得られることを表し、第3項は直流成分が、第4項と第5項は入射光の2倍の周波数成分が得られることを示している．第1項(和周波発生)、第2項(差周波発生)を光パラメトリック過程、第3項を光整流過程、第4、第5項を第2高調波発生(SHG)過程という．2次の非線形過程は3階のテンソルで表されるように3つの波が関与しているので3波混合ともよばれる．以下ではSHGの場合に話を限って記述する．

一般に非線形感受率テンソルは、媒質の点群に属する対称操作に対して不変である．その結果テンソルの要素のうちある要素はゼロとなり、ある要素は他の要素と関係をもつため、最終的には独立な要素の数は非常に少なくなる<sup>38)</sup>．一般に、対象となる物質がどのような点群に属するかを知られば、3階のテンソルのうち消えない要素がどれとどれで、そのうちどれが独立な要素であるかを知ることができる

\*．反転対称性がある場合には3階の感受率テンソルの全要素がゼロになる<sup>†</sup>．Fe, Co, Niなど磁性体の多くが反転対称をもつので、バルクの3階の感受率は有限な値をもたない．反転対称をもつ系でもSHGを示す場合がある．式(8.8)の展開式は電場 $E$ の変動が波長に比べて十分に緩やかな場合の近似である．電場が距離に対して大きく変動しているような系を考えると、電場は $E = E_0 + r \nabla E$ のように展開できるはずである．これを考慮すると非線形分極の式には四重極子項とよばれる $E \nabla E$ の項が必要であることがわかる．2次の非線形分極 $P_j(2\omega)$ について $E \nabla E$ の項を含めて展開式を書き表すと、

$$P_i(2\omega) = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(D)} E_j(\omega) E_k(\omega) + \chi_{ijkl}^{(Q)} E_j(\omega) \nabla_k E_l(\omega) + \dots \quad (8.9)$$

となる．ここに添え字 $j, k, l, m$ は $x, y, z$ のいずれかを表している．(D)は電気双極子、(Q)は電気四重極子を表している．この場合には、3階の感受率テンソルと、4階の感受率テンソルの両方が必要となる．4階のテンソルは反転対称をもつ系でも有限の値をもつ．バルク結晶内部では電場の変動は波長に比べて十分に滑らかであると考えられるのでこの項の寄与は通常無視されるが、表面や界面の寄与が大きな薄膜、多層膜ではこの項を無視できない．

バルク物質では、たとえ非線形感受率にゼロでない要素があったとしても、入射光と、発生した2次光との位相整合がとれなければ、2次光の強度は距離とともに振動しながら減衰するため観測されない

能となるといわれている．通常非線形光学の実験は $1 \text{GW/cm}^2$ 程度の強度のレーザー光を用いて行われる．

\*Non-symmorphic結晶の場合、non-primitive translationとよばれる微小な並進が関与するため、電子状態などを議論する場合空間群を使って議論する必要があるが、光学的な感受率テンソルはマクロな量なので、現象は空間格子に関わる点群に支配されると考えられる．

† $\chi_{ijk}$ という感受率テンソルを考えよう．このテンソルは積 $x_i x_j x_k$ と同じ変換を受ける．反転操作を施すと $x_i x_j x_k$ は $(-x_i)(-x_j)(-x_k) = -x_i x_j x_k$ になる．従って反転対称をもつと、 $\chi_{ijk} = -\chi_{ijk}$ となり、テンソル要素は消える．

のであるが、表面からの2次光を観測する限りにおいては、この問題は考えなくてよい。\*

反転対称をもつ結晶であっても、表面や界面では反転対称性が破れるため $\chi_{ijk}^{(2)}$ は有限な値をもち、表面や界面に基づくSHGが生じる。たとえば、等方性の非磁性物質の表面では、 $\chi_{xxz} = \chi_{zxx} = \chi_{yyz} = \chi_{zyy}$ 、 $\chi_{zzz}$ の3成分が0でない値をもちうる。すなわち、

$$\chi^{2,D} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xxz} \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{xxz} & 0 & 0 \\ \chi_{zxx} & \chi_{zxx} & \chi_{zzz} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (8.10)$$

と表すことができる。従って、SHGは反転対称をもつ物質の表面・界面に特有の物性を調べるための有用な手段となる。

線形の磁気光学効果は、磁性体に入射した直線偏光が磁性体の磁化の向きに応じて右回りまたは左回りの楕円偏光になり、楕円の主軸の方向が磁化の向きに応じて右または左方向に回転する効果である。前者を磁気円二色性、後者を磁気旋光性とよぶ。このような磁気光学応答は、磁性体の複素屈折率が左右円偏光に対して異なることから生じている。磁化によって左右円偏光に対する光学応答が異なる微視的な原因は、スピン軌道相互作用に求めることができる。磁気旋光性などの光学現象は巨視的には、マクスウェルの方程式

$$\text{rot rot} E(\omega) + \frac{\tilde{\varepsilon}(\omega)}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(\omega) = 0 \quad (8.11)$$

を使って説明することができる。図8.25のような縦カー配置と座標系を考え、磁化 $\mathbf{M}$ は試料面内にあり入射面に平行であるとすると、誘電率テンソルは

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{xx} & -\varepsilon_{yz} \\ 0 & \varepsilon_{yz} & \varepsilon_{xx} \end{pmatrix} \quad (8.12)$$

で与えられる。ここに対角成分 $\varepsilon_{xx}$ は、磁化の反転に対して対称であるのに対し、非対角成分 $\varepsilon_{yz}$ は磁化の反転に対して反対称である。入射角 $\theta_1$ で直線偏光が入射したときのマクスウェル方程式の固有値として、複素屈折率が

$$N^\pm = \varepsilon_{xx} \pm i \varepsilon_{yz} \sin \theta_1 \quad (8.13)$$

のように求められる。

このとき反射光の複素カー回転角 $\Psi_K$ は

$$\tan \Psi_K^{(1)}(\omega) = -\frac{\chi_1^{(1)}}{\chi_0^{(1)}} \cdot \frac{\sin \theta_i \cos \theta_i}{\sqrt{\cos^2 \theta_i + \chi_0^{(1)}}} \cdot \frac{\cos(2\theta_i) + \chi_0^{(1)}}{\cos(2\theta_i) + \chi_0^{(1)} \cos^2 \theta_i} \quad (8.14)$$

で与えられる。ここに、 $\chi_1^{(1)} = \varepsilon_{yz}$ 、 $\chi_0^{(1)} = \varepsilon_{xx} - 1 = N^2 - 1$ である。

これに対して非線形磁気光学効果は、SHG過程で磁性体表面に生じた非線形分極がもとになって左右円偏光に対する光学応答の差が生じる。この場合の波動方程式は、表面に非線形分極 $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ が存在してこれがソース項として働くと考えて、次式のように表すことができる。

$$\text{rot rot} E(2\omega) + \frac{\tilde{\varepsilon}}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(2\omega) = -\frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}^{(2)}(2\omega) \quad (8.15)$$

ここに $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ は入射光の電場 $E(\omega)$ によって磁性体に誘起された非線形分極で、電気双極子の範囲では

$$P_i^{(2)}(2\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega, \omega) E_j^{(1)}(\omega) \cdot E_k^{(1)}(\omega) \quad (8.16)$$

のように表される。

もし物質が反転対称をもっているならばバルクの $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ は存在しないが、界面においては対称性が破れるため非線形分極 $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ は有限の値をもつ、つまり、非線形分極は界面にのみ形成される。

式(8.15)の解は、斉次方程式の一般解と、非斉次方程式の特殊解の和となる。斉次方程式の解は、線形の場合と同様に透過第2高調波に対する複素屈折率

$$N_t^\pm = \varepsilon_{xx}(2\omega) \pm i \varepsilon_{yz}(2\omega) \sin \theta_{2t} \quad (8.17)$$

を与えるが、これは角振動数 $2\omega$ における通常の線形の磁気光学効果である。一方、非斉次部分は屈折率 $N^\pm$ には依存せず2次の表面応答関数 $\chi^{(2)}$ のみに結びつく特殊解を与える。ここで、フレネルの公式を使って左右円偏光について反射光の電場の振幅を計算し、線形の場合と同様に

\*多層膜の場合には、多くの界面が存在するため干渉項を考える必要があるがここでは、触れない。

$$\tan \Psi_K^{(2)} = \theta_K^{(2)} + i\eta_K^{(2)} = i \frac{E_r^{+(2)}(2\omega) - E_r^{-(2)}(2\omega)}{E_r^{+(2)}(2\omega) + E_r^{-(2)}(2\omega)} \quad (8.18)$$

の式を使って複素カー回転角を求める．いま図 8.26 の縦カー配置について考察する．光は入射角  $\theta_i$  で斜め入射するものとし，磁化  $M$  は入射面と試料面に平行，入射光は  $p$  偏光していると仮定する． $M=0$  ならば，界面非線形分極  $P^{(2)}$  が表面に垂直な場合に最大の SHG 効率が得られる．Pustogowa らによれば，反射光の電場の振幅は次式で与えられる<sup>39)</sup>．

$$E_r^{(2)\pm}(2\omega) = -\frac{P^{(2)\pm}(2\omega)\sin\theta_s}{\epsilon_0 c^2} \frac{F_1^\pm}{F_3^\pm F_2^\pm} \quad (8.19)$$

ここに， $F_1^\pm$ ， $F_2^\pm$ ， $F_3^\pm$  は， $\chi^{(1)}$ ， $\chi^{(2)}$  および  $\theta_i$  のやや複雑な関数であって，次式のように表される．

$$\left. \begin{aligned} F_1^\pm &= \sin^2 \theta_i + \frac{1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)}{1 + \chi_0^{(1)\pm}(2\omega)} S_1^\pm(\theta_i) S_2^\pm(\theta_i) \\ &+ \frac{\chi^{(1)\pm}(2\omega) - \chi_0^{(\pm)}(2\omega)}{\chi^{(1)\pm}(2\omega) - \chi_0^{(\pm)}(2\omega)} \left[ \frac{1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)}{1 + \chi_0^{(1)\pm}(2\omega)} [1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)] - 2\sin^2 \theta_i \right] S_1^\pm(\theta_i) S_2^\pm(\theta_i) \\ F_2^\pm &= [1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)] S_1^\pm(\theta_i) + [1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)] S_2^\pm(\theta_i) \\ F_3^\pm &= [1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)] \cos \theta_i \end{aligned} \right\} \quad (8.20)$$

上の式で  $S_1^\pm(\theta_i) \equiv \sqrt{1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega) - \sin^2 \theta_i}$ ， $S_2^\pm(\theta_i) \equiv \sqrt{1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega) - \sin^2 \theta_i}$  である．

式(8.19)の  $E_r^\pm$  を式(8.18)に代入することによって非線形複素カー回転角  $\Psi_K^{(2)}$  は次式のように表すことができる．

$$\tan \Psi_K^{(2)} = i \left( \frac{\chi^{(2)+} F_1^+ F_2^- F_3^- - \chi^{(2)-} F_1^- F_2^+ F_3^+}{\chi^{(2)+} F_1^+ F_2^- F_3^- + \chi^{(2)-} F_1^- F_2^+ F_3^+} \right) = i \left( \frac{\chi^{(2)odd}}{\chi^{(2)even}} + \text{高次項} \right) \quad (8.21)$$

ここに  $\chi^{(2)even}$  および  $\chi^{(2)odd}$  は， $\chi^{(2)\pm} = \chi^{(2)even} \pm i\chi^{(2)odd}$  と表したときの実数部と虚数部で，前者は非磁性項( $M$ について偶)，後者は磁性項( $M$ について奇)である．

