

6 磁気光学効果

この章では、光磁気記録、光アイソレータなどの基礎となっている磁気光学効果について、その原理にもとづき測定法を解説する。ここでは磁気光学効果の最新の展開については最小限にとどめ、磁気光学効果が物質の電子構造の情報をいかに反映しているかに重点を置いて述べる。

6-1 磁気光学効果概説^[1]

物質に外部磁場を印加したり、物質に磁化が生じたりす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 6-1 に示すように二つの場合がある。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よぶ。

図 6-2 に示すように、ファラデー配置で物質に磁場を印加して、磁場と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楕円を描くが、このような楕円偏光をつくる効果を磁気円二色性 (MCD) といい、楕円の

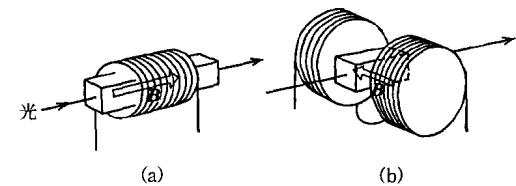


図 6-1 ファラデー配置 (a) とフォークト配置 (b).

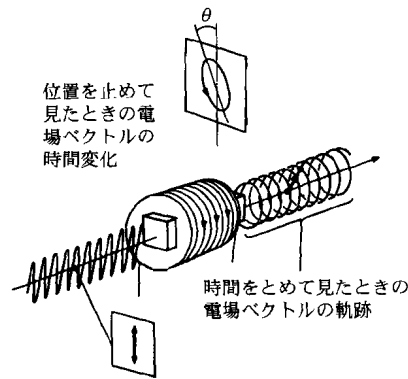


図 6-2 ファラデー効果の説明.

程度を楕円率 (楕円の短軸と長軸の比) 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入射光の電場の向きから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 1 次の関数である。

自然旋光性と磁気光学効果の違いは相反性にある。自然旋光性物質、たとえばブドウ糖溶液を光が往復した場合、旋光はもとに戻ってしまう性質 (相反性) をもつのに対し、ファラデー効果の場合には、磁場中のガラスを往復すると旋光の向きが磁場の方向に対して定義されているため、片道の場合の 2 倍の旋光を受ける (これを非相反性という)。

自発磁化をもたない材料 (たとえば、ガラス) のファラデー回転角 ϕ_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

$$\phi_F = VHL \quad (6-1)$$

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、ベルデ定数とよばれる。これに対して、自発磁化をもつ物質 (たとえば強磁性体) の磁気光学効果は、式 (6-1) に従わず、外部磁場に比例しない。

図 6-3 は、反射の磁気光学効果、すなわち、磁気光学カー効果を三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。この効果は光磁気ディスクの再生に用いられる。(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。薄膜表面の磁化状態の評価に用いられる SMOKE 法は、この効果

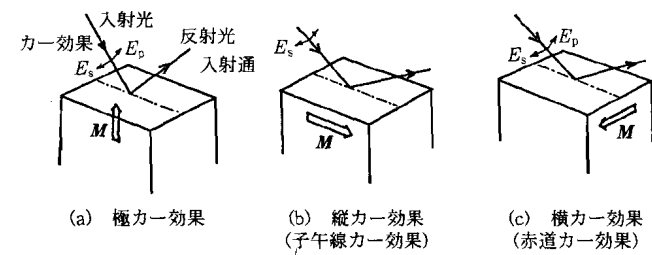


図 6-3 磁気カー効果の三つの配置.

を利用する。(a), (b) 二つ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。(c) は、磁化が反射面内にあつて、かつ、入射面に垂直な場合で、横カー効果とよばれる。この効果において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。

6-2 磁気光学効果の巨視的起源^{[1],[2]}

6-2-1 ファラデー効果^[1]

ファラデー効果は物質の磁化にもとづく旋光性と円二色性の総称である。このような効果は、物質の左右円偏光に対する応答の違いがあるときに起きる。このことを図 6-4 によって示す。旋光性は物質中での左右円偏光の速度が異なることによって起きる。(a) に示すように直線偏光は右円偏光と左円偏光に分解できる。この光が長さ l の物質を透過した後、左右円偏光の位相が (b) に示す

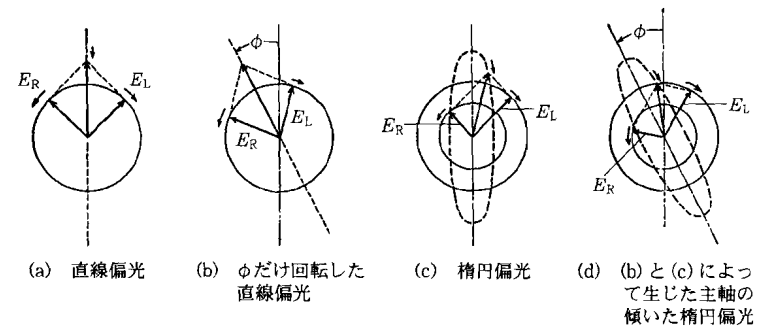


図 6-4 旋光性と円二色性の説明.

