

## 光と磁気の新しい流れ ——非線形磁気光学効果を中心に——

### New Trends in Magneto-Optics ——with Particular Reference to the Nonlinear Magneto-Optical Effect——

佐藤勝昭 東京農工大学工学部

K. Sato, Faculty of Technology, Tokyo University of Agriculture and Technology

The introductory part of this review gives a brief summary of research trends in magneto-optics since 1989 when the author published "Hikari to Jiki" (Light and Magnetism—An Introduction to Magneto-Optics). The major part of this review is dedicated to the nonlinear magneto-optical effect, which has burst onto the scene in the last few years as a result of intensive studies by European scientists. Particular emphasis is given to the fundamental principles underlying both the macroscopic and microscopic origins of the effect, which explain why it is sensitive to breaks in symmetry at surfaces and interfaces. Several experimental studies, particularly on multilayered films, are reviewed. Possible applications and future problems are also suggested.

**Key words:** nonlinear magneto-optical effect, second harmonic generation, longitudinal Kerr configuration, transverse Kerr configuration, symmetry breaking, interface magnetism, artificial superlattice, quantum well oscillation

#### 1. はじめに

筆者が磁気光学効果の基礎と応用の間をつなぐことを目的として「光と磁気」<sup>1)</sup>を刊行したのは1989年であった。あれから8年が経過したが、その間磁気光学効果の分野は、応用・基礎ともに大きく進展した。

光磁気(MO)ディスクの分野では、当時直径8.6 cm (3.5")のディスクの容量が128 MBであったものが、現在では640 MBにまで高密度化された。1995年のWindows 95の発売を機とするファイルサイズの増大はMOディスクの需要の拡大と急速な普及をもたらしつつある。また、直接重ね書き(DOW)技術の開発、磁気誘起超解像(MSR)技術の発明<sup>2)</sup>などにより、本格的なマルチメディア時代に向け、DVD-RAM上位の13 cm (5")両面7 GBを視野に入れた開発研究が行われている。詳細は、太田の解説<sup>3)</sup>および研究会資料<sup>4)</sup>を参照されたい。さらに高密度の光磁気記録をめざす短波長用媒体の開発、SIL (solid immersion lens) からの近接場を用いた高密度記録<sup>5)</sup>など次世代に向けた多くの光磁気技術が蓄積されつつある。

本格的な光ファイバ通信時代が到来し、磁性ガーネットの磁気光学効果を用いた光アイソレータはシステムの中に定着した。さらにエルビウム添加光ファイバ増幅器の登場は新たなアイソレータの需要を呼び覚まし、希薄磁性半導体系材料の開発を促した<sup>6)</sup>。磁気光学効果を用いた電流センサはすでに電力供給システムでの現場技術になっている。

磁気光学効果にまつわる基礎研究分野を眺めてみると、各方面で大きな進展があった。理論的にはバンド計算の技術が進展し、実験のスペクトルを非常によく説明できるようになった<sup>7)</sup>。実験的には、磁性多層膜、磁性超薄膜、磁性人工格子などにおいて、新たな磁気光学効果が観測され量子サイズ効果による電子遷移として説明された<sup>8)</sup>。また、最近、90°に及ぶ大きなカー回転角を示すCaSbという物質が見いだされた<sup>9)</sup>。(温度1.5 K, 磁界5 T) このように大きなカー回転に対しては従来の磁気光学効果表式をそのままでは使うことができない。この物質は磁界とともに磁気構造が変化し、それに伴って磁気光学スペクトルも変化するなど基礎的に非常に興味深い問題を提供する。

磁気光学をめぐるもう一つの話は、走査型近接場光学顕微鏡(SNOM)を用いた微小ビットの光磁気再生である<sup>10)</sup>。SNOMとは、開口部を光の波長の数分の1以下に細めた光ファイバから漏れ出すエバネセント光を用い、開口から波長の数分の1以下の近接場位置に置いた非常に小さな散乱体で散乱された光を検出して微小領域の形状を観測する技術である。散乱体として磁性体を用いた場合には磁気光学効果が観測される。筆者はこれを用いた磁区観察に取り組んでいるが<sup>11)</sup>、この技術はプローブの偏光特性の問題など未解決の点も多く発展途上なので詳細は別の機会に解説したい。

上に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の表面・界面における非線形分極によって発生した第2高調波の出射光に対する磁気光学応答が理論的に導かれ非線形磁気光学効果と名付けられた<sup>12)</sup>。これによると線形の磁気光学効果よりも大きな効果が生じる可能性が予言され、これを検証するために多くの実験が試みられ、最近になって明確に検証され

た<sup>13), 14)</sup>。この効果は表面・界面に特に敏感なので磁性/非磁性人工格子の層間磁気相互作用の評価にも用いることができる。この効果は、記録技術としては実用に直結するとは考えられないが、新しい観測手段として見た場合、線形磁気光学効果にはない多くの情報を提供するので、磁性の基礎研究者から注目を集めている。