線形磁気光学効果と非線形磁気光学効果の大きな違いは，2 つある．一つは，線形の場合のカー効果は  $\chi_{xy}/\chi_{xx}$  のように非対角成分と対角成分の比で与えられており，一般にこの比は 1 よりかなり小さいのに対し，非線形カー効果は式(8.21)に示したように  $\chi^{(2)odd}/\chi^{(2)even}$  という比で与えられ，この項は後で述べるように  $S$  偏光入射の場合  $\chi_{yxx}/\chi_{yyz}$  と書き換えることができるように同程度のテンソル要素同士の比であることである．

もう一つは，式(8.14)に示したように線形の場合には  $1/(\cos 2\theta_i + \chi_0^{(1)})^{1/2}$  の因子がかかることによって  $\Psi_K^{(1)}$  を小さくしているのに対し，非線形磁気光学効果の場合にはこのような因子が存在しないことである．これは，非線形磁気光学効果が，線形の場合のように左右円偏光に対する屈折率の差から生じるのではなく式(8.15)のソース項である界面の非線形分極  $P^{(2)}(2\omega)$  から生じていることに原因していると考えられている．

### 8.3.2 ミクロな視点から見た非線形磁気光学効果<sup>40)</sup>

SHG の過程を電子遷移の観点から眺めてみよう．前に述べたように SHG は 3 つの光子が関与する過程である．Hübner らは摂動論によって 2 次の非線形感受率  $\chi_{ijk}^{(2)}$  として次の式を導いた<sup>39,41)</sup>．

$$\begin{aligned} &\chi_{xzz}^{(2)}(q, 2\omega; \vec{M}) \\ &\sim \frac{\lambda_{so}}{\hbar\omega} \sum_{\sigma} \langle k+2q, l'' | x | kl\sigma \rangle \langle kl\sigma | z | k+q, l'\sigma \rangle \langle k+q, l'\sigma | z | k+2q, l''\sigma \rangle \\ &\quad \times \frac{F_{\sigma}}{\epsilon_{k+2q,\sigma} - \epsilon_{k,\sigma} - 2\hbar\omega} \end{aligned} \quad (8.22)$$

ここに

$$F_{\sigma} = \frac{f(\epsilon_{k+2q}) - f(\epsilon_{k+q})}{\epsilon_{k+2q,\sigma} - \epsilon_{k+q,\sigma} - \hbar\omega} - \frac{f(\epsilon_{k+q}) - f(\epsilon_k)}{\epsilon_{k+q,\sigma} - \epsilon_{k,\sigma} - \hbar\omega} \quad (8.23)$$

ここに  $\lambda_{so}$  はスピン軌道結合の強さである．式(8.22)の 3 つの行列要素から，電気感受率が対称性の破れをどの程度敏感に感じるかが決まる． $s$  電子， $d$  電子の空間的な分布の違いのために SHG の偏光依存性の違いが生じる．

式(8.22)は， $l$  番目のバンドの波数  $k$ ，スピン  $\sigma$  で指定される基底状態  $|kl\sigma\rangle$  にある電子系が， $\hbar\omega$  のエネルギーをもつ一つの光子によって中間状態  $|k+q, l'\sigma\rangle$  に遷移，さらに， $\hbar\omega$  のエネルギーをもつ 2 つ目の光子で励起状態  $|k+2q, l''\sigma\rangle$  に遷移し， $2\hbar\omega$  のエネルギーをもつ 3 つ目の光子を放出して

基底状態に戻る過程と解釈することができる。透明な誘電体の場合、 $2\hbar\omega$ はバンドギャップ( $E_g$ )より小さいため中間状態にも励起状態にも実過程としては滞在せず仮想的な過程としてSHGが起きる。これに対し、金属の場合には準位が連続的に分布するので、SHGには主として実過程の遷移が寄与する。すなわち、1つ目の光子でフェルミ面の下の満ちた状態からフェルミ面への遷移が起き、もう一つの光子でフェルミ面から、フェルミ面の上の空いた準位へと遷移、2倍のエネルギーの光子を放出してもとに戻る。式(8.22)のスピンの依存するエネルギー分母のために、SHGは金属のspin偏極したバンド構造を反映したものになる。図 8.27 に示すように、貴金属では、フェルミ面は広がったs電子的なバンドの中にあり、狭いd電子帯はフェルミ面より数eV下に存在する\*。この場合の励起過程としては、低エネルギーの光子については、s(filled) $\rightarrow$ E<sub>F</sub>(s) $\rightarrow$ s(empty)の過程が、高エネルギーの光子についてはd(filled) $\rightarrow$ E<sub>F</sub>(s) $\rightarrow$ s(empty)の過程がそれぞれ関与している。一方、遷移金属では、フェルミ面が狭いd電子帯に存在するため、低エネルギー光子についてはd(filled) $\rightarrow$ E<sub>F</sub>(d) $\rightarrow$ d(filled)の過程が、高エネルギー光子についてはs(filled) $\rightarrow$ E<sub>F</sub>(d) $\rightarrow$ s(empty)の過程が関与している。非線形磁気光学効果は、d電子状態のspin分極とspin軌道相互作用を通じて生じるので、たとえば、貴金属と遷移金属の界面において貴金属に誘起された磁化による非線形磁気光学効果を求めるには、波長の短い光を使った方がよいことがわかる。

### 8.3.3 磁化がある場合の非線形感受率テンソル

式(8.9)の  $P$  を磁界の関数として表すと、

$$P_i^{(2)}(\mathbf{M}) = \chi_{ijk}^{(D)}(\mathbf{M})E_jE_k + \chi_{ijkl}^{(Q)}(\mathbf{M})E_j\nabla_lE_k \quad (8.24)$$

と書ける。ここでも繰り返される添え字については和をとるということが暗黙に約束されている。(D)は電気双極子、(Q)は電気四重極子を表す。8.3.1項に述べたように、反転対称をもつ物質においてはバルクの $\chi^{(D)}$ は0となるが、表面では対称性の破れのため有限の値をもつ。電気四重極子の項は反転対称をもつバルクにおいても現れる。

一方、磁化  $\mathbf{M}$  の存在そのものは対称性の破れにつながらない。なぜなら、 $\mathbf{M}$  は軸性ベクトルなので反転対称によっても向きを変えないからである。このことは、中心対称をもつ系では、磁化が存在するだけではバルクからの電気双極子によるSHGは生じないことを意味し、磁化された試料でもMSHGの表面界面敏感性は成立する。しかし、磁化  $\mathbf{M}$  が存在すると表面の対称性が低下するため、テンソル成分に新たにゼロでない要素が現れる。

このような対称性のもとでの非線形感受率を考察する。電気双極子の寄与のみを考える<sup>42)</sup>。表 8.1には縦カー効果、横カー効果、極カー効果における $\mathbf{M}$ について偶、奇それぞれの電気双極子感受率の独立な要素を書き出してある<sup>43)</sup>。第1行は、縦カー配置すなわち $\mathbf{M}=(M,0,0)$ の場合の感受率である。同様に、横カー配置すなわち $\mathbf{M}=(0,M,0)$ の場合には第2行、極カー配置すなわち $\mathbf{M}=(0,0,M)$ に対しては第3行に示されるような独立な $\chi$ の要素が求められる。

一例として、図 8.25 に示す縦カー配置( $\mathbf{M}//x$ )で、S偏光( $E_y$ )が入力された場合を考える<sup>†</sup>。SHGは添え字  $kl$  が等しい( $E_k=E_l$ )場合であるからS偏光では、 $k=l=y$ の場合が対象となる。表 8.1 から $\mathbf{M}$ について偶関数の項は $\chi^{(2)}_{zyy}$ のみでありP偏光が出力され、 $\mathbf{M}$ について奇関数の項は $\chi^{(2)}_{yyy}$ のみであることからS偏光が出力されることがわかる。従って、合成された偏光の方向は磁化の向きに依存して変化することが理解されよう。

一方、横カー配置( $\mathbf{M}//y$ )でS偏光が入射したとき、表 8.1 の第2行より $\mathbf{M}$ について偶関数の項は $\chi^{(2)}_{zyy}$ 、奇関数の項は $\chi^{(2)}_{xyy}$ のみで、いずれもP偏光である。従って、横カー配置では磁気旋光は起きない。しかし強度は磁化依存性を示し、

$$I_{2\omega}(\pm M) = \left| \alpha \chi_{zyy}^{(2)even} \pm \beta \chi_{xyy}^{(2)odd} \right|^2 \quad (8.25)$$

のように与えられる。ここに $\alpha$ 、 $\beta$ は入射ビームと出力ビームについてのフレネル因子を含む係数である。この式から、反射光強度は磁化 $\mathbf{M}$ に依存して変化することがわかる。従って、横カー配置でも非線形磁気光学効果を測定できる。時間反転対称の破れのため、散逸項のない場合 $\chi^{(2)even}$ は実数、 $\chi^{(2)odd}$ は虚数でなければならないことが導かれる。

### 8.3.4 非線形磁気光学効果の実験的検証

#### 8.3.4.1 MSHGの大きさの評価と実験

実験に先だって、非線形感受率の大きさについて理論的な評価が行われた。Niについての理論的な推定は研究者によりばらつきがあり、 $\omega^2 \chi^{(2)}$ の値として $10^{12} \text{V}^{-1} \text{s}^{-2} \text{m}^{42)}$ 、および $10^{17} \text{V}^{-1} \text{s}^{-2} \text{m}^{44)}$ という値が報告されている。SHGの検出限は $10^9 \sim 10^{10} \text{V}^{-1} \text{s}^{-2} \text{m}$ なので、いずれにせよ十分に測定できる大きさである。

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<sup>45,46)</sup>。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

\*Cuでは1.9eV、Auでは1.8eV

†電場ベクトルの方向が入射面に含まれる直線偏光をS偏光、入射面に垂直である直線偏光をP偏光と称する。



うになって 47), 実験の信頼性は遙かに向上し研究の幅も広がった。

一例として、筆者らが用いている装置の概略を図 8.28 に示す 48)。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 810nm, 繰り返し 80MHz, パルス幅 150fs)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  $\mu$  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 0.5GW/cm<sup>2</sup> 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もつ。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フォトンカウンティング法で測定される。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つけられている。また、非線形カー回転の測定のために、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。

#### 8.3.4.2 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)とよんでいる。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 45)(1°~4°)および 1991 年の Reif らの Fe 表面についての研究 46)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 47)。Reif らは 1993 年 PtMnSb について 14° という大きな値を報告した 49)。

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。

##### (a) 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もつことを予言した 39)。

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た 50,51)。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 8.29 は縦カー効果の配置で s 偏光(波長 770nm)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 8.30 は表面に Cr のキャップをつけた Fe( $\blacktriangle$ ), Au のキャップをつけた Fe( $\bullet$ )およびキャップをつけない Fe( $\blacksquare$ ) 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。

##### (b) サンドイッチ膜の MSHG の量子振動

8.2 節に示したように、磁性超薄膜においては電子がスピン依存量子閉じこめを受けることが知られている 52)。ここでは、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 キャップ層をつけた 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。図 8.31 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 53)。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 54)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 55)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受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 56)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 57)。

##### (c) 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 8.32 に示すような反強磁性体 Cr<sub>2</sub>O<sub>3</sub> の SHG スペクトルを報告している 58)。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<sub>N</sub>)以上では、一致した。反強磁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基づく 3 階の磁気双極子感受率による項、非線形分極に基づく 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 59)。