ように異なってい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っている。その傾き θ_F は、

$$\theta_F = -(\theta_R - \theta_L)/2 = -\Delta\theta/2 \quad (6-2)$$

となる。ここに θ_R は右円偏光の位相、 θ_L は左円偏光の位相である。一方、円二色性は左右円偏光に対する振幅の差から生じる。その結果、図(c)のように軌跡は楕円偏光となる。楕円率角 η_F は、

$$\eta_F = \tan^{-1}\{(E_R - E_L)/(E_R + E_L)\} \quad (6-3)$$

で与えられる。 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_+ と右円偏光に対する屈折率 n_- に差があれば生じる。

$$\theta_F = -\Delta\theta/2 = -\omega(n_+ - n_-)l/2c = -\pi\Delta n l/\lambda \quad (6-4)$$

一方、円二色性は左右円偏光に対する吸光度の違いがあれば生じる。右円偏光の消光係数を χ_+ 、左円偏光の消光係数を χ_- とすると、

$$\eta_F = \frac{\exp(-\omega\chi_+l/c) - \exp(-\omega\chi_-l/c)}{\exp(-\omega\chi_+l/c) + \exp(-\omega\chi_-l/c)} \approx -\pi\Delta\chi l/\lambda \quad (6-5)$$

となる。ここに $\Delta\chi = \chi_+ - \chi_-$ である。次式のように複素旋光角 Φ_F を定義すると式の取扱いが簡便になることがある。

$$\Phi_F = \theta_F + i\eta_F = -\pi(\Delta n + i\Delta\chi)l/\lambda = -\pi\Delta N l/\lambda \quad (6-6)$$

つぎに旋光性と円二色性を誘電率テンソルを用いて記述する。光の電場 \mathbf{E} が印加されたときに物質に生じる電束密度を \mathbf{D} とすると、 \mathbf{D} と \mathbf{E} の関係は

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \bar{\epsilon} \mathbf{E} \quad (6-7)$$

で表される。ここに ϵ_0 は真空の誘電率で、 $\bar{\epsilon}$ は比誘電率とよばれる。一般に \mathbf{E} も \mathbf{D} もベクトル量であるから係数 $\bar{\epsilon}$ は、2階のテンソルで表される。

等方性媒質が z 方向の磁化をもつとき、その比誘電率は次式のテンソルで表される。

$$\bar{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & \epsilon_{xy} & 0 \\ -\epsilon_{xy} & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} \quad (6-8)$$

ここに、対角成分 ϵ_{xx} 、 ϵ_{zz} は磁化 M の偶数次、非対角成分 ϵ_{xy} は M の奇数次のべきで表される。対角成分はコットン・ムートン効果に、非対角成分はファラデー効果に寄与する。

この比誘電率をもった媒質を進む電磁波の伝搬は、マクスウェルの方程式で記述することができる。詳しいことは参考書^[1]にゆずり、ここでは結果だけを述べておく。

いま、光（電磁波）の電場、磁場ベクトルとして $\exp\{-i\omega(t - Nz/c)\}$ の形の時間・空間依存性を仮定し、マクスウェルの方程式に代入すると、電場または磁場についての固有方程式が得られる。これを解くと、複素屈折率 $N (= n + ix)$ の固有値として、次の二つのものを得る。

$$N_{\pm}^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy} \quad (6-9)$$

これらの二つの固有値 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いこととなり光学活性は生じない。したがって、 ϵ_{xy} が光学活性をもたらすものであることが理解されよう。式(6-6)より、複素旋光角 Φ は右円偏光と左円偏光に対する複素屈折率の差 ΔN によって記述できるので、これらの量を物質固有の量である ϵ_{xy} によって表すことができる。 ϵ の実数部を ϵ' 、虚数部を ϵ'' と表すとすれば、式(6-9)から、 ϵ_{xy} の絶対値が ϵ_{xx} の絶対値に比べ十分に小さいと仮定して

$$\Delta N = N_+ - N_- = \sqrt{\epsilon_{xx} + i\epsilon_{xy}} - \sqrt{\epsilon_{xx} - i\epsilon_{xy}} \approx i \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad (6-10)$$

を得る。これを式(6-6)に代入すると、複素ファラデー回転角 Φ_F として、

$$\Phi_F = -\pi \frac{\Delta N l}{\lambda} = -\frac{i\pi l}{\lambda} \cdot \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad (6-11)$$

を得る。これを実数部、虚数部に分解すると、 θ_F 、 η_F は、

$$\begin{aligned} \theta_F &= -\frac{\pi l}{\lambda} \cdot \frac{\chi\epsilon_{xy}' - n\epsilon_{xy}''}{n^2 + \chi^2} \\ \eta_F &= -\frac{\pi l}{\lambda} \cdot \frac{n\epsilon_{xy}' + \chi\epsilon_{xy}''}{n^2 + \chi^2} \end{aligned} \quad (6-12)$$

