

エピタキシャル Fe/Au 人工
格子の非線形磁気光学効果

東京農工大学工学部 佐藤勝昭・宮本大成・児玉彰弘
 東北大学金属材料研究所 高梨弘毅・藤森啓安
 University of Nijmegen A. Petukhov・Th. Rasing

§1 はじめに

最近、磁性体の評価法として非線形磁気光学効果が注目されている¹⁾。非線形光学効果というのは、強い光を入射したときに、電界の強度のべき乗に比例するような分極が生じることにより起きる光学現象の総称で、第2高調波発生(SHG)、第3高調波発生(THG)のほか、周波数の異なる2つの波が入射したときに起きる和周波混合(SFG)、差周波混合(DFG)などのパラメトリック過程、直流的な分極を生じる光整流などが知られている²⁾。このうち、SHGに着目すると、入射光の電界ベクトルを E_j , E_k とすると、2次の非線形分極 $P_i^{(2)}$ は電気双極子近似の範囲で、 $P_i^{(2)} = \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k$ と表わされるが、FeやAuなど反転対称をもつ結晶においては、3階の電気感受率テンソル $\chi_{ijk}^{(2)}$ は0となり、SHGは生じない。しかし、反転対称をもつ結晶であっても表面や界面では、対称性が破れるため $\chi_{ijk}^{(2)}$ は有限な値をもち、表面や界面にもとづくSHGが生じる。したがって、SHGは表面・界面に特有の物性を調べるための有用な手段となる。

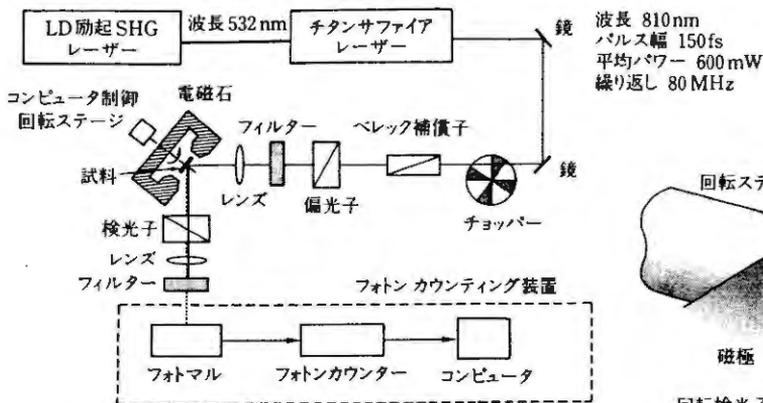
磁化 M をもつ物質において、磁化の存在そのものは対称性の破れにつながらない。なぜなら、 M は軸性ベクトルなので反転対称によっても向きを変えないからである。それでも、磁化が存在すると表面の対称性が低下するためテンソル成分にゼロでない要素が現れる。磁性体に強い光を入射したときに射出される第2高調波(SH)光が受ける磁気光学的応答を磁気誘起第2高調波発生(MSHG)と呼んでいる。

また、直線偏光を入射したとき、磁化に応じて

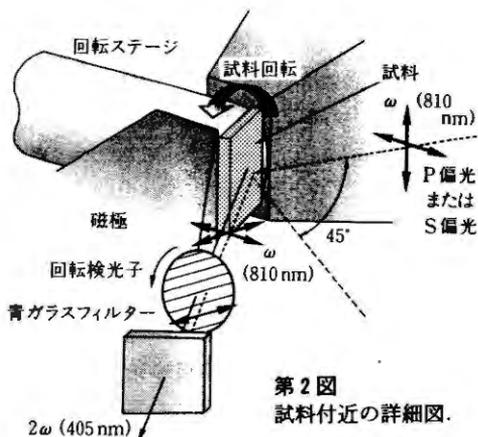
出射SH光の偏光が入射偏光の方位から回転する効果が起きるが、これを非線形カー効果(NOMOKE)と呼ぶ。非線形カー効果は、線形カー効果に比べ大きな値をもつ。また、縦カー配置における、面内磁化をもつ磁性体の磁気光学効果は、線形の場合には入射角が0に近づくとき減少するのに対し、非線形の場合には増加し、0付近では非常に大きな値になることが知られている。

さらに、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おり反強磁性体観察などに用いられている³⁾。非線形磁気光学効果一般については、筆者の解説を参照されたい⁴⁾。

筆者らは、MgO(100)単結晶基板上にエピタキシャル成長した $[\text{Fe}(x\text{ML})/\text{Au}(x\text{ML})]_N$ 人工格子について線形の磁気光学効果の測定を行ってきた。平衡状態図ではFeとAuは非固溶である。したがってFeAuという合金は天然には存在しない。しかし、原子層制御によってlayer-by-layerに成長した場合には、 $L1_0$ 型の正方晶の規則合金が形成されることが高梨らにより明らかにされている⁵⁾。また、FeとAuを x 原子層ずつ積層した場合にも、界面にこの合金層を形成し全体として規則的な格子を作ることが明らかになっている。筆者らは、これまでに、一連の人工格子について(線形の)磁気光学スペクトルを測定し、この人工格子の電子構造は単なるFe, Auの積層としては解釈できず、特有の電子構造を持つとして解釈されるべきであるということを示してきた⁶⁾。この考えは第1原理バンド計算から求められた磁



第1図 非線形磁気光学効果測定系.



第2図 試料付近の詳細図.

気光学スペクトルからも支持された⁷⁾。

最近、筆者らは、さまざまな x 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を見いだした。また、このパターンの形状は、入射光と出射光の偏光の組合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⁸⁾。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 $x=1.75$ ML の場合には 31° に達することがわかった。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⁹⁾。金属人工格子の非線形磁気光学効果に関してこのような方位依存性を見いだしたのはわれわれの研究が初めてである。

本稿では、これらの実験結果を非線形電気感受率テンソルの結晶対称性に基づいて解析する。

§2 実験方法

本研究に用いた装置の概略を第1図に示す。使用した光源はモードロックパルス Ti-サファイアレーザー (波長 810 nm, 繰り返し 80 MHz, パル

ス幅 150 fs) で、レンズで集光したときのピーク光密度は試料面上で 0.5 GW/cm^2 に達する。SH 光は色ガラスフィルターで選択されフォトンカウンティング法で測定された。試料付近の様子を第2図に掲げる。磁界は縦カー配置で試料面に印加された。試料は、コンピュータ制御の回転ステージに取り付けられた。また、検光子もコンピュータ制御で回転できるようにした。