#### (d) エピタキシャル Fe/Au 人工格子膜の MSHG と非線形カー回転

筆者らは、MgO単結晶基板上に形成されたさまざまな層厚 $x$ (ML=mono-layer)の $[\text{Fe}(x\text{ML})/\text{Au}(x\text{ML})]_N$ 人工格子について、S偏光入射およびP偏光入射に対するSHG強度の試料方位依存性を測定した。この結果、Fe/Au人工格子から出射されるSH光の強度は基板結晶の方位に依存して大きく変化すること、すなわち、SH光の強度は明瞭な4回対称のパターンを示すことなどを見出した。また、このパターンの形状は、入射光と出射光の偏光の組み合わせによって大きく異なること、磁界を反転するとこのパターンは、最大45°回転することなどが明らかになった<sup>60)</sup>。図8.33には、一例として、 $x=3.5$ の層厚をもつFe/Au人工格子について観測されたMSHGの試料方位角依存性を、入射偏光と出射偏光の4つの組み合わせ( $P_{\text{in}}-P_{\text{out}}$ ,  $S_{\text{in}}-P_{\text{out}}$ ,  $P_{\text{in}}-S_{\text{out}}$ ,  $S_{\text{in}}-S_{\text{out}}$ )について示す<sup>61)</sup>。

さらに、非線形カー回転角は、線形の場合の値(0.3°程度)に比べ桁違いに大きいこと、回転角は、層厚 $x$ および結晶方位角に依存するが、最も大きな回転角は $x=1.75\text{ML}$ の場合に生じ、 $S_{\text{in}}$ の場合に31°に達することがわかった。図8.34は、このときのSHG強度の検光子回転角依存性である<sup>62)</sup>。非線形カー回転角の方位依存性は、SH光強度と同様に4回対称であった<sup>63)</sup>。この研究を通じて、SHGおよび非線形カー回転の方位角依存性およびその磁場方向依存性は、表面の結晶対称性による非線形電気感受率テンソル(電気双極子起源) $\chi^{(D)}_{ijk}$ 、表面における磁気対称性を反映した非線形電気感受率テンソル $X_{ijkl}M_l$ および電気四重極子起源のテンソル $\chi^{(Q)}_{ijkl}$ の対称性を用いて説明できることが明らかになった。

### 8.3 節のまとめ

●非線形磁気光学効果：金属に強いレーザーを照射したときに生じる第2高調波(SH)光に現れる磁性の影響を磁気誘起第2高調波発生(MSHG)と呼ぶ。この効果は表面や界面の状態に敏感であり、人工格子などの界面における磁性のモニターとして有効である。

●SH光の偏光が入射偏光から回転する効果を非線形カー効果(NOMOKE)という。線形カー効果に比べ、桁違いに大きな回転角を示す。入射角が小さいほど大きな効果が見られる。

●MSHG, NOMOKEの試料方位角依存性には、試料の磁気対称性を反映したパターンが見られる。

### 8.4 X線吸収端のMCDとX線顕微鏡

世界各地で高輝度のシンクロトロン施設が設置されるようになり、放射光がさまざまな分野の研究に適用できるようになってきた。シンクロトロン放射光のような高エネルギーの電磁波を用いた磁性体の研究では、可視から紫外にかけての通常の光学実験とちがって、周波数 $\omega$ 、波数ベクトル $k$ 両方についての情報が得られる点に特徴があるといえよう。 $\omega$ についての情報は分光的研究から得られ、 $k$ についての情報は散乱によって得られる。SRを用いた分光研究のもう一つの特徴は、内殻に関与した光学遷移を観測できることである。強磁性体を構成する原子のX線吸収端付近の吸収スペクトルは磁気円二色性(以下、XMCDと略称)を示す。この現象は、特定の原子の位置における局所的な磁気モーメントのプローブとして用いることができる。放射光による磁性研究については圓山<sup>64)</sup>によるすぐれた解説があるので詳細はそちらを参照されたい。

ここでは簡単にXMCDの物理的起源を紹介する<sup>65)</sup>。円偏光光子のエネルギーが特定の原子のL内殻準位\*の束縛エネルギー以上になると、 $2p_{1/2}(L_2)$ ,  $2p_{3/2}(L_3)$ の電子はd対称性の終状態にのみ遷移する。電気双極子遷移の選択則により右円偏光では磁気量子数が1増加する遷移のみが許容され、左円偏光では1減少する遷移のみが許容される。

図8.35は3d遷移金属の $L_{2,3}$ 吸収に関与するエネルギー準位図と遷移の様子を示している。簡単のため、3dの多数スピン電子のエネルギー帯は完全に占有されており少数スピン電子のエネルギー帯は部分的に占有されているとする。(Niではこの仮定が成立している)。このときL殻から多数スピン3d帯への遷移は起きず、少数スピン3d帯への遷移のみを考えればよいので、図には、少数スピンについてのみ図示してある。実線は右円偏光による遷移( $\Delta l=+1$ )、破線は左円偏光による遷移( $\Delta l=-1$ )を表し、カッコの中の数値は相対的な遷移確率である。図の一番上には終状態である3d電子帯の占有の様子を描いてある。もし、図8.35(a)のように、どの $m_d$ 状態も同じ占有状態となるならば軌道角運動量が消失しており、スペクトルの形状は図8.36(a)のように $L_3$ と $L_2$ のXMCDは対称的な形状となる。これに対して図8.35(b)のように $m_d$ ごとに占有の様子が異なるならば、図8.36(b)のように非対称な形となる。

次に、XMCDを測定することによって局所的な磁化が見積もられることを述べる。吸収係数 $\mu_l(E)$ は遷移行列 $M(E)$ の絶対値の2乗と非占有終状態の状態密度(DOS) $\rho_l(E)$ の積に比例する。吸収原子がスピン磁気モーメントをもつ場合、多数スピンdバンドのDOS( $\rho^+$ )と少数スピンdバンドのDOS( $\rho^-$ )には交換分裂によるずれが生じており磁気モーメント $m_s$ はこの差 $\Delta\rho(E)=\rho^+(E)-\rho^-(E)$ の占有状態についての積分値 $m_s/\mu_B=\int\Delta\rho^{occ}(E)dE$ で表される。

外部磁界を加えると、多数スピンバンドの電子のスピンはz軸に平行になる。フェルミの黄金律により左回り円偏光の吸収係数 $\mu^-$ と右回りの吸収係数 $\mu^+$ とは一般に異なっている。右左円偏光に対する吸

\*ここではL内殻を取り上げたが、M殻( $3p_{1/2,3/2}\rightarrow 3d$ )でも基本的には同じである。

収係数の差(MCD)  $\Delta\mu$  は  $|M(E)|^2 \cdot \langle \sigma_z \rangle \cdot \Delta\rho$  のように  $\Delta\rho = \rho^+(E) - \rho^-(E)$  に比例するので、非占有バンドのスピ密度分布の尺度となる。占有局在スピ密度とのアナロジーから  $\int \Delta\rho^{imocc}(E)dE$  は、ホルのモーメントと定義される。これは実際の局在モーメントと大きさが同じで、符号が逆である。従って、XMCD から局所的な磁化を推測することができる。

1980年代においては、放射光を用いて左右円偏光に対する吸収スペクトルを測定することは容易ではなかった。SR光は電子シンクロトロンにおいて、バンディングマグネットで電子の軌道を曲げるときに出射するが、この軌道面から上下にわずかに外れた方向にでるビームは、左または右円偏光となっており、上下のビームを切り替えて測定すれば、その差からXMCDが得られる。しかし、この方法では光強度は弱く、偏光度も60~80%程度であった。Schützのグループは、非常に丁寧で大がかりな実験を行って、多くの磁性体においてXMCDを観測した<sup>66)</sup>。ChenらはNiのL<sub>2</sub>, L<sub>3</sub>吸収端のXMCDの測定を行い、L<sub>2</sub>とL<sub>3</sub>とのスペクトル形状の非対称性を発見した<sup>67)</sup>。このスペクトル形状は図8.35(b)に示された3d電子帯での軌道の占有のアンバランスが原因となっており、軌道角運動量が消失していないことが原因とされた<sup>68)</sup>。

最近相次いで建設された第3世代のSRストレージ・リングにおいては、非対称な挿入装置(たとえば、軟X線領域のヘリカル・ウィグラ、アンジュレータ)を有し偏光度が100%におよぶ高輝度円偏光が得られるようになったので、これを用いて非常にSN比の高いXMCDスペクトルが測定されるようになった。一例として、図8.37にFeのL吸収端の(a)吸収スペクトルと(b)XMCDスペクトルを示す<sup>69)</sup>。非常にノイズの少ないスペクトルが得られているので、Feの膜厚を変えたときに生じる微小な違いも観測されている。

SchützのグループではXMCDを用いた磁気光学顕微鏡を開発した。X線領域でX線ビームを集光するために、以前はわん曲結晶(bent crystal)が用いられたが、現在では、フレネル帯板(Fresnel zone plate)の一種のコンデンサ・ゾーン・プレート(condenser zone plate=CZP)を用いる。図8.38に示すように、CZP、ピンホール、を組み合わせてことによってサブミクロンのサイズにまで集光することが可能となっている<sup>70)</sup>。図8.39は透過型X線顕微鏡で観察したGd/Fe人工格子の磁区パターンである<sup>71)</sup>。試料は30nm厚のSi<sub>3</sub>N<sub>4</sub>の上に作製されたものである。図に示すように0.1μmの分解能が得られているが、将来的には20nmまで可能であると考えられている。

#### 8.4 節のまとめ

**XMCD**: 元素に特有のX線吸収端は内殻電子が空いた伝導帯へ励起されるときに観測される。強磁性体において軌道角運動量の占有状態が非対称である場合右円偏光による遷移と左円偏光による遷移はうち消されず、MCDが観測される。これをXMCDという。たとえば、Niにおいて、L<sub>2</sub>吸収帯とL<sub>3</sub>吸収帯とは逆符号のMCDを示し、MCDスペクトルの積分(0次のモーメント)は0ではない。

**XMCD**は、特定の元素位置における磁気モーメントの決定、磁区観測などに用いることができる。放射光をフレネル帯板で集光することによって、高い分解能のX線磁気顕微鏡を作ることができ、磁気記録された微小磁区が観測されている。

#### 8.5 サニャックループを用いた磁気光学効果測定

回転座標系において光が回転方向に沿って1周する時間と、逆方向に1周する時間には相対論に基づく時間差があることを発見者の名に因んでサニャック効果(Sagnac effect)という。このために用いられる光学系をサニャック干渉計(Sagnac interferometer)という。

図8.40(a)はサニャック干渉計の基本的配置である。光源からの光はビームスプリッターで2つに分かれ、一方は時計まわり、もう一方が反時計まわりにファイバ・ループを進む。光が1周したあと、ビームスプリッターで光は干渉して強めあい検出器で検出される。このループを通る光は磁界ゼロの静止状態では完全に相反的である。ループが角速度Ωで回転するならば、もはや相反性は失われ、位相のわずかなずれが生じ、検出器での光強度が減少する。これがサニャック効果で、光ファイバジャイロに応用される。

図8.40(b)のようにループを切って、光路に、光軸の向きが直交関係にある2つのλ/4移相板を挿入したとき、2つの移相板の間には新しい円偏光状態が生じる。この部分に通常の誘電材料を置いたとしても相反であるから、干渉パターンは変化しないが、もしこの部分に磁性材料を置くとループを右回りに回る光と左回りに回る光の間にはファラデー回転の2倍(2θ<sub>F</sub>)の位相差がもたらされ、検出される干渉パターンに変化を生じる。すなわち、サニャックループは非相反効果に敏感で、相反的な光学現象には鈍感なので、複屈折のあるような物質においても磁気光学効果を正確に評価できるとされている<sup>72)</sup>。Bauerらは、図8.41に示すようなサニャック干渉系とSNOMと組み合わせたMO-SNOMを開発し、カー回転角の感度0.06°、横方向の分解能300nmを得ている。分解能についてはファイバの改良により向上が可能であるとしている<sup>73)</sup>。