のように、 ϵ_{xy} の実数部と虚数部の1次結合で表される。(ここに $\epsilon_{xx} = n + ix$ を用いた。) 通常、ファラデー効果は透明物質で測定されるので、 $\chi = 0$ とすると、式(6-12)は簡単になって、

$$\theta_F = -\frac{\pi l}{n\lambda} \epsilon_{xy}'', \quad \eta_F = -\frac{\pi l}{n\lambda} \epsilon_{xy}'$$

となり、ファラデー回転角が ϵ_{xy} の虚数部に対応し、ファラデー楕円率（磁気円二色性）が ϵ_{xy} の実数部に対応すると見ることができる。

6-2-2 極カー効果

a. 垂直入射極カー効果

まず、垂直入射の場合の極磁気カー効果を考える。右回り円偏光 (+) および左回り円偏光 (-) に対する振幅反射率（フレネル係数）は

$$\hat{r}_{\pm} = \frac{N_{\pm} - 1}{N_{\pm} + 1} \quad (6-13)$$

によって表すことができる。

磁気カー回転角 θ_K と磁気カー楕円率 η_K をひとまとめにした複素カー回転 Φ_K は、

$$\Phi_K = \theta_K + i\eta_K = -\frac{\Delta\theta}{2} - i\frac{\Delta r}{2r} = -i\frac{\Delta\hat{r}}{2\hat{r}} \approx i\frac{1}{2} \ln\left(\frac{\hat{r}_-}{\hat{r}_+}\right) \quad (6-14)$$

である。ここに、 \hat{r} 、 Δr は、 $\hat{r} = (r_+ + r_-)/2$ 、 $\Delta r = r_+ - r_-$ で与えられる。この式と式 (6-13) とから、次式を得る*1。

$$\Phi_K \approx \frac{\epsilon_{xy}}{(1 - \epsilon_{xx})\sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad (6-15)$$

この式から、カー効果が誘電率の非対角成分 ϵ_{xy} に依存するばかりでなく、分母にくる対角成分 ϵ_{xx} にも依存することがわかる。この式の対角成分 ϵ_{xx} を光学定数 n 、 x によって表すと、

$$\epsilon_{xx} = \epsilon_{xx}' + i\epsilon_{xx}'' = (n^2 - x^2) + i2nx$$

と書けるので、式 (6-15) に代入して整理することによって、

$$\begin{aligned} \theta_K &= \frac{n(1 - n^2 + 3x^2)\epsilon_{xy}' + x(1 - 3n^2 + x^2)\epsilon_{xy}''}{(n^2 + x^2)\{(1 - n^2 - x^2)^2 + 4x^2\}} \\ \eta_K &= \frac{-x(1 - 3n^2 + x^2)\epsilon_{xy}' + n(1 - n^2 + 3x^2)\epsilon_{xy}''}{(n^2 + x^2)\{(1 - n^2 - x^2)^2 + 4x^2\}} \end{aligned} \quad (6-16)$$

を得る。

b. 斜め入射極カー効果^[2]

次に、斜め入射の場合を考える。いま、 E ベクトルが入射面内にある p 偏光

*1 $\hat{r} = r \exp(i\theta)$ を微分して $\Delta\hat{r} = \left(\frac{\Delta r}{r} + i\Delta\theta\right)r \exp(i\theta) = \left(\frac{\Delta r}{r} + i\Delta\theta\right)\hat{r}$
したがって、 $\frac{\Delta r}{r} + i\Delta\theta = \frac{\Delta\hat{r}}{\hat{r}} \approx \ln\left(1 + \frac{\Delta\hat{r}}{\hat{r}}\right) = \ln\frac{2\hat{r} + \Delta\hat{r}}{2\hat{r} - \Delta\hat{r}} = \ln\frac{\hat{r}_+}{r_-} = -\ln\frac{\hat{r}_-}{\hat{r}_+}$

が入射角 φ_0 で入射したとき、界面を透過した光の屈折角 φ_2 とすると、複素カー回転角 Φ_K は

$$\tan \Phi_K = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \quad (6-17)$$

のように r_{sp}/r_{pp} によって表される。ここに、 r_{sp} は入射 p 偏光成分に対し、 E ベクトルが入射面に垂直な s 偏光成分が反射光として現れる比率を表す。 r_{pp} は、入射 p 偏光に対し p 偏光が反射される比率を表す。このときの r_{sp} 、 r_{pp} を誘電率を使って表すと

$$r_{sp} = r_{ps} = -\frac{\epsilon_{xy} \cos \varphi_0}{\sqrt{\epsilon_{xx}} (\cos \varphi_0 + \sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_2}) (\cos \varphi_2 + \sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_0})} \quad (6-18)$$

$$r_{pp} = \frac{\sqrt{\epsilon_{xx}} \cos \varphi_0 - \cos \varphi_2}{\sqrt{\epsilon_{xx}} \cos \varphi_0 + \cos \varphi_2} \quad (6-19)$$

