



## 第8章

## 第2編 光と物質の量子相互作用

# 磁気光学効果・ 光磁気効果

東京農工大学名誉教授 佐藤 勝昭

## 1. はじめに

この章では、物質における光と磁気の結びつきを扱うことを目的とする。光と磁気の結びつきには、物質の磁気的性質が光学現象に影響を与える磁気光学効果 (magneto-optical effect) と、光によって物質の磁性に影響を与える光磁気効果 (photo-magnetism) とがある。2. では磁気光学効果の基礎と応用を扱う。はじめに電磁気学にもとづき、ついで古典電子論と量子論に立って磁気光学効果の起源について述べる。さらに非線形磁気光学効果、近接場磁気光学効果について触れる。磁気光学効果の測定法、磁気光学効果の応用についても簡単に記述する。3. では光磁気効果を概説する。はじめに光磁気効果の基礎を、ついで光磁気効果の応用について述べる。4. では、光とスピン、光とトポロジカル物質など光と磁気の最近の展開を取り上げる。

## 2. 磁気光学効果の基礎と応用<sup>9)</sup>

### 2.1 磁気光学効果とは

物質に外部磁場を印加すること、あるいは、物質に磁化が生じることによって現れる光学活性を磁気光学効果という。

磁気光学効果における光と磁場の配置には、図1に示すように2つの場合がある。光の波動ベクトルと磁場 (または磁化) とが平行の場合をファラデー配置、垂直の場合をフォークト配置と呼ぶ。

図2に示すように、ファラデー配置で物質に磁場を印加して、磁場に対して平行に直線偏光を入射したとき、透過光の電場のベクトルの向きが入射光の電場の向きから傾く効果をファラデー効果といい、直線偏光の旋光角をファラデー回転角という。正確には、透過光の電場ベクトルの軌跡は直線ではなく

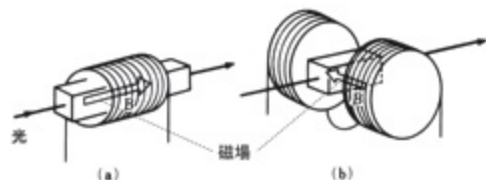


図1 (a) ファラデー配置と (b) フォークト配置

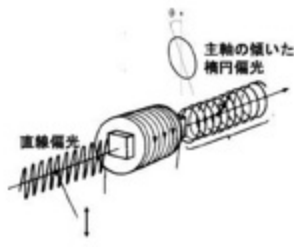
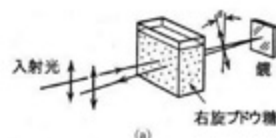
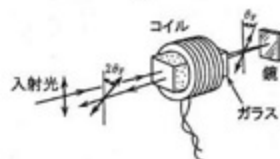


図2 ファラデー効果



(a)



(b)

図3 (a) 自然旋光性と (b) ファラデー効果

楕円を描くが、このような楕円偏光を作る効果を磁気円二色性 (MCD) と呼び、楕円の程度を楕円率またはその逆正接である楕円率角で表す。このとき回転角は楕円の主軸の傾きとして定義される。ファラデー回転角およびファラデー楕円率は、磁場または磁化の一次の関数である。

自発磁化を持たない材料 (たとえば、ガラス) のファラデー回転角  $\theta_F$  は、外部磁場  $H$  に比例し、試料の長さ  $l$  に比例する。すなわち

$$\theta_F = V H l \quad (1)$$

ここに、 $V$  は単位長さあたり、単位磁場あたりのファラデー回転を与える係数で、ヴェルデ定数と呼ばれる。一例としてクラウンガラスのヴェルデ定数  $V$  は  $2.4 \times 10^2 \text{ min/A}$  である。長さ  $1 \text{ cm}$  のガラスに  $1 \text{ T}$  の磁場を加えたときの回転角は  $3.18 \text{ deg}$  に過ぎない。

磁場を加えなくても偏光が回転する効果を自然旋光性といい、ブドウ糖溶液のようにらせん状の分子構造を持つ物質において生じる。図3に示すように、自然旋光性物質が光が往復した場合、偏光の回転がもとに戻ってしまうが、ファラデー効果の場合、磁場中のガラスを往復したときの偏光の回転角は片道の場合の2倍になる。

桁違いに大きなファラデー効果を示すのが、強磁性体やフェリ磁性体など自発磁化をもつ磁性体である。これらの磁性体の磁化は外部磁場に比例しないので、ファラデー効果の大きさをヴェルデ定数によって表すことができない。それで、磁氣的に飽和した磁性体の単位長さあたりのファラデー回転角を使って表す。表に示すように、磁気飽和した鉄のファラデー回転角は  $1 \text{ cm}$  あたり  $38$  万度も回転する。厚さ  $1 \text{ cm}$  の鉄は光を通さないで、実際には厚さ  $100 \text{ nm}$  程度の薄膜について測定された値である。ファラデー効果のよさを表すには、減衰量あたりの回転角を性能指数として用いる。

図4は、反射の磁気光学効果、すなわち、磁気光学カー効果を3つの場合について示したものである。(a)のように、反射面の法線方向と磁化の方向が平行な場合を極カー効果という。(b)のように、反射面内に磁化があって、かつ、入射面に含まれる場合を縦カー効果という。(a)および(b)の効果は磁場の向きを反転すると、旋光角や楕円率の符号が反転する。一方(c)は磁化が反射面内にあって、かつ、入射面に垂直な場合で、横カー効果と呼ばれる。この効果では磁化方向に依存した偏光面の回転は起きないが、磁化に応じて反射光の強度が変調される。

コットンムートン効果は、磁気によって生じる複屈折である。複屈折というのは、偏光の電場の振動

表 代表的な磁性体のファラデー効果

物質名	比旋光角 (deg/cm)	性能指数 (deg/dB)	測定波長 (nm)	温度 (K)	磁場 (T)
Fe	$3.825 \times 10^6$		578	室温	2.4
Co	$1.88 \times 10^6$		546	室温	2
Ni	$1.3 \times 10^6$		826	120 K	0.27
$Y_3Fe_5O_{12}$	250		1150	100 K	
$Gd_2BiFe_5O_{12}$	$1.01 \times 10^4$	44	800	室温	
MnSb	$2.8 \times 10^6$		500	室温	
MnBi	$5.0 \times 10^6$	1.43	633	室温	
$YFeO_3$	$4.9 \times 10^3$		633	室温	
$NdFeO_3$	$4.72 \times 10^4$		633	室温	
$CrBr_3$	$1.3 \times 10^6$		500	1.5 K	
EuO	$5 \times 10^6$	$10^4$	660	4.2 K	2.08
$CdCr_2Se_4$	$3.8 \times 10^3$	35 (80 K)	1000	4 K	0.6



図4 磁気光学効果の3つの配置

方向によって屈折率が異なる現象で、これによって光学遅延（リターデーション）が生じる。この効果を測定するには図1(b)のフォークト配置を用いる。コットンムートン効果による光学遅延は、磁化の二次の関数である。

## 2.2 磁気光学効果の現象論<sup>2)</sup>

### 2.2.1 光学活性の起源

旋光性と円二色性をあわせて光学活性と呼ぶが、左右円偏光に対する物質の光学応答が異なることによって生じる。磁気光学効果は磁場または磁化によって生じる光学活性である。ここでは光学活性の起源について述べる。

直線偏光は、図5(a)に示すように右円偏光と左円偏光に分解できる。この光が長さ  $l$  の物質を透過したのち、(b)のように左右円偏光の位相が異なっておれば両者を合成した軌跡は入射光の偏光方向から傾いた直線偏光となり、その傾き  $\theta_F$  は、

$$\theta_F = -(\theta_R - \theta_L)/2 = -\Delta\theta/2 \quad (2)$$

となる。ここに  $\theta_R$  は右円偏光の位相、 $\theta_L$  は左円偏光の位相である。

一方、(c)に示すように左右円偏光に対する振幅の差があると円二色性が生じる。その結果、合成ベクトルの軌跡は楕円偏光となる。楕円の短軸と長軸の比を楕円率  $\eta_F$  と呼び、

$$\eta_F = (E_R - E_L)/(E_R + E_L) \quad (3)$$

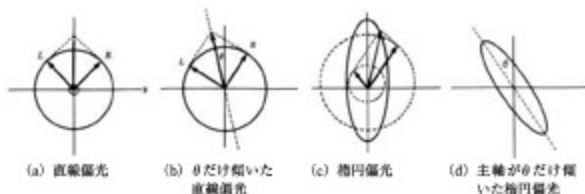


図5 旋光性と円二色性の起源

- (a) 直線偏光の電界ベクトルは右回りと左まわりの2つの円偏光ベクトルに分解できる。  
 (b) 物質を透過したとき右まわり成分が左まわり成分よりも位相が進んでいたとすると、合成したベクトルの軌跡は入射偏光から傾いた直線偏光となる。  
 (c) 物質を透過したとき右まわり成分と左まわり成分の振幅に違いが生じると、合成したベクトルは楕円偏光になる。  
 (d) 右まわり成分と左まわり成分の振幅と位相の両方に違いがあると主軸が傾いた楕円偏光になる。