#### 8.5 節のまとめ

●光ファイバジャイロに用いられるサニャック干渉計は非相反効果に敏感で、相反的な光学現象には鈍感なので、複屈折のある系での微小な磁気光学効果の評価に有効とされる。

## 参考文献

- 1) T. Katayama, H. Awano and N. Koshizuka: J. Phys. Soc. Jpn. **55** (1986) 2539.
- 2) K. Sato, H. Kida and T. Katayama: Jpn. J. Appl. Phys. **27** (1988) L237.
- 3) J. Zak, E.R. Moog and S.D. Bader: J. Magn. Magn. Mater. **89** (1990) 107.
- 4) K. Ohta, A. Takahashi, T. Deguchi, T. Hyuga, S.Kobayashi and H.Yamaoka: SPIE **382** (1983) 252.
- 5) 鈴木義茂, 片山利一: 応用物理学会誌 **63**, 1261 (1994).
- 6) 片山利一, 鈴木義茂: 日本応用磁気学会誌 **20**, 764 (1996).
- 7) Y.Suzuki, T.Katayama, S.Yoshida, K.Tanaka and K.Sato: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 3355-3358.
- 8) Y. Suzuki, T.Katayama, A. Thiaville, K. Sato, M. Tanioka and S. Yoshida: J. Magn. Magn. Mater. **121** (1993) 539.
- 9) K. Takanashi, S. Mitani, M. Sano, H. Fujimori, H. Nakajima and A. Osawa, Appl. Phys. Lett. **67** (1995) 1016.
- 10) K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori, K. Sato and Y. Suzuki: J. Magn. Magn. Mater. **177-181** (1998) 1199.
- 11) K. Sato, E. Takeda, M. Akita, M. Yamaguchi, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori, Y. Suzuki: J. Appl. Phys. **86** (1999) 4985.
- 12) 山口正剛, 日下部鉄也, 浅野撰郎: 日本応用磁気学会誌 **22**, 1401 (1998).
- 13) 金子正彦: 表面技術 **45**, 33 (1994).
- 14) P. F. Carcia: J. Appl. Phys. **63**, 1426 (1988).
- 15) K.H.J. Buschow, P.G.van Engen and R. Jogerbreur: J. Magn. Magn. Mater. **38** (1983) 1.
- 16) K. Nakamura, S. Tsunashima, S. Iwata and S. Uchiyama: IEEE Trans. Magn. **MAG-25** (1989) 3758.
- 17) S. Hashimoto, Y. Ochiai and K. Aso: Jpn. J. Appl. Phys. **28** (1989) L1824.
- 18) W.B. Zeper, F.J.A.M. Greidanus, P.F. Carcia and C.R. Fincher: J. Appl. Phys. **65** (1989) 4971.
- 19) K. Sato, H. Hongu, H. Ikekame, J. Watanabe, K. Tsuzukiyama, Y. Togami, M. Fujisawa and T. Fukazawa: Jpn. J. Appl. Phys. **31** (1992) 3603.
- 20) K.Sato: J. Magn. Soc. Jpn. **17**, Suppl. S1 (1993) 11.
- 21) G. Schütz, R. Wienke, W.Whilhelm, W.B. Zeper, H. Ebert, K. Sp irt: J. Appl. Phys. **67** (1990) 4456.
- 22) G. Schütz, R. Wienke, W. Whilhelm, W. Wagner, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahn: Z. Phys. B-Cond. Matt. **75** (1989) 495.
- 23) H. Ebert and H. Akai: J. Appl. Phys. **67** (1990) 4798.
- 24) 中村, 綱島, 岩田, 内山: 日本応用磁気学会誌 **13** (1989) 389.
- 25) Y. Tosaka, H. Ikekame, K. Urago, S. Kurosawa, K. Sato and S.C. Shin: 日本応用磁気学会誌 **18** (1994) 389.(in English).
- 26) K. Sato, Y. Tosaka, H. Ikekame, M. Watanabe, K. Takanashi and H. Fujimori: J. Magn. Magn. Mater. **148** (1995) 206.
- 27) D.W. Pohl, W. Denk and M. Lanz: *Appl. Phys. Lett.* **44**, 651 (1984).
- 28) D.W. Pohl, W. Denk and U. Dürig: *Proc. SPIE* **565**, 56 (1985).
- 29) E. Bezig, J.K. Trautman, T.D. Harris, J.S. Weiner and R.L. Kostelak: *Science* **251**, 1468 (1991).
- 30) E. Betzig, J.K. Trautman, R. Wolfe, E.M. Gyorgy, P.L. Finn, M.H. Kryder and C.-H. Chang: *Appl. Phys. Lett.* **61**, 142 (1992).
- 31) K.Sato, T.Ishibashi, T.Yoshida, J.Yamamoto, A.Iijima, Y.Mitsuoka, and K.Nakajima: *J. Magn. Soc. Jpn.* **23**, Suppl. S1, 201 (1999).
- 32) K. Sato: *Jpn. J. Appl. Phys.* **20**, 2403-2409 (1981)
- 33) 吉田武一心, 山本仁, 飯島文子, 石橋隆幸, 佐藤勝昭, 中島邦雄, 光岡靖幸: 日本応用磁気学会誌 **23**, 1960 (1999).
- 34) 佐藤勝昭: 固体物理 **34**, 681 (1999)
- 35) Th. Rasing: *Nonlinear Optics in Metals*, ed. by K.H. Bennemann (Oxford, 1998) Chap. 3 p.132
- 36) 佐藤勝昭: 日本応用磁気学会誌 **21** (1997) 879.
- 37) Y.R. Shen: *The Principles of Nonlinear Optics* (John Wiley & Sons, New York, 1984).
- 38) 小川智哉: 結晶物理工学.(裳華房, 東京, 1976).
- 39) U. Pustogowa, W. Hübner, K.H. Bennemann: Phys. Rev. **B49** (1994) 10031.
- 40) W. Hübner: *Nonlinear Optics of Metals*, K.H.Bennemann ed. (Oxford University Press, Oxford, 1998) Chap.5, p.268.
- 41) U. Pustogowa, T.A. Luce, W. Hübner and K.H. Bennemann: J. Appl. Phys. **79** (1996) 6177.
- 42) Ru-Pin Pan, H.D. Wei and Y.R. Shen: Phys. Rev. **B39** (1989) 1229.
- 43) Th. Rasing: *Nonlinear Magneto-optics for Magnetic Thin Films*; Textbook at Aalborg Summer School (1995) (unpublished) 表 8.1 はこの文献に従う. 文献 42)に掲載された同様の表には誤りがあると Rasing は指摘している.
- 44) W. Hübner: Phys. Rev. **B42** (1990) 11553.
- 45) O.A. Aktsipetrov, O.V. Braginskii and D.A. Esikov: J. Quantum Electron. **20** (1990) 259.
- 46) J. Reif, J.C. Zink, C.M. Schneider and J. Kirschner: Phys. Rev. Lett. **67** (1991) 2878.
- 47) G. Spierings, V. Koutsos, H.A. Wierenga, M.W.J. Prins, D. Abraham and Th. Rasing: J. Magn. Magn. Mater. **121** (1993) 109.
- 48) 佐藤勝昭, 宮本大成, 児玉彰弘, 高梨弘毅, 藤森啓安, A. Petikhov, Th. Rasing: 固体物理 **35** (2000) 559.
- 49) J. Reif, C. Rau and E. Matthias: Phys. Rev. Lett. **71** (1993) 1931.
- 50) B. Koopmans, M. Groot Koerkamp, Th. Rasing and H. van der Berg: Phys. Rev. Lett. **74** (1995) 3692.
- 51) Th. Rasing, M. Groot Koerkamp and B. Koopmans: J. Appl. Phys. **79** (1996) 6181.
- 52) 片山利一, 鈴木義茂: 日本応用磁気学会誌 **17** (1993) 857.

- 53) Th. Rasing: J. Mgn. Soc. Jpn. **20** (1996) Suppl. S1, 13.
- 54) J.E. Ortega, F.J. Himpsel, G.J. Mankey and R.F. Willis: Phys. Rev. **B47** (1993) 1540.
- 55) M.T. Johnson, S.T. Purcell, N.W.E. McGee, R. Coehoorn, J. aan de Stegge and W. Hoving: Phys. Rev. Lett. **68** (1992) 2688.
- 56) S. Krompiewski, F. Süß, B. Zellermann, U. Krey: J. Magn. Magn. Mater. **148** (1995) 198.
- 57) R. Vollmer: *Nonlinear Optics in Metals*, ed. by K.H. Bennemann (Oxford, 1998) Chap. 2, p. 42.
- 58) M. Fiebig, D. Fröhlich, G. Sluyterman, R. V. Pisarev: Appl. Phys. Lett. **66** (1995) 1016.
- 59) Y. Tanabe, M. Fiebig, and E. Hanamura: Magneto-Optics, Ed. S.Sugano and N.Kojima, (Springer, Berlin, 1999) Chap. 4, p.107.
- 60) K. Sato, S. Mitani, K. Takanashi, H. Fujimori, A. Kirilyuk, A. Petukhov and Th. Rasing: J. Magn. Soc. Jpn. **23** (1999) 352.
- 61) 佐藤勝昭, 児玉彰弘, 宮本大成, Th. Rasing, 高梨弘毅: 電気学会マグネティクス研究会資料 MAG00-13 (1999) pp.19-24.
- 62) 佐藤勝昭: 固体物理 **35** [8] (2000) 559-569.
- 63) K. Sato, A. Kodama, M. Miyamoto, K. Takanashi and Th. Rasing: J. Appl. Phys. **87** (2000) 6785.
- 64) 圓山 裕: 日本応用磁気学会誌 **22** (1998) 1369.
- 65) 小出常晴: 応用物理 **63** (1994) 1210.
- 66) G. Schütz, R. Frahm, R. Wienke, W. Wilhelm, W. Wagner and P. Kienle: Rev. Sci. Instrum. **60** (1989) 1661.
- 67) C.T.Chen, F.Sette, Y.Ma and S.Modesti: Phys. Rev. **B42** (1990) 7262.
- 68) T. Jo and G. A. Sawatzky: Phys. Rev. (RC) **B43** (1991) 8771.
- 69) G. Schütz, P. Fischer, K. Attenkofer, M. Knülle, D. Ahlers, S. Stähler, C. Detlefs, H. Ebert and F.M.F. DeGroot, J. Appl. Phys. **76** (1994) 6453.
- 70) P. Fischer, T. Eimüller, G. Schütz, P. Guttmann, G. Schmahl, P. Pruegl and G. Bayreuther: J. Phys. D **31** (1998) 649.
- 71) P. Fischer, T. Eimüller, G. Schütz, P. Guttmann, G. Schmahl, M. Köhler and G. Bayreuther: J. Magn. Soc. Jpn. **23** Suppl. S1 (1999) 205.
- 72) A.Kapitulnik, J.S.Dodge and M.M.Fejer: J. Appl. Phys. **75** (1994) 6872.
- 73) A. Bauer, B.L. Petersen, T. Crecelius, G. Meyer, D. Wegner and G. Kaindl: J. Microscopy **194** (1999) 507.

図8.1.

図8.2.