複素カー回転角を Φ_K とすると、 Φ_K は次式で与えられる。

$$\tan \Phi_K = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} = \frac{\epsilon_{xy} \cos \varphi_0}{\sqrt{\epsilon_{xx}} (\cos \varphi_0 + \sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_2}) (\cos \varphi_2 - \sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_0})} \quad (6-20)$$

垂直入射の場合、この式で $\varphi_0 = \varphi_2 = 0$ とおけば、式 (6-15) が得られる。

ここに、 φ_0 と φ_2 の間にはスネルの法則が成立する。すなわち、

$$\frac{\sin \varphi_0}{\sin \varphi_2} = \sqrt{\epsilon_{xx}} \quad (6-21)$$

である。 φ_0 は実数であるが、誘電率は複素数なので φ_2 は複素数である。

6-2-3 縦カー効果^[2]

磁化の向きが反射面内にあつて、かつ光の入射面に平行な場合を縦カー効果とよぶ。電場が入射面に平行に偏光している光 (p 偏光) が、磁化された表面から斜めに反射されたとき反射光の p 成分は、通常の金属による反射の場合とほとんど同様にふるまうのであるが、磁化が存在することによってわずかに s 成分 (入射面に垂直に振動する成分) が生じる。一般にこの第 2 の電場成分は反射 p 成分と同位相ではなく、一定の位相差を有する。したがって、反射光は楕円の主軸が p 面から少し回転しているような楕円偏光である。磁化の反転によって回転は p 面について対称な方向に起きる。同様の効果は入射光が s 偏光の場合にもいえる。この場合のカー回転、楕円率は s 方位について対称に起きる。この効果の大きさは、入射角に依存する。

前項に述べた斜め入射の場合の極カー効果と同様に、縦カー効果の複素カー回転角 Φ_K は

$$\tan \Phi_K = \frac{r_{sp}}{r_{pp}}$$

で与えられる。縦カー効果の場合の r_{sp} は、誘電テンソルを用いて、

$$r_{sp} = \frac{\epsilon_{xy} \cos \varphi_0 \sin \varphi_2}{\epsilon_{xy} \cos \varphi_2 (\sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_2 + \cos \varphi_0}) (\sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_0 + \cos \varphi_2})} \quad (6-22)$$

によって与えられることが導かれる。 r_{pp} については式 (6-19) が成立するので、これらより $\tan \Phi_K$ を求めると、

$$\tan \Phi_K = \frac{\epsilon_{xy} \cos \varphi_0 \sin \varphi_2}{\epsilon_{xx} (\sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_0 - \cos \varphi_2}) (\sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_2 + \cos \varphi_0})} \quad (6-23)$$

が得られる。 Φ_K の実数部が縦カー回転角、虚数部が縦カー楕円率を与える。 φ_0 と φ_2 の間には極カー効果の時と同様、スネルの法則が成立する。すなわち、

$$\frac{\sin \varphi_0}{\sin \varphi_2} = \sqrt{\epsilon_{xx}}$$

である。 φ_0 は実数であるが、誘電率は複素数なので φ_2 は複素数である。

6-2-4 横カー効果^[2]

磁化の方向が入射面に垂直な場合、入射 s 偏光に対しては何らの効果も及ばない。p 偏光を入射した場合にのみ、その反射強度が磁化に依存して変化する効果として現れる。 r_{sp} の成分は生じないので偏光の回転は起きない。 r_{pp} を誘電テンソルの成分を使って表すと、

$$r_{pp} = \frac{\epsilon_{xx} \cos \varphi_0 - \left(\cos \varphi_2 + \frac{\epsilon_{xy}}{\epsilon_{xx}} \sin \varphi_2 \right)}{\epsilon_{xx} \cos \varphi_0 + \left(\cos \varphi_2 + \frac{\epsilon_{xy}}{\epsilon_{xx}} \sin \varphi_2 \right)} \quad (6-24)$$

となる。反射光の強度は $|r_{pp}|^2$ に比例する。磁化の効果は ϵ_{xy} を通じて現れる。

6-2-4 コットン・ムートン効果

ファラデー効果は光の進行方向と磁場とが平行な場合の磁気光学効果であったが、コットン・ムートン効果は光の進行方向と磁場とが垂直な場合（フォークト配置）の磁気光学効果である。この効果は磁化 M の偶数次の効果であって磁場の向きに依存しない。

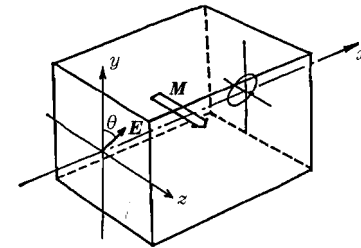


図 6-5 コットン・ムートン効果の配置。

いま、磁化のないとき等方性の物質を考える。磁化のない場合、この物質は複屈折をもたないが、磁化 M が存在すると M の方向に一軸異方性が誘起され、 M 方向に振動する直線偏光（常光線）と M に垂直の方向に振動する光（異常光線）とに対して屈折率の差が生じて、複屈折を起こす。これは磁化のある場合の誘電テンソルの対角成分 $\epsilon_{xx}(M)$ と $\epsilon_{zz}(M)$ が一般的には等しくないことから生じる。 ϵ テンソルの対角成分はその対称性から M について偶数次でなければならないので、複屈折によって生じる光学的遅延（リタデーション）も M の偶数次となる。

