

非線形磁気光学効果による[Fe(xML)/Au(xML)]人工格子界面の評価

Characterization of Interfaces in [Fe(xML)/Au(xML)] Superlattices by Means of the Nonlinear Magneto-optical Effect

児玉彰弘・宮本大成・三谷誠司*・高梨弘毅*・藤森啓安*・佐藤勝昭

東京農工大学工学部、東京都小金井市中町 2-24-16(〒184-8588)

*東北大学金属材料研究所、宮城県仙台市青葉区片平 2-1-1(〒980-8577)

A. Kodama, M. Miyamoto, S. Mitani, K. Takanashi, H. Fujimori and K. Sato

Faculty of Technology, Tokyo University of Agriculture and Technology, 2-24-16 Naka-cho, Koganei-shi, Tokyo 184-8588

*Institution for Materials Research, Tohoku University, 2-1-1 Katahira, Aoba-ku, Sendai 980-8577

(1999年10月27日受理、2000年1月25日採録)

The magnetic second-harmonic generation (MSHG), one of nonlinear magneto-optical effects, was measured by using a Ti-sapphire laser ($\lambda = 810 \text{ nm}$) combined with filters, a polarizer, an analyzer, a detector and a photon-counting apparatus. The polar plot of the azimuthal dependence of the MSHG from a [Fe(3.75ML)/Au(3.75ML)] superlattice showed a four fold symmetry pattern. A reversal of the magnetic field caused reflection of the azimuthal patterns with respect to a certain axis. Nonlinear magneto-optical Kerr rotation as large as 31.1° was observed in [Fe(1.75ML)/Au(1.75ML)] for the S-polarization incidence. The magnetic contribution to the azimuthal pattern was explained by symmetry analysis, taking into account the surface non-magnetic (electric dipole), bulk non-magnetic (electric quadrupole) and surface magnetic (electric dipole) contributions.

Key words: nonlinear magneto-optical effect, second-harmonic generation, azimuthal pattern, Fe/Au superlattice, surface, interface, electric quadrupole

1. はじめに

非線形磁気光学効果は、物質の対称性の破れに敏感であるため表面や界面の磁性を観察する手段として有効で、人工格子や超薄膜の研究に大きな貢献をすることが期待されている¹⁾。磁化誘起第二高調波発生(MSHG)が大きな磁気応答を示すことはかなり以前から理論的に予言されていた^{2,3)}。その後、実験的に確認がなされ、線形磁気光学効果には見られないような大きな非線形カー回転角(例えば、FeCr膜で17°に達する⁴⁾)や、第2高調波(SHG)光強度の明瞭な結晶方位依存性(エピタキシャルカーネット薄膜⁵⁾)が見出され、さらには、非線形磁気光学効果を用いた顕微鏡観察により線形では

見られない新たな磁区構造が報告されている⁶⁾。

我々はこれまでMgO基板上にエピタキシャル成長したFe/Au人工格子の線形⁷⁾および非線形磁気光学効果による研究を行ってきた。我々は、ナイメーヘン大学と共同で[Fe(1.5ML)/Au(1.5ML)]人工格子のMSHGを測定し、SHG強度の結晶方位角依存性に明瞭な4回対称が見られることを発見し理論的に解析した⁸⁾。最近、我々は独自に非線形磁気光学測定装置を立ち上げ、MgO基板上にエピタキシャル成長した[Fe(xML)/Au(xML)]人工格子についてxを1から4まで変化した試料のMSHGの結晶方位角依存性、および、非線形カー回転角を測定した。この結果につき、結晶のバルクおよび表面に関する対称性および磁気対称性に関する解析から導かれた理論式を用いて考察を行った。

2. 実験方法

Fig. 1に非線形磁気光学測定装置の概略を図示した。光源は、波長810 nm、パルス幅150 fs、繰り返し80 MHz、パワー600 mWのモードロックTiサファイアレーザーで、ポンプ光源としてはダイオードポンプ固体レーザーの2倍波(530 nm, CW 5 W)を用いた。図中の光チョッパーは、平均パワーを1/20に減衰させレーザー光による試料の損傷を抑えるためのものである。入射光の偏光方向を任意に変えるためベレーク補償子を用いた。光源に含まれる励起光成分、レンズや偏光子からのSH光成分をカットするため、試料前に色フィルタ(R65)を置いた。レーザー光は、レンズにより約50 μm 径のスポットとして試料上に集光される。このときのピークパワー密度は約0.5 GW/cm^2 である。試料への入射角は、45°に固定されている。電磁石は縦カー配置で設置した。磁界の強さは最大3 kOeである。面内での方位角依存性を調べるため、モータードライブの回転台に試料を取り付け、コンピュータ制御で回転させた。1次光である810 nmの成分をカットするため色フィルタ(BG39)2枚を用いた。SH信号は光電子増倍管で検出し、フotonカウンティング法で計測した。測定は室温である。