この小文では、非線形磁気光学効果とは何か、これによって磁性体のどのような情報が得られるのかについて、なるべく原理に立ち返って解説をしたい。

## 2. 非線形磁気光学効果の原理

### 2.1 磁性を考えないときの非線形光学効果

透過、屈折、反射など物質の通常の光学現象は、物質中に誘起される電気分極  $P$  が光の電界  $E$  の 1 次 に比例し、 $P = \chi \epsilon_0 E$  と表せることが前提となっている。  $\chi$  は電気感受率テンソルである。光の電界が十分に弱いときにはこのような線形の取り扱いをしても差し支えない。しかし、光の電界が強いとき、一般的に電気分極  $P$  は電界  $E$  のべき関数で表される。分極が電界の 2 次以上のべきで表される場合を非線形光学効果という。この効果の帰結として、二つの光の波の混合による和周波発生、差周波発生、光学的整流、第 2 高調波発生 (SHG) などの現象が起きる。

数学的に表せば、電気分極の  $i$  成分  $P_i$  は一般に電界  $E_j$  のべきで展開され、

$$P_i = \epsilon_0 (\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots) \quad (1)$$

によって表される。ここに、繰り返される添字について和をとるというテンソル計算の約束に従う。  $\chi^{(n)}$  はテンソル量で、 $n$  次の電気感受率と呼ばれる。

二つの電磁波  $E_1(t)$  と  $E_2(t)$  が時刻  $t=0$  で印加されたときの二次分極  $P_i^{(2)}(t)$  は 2 次の電気感受率を使って

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

のように畳み込み積分で与えられる。繰り返される添字については和をとるものとする。この式に、

$$E_j(t) = \{E_{1j} \exp(i\omega_1 t) + E_{2j} \exp(i\omega_2 t) + \text{c.c.}\} / 2 \quad (3)$$

(c.c. は複素共役)

を代入して、

$$\begin{aligned} P_i^{(2)}(t) = & P_i^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) \exp\{i(\omega_1 + \omega_2)t\} \\ & + P_i^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) \exp\{i(\omega_1 - \omega_2)t\} \\ & + P_i^{(2)}(0) + P_i^{(2)}(2\omega_1) \exp(i2\omega_1 t) \\ & + P_i^{(2)}(2\omega_2) \exp(i2\omega_2 t) + \text{c.c.} \end{aligned} \quad (4)$$

を得る。すなわち第 1 項には二つの入射波の和周波数の成分が、第 2 項には差周波数成分が、第 3 項には直流成分が、第 4 項と第 5 項には各周波数の倍調波の分極が現れている。第 1 項と第 2 項を光パラメトリック過程、第 3 項を光整流過程、第 4 項と第 5 項を第 2 高調波発生 (SHG = second harmonic generation) 過程という。ここに各項の係数  $P(\omega)$  は分極  $P(t)$  のフーリエ変換となっており、

$$P_i^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (5a)$$

$$P_i^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (5b)$$

$$P_i^{(2)}(0) = (1/2) \chi_{ijk}^{(2)}(0; \omega, -\omega) E_j(\omega) E_k(\omega) \quad (\omega = \omega_1, \omega_2) \quad (5c)$$

$$P_i^{(2)}(2\omega) = (1/2) \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) E_j(\omega) E_k(\omega) \quad (\omega = \omega_1, \omega_2) \quad (5d)$$

と書くことができる。ここに、一般化された感受率の表式  $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2)$  は、周波数が  $\omega_1, \omega_2$  である二つの波が入射したときに周波数  $\omega_3$  の分極が生じる場合の感受率を表している。2 次の非線形過程では  $\chi$  の引数からわかるように三つの光波が関与しているので 3 波混合とも呼ばれる。反転対称をもつ物質では 2 次の電気感受率テンソル  $\chi_{ijk}^{(2)}$  のすべての成分は消滅することが対称操作から導かれる。しかし、表面や界面では対称性が破れるため、反転対称をもつ物質でも有限の非線形感受率を示す。また、バルク材料では、非線形感受率が有限の値をもったとしても入射光と 2 次光の位相整合がとれなければ、2 次光は距離とともに振動しながら減衰し観測されることがわかっている。しかし、対称性の破れる表面や界面では位相整合がとれなくても SHG を観測できる。

### 2.2 非線形磁気光学効果の波動方程式

線形の磁気光学効果は、磁性体に入射した直線偏光が、磁化の向きに応じた右回りまたは左回りの楕円偏光となり、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。前者を円二色性、後者を旋光性と呼ぶ。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。磁化による左右円偏光に対する光学応答の差は、スピン軌道相互作用に由来している<sup>1)</sup>。線形応答の場合媒体中の電界ベクトル  $E$  は波動方程式、

$$\text{rot rot } E(\omega) + \frac{\bar{\epsilon}(\omega)}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(\omega) = 0 \quad (6)$$

に従う。いま、Fig. 1 に示すような縦カー配置を考え、座標軸としては、面の放線方向を  $z$  軸、光の入射面を  $xz$  面とし、磁化  $M$  は  $x$  方向に向いているとする。このとき、誘電率テンソルは

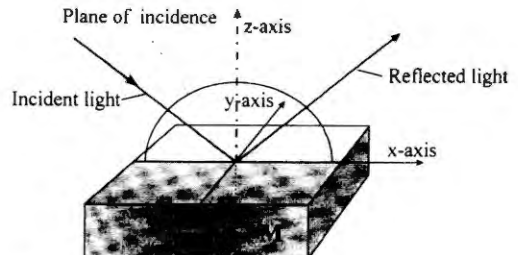


Fig. 1 Optical setup showing the longitudinal Kerr configuration.

$$\hat{\epsilon}(\omega) = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{xx} & -\epsilon_{yx} \\ 0 & \epsilon_{yx} & \epsilon_{xx} \end{pmatrix} \quad (7)$$