使用した試料は、東北大学において MBE 法で作製されたもので、作製法の詳細はすでに報告のある通りである¹⁰⁾。第3図に示すように基板として MgO(100) を用い、1 nm 厚の Fe シード層を堆積した上に Au パップァ層を 200°C で 50 nm 成長した後 500°C で 30 分~1 時間アニールしたものを下地として、 $[\text{Fe}(x\text{ML})/\text{Au}(x\text{ML})]$ 人工格子を 70°C において交互蒸着法で作製した。Fe, Au の層厚は単原子層 (ML: mono layer) の整数倍 ($x=1, 2, 3, 4, 5, 6, 8, 10, 15$)、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。

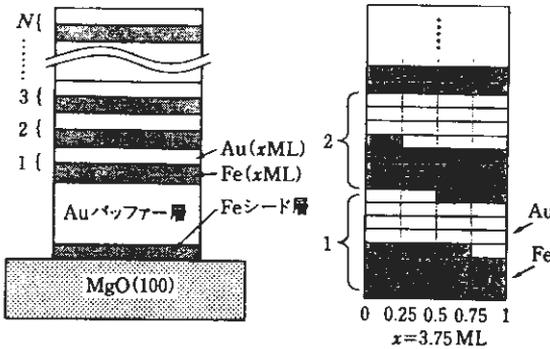
Fe/Au 人工格子の磁気ヒステリシス曲線を MSHG を用いて測定した。典型例として第4図に $x=1$ および 3.5 の場合について SHG 強度の磁場依存性を示す。 $x=1$ の MSHG ヒステリシスは、3 kOe で飽和を示さなかったが、 $x=3.5$ の MSHG

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¹¹⁾、今回用いた電磁石の最大磁界3 kOe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3 kOeで十分磁氣的に飽和したものと考えられる。層厚が2 ML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。

§3 実験結果

3.1 MSHGの方位角依存性

いくつかの入射-出射偏光の組合せに対して、試料台を回転させることによって、SH信号強度の方位角依存性を測定した。第5図は、 $x=3.75$ の人工格子にP偏光を入射したときの出射P偏光強度の方位角依存性である。(a)は入射光の波長(810 nm)において測定した反射光の方位角依存性である。当然のことながら、このパターンは等方的である。白丸と黒丸は、互いに反対方向の磁界を印加した場合の実験値である。磁化の反転

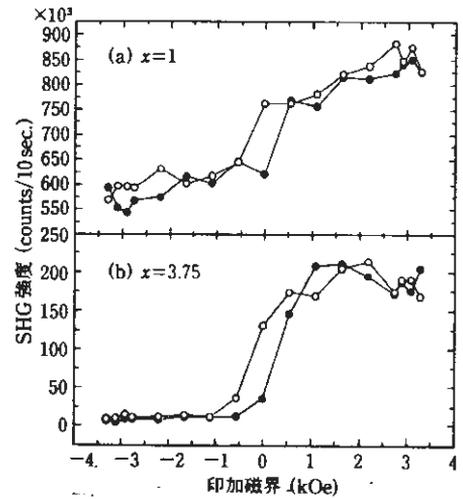


第3図 Fe/Au人工格子の構造。

に対して強度ほとんど変化しない。ところが、青色フィルターを用いて入射光の半分の波長(405 nm)を選択して観測したところ、SH光は(b)に示すように明瞭な4回対称の異方性を示し、磁化を反転するとパターンが回転した。

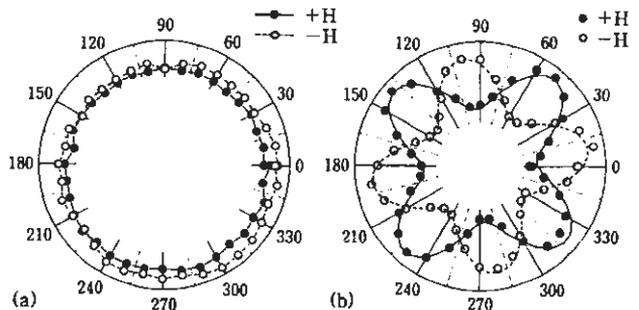
以前から、Fe/Cr, Co/Cuなど多くの人工格子において非線形磁気光学効果が研究されたが、この研究で見いだされたようなSH光強度の異方性は報告されていなかった。それは、これまでの研究で使われた試料はスパッタ法で作製された多結晶薄膜であったため等方性の応答しか示さなかったのに対し、この研究で使われた試料はMgO単結晶基板にエピタキシャル成長した人工格子薄膜であったため結晶の対称性を反映したものと考えられる。

第6図の白丸と黒丸は、入射・出射偏光の4つの組合せ($P_{in}-P_{out}$, $P_{in}-S_{out}$, $S_{in}-P_{out}$, $S_{in}-S_{out}$)に



第4図 第2高調波強度の磁気ヒステリシス。

第5図
信号強度の方位角依存性。
(a)線形, (b)非線形。



する $x=3.5$ の人工格子の SH 強度のパターンで、互いに反対方向の磁界を印加した場合の実験値である。 $P_{in}-P_{out}$ の場合が最も信号が強く、 $S_{in}-S_{out}$ の場合が最も弱い。 $P_{in}-S_{out}$, $S_{in}-P_{out}$ の信号強度はこれらの中間の値である。方位依存性は等方性の成分と異方性の成分に分けられ、 $P_{in}-P_{out}$ では等方性成分の寄与が大きく、四角い形状となるが、 $S_{in}-S_{out}$ では等方成分の寄与はほとんどない。