3. 測定試料

本研究で測定したFe/Au人工格子は、東北大学金属材料研究所で作製されたものである。作製方法はすでに報告したように、超高真空蒸着法である⁷⁾。基板としてMgO(100)を用い、1 nm厚のFeシート層を堆積した上にAuパッファ層を200 °Cで50 nm成長した後500 °Cで30分~1時間アニールした。[Fe(xML)/Au(xML)]人工格子は、70 °Cにおいて交互蒸着法で作製された。Fe, Auの層厚は、単原子層(ML: mono layer)の整数倍(x=1, 4)、および、非整数倍(x=1.25, 1.5, 1.75, 2.25, 2.5, 2.75, 3.25, 3.5, 3.75)とした。とくに、非整数倍の層厚を

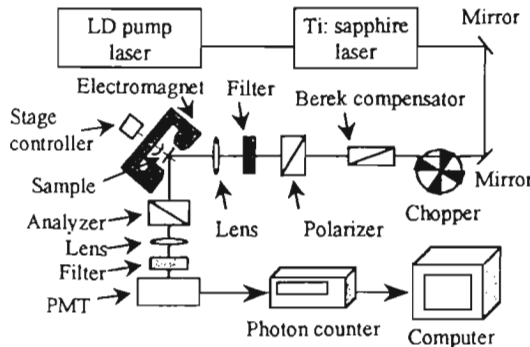


Fig. 1 Experimental setup

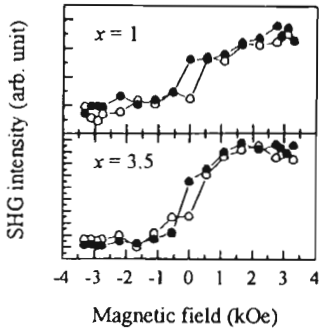


Fig. 2 Magnetic field dependence of SHG intensity for [Fe(xML)/Au(xML)] superlattices.

もって積層された試料は、FeとAuの混じった端数層が存在すること、長周期の超構造をもつことにより、整数層人工格子とは異なる非線形磁気光学応答が期待できる。

4. 結果

4.1 磁気特性

Fe/Au人工格子の磁気ヒステリシス曲線をMSHGを用いて測定した。典型例としてFig. 2に $x=1$ および $x=3.5$ の場合についてSHG強度の磁場依存性を示す。 $x=1$ のMSHGヒステリシスは、3kOeで飽和を示さなかったが、 $x=3.5$ のMSHG強度は、 ± 1 kOe以上の磁界で飽和した。これは、 $x=1 \sim 2$ に対してFe/Au人工格子の容易磁化方向は垂直であることが知られており⁹⁾、今回用いた電磁石の最大磁界3kOeでは面内磁化は飽和せずマイナーループを示しているのに対し、 $x=3.5$ のFe/Au人工格子は面内に容易軸を持ち3kOeで十分磁氣的に飽和したものと考えられる。層厚が2MLより小さな試料を磁気飽和させてMSHGを測定する実験については今後の課題としたい。

4.2 検光子回転角依存性

P偏光を入射した場合のSH信号の検光子回転角依存性を調べた。Fig. 3は、 $x=1$ および $x=3.5$ についての測定結果である。白丸と黒丸は正負の磁界に対するプロットである。SH信号は正弦波的な角度依存性を示し、磁界の反転により曲線は左右にシフトする。実際はこれを正弦波関数にフィッティングして得られた計算結果である。この結果から、正負の磁界により得られたシフト量を求め、得られた量の半分から非線形カー一回転角を見積もった。 $x=1$ では 2.74° 、

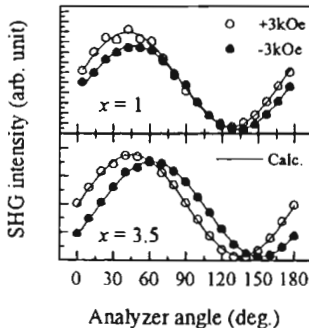


Fig. 3 Analyzer angle dependence of MSHG intensity for [Fe(xML)/Au(xML)] superlattices.