で与えられる。ここに対角成分  $\epsilon_{xx}$  は、磁化の反転に対して対称であるのに対し非対角成分  $\epsilon_{yx}$  は磁化の反転に対して反対称である。いま、入射角  $\theta_i$  で直線偏光が入射したときの反射光の複素カー回転角  $\Psi_K$  は

$$\tan \Psi_K^{(1)}(\omega) = -\frac{\chi_1^{(1)}}{\chi_0^{(1)}} \cdot \frac{\sin \theta_i \cos \theta_i}{\sqrt{\cos^2 \theta_i + \chi_0^{(1)}}} \times \frac{\cos(2\theta_i) + \chi_0^{(1)}}{\cos(2\theta_i) + \chi_0^{(1)} \cos^2 \theta_i} \quad (8)$$

で与えられる<sup>15)</sup>。ここに、 $\chi_1^{(1)} = \omega_{yx}$ 、 $\chi_0^{(1)} = \omega_{xx} = 1 = N^2 - 1$  である。

これに対し、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  $P^{(2)}(2\omega)$  が存在してこれが強制振動項として働くと考えて、次式のように表すことができる。

$$\text{rot rot } E(2\omega) + \frac{\partial^2}{c^2} E(2\omega) = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^{(2)}(2\omega) \quad (9)$$

ここに  $P^{(2)}(2\omega)$  は入射光の電界  $E(\omega)$  によって磁性体に誘起された非線形分極で、

$$P_j^{(2)}(2\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) E_k^{(1)}(\omega) \cdot E_i^{(1)}(\omega) \quad (10)$$

のように表される。

もし物質が反転対称を持っているならばバルクの  $P^{(2)}(2\omega)$  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  $P^{(2)}(2\omega)$  は有限の値を持つ。つまり、非線形分極は界面にのみ形成される。

式(9)の解は、齊次方程式の一般解と、非齊次方程式の特解の和となる。齊次方程式の解は、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

$$N_i^{\pm} = \epsilon_{xx}(2\omega) \pm i\epsilon_{yx}(2\omega) \sin \theta_{2i} \quad (11)$$

を与える。一方、非齊次部分は屈折率  $N_i^{\pm}$  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界の振幅を計算し、線形の場合と同様に

$$\tan \Psi_K^{(2)} = \theta_K^{(2)} + i\eta_K^{(2)} = i \frac{E_r^{(2)}(2\omega) - E_i^{(2)}(2\omega)}{E_r^{(2)}(2\omega) + E_i^{(2)}(2\omega)} \quad (12)$$

の式を使って複素カー回転角を求める。いま、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、反射光の電界の振幅は次式で与えられる<sup>15)</sup>。

$$E_r^{(2)\pm}(2\omega) = -\frac{P^{(2)\pm}(2\omega) \sin \theta_i}{\omega c^2} \frac{F_1^{\pm}}{F_3^{\pm} F_2^{\pm}} \quad (13)$$

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。

$$\left. \begin{aligned} F_1^{\pm} &= \sin^2 \theta_i + \frac{1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)}{1 + \chi_0^{(1)\pm}(2\omega)} S_1^{\pm}(\theta_i) S_2^{\pm}(\theta_i) \\ &+ \frac{\chi^{(1)\pm}(2\omega) - \chi_0^{(1)\pm}(2\omega)}{\chi^{(1)\pm}(\omega) - \chi_0^{(1)\pm}(\omega)} \left[ \frac{1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)}{1 + \chi_0^{(1)\pm}(2\omega)} \right. \\ &\times [1 + \chi^{(1)\pm}(\omega)] - 2 \sin^2 \theta_i \left. \right] S_1^{\pm}(\theta_i) S_2^{\pm}(\theta_i) \\ F_2^{\pm} &= [1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)] S_1^{\pm}(\theta_i) + [1 + \chi^{(1)\pm}(\omega)] S_2^{\pm}(\theta_i) \\ F_3^{\pm} &= [1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)] \cos \theta_i \end{aligned} \right\} (14)$$

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(13)の  $E_r^{\pm}$  を式(12)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。

$$\begin{aligned} \tan \Psi_K^{(2)} &= i \left( \frac{\chi^{(2)\pm} F_1^{\pm} F_2^{\pm} F_3^{\pm} - \chi^{(2)\mp} F_1^{\mp} F_2^{\mp} F_3^{\mp}}{\chi^{(2)\pm} F_1^{\pm} F_2^{\pm} F_3^{\pm} + \chi^{(2)\mp} F_1^{\mp} F_2^{\mp} F_3^{\mp}} \right) \\ &= i \left( \frac{\chi^{(2)\text{odd}}}{\chi^{(2)\text{even}}} + \text{高次項} \right) \quad (15) \end{aligned}$$

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

上式からわかるように非線形カー効果は線形の場合と異なって主として  $\chi^{(2)\text{odd}}/\chi^{(2)\text{even}}$  が寄与する。この項は反転対称をもつバルク結晶では0であるが、表面・界面では有限の値を持つ。この表面感応性のゆえに、これを表面磁性の研究に役立てることができる。

線形磁気光学効果と非線形磁気光学効果の際だった違いは、線形の場合は式(8)に示したように  $1/\sqrt{\cos^2 \theta_i + \chi_0^{(1)}}$  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、非線形の場合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、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(9)の強制振動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が原因であると考えられる。また、 $P^{(2)}$  は  $\chi^{(2)}$  から生じているので、非線形光学効果が表面に感応であることもよく理解できる。