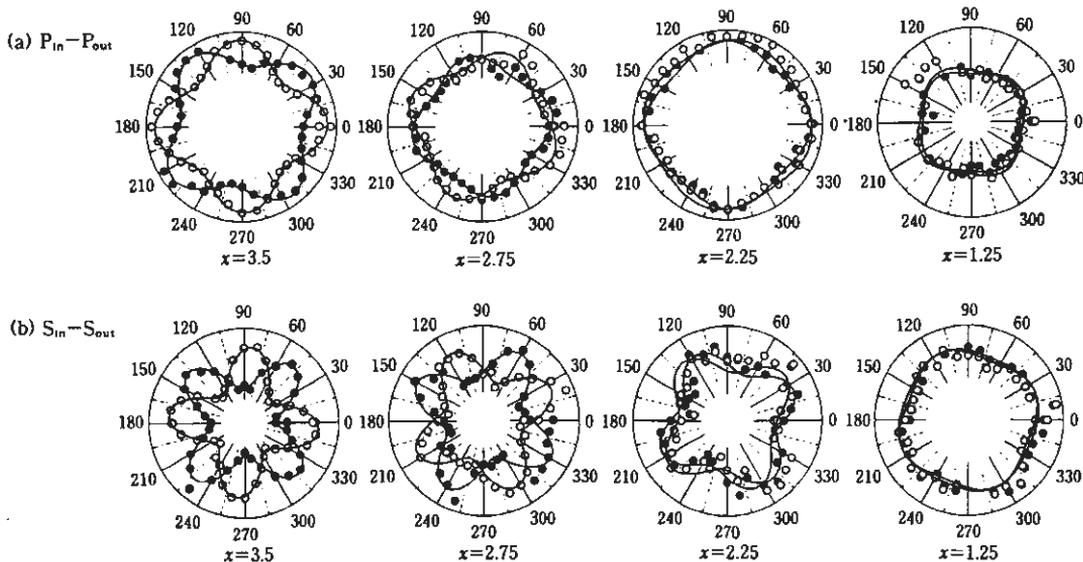
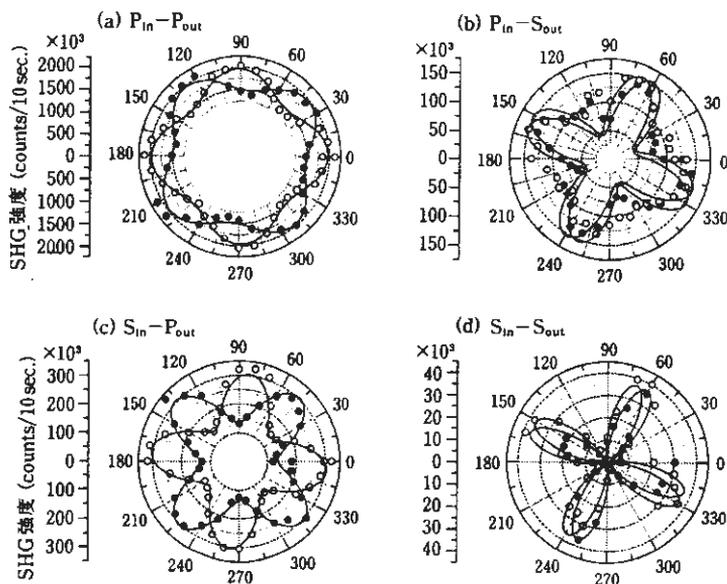
図中の実線は、理論解析の式を用いてフィットした結果で、詳細は §4 に述べる。

3.2 方位角依存性パターンの層厚依存性

$x=1$ と $x=4$ の間の非整数の層厚について、SH 強度の方位角パターンを測定した。そのうち $x=1.5, 2.25, 2.75, 3.5$ のデータを第 7 図に示した¹²⁾。白丸と黒丸は磁場強度 ± 3 kOe に対する測

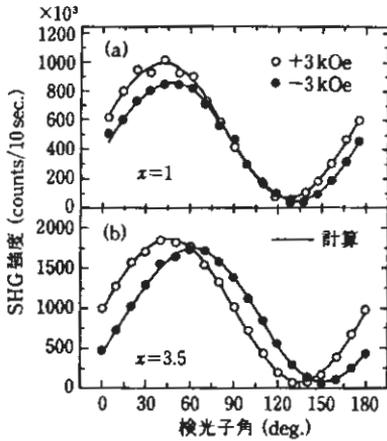
第 6 図

$x=3.5$ の人工格子における SHG 強度の方位角依存性。
(a) $P_{in}-P_{out}$, (b) $P_{in}-S_{out}$,
(c) $S_{in}-P_{out}$, (d) $S_{in}-S_{out}$.



第 7 図 方位角パターンの層厚依存性。

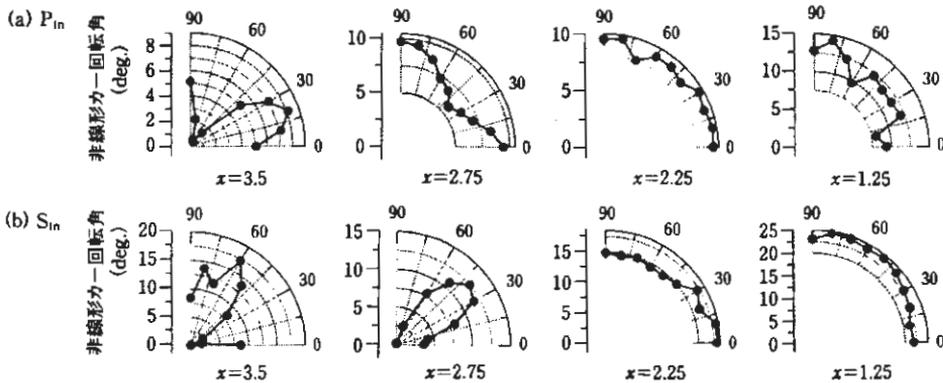
定点である。(a)は $P_{in}-P_{out}$, (b)は $S_{in}-P_{out}$ の場合のパターンである。図中の実線は§4に後述する理論式を使ってフィットさせた計算結果である。 $S_{in}-P_{out}$ の方が $P_{in}-P_{out}$ より明確な異方性が見ら



第8図 P_{in} の場合の検光子角度依存性。(a) $x=1$, (b) $x=3.5$ 。

し、磁界の反転により曲線は左右にシフトする。図の曲線は最もよく実験を再現する正弦関数である。正負の曲線の位相差の1/2が非線形カー回転角 $\varphi_K^{(2)}$ である。この図についていえば、 $x=1$ では、 $\varphi_K^{(2)}=2.74^\circ$, $x=3.5$ では $\varphi_K^{(2)}=8.13^\circ$ という値が読みとれる。