で与えられる。ここに、 $E_R$  は右円偏光の振幅、 $E_L$  は左円偏光の振幅である。旋光性をもたらす位相の差は、右円偏光に対する屈折率  $n_+$  と左円偏光に対する屈折率  $n_-$  の差  $\Delta n$  によって生じる。

$$\theta_T = -\Delta\theta/2 = -\omega(n_+ - n_-)l/2c = -\pi\Delta n l/\lambda \quad (4)$$

これに対し、円二色性は左右円偏光に対する吸収度の違いによって生じ、右円偏光の消光係数を  $\kappa_+$ 、左円偏光の消光係数を  $\kappa_-$  とすると、

$$\eta_T = \frac{\exp(-\omega\kappa_+ l/c) - \exp(-\omega\kappa_- l/c)}{\exp(-\omega\kappa_+ l/c) + \exp(-\omega\kappa_- l/c)} = -\pi\Delta\kappa l/\lambda$$

となる。ここに  $\Delta\kappa = \kappa_+ - \kappa_-$  である。

### 2.2.2 磁化を持つ物質の光学活性と誘電率テンソル

光の電場  $E$  が印加されたときに物質に生じる電束密度を  $D$  とすると、 $D$  と  $E$  の関係は

$$D = \epsilon_0 \bar{\epsilon} E \quad (6)$$

で表される。ここに  $\epsilon_0$  は真空の誘電率、 $\bar{\epsilon}$  は比誘電率である。一般に  $E$  も  $D$  もベクトル量なので、係数  $\bar{\epsilon}$  は2階のテンソルで表される。

オンサガーの定理により等方性媒質が  $z$  方向の磁化を持つとき、その比誘電率  $\bar{\epsilon}$  は次式のテンソルで表される。

$$\bar{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \quad (7)$$

ここに、対角成分  $\epsilon_{xx}$ 、 $\epsilon_{zz}$  は磁化  $M$  の偶数次、非対角成分  $\epsilon_{xy}$  は  $M$  の奇数次のべきで表される。

いま、光の電場、磁場ベクトルとして  $\exp[-i\omega(t - Nx/c)]$  の形の時間・空間依存性を仮定してマクスウェル方程式を解くと、複素屈折率  $N(=n + ik)$  の固有値として、次の2つのものを得る。

$$N_{\pm}^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy} \quad (8)$$

これらの2つの固有値  $N_+$ 、 $N_-$  に対応する電磁波の固有解は、それぞれ、右円偏光、左円偏光であることが導かれる。

もし、 $\epsilon_{xy} = 0$ であれば、 $N_+ = N_-$  となり、左右円偏光に対する媒質の応答の仕方が等しくなり光学活性は生じないので、非対角成分  $\epsilon_{xy}$  が光学活性のもとであることが理解される。

左右円偏光に対する複素屈折率の差  $\Delta N = N_+ - N_-$  を誘電率テンソルの要素で表すと

$$\Delta N = i\epsilon_{xy} / \sqrt{\epsilon_{xx}} \quad (9)$$

これまでに述べたファラデー効果と複素屈折率の関係、および複素屈折率と誘電率テンソルの関係を用いると、2.2.3 に示すようにファラデー効果を誘電率で表すことができる。

### 2.2.3 ファラデー効果を誘電率で表す

式(4)、(5)から複素ファラデー回転  $\Phi_F = \theta_F + i\eta_F$  を求めると

$$\Phi_F = \theta_F + i\eta_F = -\pi \Delta n / \lambda - \pi i \Delta k / \lambda = -(\pi / \lambda) (\Delta N) = -(i n / \lambda) \epsilon_{xy} / \sqrt{\epsilon_{xx}} \quad (10)$$

ファラデー効果は、誘電率の非対角成分によって生じるが、誘電率の対角成分の平方根が分母にくることに注意されたい。

旋光角  $\theta_F$  と楕円率  $\eta_F$  を別々に求めると、

$$\begin{aligned} \theta_F &= -(\pi / \lambda) (\kappa \epsilon_{xy}' - n \epsilon_{xy}'') / (n^2 + \kappa^2) \\ \eta_F &= -(\pi / \lambda) (n \epsilon_{xy}' + \kappa \epsilon_{xy}'') / (n^2 + \kappa^2) \end{aligned} \quad (11)$$

に示すように、 $\epsilon_{xy}$  の実数部と虚数部の一次結合で表される。

透明な媒体では消光係数  $\kappa$  はゼロなので、式(11)は簡単になって、

$$\theta_F = (\pi / n \lambda) \epsilon_{xy}'', \quad \eta_F = -(\pi / n \lambda) \epsilon_{xy}' \quad (12)$$

と表され、誘電率テンソルの非対角成分の虚数部が回転角を、実数部が楕円率を与える。

### 2.2.4 磁気力効果誘電率で表す

垂直入射の極磁気カー効果の複素カー回転角を  $\Phi_K = \theta_K + i\eta_K$  とすると、 $\Phi_K$  は誘電率テンソルの要素で表すと近似的に次式で表される。

$$\Phi_K = \theta_K + i\eta_K = \frac{n_0 \epsilon_{xy}}{(n_0^2 - \epsilon_{xx}) \sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad (13)$$

ここに、 $n_0$  は入射する媒質の屈折率である。

注意すべきは、分母に  $(n_0^2 - \epsilon_{xx}) \sqrt{\epsilon_{xx}}$  という因子があるため、反射する媒質の屈折率が入射媒質の屈折率に近いときや、プラズモンなど  $\epsilon_{xx}$  の実数部がゼロに近いときに磁気カー効果が増強されることである。

## 2.3 磁気光学効果の微視的起源<sup>③</sup>

### 2.3.1 磁気光学効果の古典電子論

ドルーデ・ローレンツの古典電子論によれば、磁場  $B$  のもとにおかれた固有振動数  $\omega_0$  を持つ  $n$  個の古典振動子系の誘電率テンソルの対角成分  $\epsilon_{xx}$ 、 $\epsilon_{zz}$  および非対角成分  $\epsilon_{xy}$  は次式で与えられる。

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{\omega^2 - \omega_0^2 + i\omega/\tau}{(\omega^2 - \omega_0^2 + i\omega/\tau)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\ \epsilon_{xy} &= \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{-i\omega\omega_c}{(\omega^2 - \omega_0^2 + i\omega/\tau)^2 - \omega^2\omega_c^2} \\ \epsilon_{zz} &= 1 - \frac{nq^2}{m} \cdot \frac{1}{\omega^2 - \omega_0^2 + i\omega/\tau} \end{aligned} \quad (14)$$

ここに、 $\omega_c = |qB/m|$ はサイクロトロン角周波数、 $\tau$ は電子の散乱の緩和時間である。

縮退半導体のマグネトプラズマ共鳴などについてはこのような考え方で実験を説明できることがわかってはいるが、強磁性体の磁気光学効果は、このような古典電子論では $5 \times 10^5 - 10^4$  Tもの大きな内部磁場を仮定しなければ説明できず、古典的な電子の運動方程式によって強磁性体の磁気光学効果を説明することはできない。この問題を解決に導いたのは次に述べる量子論であった。

### 2.3.2 誘電率の量子論

量子論における摂動論を使うと、誘電率テンソルの対角および非対角成分は物質の電子状態に基づいて生じていることがわかる。誘電率は、高周波の電場という摂動を加えたときに電気分極がどのような応答を示すかを与えるものである。

摂動を受ける前の物質では、正電荷と負電荷が釣り合って中性になっている。すなわち正電荷（原子核）と負電荷（電子雲）の分布の中心が一致している。

ここに外部から電磁波が入ると、その電場の摂動によって電子雲の分布が変形し、正電荷と負電荷の分布の中心がずれることによって電気分極が生じる。電磁波の電場はプラスマイナスに振動しているので電気分極もそれに合わせて振動する。

電気分極をもたらしている電子雲の分布の変形を図6により量子論によって解釈する。摂動を受ける前の物質中の電子の固有状態は、飛び飛びのエネルギー固有値を持ついくつかの波動関数  $|0\rangle, |1\rangle, |2\rangle, \dots$  で表されるが、通常は基底状態  $|0\rangle$  にあって、原子核のまわりに偶関数的な分布をしている。