### 2.3 ミクロな視点から見た非線形光学効果<sup>15), 16)</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 は三つのフォトン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  $\chi_{\alpha\beta}^{(2)}$  として次の式を導いた<sup>17)</sup>。

$$\chi_{\alpha\beta}^{(2)}(q, 2\omega; M) \sim \frac{\lambda_{2\omega}}{\hbar \omega} \sum_{\sigma} \langle k+2q | x | k \rangle \langle k | z | k+q \rangle \langle k+q | z | k+2q \rangle \frac{F_{\sigma}}{\omega_{k-2q, \sigma} - \epsilon_{k, \sigma} - 2\hbar\omega} \quad (16)$$

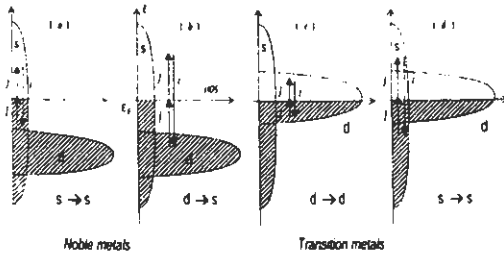


Fig. 2 Schematic illustration of the SHG process for (a) (b) noble metals and (c) (d) transition metals.<sup>16)</sup> For noble metals, low-energy photons contribute to the excitation of predominantly s-electrons, as in (a), while high-energy photons contribute to the excitation of d-electrons. For transition metals (c), predominantly d-electrons contribute to the SHG yield by low-energy photons, while in (d) s-electrons are mainly involved.

ここに

$$F_{\sigma} = \frac{f(\epsilon_{k-2q}) - f(\epsilon_{k-q})}{\epsilon_{k+2q, \sigma} - \epsilon_{k+q, \sigma} - \hbar\omega} - \frac{f(\epsilon_{k-q}) - f(\epsilon_k)}{\epsilon_{k-q, \sigma} - \epsilon_{k, \sigma} - \hbar\omega} \quad (17)$$

ここに  $\lambda_{so}$  はスピン軌道結合の強さである。式(16)の三つの行列要素から、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。一般に s 電子系においては  $\langle s|z|s \rangle$  は  $\langle s|x|s \rangle$  よりかなり大きく、d 電子系では  $\langle d|z|d \rangle$  と  $\langle d|x|d \rangle$  はほぼ等しいと考えられるので、s 電子系の方が d 電子系より表面に敏感である。このような 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(16)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  $|k\sigma\rangle$  にある電子系が、 $\hbar\omega$  のエネルギーをもつ一つのフォトンによって中間状態  $|k+q, l'\sigma\rangle$  に遷移、さらに、 $\hbar\omega$  のエネルギーをもつ二つ目のフォトンで励起状態  $|k+2q, l''\sigma\rangle$  に遷移し、 $2\hbar\omega$  のエネルギーをもつ三つ目のフォトンを出して基底状態に戻る過程と解釈することができる。透明な透電体の場合、 $2\hbar\omega$  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り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、一つ目のフォトン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、もう一つのフォトンでフェルミ面から、フェルミ面上の空いた準位へと遷移、2倍のエネルギーのフォトンを出してもとに戻る。式(16)のスピンに依存するエネルギー分母のために、SHG は金属のスピン偏極したバンド構造を反映したものになる。Fig. 2 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、低エネルギーのフォトンについては、s(filled)  $\rightarrow E_F$ (s)  $\rightarrow$  s(empty) の過程が、高エネルギーのフォトンについては d(filled)  $\rightarrow E_F$ (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、低エネルギーフォトンについては d(filled)  $\rightarrow E_F$ (d)  $\rightarrow$  d(empty) の過程が、高エネルギーフォトンについては s(filled)  $\rightarrow E_F$ (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 電子状態のスピン分極とスピン軌道相互作用を通じて生じるので、例えば、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。

#### 2.4 磁化をもつ物質の非線形テンソル

式(10)の  $P$  を磁界の関数として表すと、

$$P_i^{(2)}(M) = \chi_{ijk}^{(2)}(M) E_j E_k \quad (18)$$

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。2.1 節に述べたように、反転対称をもつ物質においてはバルクの  $\chi^{(2)}$  は 0 となるが、表面では対称性の破れのため有限の値を持つ。一方、磁化  $M$  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、 $M$  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。それでも、磁化  $M$  が存在すると表面の対称性が低下するため、テンソル成分にゼロでないものが現れる。

非線形磁気光学感受率テンソルの導出は 1989 年 Ru-Pin Pan らによって行われた<sup>18)</sup>。立方晶系の結晶の (001) 面を考え、縦カー配置、すなわち、磁化  $M$  は (001) 面内であってかつ入射面に平行であるとすると、 $M$  がなければ、この (001) 面は 4mm ( $[001]$  軸を 4 回軸とし、 $x$  面、 $y$  面を鏡映面とする) の対称性をもつ。磁化  $M = (M, 0, 0)$  が存在すると、 $y$  面についての鏡映  $m_y$  は  $m_y'$  となる。これに対して  $m_x$  は変化がない。このような対称操作の結果、 $\chi^{(2)}$  には  $M$  について偶関数の成分  $\chi^{(2\text{even})}$  と奇関数の成分  $\chi^{(2\text{odd})}$  が含まれていることがわかる。

$$\chi_{ijk}^{(2\text{even})}(-M) = \chi_{ijk}^{(2\text{even})}(M), \quad \chi_{ijk}^{(2\text{odd})}(-M) = -\chi_{ijk}^{(2\text{odd})}(M) \quad (19)$$