実際には、非線形カー回転角 $\varphi_K^{(2)}$ は入射面と試料の方位のなす角度に依存する。第9図は上に述べた方法で求められた回転角の方位角依存性である。図において、動径方向の目盛は非線形カー回転角[deg]である。極グラフの角度軸は、基板のはぼ(100)方位からの角度[deg]である。(a)はP偏光入射の場合、(b)はS偏光入射の場合である。非線形カー回転角の方位依存性は、 90° の周期をもち、基本的には4回対称であるが、試料により異なり $x=3.5$ では明瞭な異方性を示すのに対し、 x を小さくするにつれ等方性に近づく傾向が見られた。

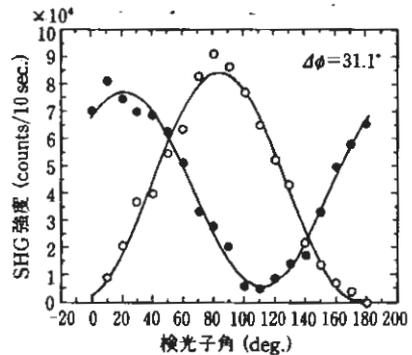


第9図 非線形カー回転角の方位角依存性。

れている。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。

3.3 非線形カー回転

第8図は、P偏光を入射した場合のFe/Au人工格子におけるSH信号の検光子回転角依存性のうち、 $x=1$ 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



第10図 $x=1.75$ の人工格子におけるS偏光入射の場合の非線形カー回転。

一連の測定で最も大きな非線形カー回転角を示したのは第10図に示す $\kappa=1.75$ の人工格子で、S偏光の場合に 31.1° に達することがわかった¹³⁾。Fe/Au人工格子の線形磁気カー回転はせいぜい 0.3° であるから⁶⁾、100倍にも達する。

§4 理論解析¹⁴⁾

4.1 非線形感受率

ここで、結晶および表面の対称性に基づく非線形電気感受率テンソルの解析を行う。バルクFeはbcc、バルクAuはfcc、 $L1_0$ のFe(1 ML)/Au(1 ML)人工構造はfetであるから、いずれも中心対称をもつ。したがって、いずれの場合も3階のテンソルは0となるので電気双極子起源のバルクSHGは存在しない。中心対称のある系でも、電気四重極子項を考えるとバルクからのSHGが生じる。

Fe/Au人工格子の最表面と膜内の界面からのMSHG応答への寄与に注目する。固体の性質は表面や界面において急峻に変化する。その結果、波動関数の非対称性に基づく2次の非線形応答が生じるとともに、原子間距離のオーダーの短距離における光の電界の急速な変動が生じる。このことは、微視的には表面における非局所的な遮蔽を伴う複雑な問題を提起する。しかし、光の波長はそのような微視的な尺度に比べ十分に長いので、MSHGの実験結果を説明するためには、第一近似としては表面や界面における電気双極子起源の3階の非線形感受率テンソル $\chi^{(2),S}$ を用いた解析をすればよい。

人工格子においては、最表面ばかりでなく多くの界面がSHGに寄与する。しかし、隣り合う2つの界面、 I_1 と I_2 (たとえばFe/Au界面とAu/Fe界面)は方位ベクトルが逆になるためSHGは強く打ち消し合う。すなわち、

$$\chi^{(2),I_1} \approx -\chi^{(2),I_2} \quad (1)$$

となる。ここに、 $\chi^{(2),I_1}$ 、 $\chi^{(2),I_2}$ はそれぞれ、界面 I_1 と界面 I_2 の非線形感受率である。しかし、上向き界面と下向き界面にわずかなアンバランスがあると、打ち消しが不完全となる場合がある。あるいは、両界面の光電界のわずかなずれがあると

界面の感受率の非対称部分が寄与する可能性がある。

人工格子の層の厚みは光の波長に比べると十分に小さいので、巨視的な平均電界と平均の非線形感受率を導入すると、試料内部は実効的なパラメータをもつ均質な媒質で置き換えられる。このような実効媒質近似のもとでMSHGの応答は、

(i) 最表面における電気双極子型の感受率 χ^S による分極

$$P_i^S(2\omega) = \chi_{ij}^S E_j^{\text{eff}}(\omega) E_i^{\text{eff}}(\omega) \quad (2)$$

の寄与

(ii) 界面感受率の電気双極子型の感受率 $\chi^{1,d}$ に基づく分極

$$P_i^{1,d} = \chi_{ij}^{1,d} E_j^{\text{eff}}(\omega) E_i^{\text{eff}}(\omega) \quad (3)$$

の寄与、および、

(iii) 巨視的な実効電界の非局所性(電界の空間的変動)に基づく電気四重極子型の感受率による分極

$$P_i^{1,Q}(2\omega) = \chi_{ijkl}^{1,Q} E_j^{\text{eff}}(\omega) \nabla_l E_k^{\text{eff}}(\omega) \quad (4)$$

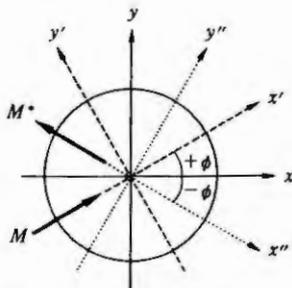
からの寄与からなる。

4.1 表面・界面からの寄与

この節では、上に述べ第1近似として(i)および(ii)の寄与、すなわち、電気双極子型の項にのみ注目し、(iii)の非局所性の電界からの項は§4.2のバルクの項に含めて考えることにする。平面波の近似のもとで、 β (=p or s)偏光の基本波 $E_0^\beta(\omega)$ を入射したときの双極子型の非線形感受率にもとづくMSHG出力の α (=p or s)偏光成分 $E_{2\omega}^\alpha$ は、フレネル係数 $\tilde{F}_i^\alpha(2\omega)$ および $F_j^\beta(\omega)$ を用いて、

$$E_{2\omega}^{\alpha,\beta} = \sum_{ijk} \chi_{ijk} \tilde{F}_i^\alpha(2\omega) F_j^\beta(\omega) F_k^\beta(\omega) E_0^\beta(\omega)^2 \quad (5)$$

と表わされる。ここに、 χ_{ijk} は実験室座標系における最表面および界面に起因する全実効非線形感受率である。線形磁気光学効果は非線形光学応答に比し十分小さいので、フレネル係数に対する磁化の影響は無視することができ、フレネル係数は等方的で方位角 ϕ に対する依存性を持たない。したがって、MSHGの方位角および磁化に対する依存性は非線形感受率 $\chi_{ijk}(\phi, M)$ で決定される。双極子感受率の磁化依存性は弱いので磁化のべき関数として展開でき、



第11図 実験室系と試料系の座標関係.

$$\chi_{ijk}(M) = \chi_{ijk}(0) + \chi_{ijkl} M_L + \dots \quad (6)$$

と書ける. ここに χ は4階のテンソルである. $L = X, Y$ である. 大文字の添字は軸性ベクトルに対する添字を表わす. 以下では M について線形の近似のみを考え, 高次の項は無視する.