いま、図 6-5 のような配置を考え、 z 軸を磁化 M の方向にとる。光の進行方向が x 軸正の方向であるとしてマクスウェルの方程式を解くと、永年方程式は

$$\{\epsilon_{xx}(\epsilon_{xx} - N^2) + \epsilon_{xy}^2\}(\epsilon_{zz} - N^2) = 0 \quad (6-25)$$

となり、次の二つの固有値 N_1 、 N_2 をもつことがわかる。

$$N_1^2 = \epsilon_{xx} + \frac{\epsilon_{xy}^2}{\epsilon_{xx}} \quad (6-26)$$

$$N_2^2 = \epsilon_{zz}$$

N_1 に対応する固有関数は

$$E_1 = A \exp\{-i\omega(t - N_1 x/c)\} (\epsilon_{xy} \mathbf{i} - \epsilon_{xx} \mathbf{j}) \quad (6-27)$$

となる。一方、 N_2 に対応する固有関数は

$$E_2 = B \exp\{-i\omega(t - N_2 x/c)\} \mathbf{k} \quad (6-28)$$

によって与えられる。 \mathbf{i} 、 \mathbf{j} 、 \mathbf{k} はそれぞれ x 、 y 、 z 方向の単位ベクトルである。 ϵ_{xy} が 0 であれば E_1 は y 方向に振動する直線偏光であるが、 $\epsilon_{xy} \neq 0$ のとき E_1 は xy 面内に振動面をもつことになる。この結果、この波の波面の伝搬方向は x 軸方向であるがエネルギーの伝搬方向は x 軸から $-\tan^{-1}(\epsilon_{xy}/\epsilon_{xx})$ だけ傾い

たものとなる。この光線は異常光線である。一方、 E_2 は x 方向に伝わり、磁化方向 (z 方向) に振動する正常光線である。

いま、簡単のため $\epsilon_{xy}=0$ として光学的遅延 (リターデーション) δ を計算すると

$$\delta = \omega(N_1 - N_2)l/c = (\omega l/2c)(\sqrt{\epsilon_{xx}^{(2)}} - \sqrt{\epsilon_{zz}^{(2)}})M^2/\sqrt{\epsilon_{xx}^{(0)}} \quad (6-29)$$

となる。ここに、 $\epsilon_{xx}^{(i)}$ 、 $\epsilon_{zz}^{(i)}$ は ϵ を M で展開したときの i 次の係数である。 δ は M の偶数次の係数のみで表すことができる。

6-3 磁気光学効果の微視的起源

6-3-1 磁気光学効果の古典電子論的起源^[1]

磁気光学効果は誘電率の非対角成分 ϵ_{xy} から生じる。一方誘電率と導電率の間には、

$$\epsilon_{ij} = \delta_{ij} + \frac{i\sigma_{ij}}{\omega\epsilon_0} [\text{SI}] = \delta_{ij} + \frac{4\pi i\sigma_{ij}}{\omega} [\text{cgs}] \quad (6-30)$$

の関係式が成立するので磁気光学効果は導電率の非対角成分 σ_{xy} から生じるといってもよい。 σ_{xy} は電場の x 成分と電流の y 成分を結び付けるテンソル要素である。

荷電粒子に対する古典的な運動方程式を考えることにより、 σ_{xx} および σ_{xy} としては、

$$\sigma_{xx}(\omega) = \frac{ne^2}{m^*} \cdot \frac{i(\omega + i/\tau)}{(\omega + i/\tau)^2 - \omega_c^2} \quad (6-31)$$

$$\sigma_{xy}(\omega) = \frac{ne^2}{m^*} \cdot \frac{\omega_c}{(\omega + i/\tau)^2 - \omega_c^2}$$

を得る。ここに、 $\omega_c (= eB/m^*)$ はサイクロトロン角周波数である。

この式を誘電率に書き換えると

$$\epsilon_{xx}(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{(\omega + i/\tau)^2 - \omega_c^2} \quad (6-32)$$

$$\epsilon_{xy}(\omega) = \frac{i\omega_p^2\omega_c}{\omega\{(\omega + i/\tau)^2 - \omega_c^2\}}$$

となる。ここに、 $(\omega_p = \sqrt{me^2/m^*\epsilon_0})$ は自由電子のプラズマ周波数である。

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 $5 \times 10^3 \sim 10^4$ T もの大きな磁場を磁性体内部に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る。