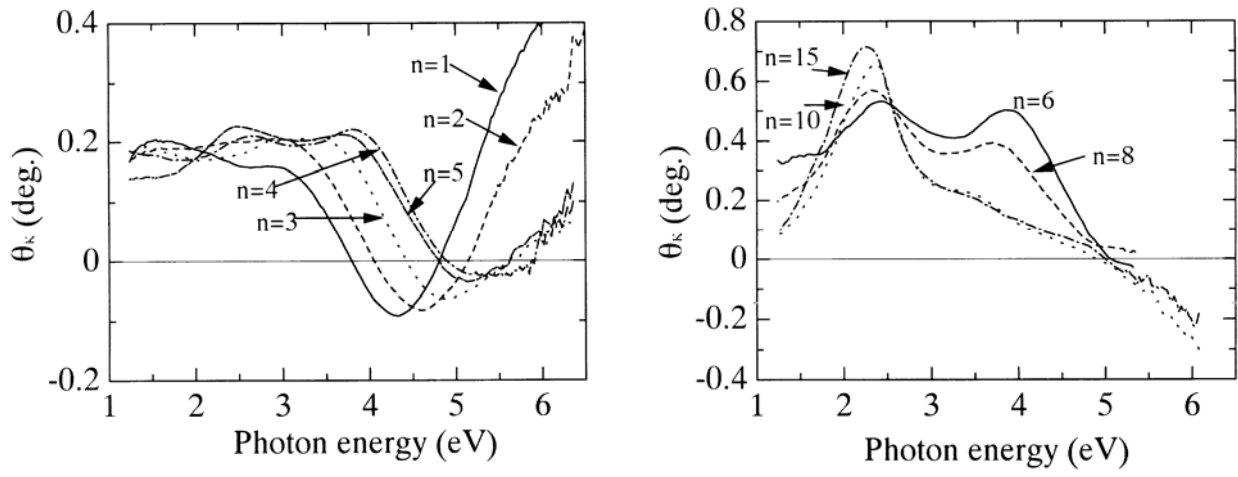


図8.3. Fe(xML)/Au(xML)人工格子の磁気光学スペクトルの x 依存性

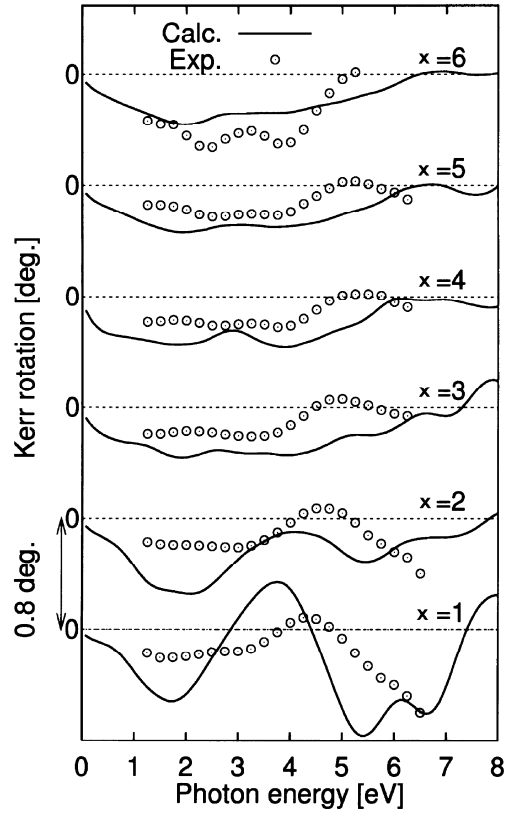


図8.4. バンド計算に基づいて求めた Fe(xML)/Au(xML)人工格子の磁気光学スペクトル

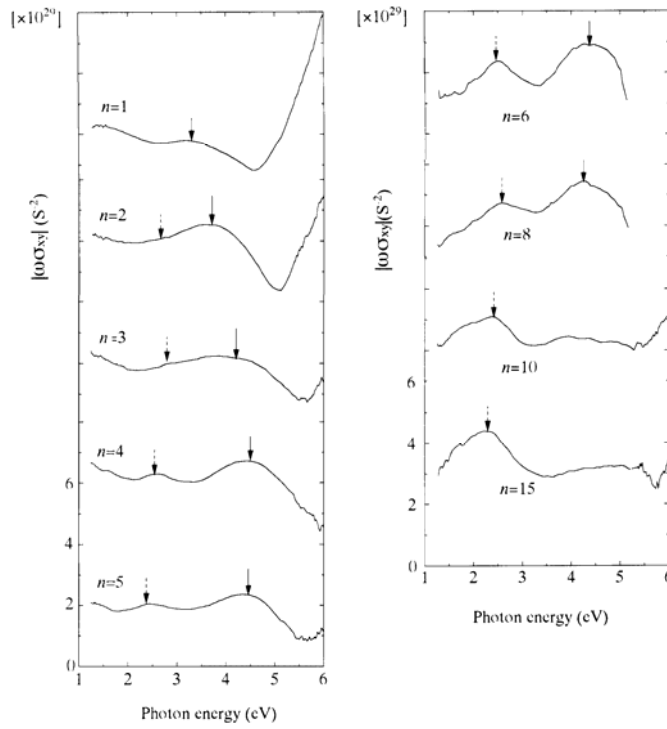


図8.5.  $|\sigma_{xy}|$ のスペクトルのピーク位置のFe層厚依存性

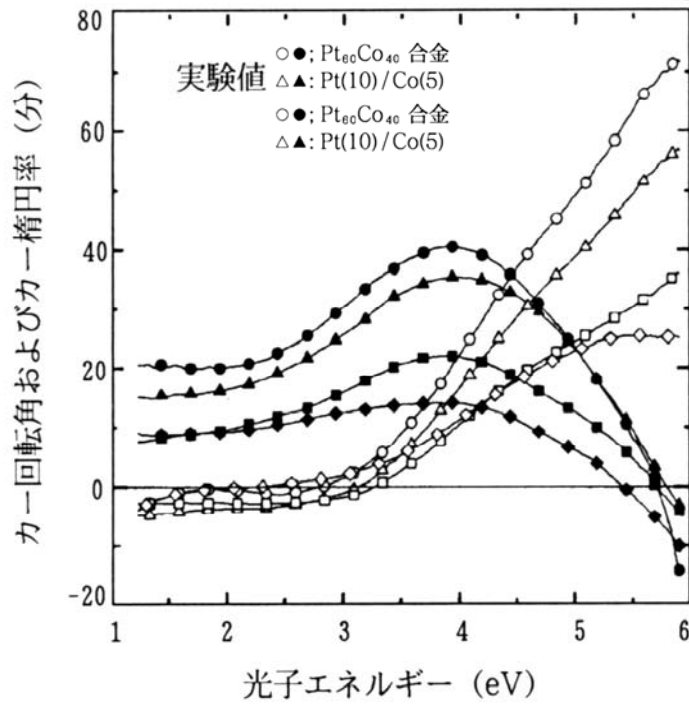
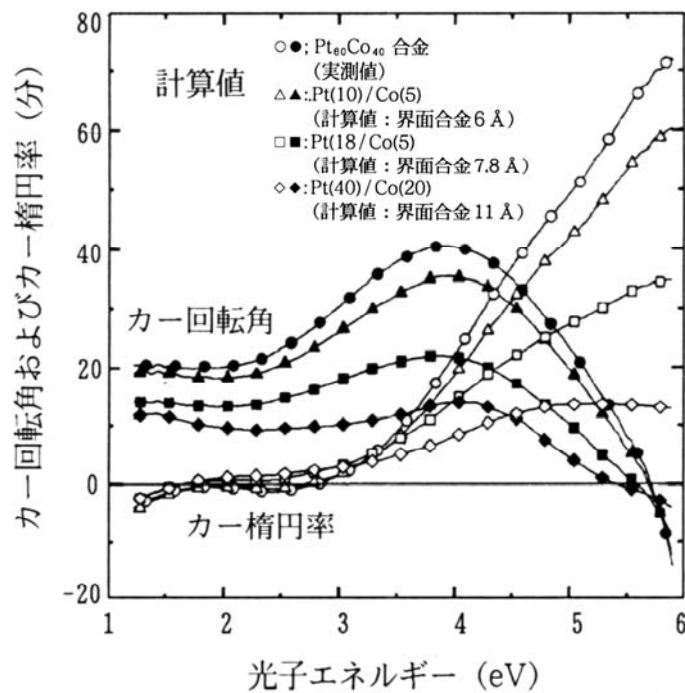


図8.6. Pt(10 Å)/Co(5 Å)、Pt(18)/Co(5)、Pt(40)/Co(20)人工格子およびPt<sub>60</sub>Co<sub>40</sub>合金の磁気



光学スペクトル (黒い記号：カー回転角，白い記号：カー楕円率)

図8.7. Pt(10 Å)/Co(5 Å)、Pt(18)/Co(5)、Pt(40)/Co(20)人工格子の各試料につき最もよくフィットした場合のシミュレーション結果の磁気光学スペクトル (黒い記号：カー回転角，白い記号：カー楕円率)



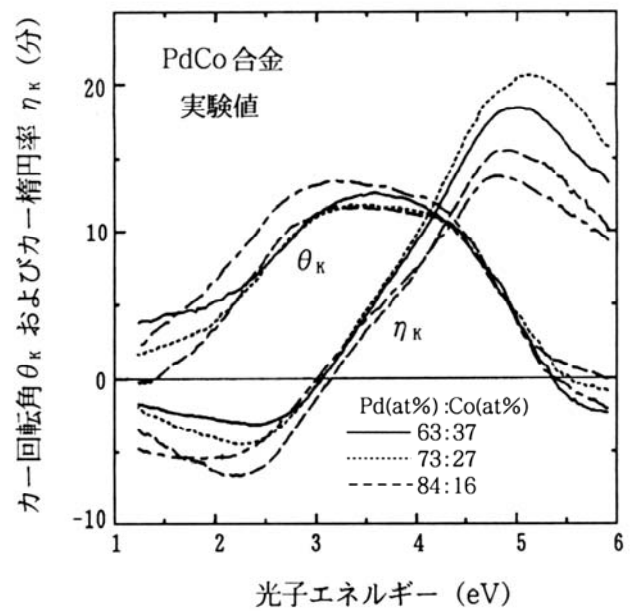
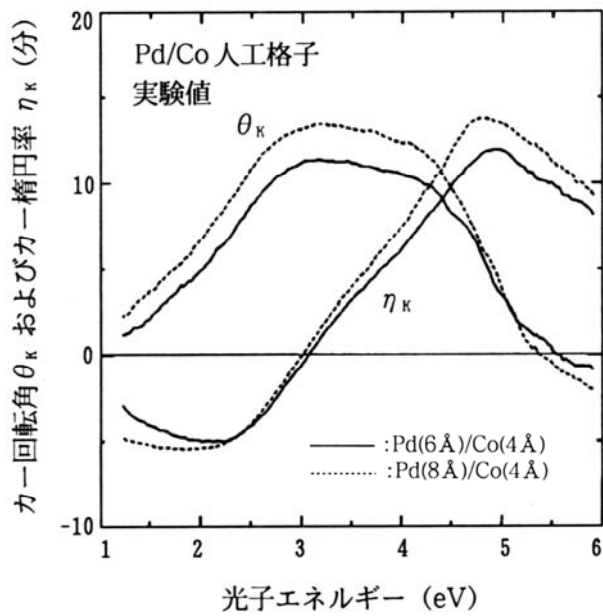