Table 1 には縦カー効果、横カー効果、極カー効果における偶奇それぞれの感受率の独立な要素を書き出してある<sup>19)</sup>。第 1 行は、縦カー配置すなわち  $M = (M, 0, 0)$  の場合の感受率である。同様に、横カー配置すなわち  $M = (0, M, 0)$  の場合には第 2 行、極カー配置すなわち  $M = (0, 0, M)$  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、縦カー配置 ( $M_x$ ) で、s 偏光 ( $E_y$ ) が入力された場合を考える。SHG は添え字  $jk$  が等しい ( $E_j = E_k$ ) 場合であるから s 偏光では、 $j = k = y$  の場合が対象となる。Table 1 から  $M$  について偶関数の項は  $\chi_{yyy}^{(2)}$  のみであり p 偏光が出力され、 $M$  について奇関数の項は  $\chi_{yyy}^{(2)}$  のみである

**Table 1** Nonzero elements of the nonlinear susceptibility tensor  $\chi^{(2)}(M)$  for all the Kerr configurations<sup>19)</sup>

	Even in M	Odd in M
Longitudinal $M \parallel x$	$zyz=yyz, xzx=xxz$ $zzz, zyy, zxx$	$xyx=oxy, yz=zzz$ $yzz, yyy, yxx$
Transverse $M \parallel y$	$xxz=xzx, yyz=yzy$ $zxx, zyy, zzz$	$xyy=yyx, zxz=zzx$ $xxx, xyy, xzz$
Polar $M \parallel z$	$xxz=xzx=yyz=yzy$ $zxx=zyy, zzz$	$xyx=xzy=-yxz=-yzx$ $zxy=zyx$

ことからs偏光が出力されることがわかる。したがって、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 ( $M \parallel y$ ) でs偏光が入射したとき、Table 1の第2行より  $M$  について偶関数の項は  $\chi_{zyz}^{(2)}$ 、奇関数の項は  $\chi_{xyx}^{(2)}$  のみで、いずれもp偏光である。したがって、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、

$$I_{2\omega}(\pm M) = |\alpha\chi_{zyz}^{(2)} \pm \beta\chi_{xyx}^{(2)}|^2 \quad (20)$$

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  $M$  に依存して変化することがわかる。したがって、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  $\chi^{(2)\text{even}}$  は実数、 $\chi^{(2)\text{odd}}$  は虚数でなければならないことが導かれる。

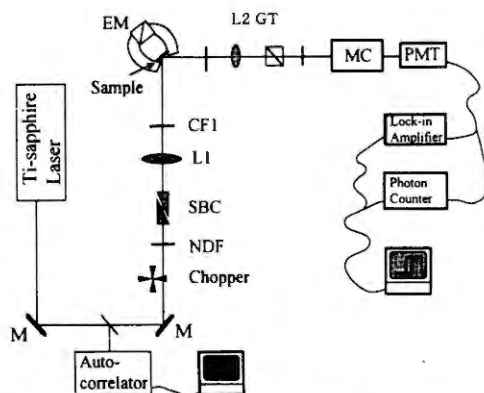
### 3. 非線形磁気光学効果の実験的検証

#### 3.1 実験装置

Ru-Pin Pan らはNiについて非線形感受率の大きさを推定し  $\omega^2\chi^{(2)}$  の絶対値として  $10^{12} \text{ V}^{-1}\text{s}^{-2}\text{m}$  という値を報告している<sup>18)</sup>。これに対し、Hübner らは、同じNiについてバンド計算に基づいて  $10^{17}$  という値を出している<sup>20)</sup>。SHGの検出限は  $10^9 \sim 10^{10}$  なので、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>21), 22)</sup>。したがって、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、研究の幅も広がった。

Fig. 3はRasingらが実験に用いた非線形磁気光学効果測定のための光学系である<sup>19)</sup>。光源はアルゴンレーザ励起のモードロックチタンサファイアレーザで、波長は鏡の選択により720~1100 nmの間でチューナブルで出力は835 nmで1.3 Wである。レーザ光量はニュートラルデンシティフィルタNDFによって調整される。偏光方向はパ



**Fig. 3** Schematic illustration of a setup for measurement of the nonlinear magneto-optical Kerr effect<sup>19)</sup>: M, mirror; BS, beam splitter; NDF, neutral density filter; SBC, Soleil/Babinet compensator; L, lens; CF, color filter; EM, electro-magnet; GT, Glan Taylor polarizer; MC, monochromator; PMT, photomultiplier tube.