4.1.1 表面非磁性成分の寄与

表面界面においては中心対称が破れるが, $4mm$ の点群のもとで3階のテンソルは4回対称を与えることはない. 以下では簡単のために, χ_{ijk} の成分を ijk というように添字のみで表わすこととする. Shen によれば, $4mm$ において独立な要素は, $xxx = yzy, xxx = yyz, zxx = zyy, zzz$ の5つの要素のみである²⁾. さらに $ijk = ikj$ を考慮すると, テンソルは次の形をとる.

$$\chi_{ijk} = \begin{pmatrix} xxx & xyy & xzz & xyz & zxx & xxy \\ yxx & yyy & yzz & yyz & yzx & yxy \\ zxx & zyy & zzz & zyz & zzx & zxy \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & xxx & 0 \\ 0 & 0 & 0 & xxx & 0 & 0 \\ zxx & zxx & zzz & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (7)$$

方位角依存性の理論式を導く. 解析においては, 試料の回転を議論するために試料座標系 xyz と実験室座標系 $x'y'z'$ を第11図のように定義する. 試料を回転したときの方位角依存性は実験室系についての電気感受率テンソルへの変換を考慮しなければならない. 結晶座標系 xyz から実験室座標系 $x'y'z'$ への変換テンソル A_{ij} は次式で与えられる.

$$A_{ij} = \begin{bmatrix} \cos \varphi & \sin \varphi & 0 \\ -\sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix} \quad (8)$$

$S_{in}-S_{out}, P_{in}-S_{out}$ の場合は, 関与するすべてのテンソル要素が0である. したがって, 入射偏光が P, S いずれであっても出射 SHG には S 偏光 (y') 成分は現れない. これに対し $S_{in}-P_{out}$ の場合には,

$$\chi_{xyj}^{SP} = A_{xx} A_{y'x}^2 \chi_{xxx} + A_{xx} A_{y'y}^2 \chi_{xyy} = (\sin^2 \varphi + \cos^2 \varphi) \chi_{xxx} = \chi_{xxx}$$

が寄与するが, 一定値となり異方性をもたない. 一方, $P_{in}-P_{out}$ の場合には, $\chi_{x'x'}, \chi_{x'z'}, \chi_{zzz}$ のいずれもが寄与するが, 同様の計算により,

$$\chi_{x'x'}^{PP} = (\cos^2 \varphi + \sin^2 \varphi) \chi_{xxx} = \chi_{xxx},$$

$$\chi_{x'z'}^{PP} = (\cos^2 \varphi + \sin^2 \varphi) \chi_{xxx} = \chi_{xxx},$$

$$\chi_{zzz}^{PP} = \chi_{zzz}$$

となり, いずれも純粋に等方的で回転異方性をもたらさない. 第6図の(a)に示したような $P_{in}-P_{out}$ 応答には大きな等方性成分の寄与があるが, これは, $zzz, z // //, // // z$ のすべての成分が関与するからである. ここで $//$ は入射面に平行な成分(したがって x または z)を表わす. これに対して, 第6図(c)の $S_{in}-P_{out}$ 応答の等方性成分は小さいが, これは, $z // //$ 成分のみしか寄与しないからである. 第6図(b), (d)に示す $P_{in}-S_{out}, S_{in}-S_{out}$ における等方性成分は, §4.2 で述べる非局所性の項からの寄与である.

4.1.2 表面磁性依存成分の寄与

次に非線形感受率の表面磁性依存成分を求めよう. 3階のテンソル要素のうち空間的に $4mm$ の対称性を持ち, 面内に磁化をもつ系の磁気対称性の議論から, 磁化 M について奇関数となるものは $yyy, yxx, yzz, yxz = xxy, zyz = zzy$ の5要素のみである.

$$\chi_{ijk} = \begin{pmatrix} xxx & xyy & xzz & xyz & zxx & xxy \\ yxx & yyy & yzz & yyz & yzx & yxy \\ zxx & zyy & zzz & zyz & zzx & zxy \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & xxy \\ yxx & yyy & yzz & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & zzy & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (9)$$

縦磁気カー効果なので, 磁化 M は XY 面内にあり, (6)式に従って M で展開するとき, χ_{ijkl} テンソルの $ijk//$ 成分にのみ着目する. 結晶方位から見た場合 $//$ (磁界に平行な)成分は X, Y の作る面内

にあるから、 $L=X, Y$ である。対称性の考察から、結局 SHG に寄与する χ_{ijkl} テンソル成分は、つぎの 5 要素のみである。

$$\begin{aligned}xyxX &\equiv xyxX = -yyxY, & yxxX &= -xyyY, \\yyyX &= -xxxY, & yzzX &= -xzzY, \\lzyX &\equiv zyzX = -zzxY\end{aligned}$$

ここで、変換行列(8)を用いて、試料座標系から実験室座標系に変換する。このとき 4 階のテンソルは次のように変換する。

$$\chi_{ijkl}^{S,D} = A_{i'i} A_{j'j} A_{k'k} A_{l'l} \chi_{i'j'k'l'}^{S,D} \quad (10)$$

入射、出射偏光の 4 つの組合せに対して、以下に述べる成分のみが有限の値をもつ。

$S_{in}-S_{out}$ の場合

$$\begin{aligned}X_{j'j'k'k'}^S &= A_{j'j}^3 A_{k'k} X_{jkk}^S + A_{j'j}^3 A_{k'k} X_{jkk}^S \\&\quad + 2A_{j'j}^2 A_{k'k} A_{l'l} X_{jkk}^S + 2A_{j'j}^2 A_{k'k} A_{l'l} X_{jkk}^S \\&\quad + A_{j'j} A_{k'k}^2 A_{l'l} X_{jkk}^S + A_{j'j} A_{k'k}^2 A_{l'l} X_{jkk}^S \\&= (\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi) X_{jkk}^S \\&\quad + 4 \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi X_{jkk}^S \\&\quad + 2 \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi X_{jkk}^S \\&= X_{jkk}^S + \frac{1}{4} \zeta_m (\cos 4\varphi - 1)\end{aligned} \quad (11)$$