図8.8. Pd/Co 人工格子(a)と PdCo 合金(b)の磁気光学スペクトル

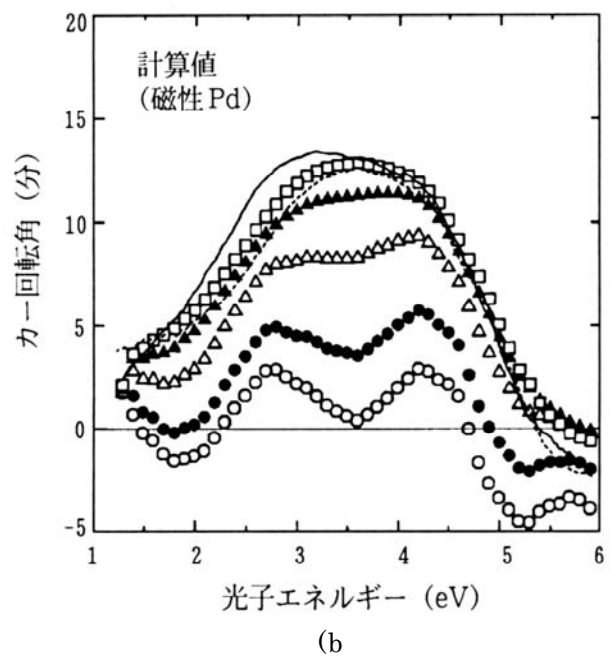
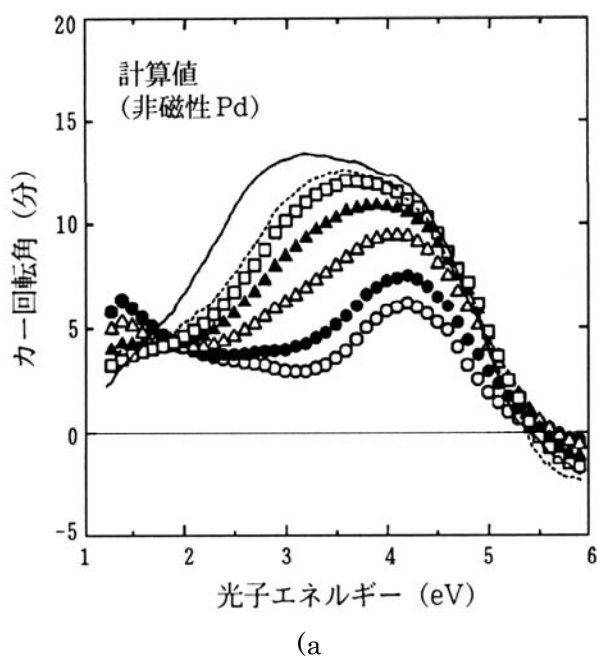


図8.9. Pd/Co 人工格子の磁気光学スペクトルの仮想光学定数法による解析

(a) 界面に"magnetic Pd"を仮定しない場合, (b) 界面に"magnetic Pd"が存在すると仮定した場合

○ : 合金を仮定しない場合, ● : PdCo 合金 2Å 仮定, △ : PdCo 合金 4Å 仮定, ▲ : PdCo 合金 5Å 仮定, □ : 合金層の限界厚 5.53Å を仮定 点線 : PdCo 合金の実測値, 実線 : Pd(8)/Co(4)の実測値

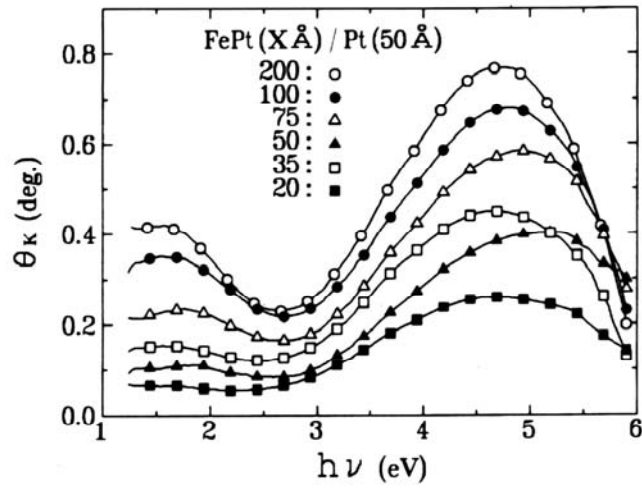


図8.10. FePt(xÅ)/Pt(50Å)人工格子の磁気光学スペクトル

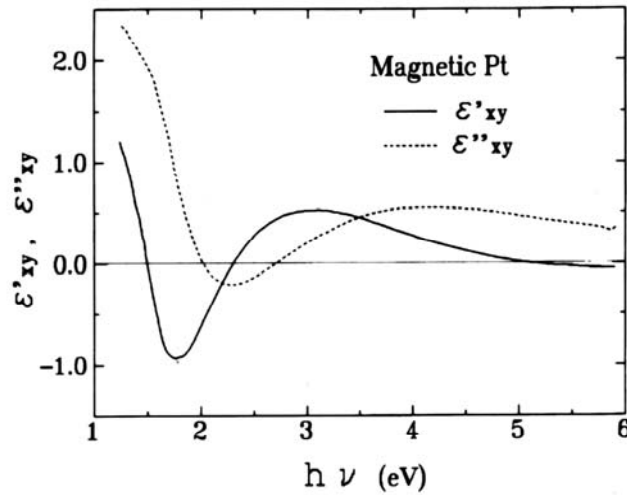
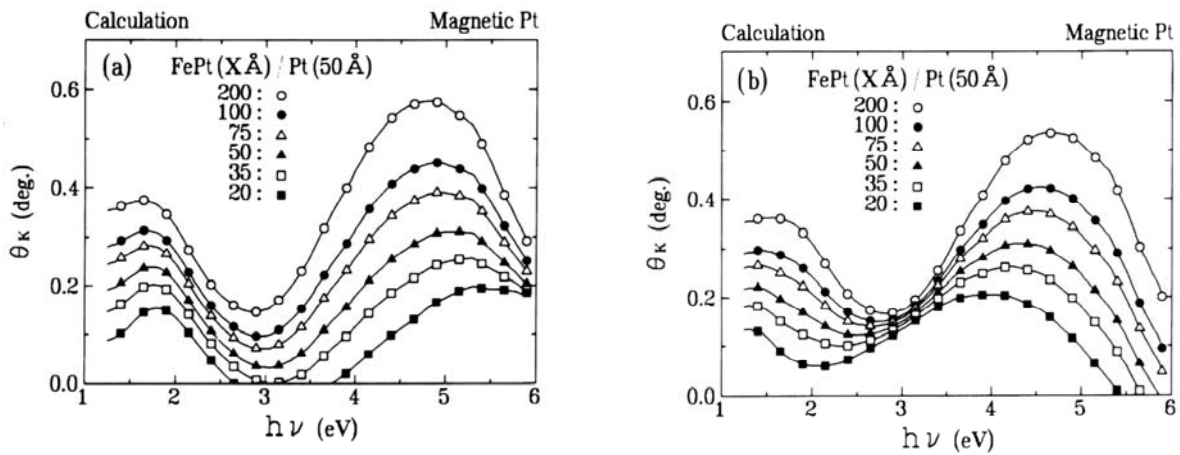


図8.11. 異なる組成のFe-Pt合金の $\epsilon_{xy}$ スペクトルの差から求めた仮想的な”magnetic Pt”の $\epsilon_{xy}$



スペクトル

図8.12. FePt と”magnetic Pt”が(a)反強磁性結合した場合と(b)強磁性結合した場合について行った光学的シミュレーションの結果

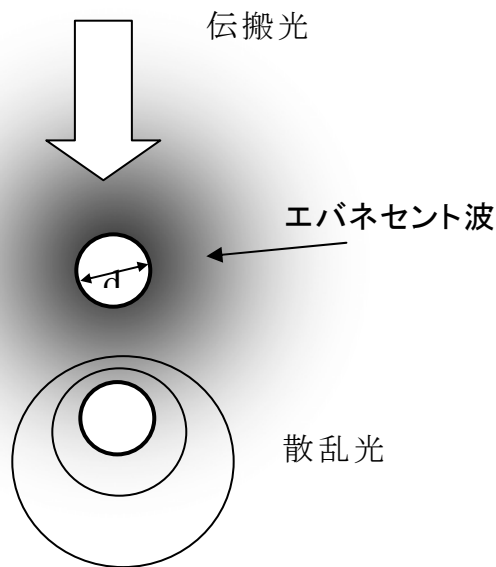


図8.13. 微小物体に誘起された電気双極子が作る振動電界のうち、小球の直径程度のごく近傍に存在する伝播せず距離とともに減衰する電磁界(連載講座 VI Fig.6.2)

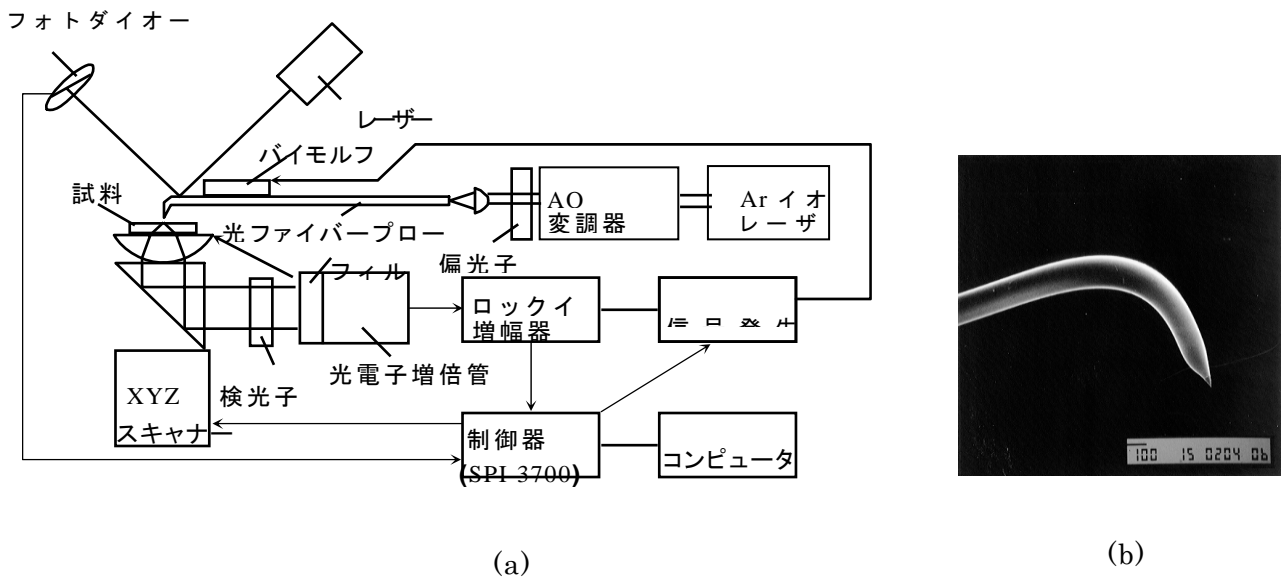
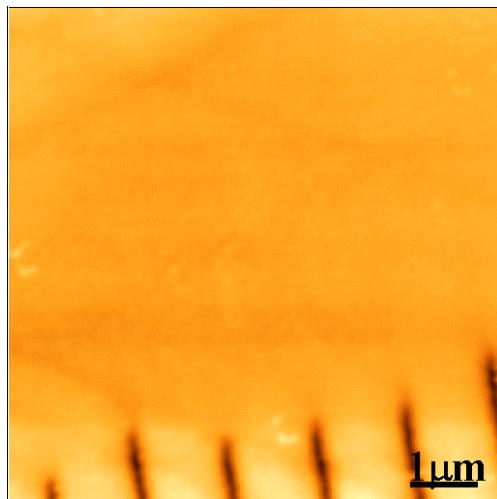
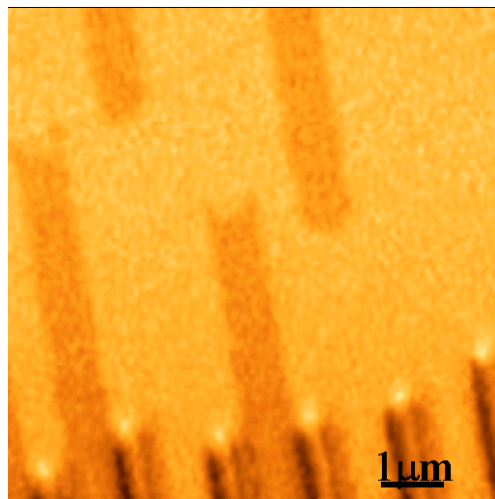