ピネ板を  $\lambda/2$  板として用い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100  $\mu\text{m}$  程度のスポットに絞られる。色フィルタ1は570 nm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2次高調波以外の光を取り除く。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)または横カー配置(入射面に垂直に磁界を印加)をとる。垂直磁化を持つ場合には縦カー配置にすることもできる。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を2枚、分光器に組み合わせて用いている。レンズ2は紫外線透過レンズで、第2高調波をフォトマルに集光する。SNを上げるためにチョッパとロックインアンプの組み合わせを使っている。偏光子は縦カー配置の場合に用いるが、横カー配置では必要ではない。

#### 3.2 非線形磁気光学の実例

非線形磁気光学効果の実験データは、1990年のAktispetrovのBi添加磁性ガーネット薄膜についての研究<sup>21)</sup> ( $1^\circ \sim 4^\circ$ )および1991年のReifらのFe表面についての研究<sup>22)</sup>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<sup>23)</sup>。Reifらは1993年PtMnSbについて  $14^\circ$  という大きな値を報告した<sup>24)</sup>。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。ここでは数例を紹介するとどめる。

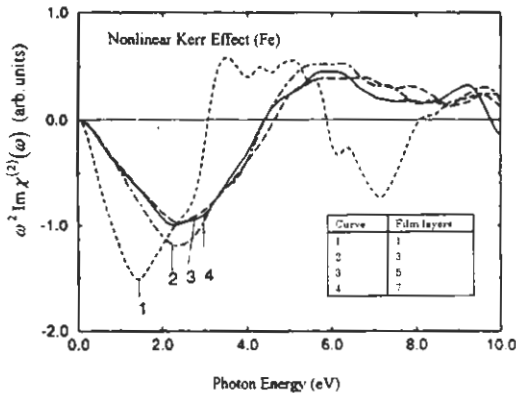


Fig. 4 Predicted spectra of the second-order electric susceptibility in Fe films.<sup>16)</sup>

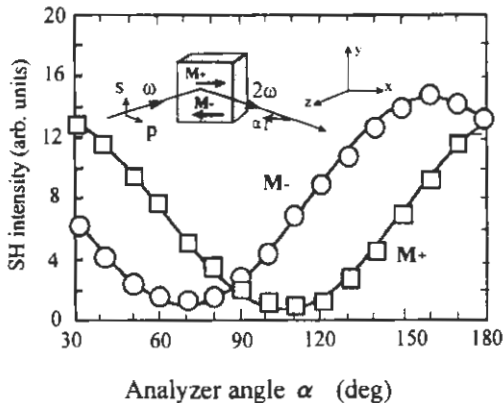


Fig. 5 Output polarization dependence of the SHG reflection from an Fe/Cr interface, for s-polarized input. Squares,  $M_x$ ; circle-clusters,  $M_{-x}$ . The inset shows the experimental configuration.<sup>13)</sup>

#### (1) Fe 超薄膜および単結晶の巨大非線形カー効果

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<sup>15)</sup>。さらに第 1 原理計算によって、Fig. 4 のように Fe 超薄膜の非線形感受率のスペクトルを求め、層数によって大きく変化することを示した<sup>15)</sup>。

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<sup>13)</sup>。測定には先に述べた測定系を使用した。Fig. 5 は縦カー効果 (Fig. 5 の挿図) 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を回転させて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<sub>-</sub> と M<sub>+</sub> の二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。

複素カー回転角  $\phi_k^{(2)}$  は反射第 2 高調波の s 成分  $E_s(2\omega)$  と p 成分  $E_p(2\omega)$  の比  $\rho^{(2)}(sp) = E_s(2\omega)/E_p(2\omega)$  を使って表すことができる。すなわち、 $R = \text{Re}[\rho^{(2)}]$ 、 $I = \text{Im}[\rho^{(2)}]$ 、 $A = |\rho^{(2)}|$  とすると

$$\phi_k^{(2)} = \frac{1}{2} \arctan\left[\frac{2R}{I-A^2}\right] + \varphi_0 \quad (21)$$

ここに  $\varphi_0$  は位相の調整の項で

$$\varphi_0 = \begin{cases} 0^\circ & A^2 \leq 1 \\ 90^\circ & A^2 > 1, R \geq 0 \\ -90^\circ & A^2 > 1, R < 0 \end{cases} \quad (22)$$

である。A が小さいときは式 (21) は簡単になって、 $\phi_k^{(2)} = R$  となる。Table 1 より、入射光が s 偏光のとき (すなわち  $j=y, k=y$ )、感受率の非磁性項 ( $\chi^{(2)\text{even}}$ ) は zyy 成分のみが消えずに残ること<sup>\*1</sup>、磁性項 ( $\chi^{(2)\text{odd}}$ ) については yyy 成分のみが消えないことが示される<sup>\*2</sup>。これより、 $R = E_s/E_p \sim \chi^{(2)\text{odd}}/\chi^{(2)\text{even}}$  となって、非線形カー回転の式は式 (15) に帰着する。ところが、非線形応答の場合、A は一般に 1 よりかなり大きいので、式 (22) の位相  $\varphi_0$  は  $\pm 90^\circ$  となる。垂直入射になると z 成分がなくなるので  $E_p=0$  となり  $R=0$ 、したがって式 (21) の第 1 項は消え、 $\phi_k^{(2)}$  は  $\pm 90^\circ$  という大きな値に近づく。

上に述べたような非線形磁気光学効果の入射角依存性は、Fe のひげ (ウィスカー) 単結晶を用いた実験によって確認された。Fig. 6 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実際に観測された。

#### (2) Cu/Co/Cu サンドイッチ膜の非線形カー効果の量子振動

磁性超薄膜における電子のスピン依存量子閉じこめについては、すでに片山らが論じているので<sup>8)</sup>、ここでは詳細には立ち入らず、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(10 ML) 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。

\*1 磁化に対し偶の項が zyy 成分のみということとは、入射 s 偏光 (y 成分) が 2 波入力し、p 偏光 (z 成分) が出射すること、すなわち、非磁性項は  $E_p$  のみが出力されることを示している。