$x=3.5$ では 8.13° であった。S偏光入射についても同様に測定したところ、P偏光入射に比べ大きな非線形カー一回転角が観測され、 $x=1.75$ で最大 31.1° の非線形カー一回転角が得られた。

非線形感受率テンソルの理論¹⁰⁾によれば、非線形カー一回転角は磁化反転に対して奇関数であるテンソル要素と偶関数である要素との比で決まるが、試料面内電界成分のみをもつS偏光入射に対し試料面に垂直および平行な電界をもつP偏光入射では、磁性に寄与しない偶関数要素が多くなるため、カー一回転角が小さくなったものと考えられる。

非線形カー一回転角は、試料面内の方位角に依存する。Fig. 3では、回転角が最大となる試料方位において得られた検光子角依存性のみを示したが、実際にはFig. 4に示すように、非線形カー一回転角 Q_k^0 の大きさは結晶方位に大きく依存する。また、 Q_k^0 の方位依存性は試料により異なり、 $x=3.5$ では明確な周期性を示すのに対し、 x を小さくするにつれその変化が小さくなる傾向が見られた。これは、 $x=2.5$ 以下の非整数試料ではFeAu混合層の比率が大きいため、 Q_k^0 の面内方位依存性に寄与する界面の対称性が乱れ、異方性が均一になって現れているのではないかと考えられる。また、 $x < 2$ では垂直磁気異方性のため面内の磁気飽和が不十分であることも一因であろう。この点は今後の実験で明らかにしたい。

4.3 方位角依存性

いくつかの入射・出射偏光の組み合わせに対して、SH信号強度の方位角依存性を試料台を回転させて測定した。(以後、入射偏光をP(S)偏光、出射SH光をP(S)偏光とした場合をP(S)_{in}-P(S)_{out}配置等と称する。)Fig. 5には、P_{in}-P_{out}配置におけるMSHGの方位角依存性の典型例として $x=1, 1.25, 2.25, 2.75, 3.5, 3.75$ のデータを示した。白丸と黒丸は磁場強度 ± 3 kOeに対する測定点である。実際は5.考察に後述する理論式を使ってフィットさせた計算結果である。

$x=1$ の結晶方位角依存性は、明確な4回対称パターンを示したが、磁界による変化はほとんど見られなかった。これに対して、 $x=3.75$ のSHGの信号応答には、はっきりとした4回対称のパターンが現れ、正負の磁界によりパターンが約 45° 回転する様子が見られた。 $x=4$ においても、 3.75 と同様にパターンが得られたが、この試料は作製後2年以上経過しているため、膜質の損傷が大きくノイズ大きいため図には示していない。層厚 x を小さくしていくにつれ、方位角依存性は小さくなり、磁界反転によるパターンの回転も小さくなった。S_{in}-P_{out}配置の結果においても同様な傾向が得られた。

$x=1$ 、および、 $x > 2.5$ の試料においては4回対称の方位角依存性が

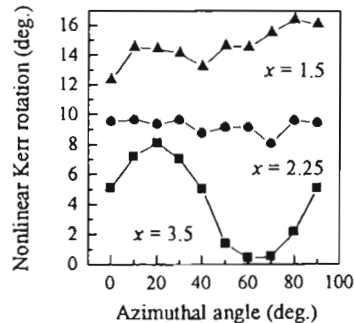


Fig. 4 Azimuthal angle dependence of nonlinear Kerr rotation for [Fe(xML)/Au(xML)] superlattices.

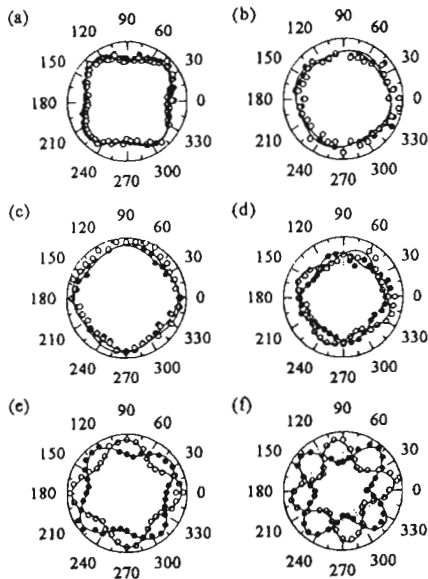


Fig. 5 Polar plots of MSHG intensity for $[\text{Fe}(x\text{ML})/\text{Au}(x\text{ML})]$ superlattices: (a) $x = 1$, (b) $x = 1.25$, (c) $x = 2.25$, (d) $x = 2.75$, (e) $x = 3.5$, (f) $x = 3.75$. Input-output polarization combination is Pin-Pout configuration. The applied magnetic field is 3kOe.