図8.14. (a) 開発した近接場磁気光学顕微鏡(MO-SNOM) (b) ベントタイプの SNOM プロブ





(a) トポグラフ像



(b) 磁気光学像

図8.15. MO-SNOM で観測した Pt/Co 光磁気ディスクに記録された矢羽根型記録マーク

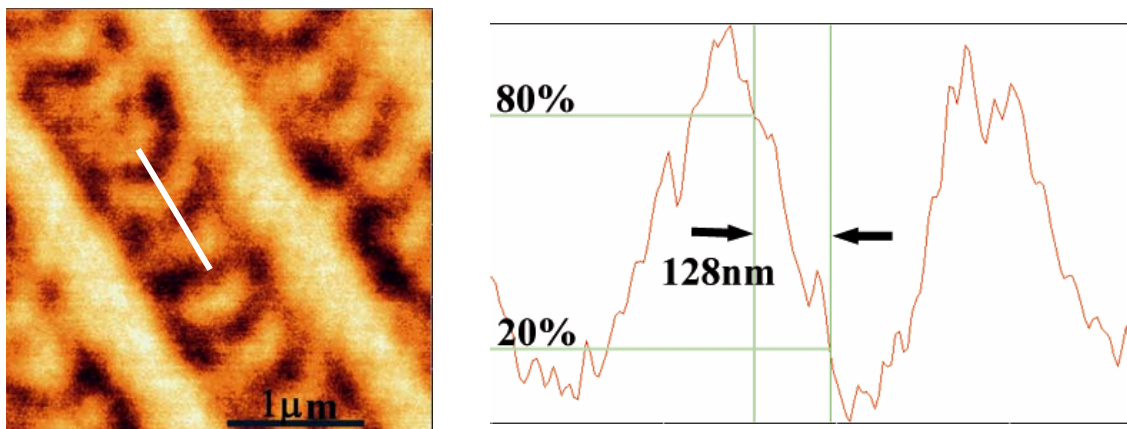


図8.16. 長さ  $0.2 \mu\text{m}$  の記録マークの MO-SNOM 像

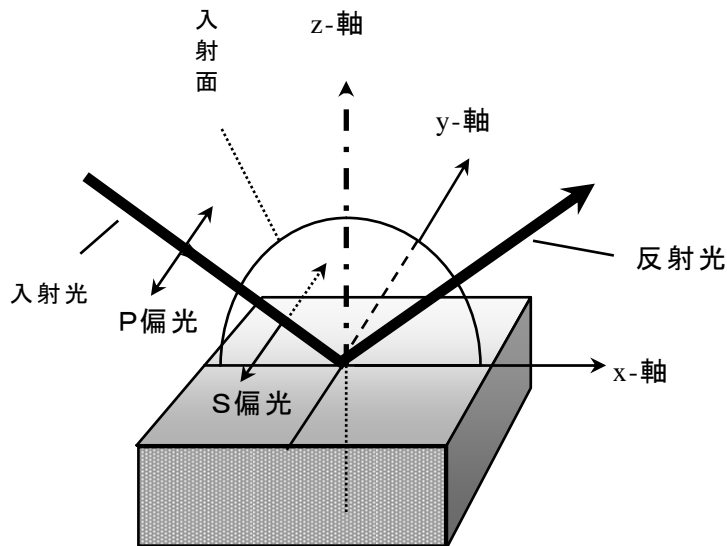


図8.17. 縦カー配置と座標系

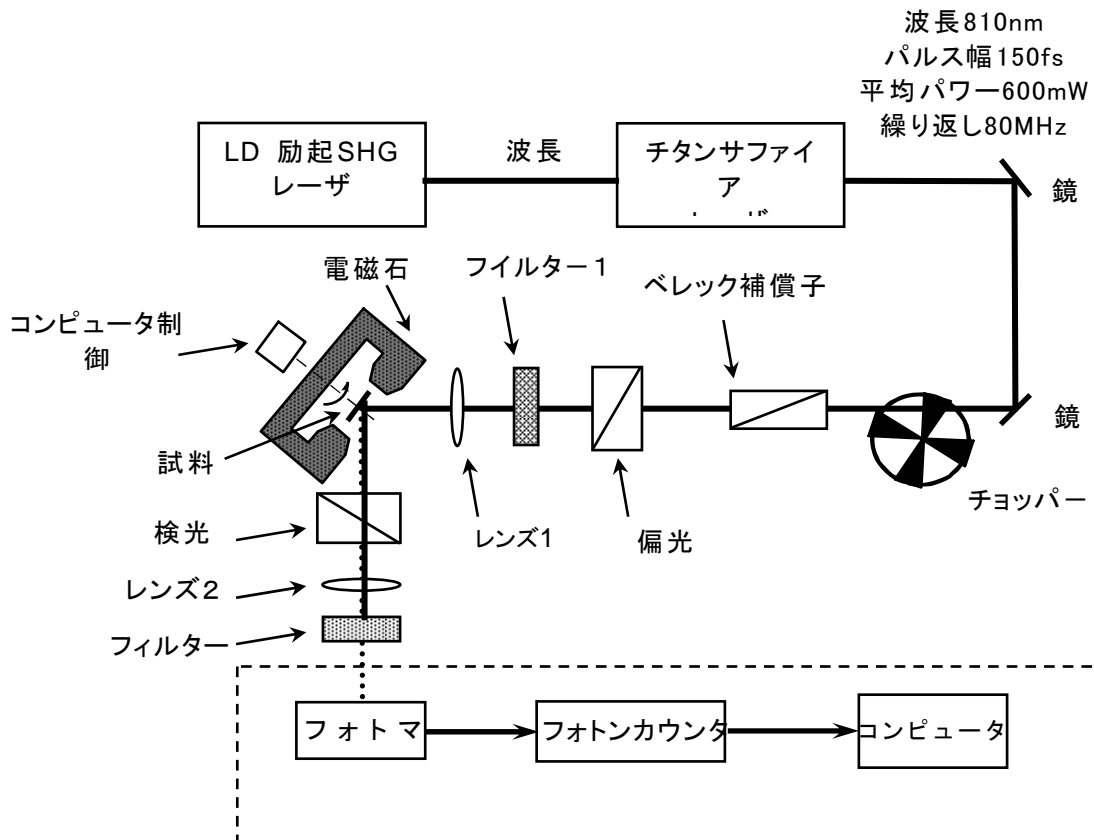


図8.18. 非線形磁気光学効果測定系模式図



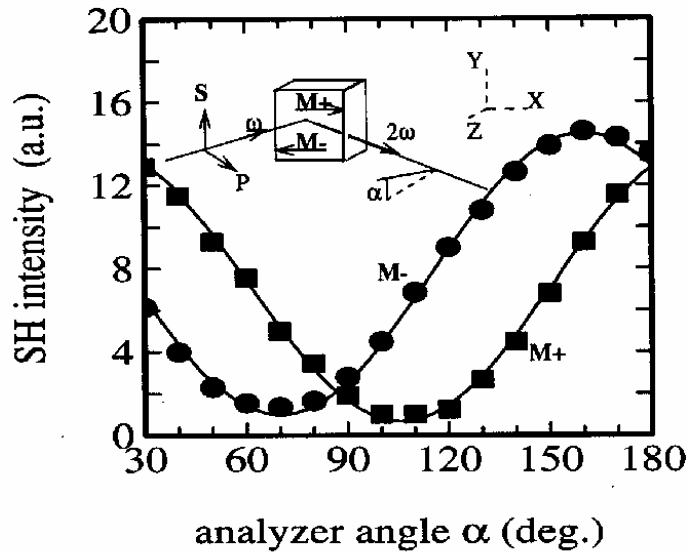


図8.19. FeからのMSHG(磁気誘起第2高調波光発生)強度の検光子角度依存性 ( $M+$ と $M-$ の2つの曲線が極小をとる角度の差は、非線形カー回転角 $\theta_K^{(2)}$ の2倍を与える)

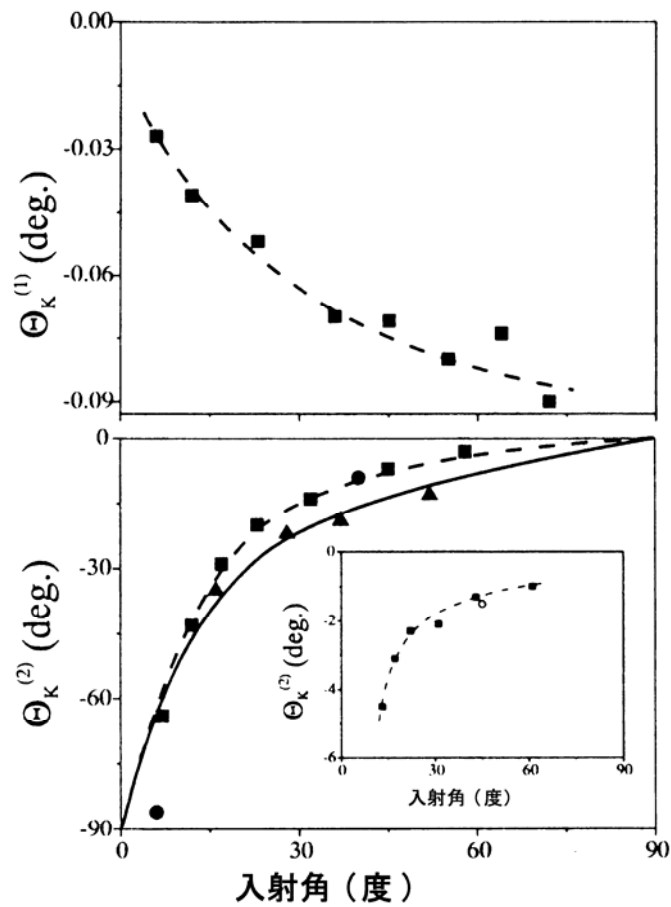


図8.20. 表面にCrのキャップをつけたFe (▲)、AuのキャップをつけたFe (●) およびキャップをつけないFe (■) の線形および非線形カー回転角の入射角依存性





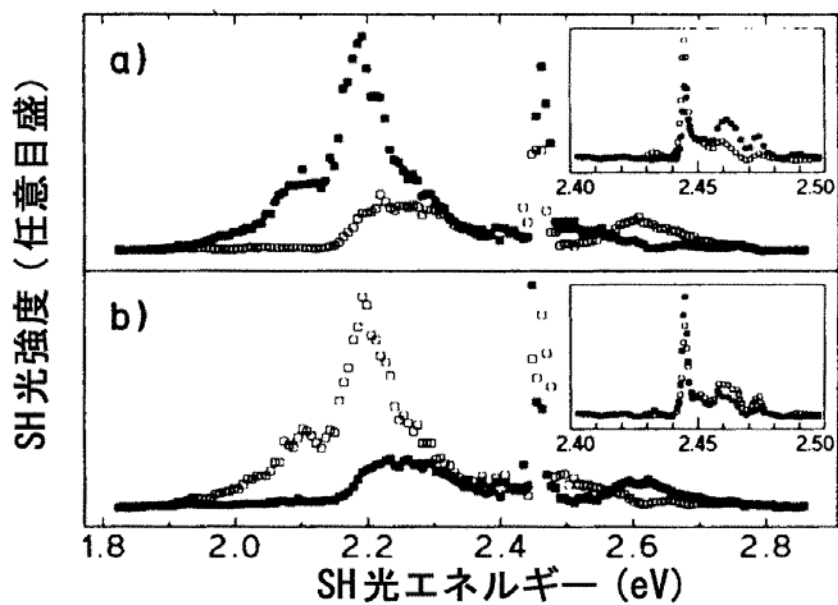


図8.21. 反強磁性体 $\text{Cr}_2\text{O}_3$ のSHGスペクトル(M. Fiebig, D. Fröhlich, G. Sluyterman, R. V. Pisarev: Appl. Phys. Lett. **66** (1995) 1016.)