\*2 磁化に対し奇の項が yyy 成分のみということとは、入射 s 偏光 (y 成分) が 2 波入力し、s 偏光 (y 成分) が出射すること、すなわち、磁性項は  $E_s$  のみが出力されることを示している。

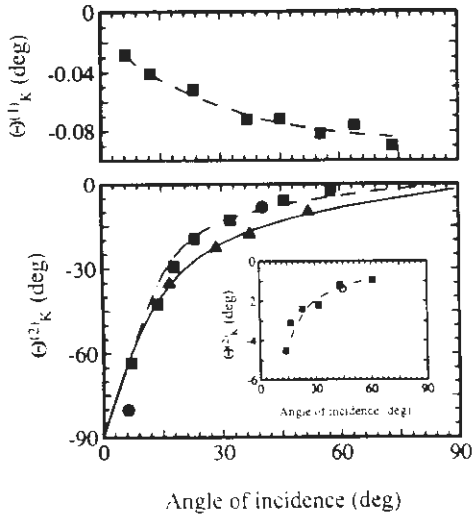


Fig. 6 Linear and nonlinear Kerr rotation in a Fe surface for s-polarized input in the longitudinal configuration as a function of the angle of incidence.  $\blacktriangle$ , Fe/Cr;  $\bullet$ , Fe/Au;  $\blacksquare$ , uncapped Fe. The inset shows nonlinear rotation for p-polarized input.<sup>13</sup>

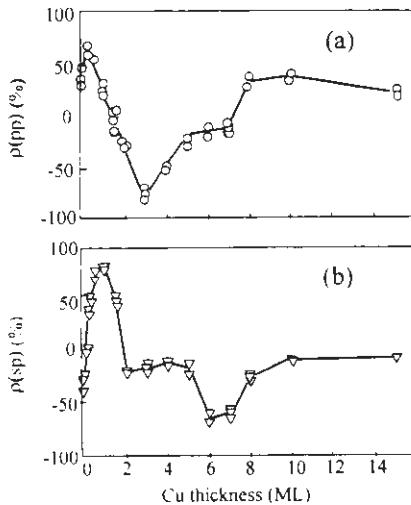


Fig. 7 Relative magnetic effects  $\rho(pp)$  and  $\rho(sp)$  as a function of the Cu coverage of a 10 ML Co film on Cu(001): (a) circles,  $\rho(pp)$ ; dashed line, calculation without quantum size effect; (b) triangles,  $\rho(sp)$ .<sup>14</sup>

Fig. 7 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、5 ML と 2~3 ML の二つの振動周

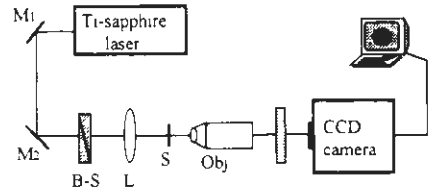


Fig. 8 Experimental setup for domain wall imaging using the nonlinear magneto-optical effect.<sup>18</sup>  $M_1$  and  $M_2$ , mirrors; B-S, beam splitter; L, lens; S, magnetic garnet film on GGG substrate; Obj, microscope objective; F, color filter; CCD, liquid-nitrogen-cooled low-noise CCD camera.

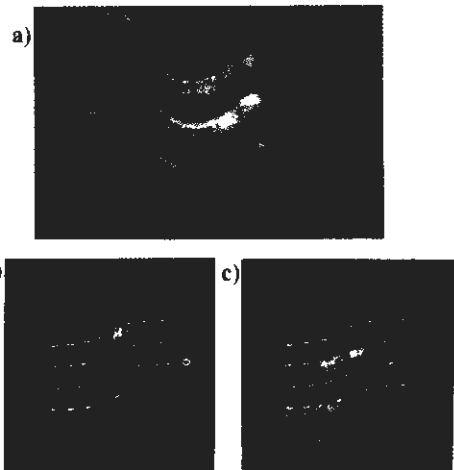


Fig. 9 (a) Magnetic domain structure measured by means of the linear Faraday effect. (b) and (c) Domain structure images obtained by means of the second-harmonic light generated in a (210)-oriented film, for polarizer angles of  $40^\circ$  and  $100^\circ$ , respectively.<sup>20</sup>

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<sup>25</sup>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<sup>26</sup>と同じであることから、Cu 層にスピン偏極電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<sup>27</sup>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ことが実証された。

### (3) 非線形磁気光学効果によるイメージング

Pisarev らは磁性ガーネット薄膜の非線形磁気光学効果による磁区のイメージングを行っている<sup>28</sup>。Fig. 8 はこのための実験装置である。彼らは、横磁気光学効果のセッティングを用い、入射偏光を回転しながら磁化に依存する

強度を測定することによってガーネット薄膜の磁区構造を観測した。線形磁気光学効果では Fig. 9(a) のように通常の蛇状の磁区が見られるが、非線形磁気光学効果では、Fig. 9(b), (c) のように磁区が副磁区に分割されていることが見いだされる。この方法は今後磁化の観察など応用範囲が広がるものと予想される。

#### 4. 今後の展望

以上述べたように、非線形磁気光学効果は、同じスピン軌道相互作用に起源を持ちながら線形効果とは極めて異なった性質を持つ。特に、この効果が界面に敏感であることから、多層膜、微細構造膜における磁化の評価に優れた特徴を持つことが示された。今後、波長可変レーザが進歩すれば、理論的に予言された非線形磁気光学スペクトルの検証が可能になるものと期待される。