6-3-2 磁気光学効果の量子論的起源

動的誘電率は外部電場の印加に対する分極の時間応答を求めるものであるから、時間を含む摂動計算によって求めることができる。久保公式によれば分極率 χ_{xy} は電流密度 J_x の自己相関関数のフーリエ変換で与えられる。

$$\begin{aligned} \chi_{\mu\nu}(\omega) &= -\frac{n_0}{i\omega\epsilon_0} \lim_{\gamma \rightarrow 0} \int_0^\infty d\tau \exp\{i(\omega - \gamma)\tau\} \int_0^{1/kT} d\lambda \langle J_\nu(-i\hbar\lambda) J_\mu(\tau) \rangle_{AV} \\ &= -\frac{n_0}{i\omega\epsilon_0} \lim_{\gamma \rightarrow 0} \int_0^\infty d\tau \exp\{i(\omega - \gamma)\tau\} \int_0^{1/kT} d\lambda \frac{\text{Tr}\{J_\nu(-i\hbar\lambda) J_\mu(\tau) \exp(-H_0/kT)\}}{\text{Tr} \exp(-H_0/kT)} \end{aligned} \quad (6-33)$$

ここに $J_\nu(t)$ ($\nu = x, y$) は時間を含む電流密度の演算子であって、ハイゼンベルク表示を用い

$$J_\nu(t) = \exp(iH_0t/\hbar) J_\nu \exp(-iH_0t/\hbar) \quad (6-34)$$

と書くことができる。また、式 (6-33) の $\text{Tr}A$ は演算子 A の対角和を表し、次式で与えられる。

$$\text{Tr}A = \sum_n \langle n | A | n \rangle = \sum_n \int d\tau \Psi_n^* A \Psi_n \quad (6-35)$$

ただし、 Ψ_n は H_0 の固有関数で、 $H_0\Psi_n = \hbar\omega_n\Psi_n$ に従う。式 (6-34)、(6-35) を式 (6-33) に代入して、

$$\chi_{\mu\nu}(\omega) = \lim_{\gamma \rightarrow 0} \frac{n_0}{\omega\epsilon_0} \sum_{n,m} \frac{\exp(-\hbar\omega_m/kT) - \exp(-\hbar\omega_n/kT)}{\hbar(\omega_m - \omega_n)} \frac{\langle n | J_\nu | m \rangle \langle m | J_\mu | n \rangle}{\omega + \omega_m - \omega_n + i\gamma} \quad (6-36)$$

が得られる。式の誘導の詳細は参考書^[1]を参照されたい。この式から誘電率テンソルの対角、非対角成分として次式が導かれる。

$$\epsilon_{xx}(\omega) = 1 + \chi_{xx}(\omega) = 1 - \frac{N_0 e^2}{m\epsilon_0} \sum_{n < m} \frac{\rho_n(f_x)_{mn}}{(\omega + i/\tau)^2 - \omega_{mn}^2} \quad (6-37)$$

$$\epsilon_{xy}(\omega) = \chi_{xy}(\omega) = \frac{iN_0 e^2}{2m\epsilon_0} \sum_{n < m} \frac{\rho_n \omega_{mn} \{ (f_+)_{mn} - (f_-)_{mn} \}}{\omega \{ (\omega + i/\tau)^2 - \omega_{mn}^2 \}}$$

すなわち、誘電率のスペクトルはローレンツ型 (Lorentzian) の分散曲線で表

される。ここに $(f_x)_{mn}$, $(f_+)_{mn}$, $(f_-)_{mn}$ は、それぞれ基底状態 $|n\rangle$ と励起状態 $|m\rangle$ 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あって、

$$(f_x)_{mn} = \frac{2m\omega_{mn}}{\hbar e^2} |(P_x)_{mn}|^2 \tag{6-38}$$

$$(f_{\pm})_{mn} = \frac{m\omega_{mn}}{\hbar e^2} |(P_{\pm})_{mn}|^2$$

で与えられる。 $\omega_{mn} = \omega_m - \omega_n$ である。また、 $(P)_{mn}$ は電気双極子遷移行列を表す。

$$\rho_n = \frac{\exp(-P_n/kT)}{\sum_n \exp(-P_n/kT)} \tag{6-39}$$

は、遷移の基底状態 $|n\rangle$ がどのように占有されているかを与える分布関数である。

式 (6-37) は、形の上では古典論から導かれた式 (6-32) とよく似た式になっているが、 ω_c のようにあらわな形では磁場の効果は現れていない。磁化は基底状態内の交換分裂 (exchange splitting) を通じて式 (6-39) の分布関数に影響を与えると同時に、選択則を通じて振動子強度の差 $(f_+)_{mn} - (f_-)_{mn}$ に影響を与え、磁気光学効果をもたらす。

いま、簡単のために $T \rightarrow 0$ を考え、 $\rho_n = 1$, $\rho_m = 0$ とすると、式 (6-37) は次式のように書き換えられる。