ここで $\zeta_m = X_{jkk}^S - 2(X_{jkk}^S + 2X_{jkk}^S)$ とおいた。他の組合せについても同様に計算する。

$S_{in}-P_{out}$ の場合

$$X_{i'j'j'k'} = \frac{1}{4} \zeta_m \sin 4\varphi \quad (12)$$

$P_{in}-S_{out}$ の場合

$$X_{j'j'k'k'} = X_{jkk}^S + \frac{1}{4} \zeta_m (1 - \cos 4\varphi) \quad (13)$$

$$X_{j'kk'k'} = X_{jkk}^S \quad (14)$$

$P_{in}-P_{out}$ の場合

$$X_{i'j'k'k'} = -\frac{1}{4} \zeta_m \sin 4\varphi \quad (15)$$

となり、 S_{out} の場合は定数項と 90° 周期の余弦関数の和、 P_{out} の場合は 90° 周期の正弦関数で表わされる。異方性をもつ項の応答は、偏光の組合せの如何にかかわらず同じパラメータ ζ_m を使って表わされることが導かれた。

4.1.3 表面の寄与のまとめ

これまで述べてきた表面からの非磁性、磁性の寄与を合わせて、SHG 光の電界強度 $E_{2\omega}^{(s)}$ を(5)式

を用いて求め、出射 SHG 強度 $I = c/(2\pi) |E_{2\omega}^{(s)}|^2$ を見積ると

$$\begin{aligned}I^M(\varphi, \pm M) &= |\pm A^M \pm B^M \cos 4\varphi|^2 \\&= |A^M + B^M \cos 4\varphi|^2 \\I^P(\varphi, \pm M) &= |A^P \pm B^P \sin 4\varphi|^2 \\I^M(\varphi, \pm M) &= |\pm A^M \mp B^M \cos 4\varphi|^2 \\&= |A^M - B^M \cos 4\varphi|^2 \\I^P(\varphi, \pm M) &= |A^P \mp B^P \sin 4\varphi|^2\end{aligned} \quad (16)$$

と表わされる。ここに、磁気対称性にもとづく異方性パラメータ B^M, B^P, B^M, B^P は $\zeta_m M$ のほかフレネル因子 F を含むが、この因子は誘電率の高い媒質への比較的小さな入射角での反射に対しては F_2^P と F_2^M はほぼ等しいと考えられ、 $B^M \approx B^P \approx B^M \approx B^P$ とおいて差し支えない。

この式から、表面の磁化依存項を考慮すると 4 回対称の方位角依存性が生じることがわかったが、第 1 式と第 3 式に示されるように、 $S_{in}-S_{out}$ 、 $P_{in}-S_{out}$ 配置に対しては $I(\varphi, +M) = I(\varphi, -M)$ となり、磁化反転による SHG 強度の方位依存性パターンに変化は生じないことがわかる。しかし実験では、第 6 図に示すように $S_{in}-S_{out}$ 、 $P_{in}-S_{out}$ ともに磁化反転によるパターンの変化が見られており、次節に述べる非局所場を考慮しない解析では不十分であることがわかった。

4.2 非局所性の寄与

ここでは、バルクおよび界面による電気四重極子の寄与を考える。この場合、(4)式に示したように 4 階のテンソル χ_{ijkl} を考慮しなければならない。対称性の議論によれば、バルクが $m3m$ の対称性をもつとき、 χ_{ijkl} のうち 0 でない要素は $\chi_1 = \chi_{ijij}$ 、 $\chi_2 = \chi_{ijij}$ 、 $\chi_3 = \chi_{iiii}$ の独立な 3 要素のみである。試料を回転したときの方位角依存性を求めるには、§4.1 と同様、変換行列(1)を用い結晶座標系 xyz から実験室座標系 $x'y'z'$ へ変換することにより求められる。

$$\chi_{ijkl}^Q = A_{i'i} A_{j'j} A_{k'k} A_{l'l} \chi_{i'j'k'l'}^Q \quad (17)$$

χ_{ijkl} のテンソルを等方性の成分と異方性の成分に分けると、等方性の成分 $\chi_{ijkl}^{(iso)}$ は座標変換によって変化せず、 $P_{in}-P_{out}$ と $S_{in}-P_{out}$ の等方性成分として寄与する。一方、電気感受率テンソルのうち、

$$\zeta = \chi_3 - (\chi_2 + 2\chi_1) \quad (18)$$

の成分が異方性を与える。

具体的には、次に掲げるテンソル成分のみが0にならずに残る。

S_{in}-S_{out}の場合

$$\chi_{j'j'x'j} = \frac{1}{4} \zeta \sin 4\varphi \quad (19)$$

S_{in}-P_{out}の場合

$$\chi_{j'j'x'j} = \frac{1}{4} \zeta (1 - \cos 4\varphi) \quad (20)$$

P_{in}-S_{out}の場合

$$\chi_{j'x'x'j} = -\frac{1}{4} \zeta \sin 4\varphi \quad (21)$$

P_{in}-P_{out}の場合

$$\chi_{x'x'x'x'} = \frac{1}{4} \zeta (3 + \cos 4\varphi) \quad (22)$$

$$\chi_{xxxx} = \zeta \quad (23)$$

となり、S_{out}の場合は90°周期の正弦関数の寄与が、P_{out}の場合は定数項と90°周期の余弦関数の両方の寄与があることが導かれる。このように、非局所性の寄与は、§4.1.2の場合に比し、方位角依存性に90°のずれを与える。§4.1と同様、SH光の異方性を表わす三角関数の振幅は、偏光の4通りの組合せに共通に同じパラメータζを使って表わされるところが重要なポイントである。

電気四重極子項に基づき生じる非線形分極は、 $P_i^{(2)} = \chi_{ijkl} E_j \nabla_k E_l$ と書けるが、この式は横波の光に対しては簡単になり、波動ベクトルのk成分(進行方向の成分)を $q_k = 2\pi/\lambda = \omega/c$ とすれば、 $P_i^{(2)} = \chi_{ijkl}(\omega/c) E_j E_l$ と表わすことができるので、SHG光の電界は(5)式と同様にしてフレネル係数を用いて求められる。