エネルギー的に励起状態には届かない光を受けた場合はリアルの遷移は起きないが、光の電場の摂動を受けて、基底状態の波動関数  $|0\rangle$  にバーチャルに励起状態  $|1\rangle, |2\rangle, \dots$  の波動関数が混じってきて、電子雲の形が変形するのである。これによって電気分極が誘起される。励起状態の混じりやすさは、基底状態  $|0\rangle$  と励起状態  $|n\rangle$  との間の電気双極子遷移確率  $|\langle 0|x|n\rangle|^2$  に比例し、光のエネルギー  $\hbar\omega$  から基底状態  $|0\rangle$  と励起状態  $|n\rangle$  のエネルギー差  $\hbar\omega_n$  を引いたものに反比例する。

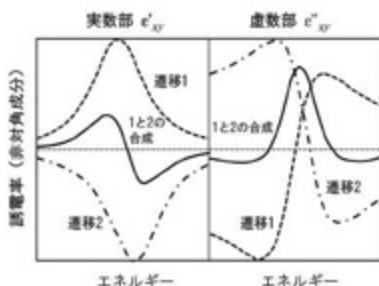
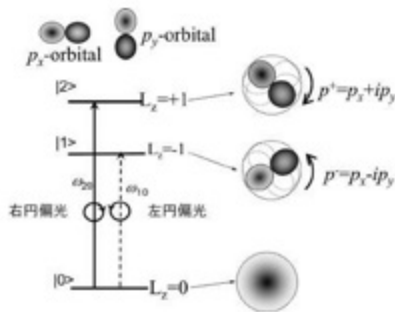
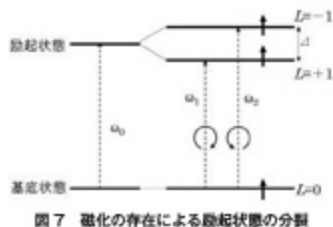
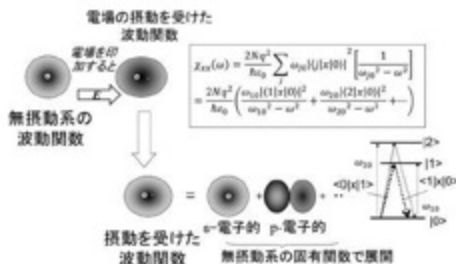
### 2.3.3 磁化がある場合の誘電率の量子論

一例として、図7(a)に示すような電子構造を考える。基底状態の軌道角運動量  $L = 0$ 、励起状態の軌道角運動量  $L = 1$  とする。磁化のないとき右円偏光と左円偏光に対する遷移には差がないので磁気光学効果は生じない。

強磁性状態において↑スピンの単位と↓スピンの単位のエネルギー差が  $kT$  に比べて十分大きいとする。スピン軌道相互作用によって、励起状態の軌道縮退が解け、図7(b)に示すように右円偏光による遷移の中心の振動数  $\omega_1$  と左円偏光による遷移の中心の振動数  $\omega_2$  が分裂する。

誘電率の非対角成分は、図8に示すように右円偏光、または、左円偏光の摂動を受けて、軌道角運動量子数  $L_z = 0$  の基底状態に、 $L_z$  が +1、または -1 の励起状態がバーチャルに混じり込むことによって生じる。 $L_z = \pm 1$  の状態は回転する電子状態を表す。

計算の詳細は参考書<sup>3)</sup>に譲り、エネルギーがとびとびの単位で与えられるような局在電子系にける誘



電率の非対角成分は、

$$\epsilon_{xy}(\omega) = \frac{iN_0q^2}{2m\epsilon_0} \sum_n \frac{\omega_{n0} \{ (f_+)_{n0} - (f_-)_{n0} \}}{\omega \{ (\omega + i\gamma)^2 - \omega_{n0}^2 \}} \quad (15)$$

と、ローレンツ振動子の式と同じ形で表すことができる。ここに  $(f_+)_{n0}$ 、 $(f_-)_{n0}$  は、それぞれ基底状態  $|0\rangle$  と励起状態  $|n\rangle$  との間の直線偏光、右円偏光および左円偏光に対する電気双極子遷移の振動子強度で、

$$(f_{\pm})_{n0} = \frac{m\omega_{n0} |\langle 0|x \pm iy|n\rangle|^2}{\hbar e^2} \quad (16)$$

によって表される。磁化は遷移の左右円偏光に対する選択則を通じて振動子強度に差をもたらし、式(12)を通じて誘電率の非対角成分をもたらす。

図8で表される電子状態に対応する誘電率の非対角成分のスペクトルを図9に示す。

### 2.3.4 バンド電子系の磁気光学効果

金属磁性体や磁性半導体の光学現象は、絶縁性の磁性体と異なってバンド間遷移という概念で理解せねばならない。なぜなら、 $d$  電子はもはや原子の状態と同様の局在単位ではなく、空間的に広がって、バンド状態になっているからである。この場合、バンド計算によってバンド状態の固有値と固有関数とを求め、久保公式に基づいて分散式を計算することになる。 $k$ -空間の各点においてバンド計算から遷移

エネルギーと遷移行列を求め、すべての  $k$  についての和をとる必要がある。

金属では比誘電率テンソルに代えて導電率テンソル  $\vec{\sigma}$  を用いる。

$$\vec{\sigma} = \begin{pmatrix} \sigma_{xx} & \sigma_{xy} & 0 \\ -\sigma_{xy} & \sigma_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \sigma_{zz} \end{pmatrix} \quad (17)$$

テンソルの成分  $\sigma_{\alpha\beta}$  は

$$\pi = \rho + \frac{\pi}{4mc^2} \sigma \times \nabla V(r)$$

で定義される運動量演算子を用い次式で表される。

$$\begin{aligned} \sigma_{\alpha\beta} &= \frac{iNq^2}{\omega + i\gamma} \left( \frac{1}{m^*} \right)_{\alpha\beta} - \frac{2iq^2}{m^* \hbar} \\ &\times \sum_{\lambda\lambda'} \sum_{n\ell} \left( \frac{\omega + i\gamma}{\omega_{\lambda}} \operatorname{Re} \{ \langle \ell | \pi^\alpha | n \rangle \langle n | \pi^\beta | \ell \rangle \} + i \operatorname{Im} \{ \langle \ell | \pi^\alpha | n \rangle \langle n | \pi^\beta | \ell \rangle \} \right) \frac{1}{\omega_{\lambda}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \end{aligned} \quad (18)$$

$$\alpha, \beta = (x, y)$$

(単位  $s^{-1}$ ) ここに、遷移行列要素  $\langle \ell | \pi^\alpha | n \rangle$  などはプロホ関数の格子周期成分  $u(k, r)$  を用いて、

$$\langle \ell | \pi^\alpha | n \rangle = \frac{(2\pi)^3}{\Omega} \int u_\ell^*(k, r) \left[ p^\alpha + \frac{\hbar}{4mc^2} (\sigma \times \nabla V(r))_\alpha \right] u_n(k, r) d^3r \quad (19)$$

という形で表される。式(18)の第1項は、有効質量の異方性によるもので以後無視する。

対角成分の実数部は散乱寿命を無限大とすると、

$$\sigma'_{\alpha\alpha} = \operatorname{Re}(\sigma_{\alpha\alpha}) = \frac{\pi q^2}{m^* \hbar} \sum_{\lambda\lambda'} \sum_{n\ell} |\langle \ell | \pi^\alpha | n \rangle|^2 \delta(\omega - \omega_{\lambda\lambda'}) \quad (20)$$

磁気光学に寄与する非対角成分の虚数部は、

$$\begin{aligned} \sigma''_{\alpha\beta}(\omega) = \operatorname{Im}(\sigma_{\alpha\beta}) &= \frac{2q^2}{\hbar m^*} \sum_{\lambda\lambda'} \sum_{n\ell} \frac{\operatorname{Im} \{ \langle \ell | \pi^\alpha | n \rangle \langle n | \pi^\beta | \ell \rangle \}}{\omega_{\lambda}^2 - (\omega + i\gamma)^2} \\ &= \frac{\pi q^2}{m^* \hbar \omega} \sum_{\lambda\lambda'} \sum_{n\ell} \operatorname{Im} \{ \langle \ell | \pi^\alpha | n \rangle \langle n | \pi^\beta | \ell \rangle \} \delta(\omega - \omega_{\lambda\lambda'}) \end{aligned} \quad (21)$$

ここで、 $\pi^\pm = \pi^x \pm i\pi^y$  を導入すると、式(21)は

$$\sigma''_{\alpha\beta}(\omega) = \operatorname{Im}(\sigma_{\alpha\beta}) = -\frac{\pi q^2}{2m^* \hbar \omega} \sum_{\lambda\lambda'} \sum_{n\ell} \left( |\langle \ell | \pi^+ | n \rangle|^2 - |\langle \ell | \pi^- | n \rangle|^2 \right) \delta(\omega - \omega_{\lambda\lambda'}) \quad (22)$$