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= 1 - \omega_p^2 \sum_{n < m} \frac{(f_x)_{mn}}{\omega^2 - \omega_{mn}^2 + \gamma^2 + i2\omega\gamma} \\ &= 1 - \sum_{n < m} \frac{(f_x)_{mn}(\omega^2 - \omega_{mn}^2 + \gamma^2)}{(\omega^2 - \omega_{mn}^2 + \gamma^2)^2 + 4\omega^2\gamma^2} + i \sum_{n < m} \frac{(f_x)_{mn}2\omega\gamma}{(\omega^2 - \omega_{mn}^2 + \gamma^2)^2 + 4\omega^2\gamma^2} \\ \epsilon_{xy} &= \frac{i\omega_p^2}{2} \sum_{n < m} \frac{\omega_{mn}(\Delta f)_{mn}}{\omega(\omega^2 - \omega_{mn}^2 + \gamma^2) + i2\omega\gamma} \tag{6-40} \\ &= \omega_p^2 \sum_{n < m} \frac{\omega_{mn}(\Delta f)_{mn}\gamma}{(\omega^2 - \omega_{mn}^2 + \gamma^2)^2 + 4\omega^2\gamma^2} + \frac{i\omega_p^2}{2\omega} \sum_{n < m} \frac{\omega_{mn}(\Delta f)_{mn}(\omega^2 - \omega_{mn}^2 + \gamma^2)}{(\omega^2 - \omega_{mn}^2 + \gamma^2)^2 + 4\omega^2\gamma^2} \end{aligned}$$

ここに $\omega_p^2 = Ne^2/m\epsilon_0$, $\Delta f = f_+ - f_-$ である。この第1式から、誘電率の対角成分 ϵ_{xx} の実数部は分散型、虚数部は吸収型のスペクトルを示すことがわかる。一方、非対角成分 ϵ_{xy} については、式 (6-40) の第2式に見られるように、対角成分とは逆に実数部が吸収型、虚数部が分散型になっている。

6-3-3 スペクトルの形

図 6-6 に示すような電子エネルギー準位図を考える。基底状態の軌道角運動量は 0 で縮退がなく、励起状態の軌道角運動量は 1 で、磁化のないとき 3 重縮退しているとする。磁化が存在するとき、基底状態はスピン角運動量の縮退が解けて 2 本に分裂する。一方、励起状態はスピン軌道相互作用のため、全角運動量 $J=1+1/2=3/2$ がよい量子数になり、四つの準位に分裂する。遷移が許されるのは、 ΔJ が +1 または -1 の場合のみであるから、温度が十分低い場合、右回り、左回りそれぞれ 1 本ずつの遷移しか観測されない。この場合の誘電率の非対角成分は、

$$\epsilon_{xy} = -\frac{i\omega_p^2 f_0}{2\omega} \left\{ \frac{\omega_1}{\omega_1^2 - (\omega + i\gamma)^2} - \frac{\omega_2}{\omega_2^2 - (\omega + i\gamma)^2} \right\}$$

で表される。ここに ω_1 は右回り遷移のエネルギー、 ω_2 は左回り遷移のエネルギーである。二つの遷移エネルギーを、平均値 ω_0 とエネルギー差 $\Delta\omega$ を使って書き直し、 $\gamma \gg \Delta\omega$ とすると、

$$\epsilon_{xy} = -\frac{i\omega_p^2 f_0}{2\omega} \left\{ \frac{\omega_0 - \Delta\omega/2}{(\omega_0 - \Delta\omega/2)^2 - (\omega + i\gamma)^2} - \frac{\omega_0 + \Delta\omega/2}{(\omega_0 + \Delta\omega/2)^2 - (\omega + i\gamma)^2} \right\}$$

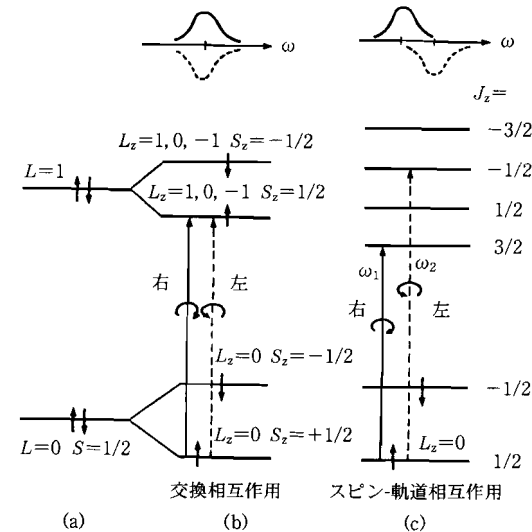


図 6-6 磁性体の電子構造と磁気光学効果。

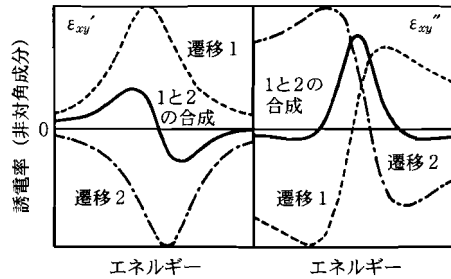


図 6-7 2 遷移型スペクトル.