4.3 SHG光強度の方位角依存性

非線形分極は、これまでに述べた3つの寄与、すなわち表面非磁性、表面磁性およびバルクの寄与の合計である。SH光強度は2次の非線形出力 $E_{2\omega}$ の絶対値の二乗に比例するので、それぞれの項の二乗だけでなく、種類の違う2つの寄与の間の干渉項が生じる。

S_{in}-S_{out}の場合

非線形出力の電界は

$$E''(\varphi, \pm M) = \pm A'' + B'' \sin 4\varphi \pm C'' \cos 4\varphi \quad (24)$$

で与えられる。ここに、±をつけたパラメータは磁化に依存する項で、磁気飽和させることを前提として考えている。これより、SH光強度は($c/2\pi$)の因子を別にすれば

$$I''(\varphi, \pm M) = |\pm A'' + B'' \sin 4\varphi \pm C'' \cos 4\varphi|^2 \quad (25)$$

となる。

S_{in}-P_{out}の場合

非線形出力の電界は

$$E''(\varphi, \pm M) = A'' - B'' \cos 4\varphi \pm C'' \sin 4\varphi \quad (26)$$

により与えられる。したがってSH光強度は

$$I''(\varphi, \pm M) = |A'' - B'' \cos 4\varphi \pm C'' \sin 4\varphi|^2 \quad (27)$$

となる。

P_{in}-S_{out}の場合

非線形出力電界は

$$E''(\varphi, \pm M) = \pm A'' - B'' \sin 4\varphi \mp C'' \cos 4\varphi \quad (28)$$

で与えられる。したがって、SH光強度は

$$I''(\varphi, \pm M) = |\pm A'' - B'' \sin 4\varphi \mp C'' \cos 4\varphi|^2 \quad (29)$$

となる。

P_{in}-P_{out}の場合

非線形出力電界は

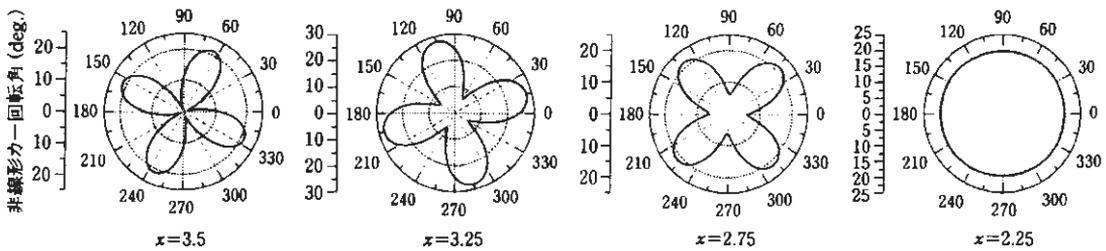
$$E''(\varphi, \pm M) = A'' + B'' \cos 4\varphi \mp C'' \sin 4\varphi \quad (30)$$

したがってSH光強度は

$$I''(\varphi, \pm M) = |A'' + B'' \cos 4\varphi \mp C'' \sin 4\varphi|^2 \quad (31)$$

と書ける。§4.1.3に述べたのと同様の議論から、表面磁性起源のパラメータC同様、電気四重極子項起源のパラメータBについても、 $B'' \approx B'' \approx B'' \approx B''$ が成立するので、4つの偏光配置の方位角依存性パターンの異方性を共通のパラメータB, Cで表わせること、磁界の反転に対し $I(\varphi, -M) = I(-\varphi, +M)$ という関係が成立すること、P_{in}-S_{out}, S_{in}-S_{out}においても磁化反転によるパターンの変化を期待できることなどが予測された。

この理論的考察がどの程度正確かを、 $x=3.5$ の



第12図 非線形カー回転の方位角依存性のシミュレーション結果(S_{in} の場合).

人工格子について検証した。第6図の実験結果の第2高調波強度の絶対値自身には意味はないが、異なる実験配置の間に強度の相対的な関係は保たれている。したがって、方位依存性が明瞭な $S_{in}-P_{out}$ の方位角依存パターン(第6図(c))について(27)式のパラメータを求め、それを用いて他の実験の少なくとも異方性の大きさが説明できれば、上述の解析が正しいことになる。こうして図(c)から、 $A^p=460, B=26, C=-88$ が得られた。この B, C の値を用いて、第6図(a), (b), (d) に示す $P_{in}-P_{out}, P_{in}-S_{out}, S_{in}-S_{out}$ のパターンをどの程度再現できるか調べた。この結果、図の実線に示すように、等方性パラメータとして(a)については $A^{pp}=1310$, (b)については $A^m=-300$, (d)については $A^m=100$ という値をとることによってほぼ実験で得られたパターンを再現できることがわかった。したがって、上に述べた対称性からの考察は正しかったといえる。

4.5 非線形カー回転角のシミュレーション

(24), (26), (28), (30) の各式を用いれば、入射偏光を固定し、検光子を回転させたときのSH光強度の検光子方位角 θ 依存性を求めることができる。S偏光入射の場合の強度は、

$$I^{S_{in}}(\theta) = |E^{SP} \cos \theta + E^{SS} \sin \theta|^2 \quad (32)$$

で与えられ、P偏光入射の場合の強度は

$$I^{P_{in}}(\theta) = |E^{PP} \cos \theta + E^{PS} \sin \theta|^2 \quad (33)$$

で表わされる。(32)に(24), (26)を代入することにより、

$$I^{S_{in}}(\theta) = \frac{1}{2} \{ (A^p \pm C^p \sin 4\varphi - B^p \cos 4\varphi)^2 + (\pm A^m \pm C^m \cos 4\varphi + B^m \sin 4\varphi)^2 \} \times (1 + \cos(2(\theta - \psi_{\pm}))) \quad (34)$$

ここに ψ_{\pm} は次式で与えられる。

$$\tan 2\psi_{\pm} = 2(A^p \pm C^p \sin 4\varphi - B^p \cos 4\varphi) \times (\pm A^m + B^m \sin 4\varphi \pm C^m \cos 4\varphi) \div \{ (A^p \pm C^p \sin 4\varphi - B^p \cos 4\varphi)^2 - (\pm A^m + B^m \sin 4\varphi \pm C^m \cos 4\varphi)^2 \} \quad (35)$$