と書ける。

また、スピン偏極を考慮すると  $\sigma_{xy}^- = \sigma_{xy}^+ \uparrow + \sigma_{xy}^- \downarrow$  となり、 $\uparrow$  スピンに対する非対角導電率と  $\downarrow$  スピンに対する非対角導電率の和を計算すべきということになる。 $\sigma_{\alpha\beta}$  を評価するには、スピン軌道相互作用を含めて、スピン偏極バンドを計算し、ブリルアン域の各  $k$  における  $\omega_{\alpha\alpha}$  および  $\pi^+$  と  $\pi^-$  を計算して、式(22)に従ってすべての  $k$  について和をとればよい。

ここでは、厳密さには目をつぶって、見通しのよい描像でバンド系の磁気光学スペクトルを眺めてみたい。



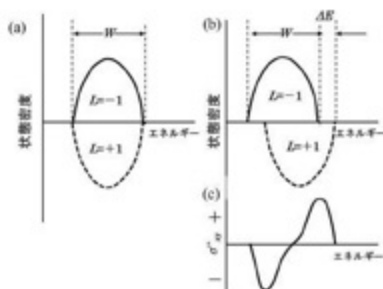


図 10 金属磁性体のバンド構造と磁気光学スペクトル

式(22)を積分形になおすと次式を得る。

$$\omega\sigma_{xy}^*(\omega) = \frac{\pi q^2}{2m^2} \frac{1}{8\pi^2} \int F_{nl}(\omega) \delta(\omega - \omega_{nl}) d^3k \quad (23)$$

ここに  $F_{nl}(\omega)$  は状態  $|n\rangle, |l\rangle$  間の遷移の振動子強度で

$$F_{nl}(\omega) = |\langle n \uparrow | \pi^- | l \uparrow \rangle|^2 - |\langle n \uparrow | \pi^+ | l \uparrow \rangle|^2 + |\langle n \uparrow | \pi^- | l \downarrow \rangle|^2 - |\langle n \uparrow | \pi^+ | l \downarrow \rangle|^2 \quad (24)$$

遷移確率の平均値  $\bar{F}_{nl}$  を

$$\int F_{nl}(\omega) \delta(\omega - \omega_{nl}) d^3k = \bar{F}_{nl} \int \delta(\omega - \omega_{nl}) d^3k$$

によって定義し、 $\bar{F}_{nl}$  が大きな  $\omega$  依存性を持たないと仮定し一定値  $F_{nl}$  とおくと式(23)は簡単になって、

$$\omega\sigma_{xy}^*(\omega) = \frac{\pi q^2}{2m^2 h} F_{nl} J_{nl}(\omega) \quad (25)$$

となる。ここに、 $J_{nl}(\omega)$  は結合状態密度といって、 $J_{nl}(\omega) = \frac{1}{8\pi^3} \int \delta(\omega_{nl} - \omega) d^3k$  と表され、占有状態と非占有状態の状態密度のたたみこみを示している。

左右円偏光に対する振動子強度  $F_{nl}^{\pm}(\omega)$  を  $F_{nl}^{\pm}(\omega) = |\langle n \uparrow | \pi^{\pm} | l \uparrow \rangle|^2 + |\langle n \downarrow | \pi^{\pm} | l \downarrow \rangle|^2$  と定義し、左右円偏光に対する結合状態密度  $J_{nl}^{\pm}(\omega)$  を

$$F_{nl}^{\pm} J_{nl}^{\pm}(\omega) = \frac{1}{8\pi^3} \int F_{nl}^{\pm}(\omega) \delta(\omega - \omega_{nl}) d^3k$$

で定義すれば、

$$\omega\sigma_{xy}^*(\omega) = \frac{\pi q^2}{2m^2 h} (F_{nl}^- J_{nl}^-(\omega) - F_{nl}^+ J_{nl}^+(\omega)) \quad (26)$$

を得る。このように書けば、 $\omega\sigma_{xy}^*$  が左円偏光と右円偏光に対するバンド間遷移のスペクトルの差として表されることがわかる。円偏光に対する振動子強度  $F_{nl}^+(\omega)$  と  $F_{nl}^-(\omega)$  に差があるか、結合状態密度  $J_{nl}^+(\omega)$  と  $J_{nl}^-(\omega)$  の分布の重心に差があれば、磁気光学効果を生じることが示される。図 10(a) に示すように磁化が存在しないと左円偏光による遷移と右円偏光による遷移は完全に打ち消しあう。この結

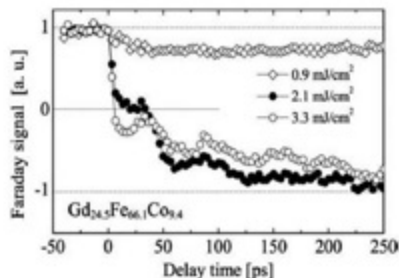
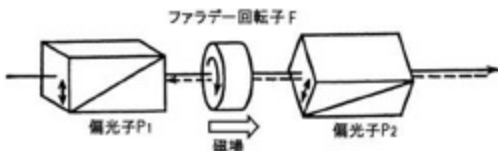
図 11 超短パルス光照射による超高速の磁化変化<sup>4)</sup>

図 12 光アイソレーターの基本構成

果、 $\sigma''_{yy}$  はゼロになるが、磁化が存在すると図 10(b)のように、 $J$  と  $J'$  との重心のエネルギーが  $\Delta E$  だけずれて、図 10(c)に示すように  $\sigma''_{yy}$  に分散型の構造が生じる。 $\sigma''_{yy}$  のピークの高さは、 $\bar{\sigma}$  の対角成分の実数部  $\sigma''_{xx}$  (左右円偏光に対する連結状態密度の和に比例) が示すピーク値のほぼ  $\Delta E/W$  倍となる。ここに、 $W$  は連結状態密度スペクトルの全幅、 $\Delta E$  は正味のスピンの極値と実効的スピン軌道相互作用の積に比例する量となっている。

## 2.4 磁気光学効果の応用

磁気光学効果は、(1) 磁気計測・観測の手段、(2) 光磁気アイソレーター、(3) 光磁気記録の再生、(4) 空間磁気光学変調器、(5) イメージングなどに応用されている。

### 2.4.1 計測・観測手段

磁気光学効果の時間応答は  $10^{-25}$  s 以下と非常に早い。それは、磁気光学効果が電子状態間のバーチャルな光学遷移に基づいているからである。その高速性を使って、超短パルス光照射による磁化の消失や、超短パルス光による高速磁化反転の観測手段として使われている。図 11 は、超短パルス光照射によるアモルファス GdFeCo 膜の磁化変化をフレアデー効果で観測した結果である<sup>4)</sup>。

磁気光学効果は 2.3.3 に述べたように電子状態間の光学遷移の円偏光選択則からもたらされていることから、電子状態のすぐれたプローブとなっている。磁性半導体の電子構造を探る手段として、赤外・可視・紫外領域の磁気光学スペクトルが有効であることは磁性半導体 CdCr<sub>2</sub>Se<sub>4</sub>、Cd<sub>1-x</sub>Mn<sub>x</sub>Te、GaAs:Mn、TiO<sub>2</sub>Co、ZnTe:Cr などを実証されている。真に磁性半導体であるかどうかの判断基準として磁気円二色性 MCD を用いることが提唱されている。

### 2.4.2 光磁気アイソレーター

磁気光学効果が最も実用されているのが、その非相反性を用いて光を一方通行にする磁気光学アイソレーターである。図 12 に示すように円偏光軸を 45° 傾けた 2 枚の偏光子で磁性ガーネット結晶を挟み、円筒永久磁石の磁界中においてシンプルな構造ながら、光ファイバー通信において戻りビームの半導体

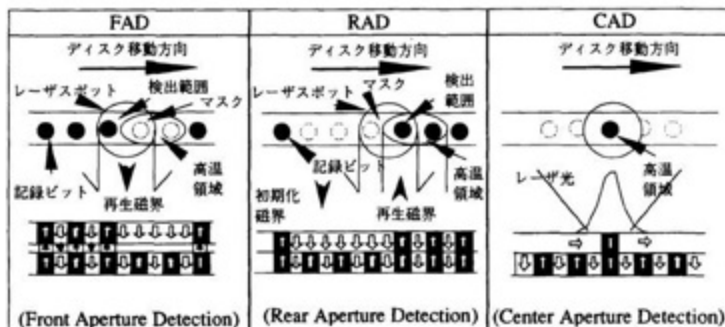


図 13 三種の磁気超解像技術

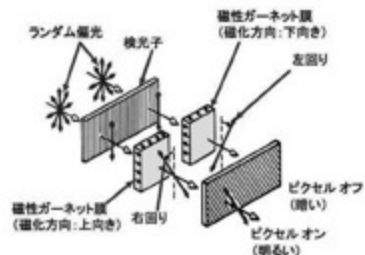


図 14 磁気光学空間光変調器<sup>5)</sup>

レーザーへの入射を抑えるために不可欠な光コンポーネントとなっている。光多重通信における光ファイバーアンプ (EDFA) にも線路挿入型の光磁気アイソレーターが使われている。