見られ、これらの試料では表面まで基板の対称性を保ってエピタキシャル成長が実現していることが確認された。125Å×25の試料では方位依存性、磁界依存性とも小さくなったが、前節で述べたと同様にFeAu混合層の比率が大きいため、界面の対称性が乱れ均一になったこと、面内の磁気飽和が不十分であることが原因と考えられる。

5. 考察

人工格子のMSHGの結晶方位角依存性がこれほどはっきりした4回対称性を示した例は我々の報告以外ない。SHGの方位角依存性にこのようなはっきりとした4回対称性が現れることは、実際に用いた人工格子膜がMgO基板上に良好にエピタキシャル成長しており、面内方向においても非常に結晶性がよいことを示している。試料の面内方向の規則性は成長中に高速電子線回折(RHEED)で確認されているが、SHGの異方性からも裏付けられた。

我々は、結晶および表面の対称性に基づく2次の電気感受率テンソルの解析を行い、方位角依存性の理論式を導いた。理論の詳細は別途報告する予定である。Feバルク結晶、Auバルク結晶、Fe/Au界面のLi₁₀構造¹¹⁾はすべて中心対称性を持つので、電気双極子の範囲では、3階のテンソル要素はゼロとなり、SHGは許容されない。表面での非磁性のSHGも鏡映面を持つ限り、4回対称のパターンを期待できない。磁化による項は4階のテンソルが関与するので4

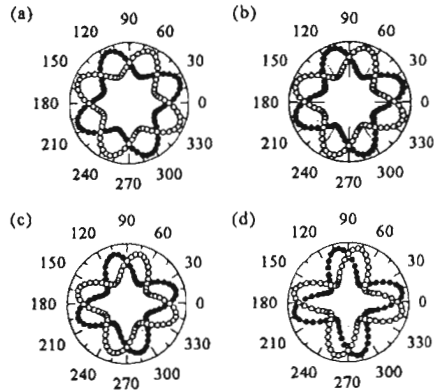


Fig. 6 Calculated azimuthal patterns for four sets of parameters: (a) $B = 0, C = 0.85$, (b) $B = 0.25, C = 0.85$, (c) $B = 0.25, C = 0.85$, (d) $B = 0.85, C = 0.85$.

回対称が得られる。しかし、これだけでは、磁界反転によるパターンの回転は45°のみとなり、Fig. 5(d)に示されるような45°以下の回転を説明できない。このためには、バルクにおける電界の急激な勾配からの電気四重極子の寄与(4階のテンソル)も考慮することが必要であることがわかった。

この解析の結果、 $[\text{Fe}(x\text{ML})/\text{Au}(x\text{ML})]$ 人工格子の方位角依存性は、Table 1に示されるように、Aで表される定数項、Bを係数とする余弦項、および、Cを係数とする正弦項の線形結合の絶対値の二乗で表される理論式にまとめられることがわかった。A, B, Cのパラメータは3階および4階の電気感受率テンソルの線形結合で表され、その値は偏光の配置ごとに一般に異なった値をもつ。表面磁性による A_{pp} と A_{ps} の項は、電気双極子から生じるSHGであり結晶方位角に対して一定の値を示し、4回対称パターンは期待できない。 B_{pp} や B_{sp} などのバルク非磁性項は、四重極子項であり、反転対称を持つバルク媒体においても有限なSHGの値が期待される。 C_{pp} や C_{sp} の表面磁化誘起の項は、磁化の存在による表面の対称性の低下から導かれる項である。

Fig. 6は、Pin-Pout配置の理論式を用い、定数項Aを5、表面磁性項Cを0.85とし、バルク非磁性項BをゼロからB=0.85まで変化させたときに現れる方位角依存パターンを計算した結果である。非磁性項Bをゼロにした場合、正負の磁性項によって4回対称パターンが45°の回転を示す。これは、Fig. 5(f)の $x=3.75$ 人工格子の方位角依存性に相当し、 $x=3.75$ ではバルクからの寄与が小さいことがわかる。一方、 B_{pp} の値が大きくなるにつれ、対称パターンの回転は小さくなる。これは、 $x \leq 2.5$ の方位角依存性に相当し、この結果から、 $x \leq 2.5$ では磁性項 C_{pp} の効果が小さくなったため相対的に B_{pp} の四重極子項が大きく寄与していることがわかる。

Fig. 7の上段は、MSHGの方位角依存性の実験結果に対しTable 1の理論式を用いてフィッティングを行い求めたパラメータB, Cをx

Table 1 Calculated azimuthal angle dependence of SHG and MSHG signals.