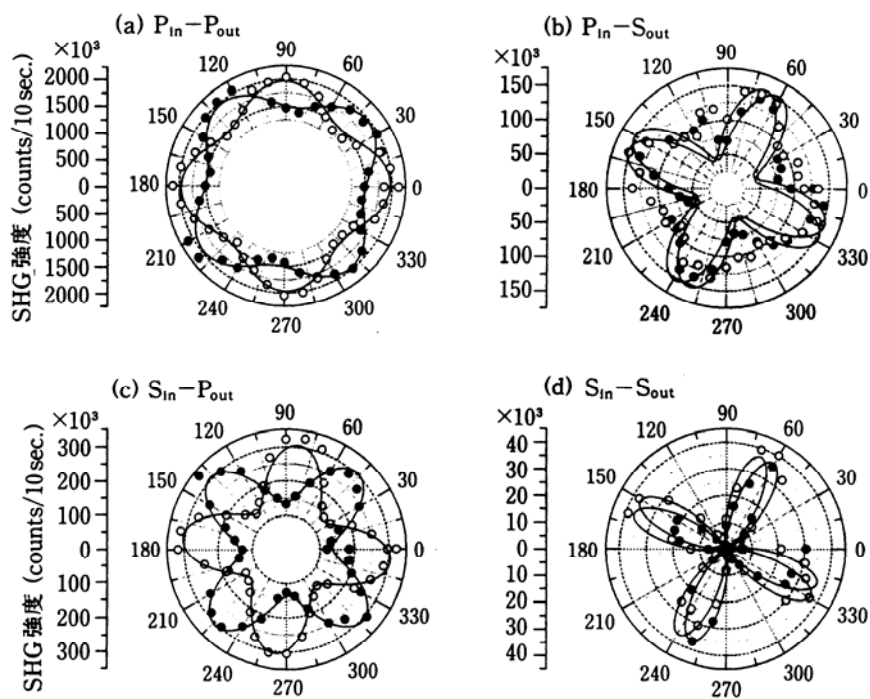


図8.22. Fe(3.5ML)/Au(3.5ML)人工格子について観測されたMSHGの試料方位角依存性 (入

射偏光と出射偏光の4つの組み合わせに対して示す)

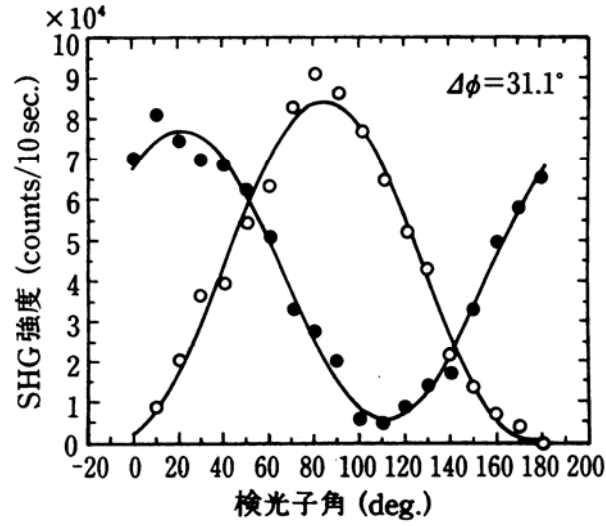


図8.23. Fe(1.75ML)/Au(1.75ML)人工格子について観測された SHG 強度の検光子回転角依存性

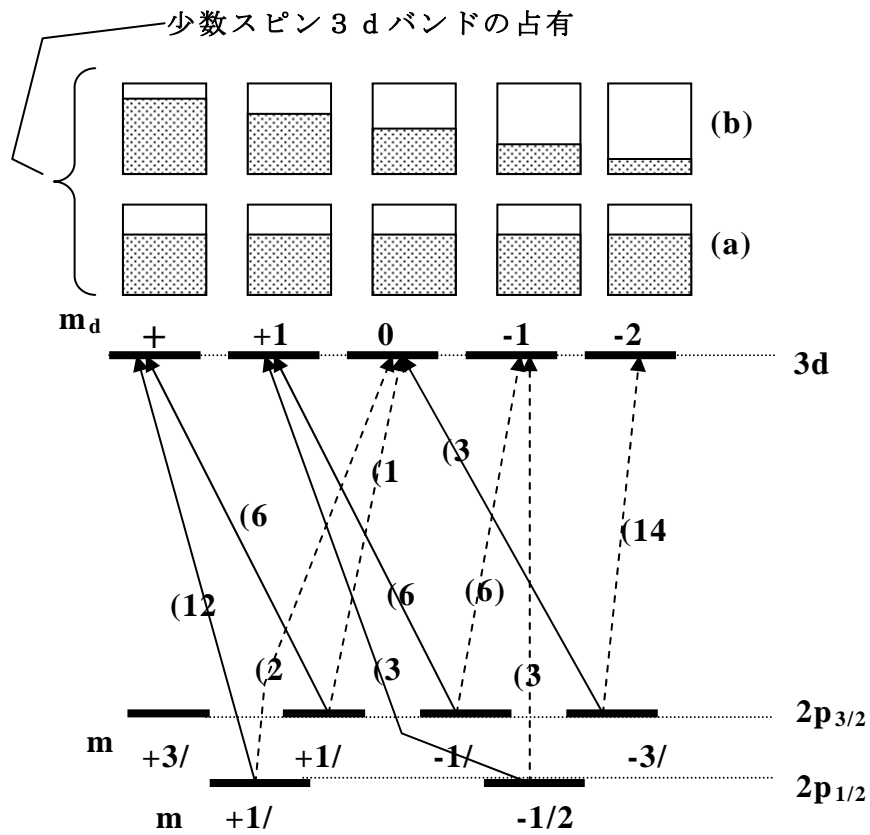


図8.24. 3d遷移金属のL<sub>2,3</sub>吸収に関するエネルギー準位図と遷移の様子.

(a) どの $m_d$ 状態も同じ占有状態となる場合(軌道角運動量の消失状態)

(b)  $m_d$ 毎に占有の様子が異なる場合

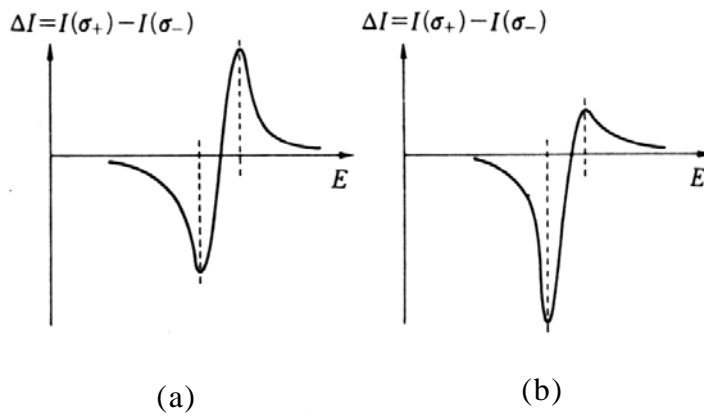


図8.25.  $L_{2,3}$ 吸収スペクトルの形状

- (a) どの $m_d$ 状態も同じ占有状態となる場合( $L_3$ と $L_2$ のXMCDは対称的な形状)
- (b)  $m_d$ 毎に占有の様子が異なる場合( $L_3$ と $L_2$ のXMCDは非対称)

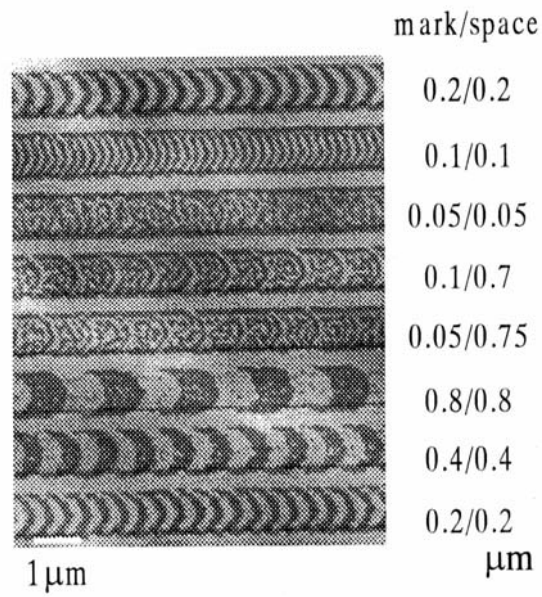


図8.26. 透過型 X 線顕微鏡で観察した光磁気ディスクの磁区パターン

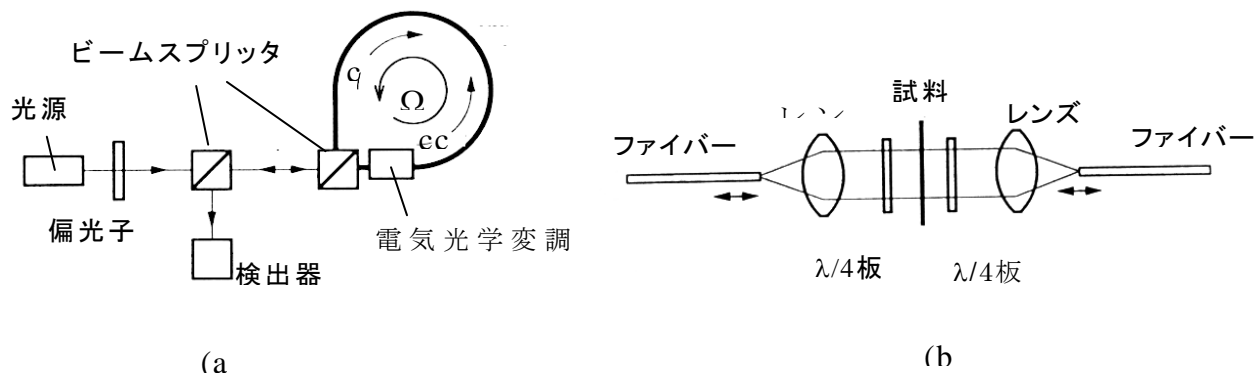


図8.27. サニャック干渉計と磁気光学効果

(a) サニャック干渉計の基本的配置

(b) 光路に、光軸の向きが直交関係にある2つの $\lambda/4$ 移相板を挿入