このほか、光サーキュレーター、可変光アッテネーター、光スイッチなどの光通信用のコンポーネントに活躍している。光磁気アイソレーターの課題は、光集積回路への実装である。光多重通信用コンポーネントへの実装を念頭に入れた超小型導波路型アイソレーターの研究が行われている。

### 2.4.3 光磁気記録の再生

1990年代に開発されマーケティングに投入された光磁気ディスク、ミニディスクは、磁性物理の粋を集めた先端技術の塊ともいえるものであった。熱磁気記録された磁気情報の再生には磁気光学効果が用いられた。記録密度を上げるために直径数十 nm にまで小さくした記録マークを (回折限界を超えて) 読み出すために、図 13 に示す磁気超解像の技術が開発された。

さらに磁区拡大や磁壁移動を利用した再生技術も開発されたが、コスト高となり、その地位をハードディスク、携帯音楽プレーヤーなどに明け渡し、製造が中止されてしまった。光磁気ディスクの記録技術は、ハードディスクの高密度化を目指す光アシスト磁気記録 (HAMR) に活かされている。

### 2.4.4 空間光変調器<sup>6)</sup>

空間光変調器 (SLM) には通常液晶が用いられるが、応答速度が遅く、分解能も上がらないという問題点を抱えている。図 14 に示す磁気光学空間光変調器 MOSLM は高速動作が可能なることから、ホログラフィックメモリーや立体画像ディスプレイなどの分野で期待が大きい。磁場変調に電流磁場を用いたものはすでに実用化されているが、電力消費の問題があった。

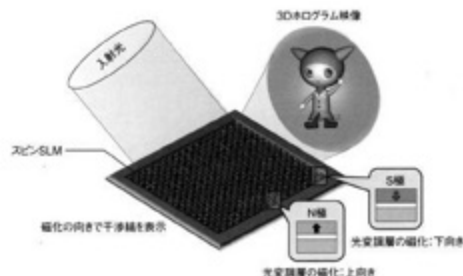


図 15 スピン SLM による 3D ホログラム映像の再生<sup>6)</sup>

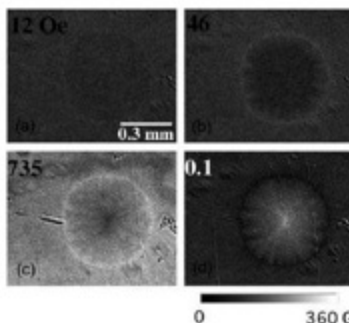


図 16 直径 500  $\mu\text{m}$  の  $\text{MgB}_2$  円板への磁束侵入の磁気光学イメージ<sup>7)</sup>

井上らは、磁性フォトニック結晶を用い大きな磁気回転角を得ることによって、低い電流で変調できること、さらにピエゾ素子と組み合わせることによって電圧で制御できることを発表した。強誘電体との界面効果により可視域で透明な常磁性物質を用いることが可能になり、新しい展望が開けつつある。

#### 2.4.5 空間像再生用光変調デバイス<sup>6)</sup>

空間像再生方式の三次元映像表示技術を使うと特別なメガネを使わずに自然な 3D 画像を再生できる。このための液面再生方式のひとつとしてスピン空間変調 (スピン SLM) によるホログラム再生が検討されている。図 15 にスピン SLM による 3D ホログラムの再生の概要を示す。画素を構成する強磁性体にパルス電流を流すことでスピン注入磁化反転を誘起、磁気カー効果を用いて干渉縞を形成する。これにレファレンスの直線偏光を照射し 3D ホログラムの映像を再生する。

このほか、磁壁移動型スピン SLM の研究開発も行われている。

#### 2.4.6 イメージング

磁気光学効果は古くから磁区のイメージング手段として用いられてきた。また磁気記録の分野では、磁気ヘッド上の微細な磁気構造の観測にも使われてきた。さらに 紙幣の磁性インク・磁気カードなど磁気光学効果の小さな磁性体の磁気状態の観測には磁性ガーネット薄膜などを介して磁気光学イメージングが行われている。

図 16 は、同じ手法を超伝導体への磁束侵入の観測に用いた例である<sup>7)</sup>。この画像の解析から超伝導電流の大きさを見積もりイメージングすることも可能になっている。

磁気光学イメージングは、リアルタイムで磁場および電流が作る磁場を可視化することができるので、磁性体の評価だけでなく、金属材料の探傷、電気回路や電子デバイスの評価など、さまざまな分野において、新しい非破壊検査技術として期待されている。

### 2.5 近接場磁気光学効果<sup>8)</sup>

面内磁化イメージングの空間分解能はほぼ光の回折限界で決まるが、近接場光を用いた磁気光学イメージングでは、回折限界以下の微細構造を観測することができる。

#### 2.5.1 近接場とは

波長よりはるかに微小な物質の近傍には、空間周波数の高い電磁場分布があるが、この場はエバネッセント場と呼ばれ、物質から遠ざかると指数関数的に減少してしまう。したがって、2つの微小物体を光波長よりもはるかに短い距離に置くと、それぞれの物体の近傍にある 2つの近接場によって物体間に

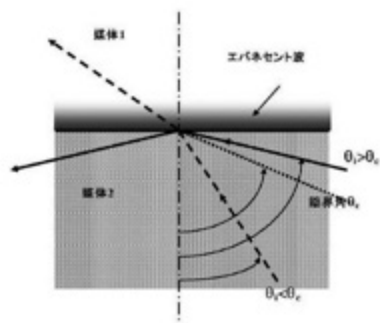


図 17 全反射光学系におけるエバネセント波

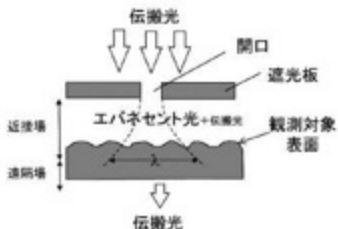


図 18 微小開口を用いたエバネセント波の発生

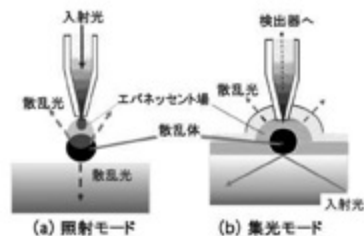


図 19 テーパー付き光ファイバーによる SNOM

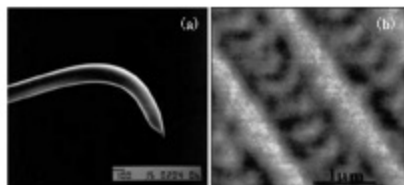


図 20 ベントファイバークラップとこれを用いて観測した光透過記録パターンへの MO-SNOM 像

相互作用 (エバネセントカップリング) が生じる。一方の物体が光源であり、他方が検出器であれば、物体間での電磁エネルギーの移動が起きる。これは、物体間での光励起のトンネル現象と見ることが出来る。

### 2.5.2 近接場の発生と検出

図 17 に示す全反射光学系において、屈折率  $n$  の大きな媒体 2 から  $n$  の小さな媒体 1 へと光が入射した場合、入射角  $\theta_i$  が臨界角  $\theta_c$  よりも大きいときに媒体 1 側において界面から垂直方向に指数関数的に急激に減衰する伝搬しない波 (エバネセント波) が存在する。この光の場を近接場という。この場の中に物体を置くと散乱された光は伝搬する波に変換され観測できるようになる。全反射面に Ag 薄膜をコーティングすることによって、表面プラズモンとの結合によるエバネセント波の増強が行われるので、波長以下の微小な試料の顕微鏡観察によく利用されている。

### 2.5.3 近接場顕微鏡

光ファイバーを用い、その先端にテーパーをつけ微小開口を作るとエバネセント光ができる。これを模式的に表したのが図 18 である。エバネセント光の作る近接場の中に観測したい対象を置くと、光は散乱され、伝搬する波となって放射する。この光を検出することによって光の回折限界を超える微小物体を観測することができる。

微小開口の代わりに、テーパー付きファイバークラップをマイクロアキュエータを用いて制御することにより、画像化するのが図 19(a) に示す照射モードの走査型近接場顕微鏡 (SNOM) である。ファイバークラップを全反射光学系と組み合わせ、散乱光検出に用いるのが図 19(b) の集光モード SNOM である。