#### 5. おわりに

非線形磁気光学効果を中心に磁気光学の最近の流れを解説した。筆者は、最近非線形磁気光学の研究を開始したばかりなので、自らの研究成果をお示しできないことをお許しただきたい。この小文がこれから非線形磁気光学効果について勉強してみたいという読者のための手がかりになれば幸いである。

#### 参考文献

- 1) 佐藤勝昭: 光と磁気 (朝倉書店, 1988).
- 2) M. Ohta, A. Fukumoto, K. Aratani, M. Kaneko, and K. Watanabe: *J. Magn. Soc. Japan*, 15 (Suppl. No. 1), 319 (1991).
- 3) 太田憲雄: 日本応用磁気学会誌, 20, 817 (1996).
- 4) 日本応用磁気学会第 98 回研究会「光と磁気の新しい流れ」資料 (1997. 1. 30~31).
- 5) P. Glijer, T. Suzuki, and B. D. Terris: *J. Magn. Soc. Japan*, 20(Suppl. S1), 297 (1996).
- 6) K. Onodera *et al.*: *Electron Lett.*, 30, 1954 (1994).
- 7) たとえば, P. M. Oppeneer, V. N. Antonov, A. N. Yaresko, A. Ya. Perlov, T. Kraft, and H. Eschrig: *J. Magn. Soc. Japan*, 20(Suppl. S1), 41 (1996).
- 8) 片山利一, 鈴木義茂: 日本応用磁気学会誌, 17, 857 (1993).
- 9) R. Pittini, J. Schoenes, O. Vogt, and P. Wachter: *Phys. Rev. Lett.*, 77, 994 (1996).
- 10) E. Betzig, J. K. Trautmann, R. Wolfe, E. M. Gyorgy, P. L. Finn, M. H. Kryder, and C. H. Chang: *Appl. Phys. Lett.*, 61, 142 (1992).

- 11) 佐藤勝昭, 戸谷 聡, 光岡靖幸, 中島邦雄, 河村紀一: 第 20 回日本応用磁気学会学術講演概要集, 23aE3, 413 (1996).
- 12) W. Hübner and K.-H. Bennemann: *Phys. Rev. B*, 40, 5973 (1989).
- 13) Th. Rasing, M. Groot Koerkamp, and B. Koopmans: *J. Appl. Phys.*, 79, 6181 (1996).
- 14) Th. Rasing: *J. Magn. Soc. Japan*, 20 (Suppl. S1), 13 (1996).
- 15) U. Pustogowa, W. Hübner, and K.-H. Bennemann: *Phys. Rev. B*, 49, 10031 (1994).
- 16) U. Pustogowa, T. A. Luce, W. Hübner, and K. H. Bennemann: *J. Appl. Phys.*, 79, 6177 (1996).
- 17) K. H. Bennemann and W. Hübner: *J. Magn. Soc. Japan*, 20 (Suppl. S1), 19 (1996).
- 18) Ru-Pin Pan, H. D. Wei, and Y. R. Shen: *Phys. Rev. B*, 39, 1229 (1989).
- 19) Th. Rasing: *Nonlinear Magneto-Optics for Magnetic Thin Films: Notions and Perspectives of Nonlinear Optics*, ed. by O. Keller (World Scientific, Singapore, 1996) 339-369. Table 1 はこの文献に従う。文献 18 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。
- 20) W. Hübner: *Phys. Rev. B*, 42, 11553 (1990).
- 21) O. A. Aktsipetrov, O. V. Braginskii, and D. A. Esikov: *J. Quantum Electron.*, 20, 259 (1990).
- 22) J. Reif, J. C. Zink, C. M. Schneider, and J. Kirschner: *Phys. Rev. Lett.*, 67, 2878 (1991).
- 23) G. Spierings, V. Koutsos, H. A. Wierenga, M. W. J. Prins, D. Abraham, and Th. Rasing: *J. Magn. Magn. Mat.*, 121, 109 (1993).
- 24) J. Reif, C. Rau, and E. Matthias: *Phys. Rev. Lett.*, 71, 1931 (1993).
- 25) J. E. Ortega, F. J. Himpel, G. J. Mankey, and R. F. Willis: *Phys. Rev. B*, 47, 1540 (1993).
- 26) M. T. Johnson, S. T. Purcell, N. W. E. McGee, R. Coehorn, J. van de Stegge, and W. Hoving: *Phys. Rev. Lett.*, 68, 2688 (1992).
- 27) S. Krompiewski, F. Süß, B. Zeller, and U. Krey: *J. Magn. Magn. Mat.*, 148, 198 (1995).
- 28) A. Kirilyuk, V. Kirilyuk, Th. Rasing, V. V. Pavlov, and R. V. Pisarev: *J. Magn. Soc. Japan*, 20(Suppl. S1), 361 (1996).

(1997 年 1 月 10 日受理)



佐藤勝昭 さとう かつあき

昭 39 京都大学工学部電気工学科卒業,  
昭 41 同大学院工学研究科修士課程修了,  
同年 日本放送協会入局, 昭 43 同放送  
科学基礎研究所, 昭 59 東京農工大学工  
学部助教授, 平 1 同教授, 現在に至る。  
専門 磁気光学 (工博)