Input-output polarization	Surface, nonmagnetic	Bulk, nonmagnetic	Surface, magnetization-induced	Sum
$S_{in} \cdot S_{out}$	0	$ C_{ss} \sin 4\phi ^2$	$ \pm A_{ss} \pm B_{ss} \cos 4\phi ^2$	$ \pm A_{ss} \pm B_{ss} \cos 4\phi + C_{ss} \sin 4\phi ^2$
$S_{in} \cdot P_{out}$	$ A_{sp} ^2$	$ A_{sp} + B_{sp} \cos 4\phi ^2$	$ \pm C_{sp} \sin 4\phi ^2$	$ A_{sp} + B_{sp} \cos 4\phi \pm C_{sp} \sin 4\phi ^2$
$P_{in} \cdot S_{out}$	0	$ C_{ps} \sin 4\phi ^2$	$ \pm A_{ps} \pm B_{ps} \cos 4\phi ^2$	$ \pm A_{ps} \pm B_{ps} \cos 4\phi + C_{ps} \sin 4\phi ^2$
$P_{in} \cdot P_{out}$	$ A_{pp} ^2$	$ A_{pp} + B_{pp} \cos 4\phi ^2$	$ \pm C_{pp} \sin 4\phi ^2$	$ A_{pp} + B_{pp} \cos 4\phi \pm C_{pp} \sin 4\phi ^2$

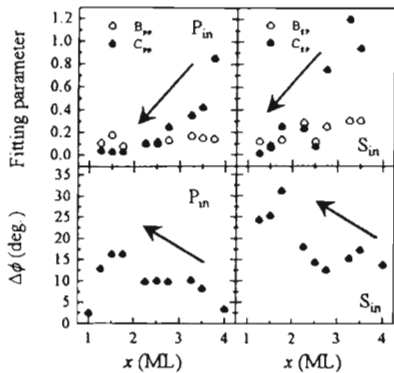


Fig. 7 Fitting parameter from theoretical analysis and nonlinear Kerr rotation $\Delta\phi$ for $[\text{Fe}(x\text{ML})/\text{Au}(x\text{ML})]$ superlattices.

($1 \leq x \leq 3.75$)に対してプロットしたものである。左図はPin-Pout 右図はSin-Pout 配置のデータである。また下段には、比較のためPin およびSinの非線形カー一回転角の実測値をプロットした。SHG強度はそれぞれの試料の表面状態により異なるため、データは $A=5$ で規格化し、バルク非磁性項Bと表面磁性項Cを求めた。図から、 x の変化に対して非磁性項Bはほとんど変化を示さないので、磁性項Cは x の減少とともに低下していく傾向が見られた。

一方、非線形カー一回転角は、 x が減少するにつれ増加傾向を示した。このことから、非線形カー一回転角の大きさをPin-Pout配置による理論式から考察する場合、周期的な成分を持つ磁性項 C_{pp} のみでなく等方性の成分を持つ磁性項 A_{ps} も考慮に入れる必要があることがわかった。

Fig. 8は、 $x=1.25$ の人工格子において入射偏光をPに固定し、さまざまな検光子角で測定したSH強度の方位角依存性である。(c)は検光子方位がP偏光の場合である。(a)(b)は検光子方位をPから $+60^\circ, +30^\circ$ だけ回転させて測定したMSHG、(d)(e)は、 $-30^\circ, -60^\circ$ 回転させたときのものである。磁界を変化させたときにMSHG強度が方位によらず一様に変化していることがわかり、 $x=1.25$ 人工格子の場合、等方的な磁性項が寄与していることが確かめられた。

6. まとめ

今回我々は、非線形磁気光学測定装置を立ち上げ、 $[\text{Fe}(x\text{ML})/\text{Au}(x\text{ML})]$ 人工格子の非線形磁気光学測定を行った。そして、その結果以下のことを考察した。

(1) 非線形カー一回転角は、線形カー一回転角(約 0.2°)に比べ数十倍から数百倍大きく、 $x=1.75$ の場合Sinにおいて 31.1° にも達することが発見された。