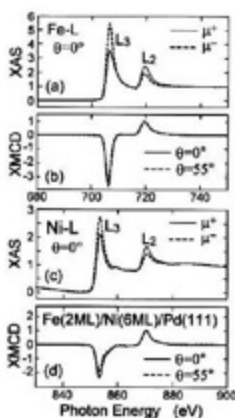


図 21 Fe(2ML)/Ni(6ML)/Pd 膜における原子特定円偏光 XAS および XMCD スペクトル<sup>11)</sup>

照射モードにおいて、プローブから偏光を磁性体に入射し磁気光学効果を受けた散乱光を検光子で観測すれば、回折限界以下の領域の磁気光学効果が測定できる。

図 20(a) に示すベント型光ファイバープローブを、原子間力顕微鏡 (AFM) の探針として用いる照射モードの MO-SNOM を用いて、100 nm の分解能で観察した光磁気記録マーク像を図 20(b) に示す。

このほか、探針にレーザー光を照射し、その先端付近にできる近接場を用いるアパーチャレス SNOM も開発されている<sup>9)</sup>。

## 2.6 放射光を用いた磁気光学効果<sup>10)</sup>

### 2.6.1 X 線磁気円二色性 (XMCD)

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を左右円偏光で測定し、その差をとると磁気円二色性 (XMCD と略称) が得られる。XMCD スペクトル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。X 線吸収端は、内殻からフェルミ単位の上の空いた状態への遷移によって起きる。3d 遷移金属の場合は L 殻 (2p) から空いた 3d 軌道への双極子許容遷移が使われ、4f 希土類の場合は M 殻 (3d) から 4f 軌道への双極子許容遷移が使われる。3d 遷移金属の  $L_{23}$  吸収および 4f 希土類の  $M_{45}$  吸収はいずれも 1500 eV 以下の軟 X 線領域に現れる。XMCD に総和則を適用することによってスピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントを分離できる。

図 21 は Fe(2ML)/Ni(6ML)/Pd 多層膜 (ML=単原子層) における Fe および Ni の  $L_{23}$  吸収端の円偏光 X 線吸収 (XAS) スペクトル、および左右円偏光の XAS の差分をとった X 線円二色性 (XMCD) スペクトルである。これより Fe と Ni のスピン磁気モーメントはそれぞれ、 $2.588 \mu_B$ ,  $0.736 \mu_B$  であること、軌道磁気モーメントの垂直成分は、それぞれ、 $0.343 \mu_B$ ,  $0.127 \mu_B$  であることなどが求められている<sup>11)</sup>。

### 2.6.2 XMCD 顕微鏡

XMCD を用いた磁気光学顕微鏡が開発されている。X 線領域で X 線ビームを集光するためにフレネル帯板の一種であるコンデンサ・ゾーン・プレート (CZP) を用い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。小野らは図 22 に示すように、ゾーンプレートを用いて X 線を試料上に微小スポットとして集光し、試料スキャンを行うことによってイメージを得る走査型軟 X 線透過顕微

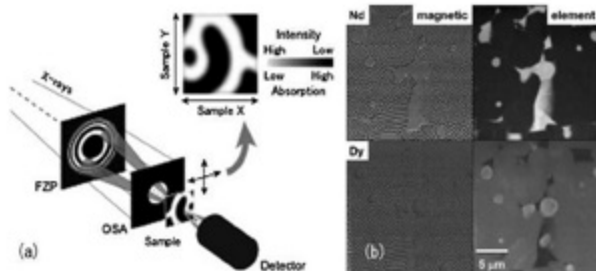


図 22 (a) 走査型 X 線顕微鏡の構成と (b) (Nd, Dy)-Fe-B 磁石の化学マップと元素識別磁気イメージ<sup>12)</sup>

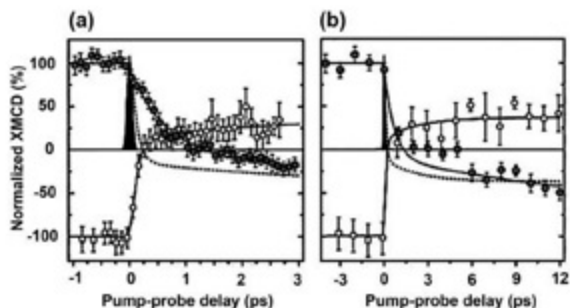


図 23 XFEL を用いて測定した GdFe における原子特定磁化ダイナミクス<sup>13)</sup>

鏡 (STXM) を開発し、(Nd, Dy)-Fe-B 磁石の磁気イメージの測定結果を報告している<sup>12)</sup>。

### 2.6.3 X 線自由電子レーザー (XFEL) による磁化ダイナミクスの観測

X 線自由電子レーザー (XFEL) を用いると、原子を特定して光励起後の磁化のダイナミクスを観測することができる。図 23 は、アモルファス GdFe 薄膜をパルスレーザー (60 ns,  $h\nu=1.55$  eV) で急速加熱したあとの磁化の時間的変化を、軟 X 線自由電子レーザー (100 fs) で原子特定 XMCD 観測した結果を示す。Gd と Fe の磁気モーメントは反強磁性的に結合しているのであるが、Fe の反転が時定数  $100 \pm 25$  fs で先に起きたのち、Gd の磁化反転が時定数  $430 \pm 100$  fs で起きる。Gd と Fe の磁気モーメントは一時的に強磁性的に結合しているということが明らかにされた<sup>13)</sup>。

### 2.7 非線形磁気光学効果<sup>14)</sup>

これまで述べた磁気光学効果はすべて線形の効果、つまり、入射光と同じ波長の出射光についての磁気光学的応答を扱ってきた。これに対して磁性体に誘起された非線形分極によって発生した第 2 高調波 (SH) の出射光についての磁気光学応答が、非線形磁気光学効果である。

この場合の波動方程式は、表面に非線形分極  $P^{(2)}$  ( $2\omega$ ) が存在してこれがソース項としてはたらくと考えて、次式のように表すことができる。

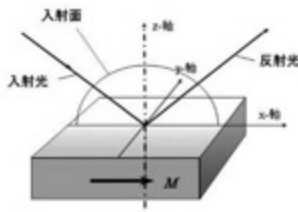


図 24 NOMOKE 測定の設定

$$\text{rotrot}E(2\omega) + \frac{\xi}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(2\omega) = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^{(2)}(2\omega) \quad (27)$$

ここに  $P^{(2)}(2\omega)$  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、電気双極子近似の範囲でその  $i$  成分  $P_i^{(2)}$  は、

$$P_i^{(2)}(2\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) E_j^{(1)}(\omega) E_k^{(1)}(\omega) \quad (28)$$

のように表される。 $E_j^{(1)}$ ,  $E_k^{(1)}$  は一次光の電界の  $j, k$  成分、 $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$  は 2 次の非線形感受率テンソルである。また、この式において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演算の約束に従う。

よく知られているように Fe, Co など反転対称性を持つ物質においては、3 階のテンソルはゼロとなるため、第 2 高調波発生 (SHG) が起きない。しかし、表面・界面においては、反転対称性が破れているので SHG を観測することができる。また、物質が磁化を持つと対称性が変化し選択則が変化するので、磁化に依存する磁気誘起 SHG (MSHG) が見られる。

いま、図 24 の配置を考える。P(S) 偏光の一次光を入射したとき、出射 SH 光の偏光方向は、入射光の偏光方向 P(S) から傾いた方向を向いており、磁化の向きを変えると、偏光方向は P(S) 面について対称に向きを変える。この効果のことを非線形磁気カー効果 (NOMOKE) という。

複素非線形カー回転角  $\psi_K^{(2)}$  を非線形感受率テンソルの成分を使って表すと、次式のように表すことができる

$$\tan \psi_K^{(2)} = i \left( \frac{\chi^{(2)\text{odd}}}{\chi^{(2)\text{even}}} + \text{高次項} \right) \quad (29)$$

ここに  $\chi^{(2)\text{even}}$  および  $\chi^{(2)\text{odd}}$  は、 $\chi^{(2)z} = \chi^{(2)\text{even}} + i\chi^{(2)\text{odd}}$  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。

図 25 に示すように、Fe の線形の縦磁気カー回転はせいぜい  $0.1^\circ$  程度であるのに対し、非線形カー回転は入射角を小さくしたとき  $80^\circ$  にも達することが報告されている<sup>10)</sup>。

非線形磁気カー回転角が線形磁気カー回転角に比べ桁違いに大きい理由の 1 つは、線形の場合の磁気カー効果は式 (13) のように分極率テンソルの非対角成分と対角成分の比で与えられておりこの比は 1 よりかなり小さいのに対し、非線形カー効果は式 (29) に示したように  $\chi^{(2)\text{odd}}/\chi^{(2)\text{even}}$  という比で与えられ、この項は同程度のテンソル要素同士の比であることである。もう 1 つは、線形の場合には  $1/\sqrt{\epsilon_{xx}}$  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