非線形カー回転角 $\theta_K^{(2)}$ は ψ_+ と ψ_- の差の1/2である。

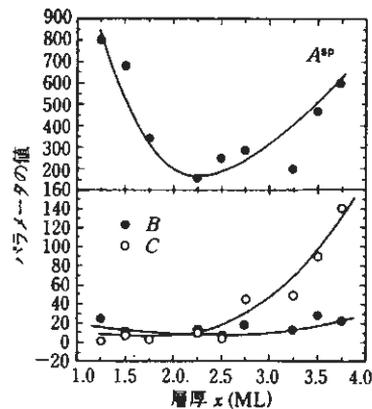
同様に、(33)に(28), (30)を代入して

$$I^{P_{in}}(\theta) = \frac{1}{2} \{ (A^{pp} \mp C^{pp} \sin 4\varphi + B^{pp} \cos 4\varphi)^2 + (\pm A^m \mp C^m \cos 4\varphi - B^m \sin 4\varphi)^2 \} \times (1 + \cos(2(\theta - \psi_{\pm}))) \quad (36)$$

ここに次式が成り立つ。

$$\tan 2\psi_{\pm} = 2(A^{pp} \mp C^{pp} \sin 4\varphi + B^{pp} \cos 4\varphi) \times (\pm A^m - B^m \sin 4\varphi \mp C^m \cos 4\varphi) \div \{ (A^{pp} \mp C^{pp} \sin 4\varphi + B^{pp} \cos 4\varphi)^2 - (\pm A^m - B^m \sin 4\varphi \mp C^m \cos 4\varphi)^2 \} \quad (37)$$

§4.3で求めた A, B, C のパラメータを(35), (37)



第13図 フィットting・パラメータの層厚依存性。

の理論式に代入して、非線形カー回転角の方位依存性を計算した。その結果、第12図に示すように、第9図の実験結果に見られた4回対称のパターンを得ることができた。このように、SH光強度の方位角依存性の実験結果から求めたパラメータを用いて理論的に計算したカー回転角の方位依存性は、実験結果をほぼ定量的に再現できた。従来、方位角依存性と非線形カー回転角は別々に議論されることが多かったが、一繋がりものとして解析したのはわれわれが初めてである。

4.6 パラメータの層厚依存性

Fe(x ML)/Au(x ML)人工格子において層厚が $1 \leq x \leq 4$ の範囲にある試料について測定されたSHG光の方位角依存性から求めたフィッティングパラメータ A^{sp} , B , C を x に対してプロットしたのが第13図である。パラメータ A^{sp} は結晶起源の非磁性の寄与であるが、 $x=2.5$ 付近で極小値をとり、この層厚以下で急激に上昇している。表面観察をしたわけではないので、断定的なことは言えないが、おそらく $x < 2.5$ の試料の表面は原子レベルでの凹凸が大きくなっているのではないかと推測される。一方、パラメータ B の値はほとんど変化していない。この項はバルクまたは多数の界面の存在に基づく電界の非局所性に起因するもので、非磁性の4回対称異方性の起源である。 B がほぼ一定値をとることは、層厚(ML)が整数・非整数にかかわらず面内の対称性が試料内部で比較的きちんと保たれていることを表わしている。一方、パラメータ C の値は2以下でゼロであるが、これは、 $x > 2$ で持っていた面内の磁気異方性が、この層厚以下で垂直の磁気異方性に変化したことと関係していると考えられる。

§5 まとめ

Fe/Au人工格子の磁気誘起第2高調波発生(MSHG)および非線形カー効果の測定を行い、明瞭な4回対称の方位角依存性および磁化反転による変化を見いだした。表面の結晶対称性および磁気対称性の観点に立って非線形電気感受率テンソルを用いた現象論的解析を行い、非局所性の効

果を正しく取り入れる必要性を明らかにした。今後ミクロな観点での非線形電気感受率の起源解明が望まれる。この目的にスペクトル測定が役立つであろう。

この研究は、文部省科学研究費基盤研究Bおよび特定領域研究「微小領域の磁性と伝導」の助成を受けた。また、EUの研究者交流事業にもとづく共同研究の一環として行われた。関係各位に感謝する。

【参考文献】

- 1) Th. Rasing: *Nonlinear Optics of Metals*, K. H. Bennemann ed. (Oxford University Press, Oxford, 1997).
- 2) Y. R. Shen: *The Principles of Nonlinear Optics* (John Wiley & Sons, New York, 1984).
- 3) M. Fiebig, D. Fröhlich, G. Sluyterman, R. V. Pisarev: *Appl. Phys. Lett.* 66 (1995) 1016.
- 4) 佐藤勝昭: 日本応用磁気学会誌 21 (1997) 879.
- 5) K. Takanashi, S. Mitani, M. Sano, H. Fujimori, H. Nakajima and A. Osawa: *Appl. Phys. Lett.* 67 (1995) 1016.
- 6) K. Sato, E. Takeda, M. Akita, M. Yamaguchi, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori and Y. Suzuki: *J. Appl. Phys.* 86 (1999) 4985.
- 7) M. Yamaguchi, T. Kusakabe, K. Kyuno and S. Asano: *Physica B* 270 (1999) 17.
- 8) K. Sato, S. Mitani, K. Takanashi, H. Fujimori, A. Kirilyuk, A. Petukhov and Th. Rasing: *J. Magn. Soc. Jpn.* 23 (1999) 352.
- 9) K. Sato, A. Kodama, M. Miyamoto, K. Takanashi and Th. Rasing: *J. Appl. Phys.* 87 (2000) 6785.
- 10) 中澤弘実, 三谷誠司, 高梨弘毅, 中嶋英雄, 大沢明, 藤森啓安: 日本応用磁気学会誌 20 (1996) 353.
- 11) 水見清和, 高梨弘毅, 三谷誠司, 藤森啓安: 日本応用磁気学会誌 22 (1998) 585.
- 12) 児玉彰弘, 宮本大成, 三谷誠司, 高梨弘毅, 藤森啓安: 日本応用磁気学会誌 24 (2000) 383.
- 13) 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 MAG-00-13, 19 (2000).
- 14) 佐藤勝昭: 非線形磁気光学効果による人工格子界面の評価; 平成8-9年度文部省科学研究費補助金基盤研究B(課題番号 08455009)報告書(1998).