(2) $x=1$ および $2.75 \leq x \leq 3.75$ におけるSH強度の方位角依存性は、以前報告した $x=1.5$ の場合と同様、明瞭な4回対称パターンを示すことがわかった。この結果、 $2.75 \leq x \leq 3.75$ の範囲では、Fe, Au混合層を含むにもかかわらず試料表面まで基板の対称性を保ちエピタキシャル成長していることがわかった。

(3) 方位角依存性の測定結果は、対称性を考慮した2次の電気感受率テンソルの解析から導いた理論式で記述できることが明らかになった。パラメータを変化させたシミュレーション結果から4回対称パターンと磁化反転に伴うパターンの回転は、四重極子項を考

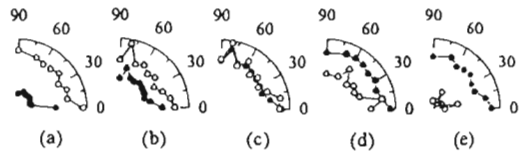


Fig. 8 Output polarization dependence of the azimuthal angle for an $[\text{Fe}(1.25\text{ML})/\text{Au}(1.25\text{ML})]$ superlattice: (a) $P_{\text{out}}=60^\circ$, (b) $P_{\text{out}}=30^\circ$, (c) Pin-Pout, (d) $P_{\text{out}}=30^\circ$, (e) $P_{\text{out}}=60^\circ$.

慮したバルク非磁性項Bと表面対称性の低下から導かれる表面磁化誘起の項Cを考慮して説明できることが明らかになった。

(4) 非線形カー一回転角には、周期性をもつ磁性項と等方性の成分を持つ磁性項の両方の寄与があることがわかった。

(5) x が1から4まで変化したとき、 x の増加とともに表面磁性にもとづく方位依存性の寄与が、バルクの電気四重極子からの方位依存性の寄与に比し相対的に大きくなることが明らかになった。

今回の装置系では磁界が弱いため、垂直磁化膜である $1 \leq x \leq 2$ の人工格子を縦カー配置で磁気飽和させることができなかった。今後、強い磁場を印加できるよう装置を改良すること、極カー配置での測定を可能にすることが望まれる。また、方位角依存性で求めた理論式のパラメータの解析から感受率テンソルを求めること、また、これらから理論的に非線形カー一回転角を求めることなどが課題である。

さらに、今後の課題としてMSHGの波長依存性の測定、フェムト秒の時間分解測定も期待される。実用的には、非線形磁気光学効果は表面の結晶性に敏感なので、成膜モニターとしての利用が可能であると期待される。さらには、近接場顕微鏡との組み合わせにより微小領域の新たな磁性観測技術の発展に貢献すると予想している。

文 献

- 1) 佐藤勝昭：日本応用磁気学会誌, 21, 879 (1997)
- 2) Ru-Pin Pan, H.D. Wei, Y.R. Shen: *Phys. Rev. B* 39, 1129 (1989).
- 3) W. Hübner, K.H. Bennemann: *Phys. Rev. B* 40, 5973 (1989).
- 4) Th. Rasing, M. Groot Koerkamp, and B. Koopmans: *J. Appl. Phys.*, 79, 6181 (1996).
- 5) V. V. Pavlov, R. V. Pisarev, A. Kirilyuk, and Th. Rasing: *Phys. Rev. Lett.*, 78, 2004 (1997).
- 6) V. Kirilyuk, A. Kirilyuk, and Th. Rasing: *Appl. Phys. Lett.*, 70, 2306 (1997).
- 7) K. Sato, E. Takeda, M. Akita, M. Yamaguchi, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori, Y. Suzuki: *J. Appl. Phys.* 86, No.9 (1999)
- 8) K. Sato, S. Mitani, K. Takanashi, H. Fujimori, A. Kirilyuk, A. Petukhov and Th. Rasing: *J. Magn. Soc. Jpn.*, 23, 352 (1999).
- 9) 氷見清和, 高梨弘毅, 三谷誠司, 藤森啓安: 日本応用磁気学会誌, 22, 585 (1998).
- 10) U. Pustogova, W. Hübner and K.H. Bennemann: *Phys. Rev. B* 49, 10031 (1994).
- 11) K. Takanashi, S. Mitani, M. Sato, H. Fujimori, H. Nakajima and A. Osawa: *Appl. Phys. Lett.*, 67, 1016 (1995).