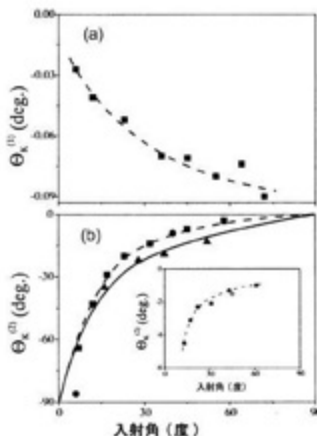


図25 (a) Fe表面の線形縦カー効果の入射角依存性 (b) S-偏光入力ときの非線形カー効果<sup>15)</sup>  
 ▲: Fe/Cr, ●: Fe/Au, ■: キャップなし Fe.  
 挿入図はP偏光入力時の非線形カー効果

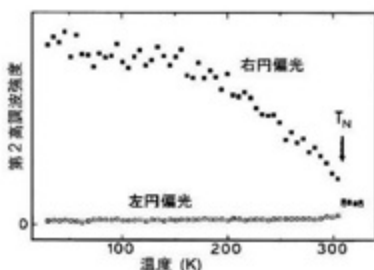


図26 反強磁性体  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の SHG 強度の温度依存性  
 ●右円偏光 □左円偏光<sup>16)</sup>

対する屈折率の差から生じるのではなく、式(27)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。

MSHGは、線形磁気光学効果にはない新しい観測手段としての多くの情報を提供するるので、磁性人工格子の研究に欠くことのできない技術になりつつある。

図26は、反強磁性体  $\text{Cr}_2\text{O}_3$  の SHG 強度の温度依存性である。ネール温度 ( $T_N$ ) 以下では SHG 強度は左右円偏光に対し異なるが、 $T_N$  以上では一致する。反強磁性ベクトルの異なる磁区では、左右の応答は逆転する<sup>16)</sup>。

### 3. 光磁気効果<sup>17)</sup>

この節では磁気光学効果の逆効果、すなわち、光が磁気を与える効果である光磁気効果を概説する。

#### 3.1 光磁気効果の基礎

光照射による磁気の変化を一般に光磁気効果(広義)というが、これには、狭義の光磁気効果である光誘起磁化・光誘起初速磁率変化と、光の吸収による発熱に基づく熱磁気効果とが含まれる。

##### (1) 光誘起磁気効果

Siを添加したYIG結晶の強磁性共鳴周波数が光照射によって大きく変化する現象は、1967年に英国のTeale, Templeらによって発見された。この効果はその後オランダのEnzらによって詳細に研究され、磁性半導体や他のフェライトにおいても光照射による磁気的性質の変化が見いだされた<sup>18)</sup>。

これらの応答は数秒から数時間にわたる遅い現象である。動作原理としては、光照射による電荷移動型遷移に伴う3d遷移金属イオンの価数変化、光生成されたキャリアのトラップ単位による捕捉と再解放、電子正孔対の再結合などが考えられる。

### (2) 光誘起磁化

ビクアップコイルを巻いた常磁性体に共鳴する波長のパルスレーザーを照射すると、ビクアップコイルに電圧パルスが誘起される。常磁性体としては、最初の実験はルビーについて行われた。照射はルビーレーザーのR線を用いた。基底状態のスピン4重項から最低の励起状態である2重項に光学遷移が起きるときのスピンの変化によって磁化の変化が起きる。熱効果でないことは、円偏光のヘリシティを右から左に変えたとき、コイルに誘起される電圧が反転することから確かめられる<sup>18)</sup>。

この効果は逆ファラデー効果とも呼ばれ、3d遷移金属イオンや希土類を含む酸化物、磁性半導体、希薄磁性半導体、3d遷移金属錯体などでも観測されている<sup>20)</sup>。磁性体超微粒子を分散したグラニューラー構造を持つ物質に光を照射することにより、磁化が誘起される効果もある。光励起によって電子・正孔が母体物質に生成され、それらが微粒子の磁気モーメントをそろえ合う交換相互作用の媒体となっていると考えられる<sup>21)</sup>。

### (3) 光誘起スピン再配列

RCrO<sub>3</sub> (希土類オソクロマイト) は反強磁性体であるが、不等価な4つのCrサイトを有し、4副格子 (sublattice) からなる複雑なスピン構造を有する。このうちの1つErCrO<sub>3</sub>は、97 K以下で反強磁性体であるが、この温度以上ではキャント型の弱強磁性となる。42 Kにおいて、この物質のCrの配位子場遷移を共鳴的に励起すると、光誘起スピン再配列転移が起きる。磁気転移が起きたことは、ストリークカメラによるスペクトル線の分裂の変化を観測することにより明らかにされた<sup>22)</sup>。

### (4) 熱磁気効果

#### ① 温度誘起磁化反転効果

レーザー光照射によって、局所的にキュリー温度以上に加熱すると磁化を失うが、照射を止めると反磁界によって逆向きに磁化される。一方、フェリ磁性体の補償温度付近では保磁力が大きくなっており、レーザー光照射で補償温度以上にすると保磁力が低下し、冷却時に反磁界によって逆向きに磁化される。これらは熱磁気効果と呼ばれる。2.4.3で紹介した光磁気ディスクの記録には、光磁気効果のうち、熱を介した熱磁気記録が使われた<sup>23)</sup>。

#### ② 温度誘起スピン再配列効果

RF<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (希土類オソフェライト) は、ある温度を境にスピン再配列転移を示すものがある。この現象を利用したものに光モーターが知られている。これは、磁界中においた希土類オソフェライトなどに光照射すると、熱誘起スピン再配列により、磁化の方向が変化し、磁界中でトルクが発生して回転するというものである。

## 3.2 光磁気効果の応用

純粋のフォトンモードでの光磁気効果は、これまでのところ実用的な応用技術にはなっておらず、応用されているのは熱磁気効果のみである。特に、温度誘起磁化反転現象は、キュリー温度記録、補償温度記録などの形で光磁気記録に利用された。

### (1) 光磁気記録

光磁気ディスクやミニディスクにおける記録には、キュリー温度  $T_c$  における磁化の消滅と、補償温度付近での保磁力の変化が利用される。キュリー温度記録の場合、レーザー光照射により  $T_c$  以上に加熱された領域は磁化を失うが、冷却の際、周囲からの反磁場を受けて、周囲とは逆向きに磁化される。より安定に記録するため、バイアス磁場が印加される。補償温度記録の場合、補償温度  $\theta_{comp}$  付近で、保磁力  $H_c$  が増大することを利用する。 $\theta_{comp}$  が室温付近にあると、レーザー照射によって  $H_c$  が減少し、バイアス磁場または周囲ビットからの反磁場で反転が起きる。温度が下がると  $H_c$  が大きくなって安定

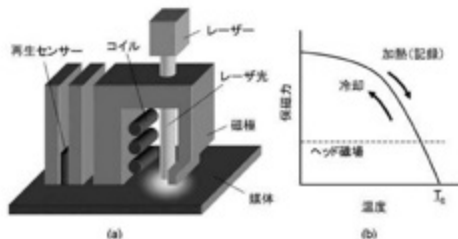


図 27 熱アシスト記録概念図<sup>24)</sup>

(a) 記録ヘッドの構造 (b) 媒体の保磁力と温度の関係

に存在する。実際の光磁気ディスクでは、キュリー温度記録と、補償温度記録の要素をともに利用している。

光磁気記録は光の回折限界のため高密度化がむずかしく、2.4.3 に述べた光誘起超解像技術に加え、磁区拡大再生技術 (MAMMOS) および磁壁移動磁区拡大再生技術 (DWDD) などが提案されたが、装置が複雑になるため、市場から消えた。

#### (2) 熱アシスト磁気記録

ハードディスク媒体は、磁性微粒子の集合体である。記録密度の増大に伴い微粒子のサイズが小さくなっていくと、粒子の異方性磁気エネルギー  $K_0V$  ( $K_0$  は単位体積あたりの磁気異方性エネルギー、 $V$  は粒子の体積) が小さくなったことによって、熱揺らぎ  $kT$  に打ち勝てなくなるため、記録された情報が保てないという現象が起きる。この現象は強磁性粒子がランダム配向するので、超常磁性と呼んでいる。

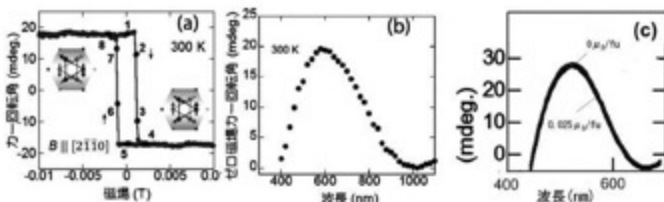
ハードディスクの寿命の範囲でデータが安定であるための条件は、 $\eta = K_0V/kT$  というパラメータが 60 以上なければならないとされている。粒径  $d$  が小さくなると、記録される粒子の体積  $V$  はほぼ  $d^3$  に比例して小さくなる。この減少を補うだけ、磁気異方性  $K_0$  を増大できれば、超常磁性限界を伸ばすことができる。保磁力  $H_c$  は  $H_c = 2K_0/M_s$  と書かれるから  $K_0$  を増大すると保磁力が増大し、ヘッド磁界が高くなりすぎて記録できなくなるが、AFC (反強磁性結合) 媒体の登場で、超常磁性の問題をクリアした。その後、長年にわたって研究されてきた垂直磁気記録技術が実用化され、現在市販のハードディスクはすべて垂直磁気記録となっている。

しかし、垂直磁気記録によっても面記録密度は 1 TGb/in<sup>2</sup> でとどまっている。保磁力を大きくすれば安定性が向上することは確実であるが、ヘッドでの記録能力の問題を提起する。

保磁力  $H_c$  の大きな媒体にどのようにして記録するのかという課題への回答のひとつが熱磁気記録の技術を使うことである。室温付近では大きな  $H_c$  を示すが温度上昇によって通常の磁気ヘッドで記録できる程度に  $H_c$  が減少する媒体を用いて、温度を上げて磁気記録するのが熱アシスト磁気記録 HAMR である。

HAMR では、図 27 に示すように、記録の瞬間に媒体をレーザー光で加熱する。媒体をキュリー温度  $T_c$  付近まで加熱すると保磁力が低下するため、保磁力の大きな媒体 (異方性エネルギーの大きな媒体) を用いても、弱いヘッド磁場で磁化を反転させることができる。記録後は、媒体温度は急速に低下し、記録状態は安定に保持される。記録した情報は、従来の磁気記録と同じように TMR センサーで読み取る<sup>24)</sup>。

HAMR に用いる光ヘッドは、光磁気ディスクのヘッドと異なって、媒体との距離がサブナノメータ

図 28  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  の磁気光学効果<sup>261</sup>

(a) 極カー回転の磁場依存性 (b) カー回転スペクトル (c) カー回転スペクトルの理論計算結果

となり、ビットサイズも微小なので近接場光を使う必要があり、近接場発生素子が使われる。

## 4. 光と磁気の最近の展開

### 4.1 光によるスピン制御

反強磁性 NIO においては、光励起によって磁気異方性の変化が生じ  $\text{Ni}^{2+}$  スピンの超高速再配向につながる。困難軸状態と容易軸状態の間の反強磁性秩序パラメータのコヒーレント振動を生じて磁気基底状態が回復する。この振動は量子ビートとして現れる。コヒーレンス時間は 1 ns で、ビート周波数は異方性エネルギーによって決定される<sup>260</sup>。

最近、スピンホール効果 (SHE) の光子版である光スピンホール効果 (SHEL) が提唱された。スピン 1 の光子はスピン 1/2 の電荷と同じはたらきを持ち、屈折率の勾配が電気ポテンシャルのはたらきをする。SHEL の結果、円偏光が全反射するとき反射光が横方向にシフトする現象などとして現れることが理論的に提唱され<sup>260</sup>、実験的に検証されている<sup>271</sup>。

従来の磁気光学が電子のバーチャルな励起によって生じているのに対し、光が電子の運動をリアルに引き起こし、この電子の運動を通じてスピントロニクスに影響を与える新しい磁気光学が提案された。

実際、ペロブスカイト型 Co 酸化物において、光誘起による反射率の変化から、非磁性の低スピン状態が励起直後に急激に中間スピン状態へ転移し、さらには強磁性の高スピン状態への光クロスオーバー転移するさまが見いだされている<sup>260</sup>。

### 4.2 トポロジカル・スピントロニクスと磁気光学

トポロジカル絶縁体表面のスピン流やトポロジカル反強磁性体の仮想磁場などのトポロジーに起因する特性を利用することにより、素子の高密度化や高速動作、高効率なスピン流・電流変換もしくは熱電変換の実現などが新しいスピントロニクス技術として期待されている。

特に近年、ワイル反強磁性体である  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  や  $\text{Mn}_3\text{Ge}$  などにおいて、反強磁性体では発現しないと考えられてきた異常ホール効果、異常ネルンスト効果、磁気光学効果などが、電子構造のトポロジーを起源として出現することが報告され、反強磁性体を用いたスピントロニクスに新しい方向性を切り拓きつつある。

ここでは、肥後による  $\text{Mn}_3\text{Sn}$  単結晶の磁気光学効果を紹介しておく。図 28(a) は極カー回転角の印加磁場依存性である。室温・ゼロ磁場下で 17.5 mdeg という強磁性体に匹敵する巨大な極カー回転角が現れ、回転角の符号が 10 mT 程度の磁場で制御できる。図 28(b) は極カー回転角のスペクトルで、

600 nm 付近にピークを示す。第一原理計算により極カー効果のスペクトルを図 28(c) に示す。この物質においては微小なキャント磁性が見られているが、クラスター磁気八極子秩序の持つ自発磁化が 0.005, 0.025  $\mu_B/\text{f.u.}$  となるようにスピンをキャントさせた磁気構造を仮定して計算した結果、磁化が打ち消しあっている状態 (0  $\mu_B/\text{f.u.}$ ) において最大のカー回転角を示すことから、 $\text{Mn}_3\text{Sn}$  における巨大な磁気光学カー効果は、微小磁化によるものではないと結論している。この物質では、ベリ-曲率が大きいのが、これが実効的に大きな磁束密度として働き、磁気光学効果をもたらしたと考えられている<sup>28</sup>。

## 5. おわりに

この章では、磁性体における光と磁気の関係について、量子的相互作用の観点から記述した。さらに、スピントロニクスのはなしは、光とスピンという考えに立って、新しい展開を見せつつある。本稿が、この分野に足を踏み入れつつある初心者の手がかりになれば幸いである。

### 文 献

- 佐藤勝昭: 光と磁気 (改訂版), 第 2 章, 1-23, 朝倉書店 (2001).
- 佐藤勝昭: 光と磁気 (改訂版), 上掲書, 第 3 章, 24-60, 朝倉書店 (2001).
- 佐藤勝昭: 光と磁気 (改訂版), 第 4 章, 61-89, 朝倉書店 (2001).
- A. Tsukamoto et al.: *J. Appl. Phys.*, 109, 07D302-1-3 (2011).
- 高木 宏平, 井上光輝: 光学 42(1), 30 (2013).
- 町田賢司: NEK 技研 R&D No.187, 4-17 (2021).
- T. Ishihashi et al.: *Physica C Superconductivity*, 468, (15-20), 1313 (2008).
- 佐藤勝昭: 新しい磁気と光の科学 (菅野 曉ほか編), 第 8 章, 205-228, 講談社 (2001).
- Y. Cai: *J. Mag. Soc. Jpn.*, 38(3-2), 127 (2014).
- 佐藤勝昭: 光学 42(1), 2 (2013).
- I. Yamamoto et al.: *Phys. Rev. B*, 81, 214442 (2010).
- 小野寛大: *J. Vac. Soc. Jpn.*, 59, 347 (2006).
- I. Radu et al.: *Nature*, 472, 205 (2011).
- 佐藤勝昭: 新しい磁気と光の科学 (菅野 曉ほか編), 第 6 章, 141-174, 講談社 (2001).
- Th. Rasing et al.: *J. Appl. Phys.*, 79, 6181 (1996).
- M. Fiebig et al.: *Appl. Phys. Lett.*, 66, 2906 (1995).
- 佐藤勝昭: 光と磁気 (改訂版), 第 2 章 2.5 節, 20-22, 朝倉書店 (2001).
- 久武 隆蔵: フェライトの基礎と磁石材料, 81, エクセラ出版 (1978).
- T. Tamaki and K. Tsushima: *J. Phys. Soc. Jpn.*, 45, 122 (1978).
- 高木 芳弘ほか: 応用物理 64, 241 (1995).
- S. Haneda et al.: *Jpn. J. Appl. Phys.*, 39, L9 (2000).
- T. Tamaki and K. Tsushima: *J. Magn. Magn. Mater.*, 31-34, 571 (1983).
- 佐藤勝昭ほか: 光磁気ディスク材料, 第 1 章, 1-19, 工業調査会 (1993).
- 松本 拓也: 光学 42(1), 26 (2013).
- N. P. Duong et al.: *Phys. Rev. Lett.*, 93(11), 117402 (2014).
- M. Onoda et al.: *Phys. Rev. Lett.*, 93(8), 083901 (2014).
- J. Ren et al.: *Appl. Phys. Lett.*, 101, 171103 (2012).
- Y. Okamoto et al.: *Phys. Rev. Lett.*, 103(2), 027402 (2009).
- 肥後 文也: 第 45 回日本磁気学会学術講演会, シンポジウム「磁気と光の関係の最近の進展」31 pA-1 (2021).

\* \* \*