$$\approx -\frac{i\omega_p^2 f_0 \Delta\omega}{4\omega} \cdot \frac{(\omega_0 - \omega)^2 - \gamma^2 + 2i\gamma(\omega_0 - \omega)}{\{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2\}^2} \quad (6-41)$$

が得られる。これより、実数部と虚数部とを書き下すと

$$\begin{aligned} \epsilon_{xy}' &= \frac{\omega_p^2 f_0 \gamma \Delta\omega}{2\omega} \cdot \frac{\omega_0 - \omega}{\{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2\}^2} \\ \epsilon_{xy}'' &= \frac{\omega_p^2 f \Delta\omega}{4\omega} \cdot \frac{(\omega_0 - \omega)^2 - \gamma^2}{\{(\omega_0 - \omega)^2 + \gamma^2\}^2} \end{aligned} \quad (6-42)$$

となる。このスペクトルを模式的に表したのが図 6-7 である。

6-4 磁気光学効果の測定法^[3]

6-1 節に述べたように、ファラデー効果は透過光に対する磁気光学効果、磁気光学カー効果は反射光に対する磁気光学効果である。両者は、透過か反射かが違うだけで、直線偏光を入射したとき、透過光または反射光（一般には楕円偏光になっている）の主軸の回転角と楕円率角を測定する点はいずれもおなじである。測定システム的具体例については 6-4-6 項で述べる。

6-4-1 回転角のみの評価法

a. クロスニコル法

最も簡単に磁気光学効果の回転角を評価する方法はクロスニコル法とよばれる方法である。すなわち、図 6-8(a) に示すように偏光子と検光子を直交させておき、この間に試料をおき、光の進行方向に磁化する。光検出器に現れる出力

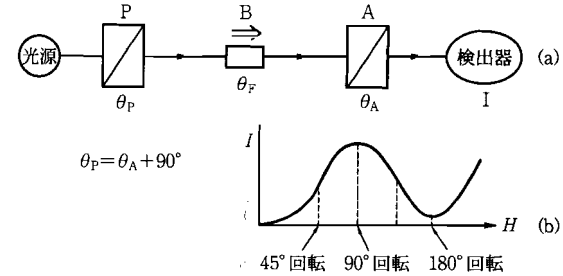


図 6-8 クロスニコル法.

I は、ファラデー回転を θ_F として、

$$I = I_0 \cos^2(\theta_P + \theta_F - \theta_A) \quad (6-43)$$

と表される。ここに θ_P , θ_A はそれぞれ偏光子と検光子の透過方向の角度を表している。直交条件では、 $\theta_P - \theta_A = \pi/2$ となるので、この式は

$$I = I_0 \sin^2 \theta_F = (I_0/2) (1 - \cos 2\theta_F) \quad (6-44)$$

となる。 θ_F が磁場 H に比例するとき、 I を H に対してプロットすると図 6-8(b) のようになる。 θ_F が 180° の整数倍のとき I は 0 になるはずであるが、実際には、楕円偏光性のために図のように右上がりの曲線となる。この方法は手軽であるが、回転角を精度よく評価する目的には適していない。このため、以下に述べるようなさまざまな変調法が考案されている。

b. 振動偏光子法

図 6-9 のように偏光子と検光子を直交させておき、偏光子を図のように

$$\theta = \theta_0 \sin pt \quad (6-45)$$

のように小さな角度 θ_0 の振幅で角周波数 p で振動させると、信号出力 I_D は、

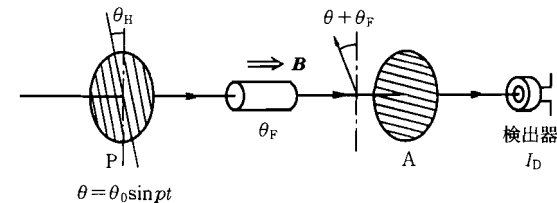


図 6-9 振動偏光子法.

$$\begin{aligned}
 I_D &\propto I_0 \sin^2(\theta + \theta_F) = (I_0/2) \{1 - \cos 2(\theta + \theta_F)\} \\
 &= I_0 \{1 - J_0(2\theta_0) \cos 2\theta_F\} / 2 \\
 &\quad - I_0 J_2(2\theta_0) \cos 2\theta_F \cdot \cos 2pt \\
 &\quad - I_0 J_1(2\theta_0) \sin 2\theta_F \cdot \sin pt
 \end{aligned} \tag{6-46}$$

となる。ここに、 $J_n(x)$ は n 次のベッセル関数である。 θ_F が小さければ、角周波数 p の成分が光強度 I_0 および θ_F に比例し、角周波数 $2p$ の成分はほぼ光強度 I_0 に比例するので、この比をとれば θ_F を測定できる。

c. 回転検光子法

図 6-10 に示すように、検光子が角周波数 p で回転するならば、 $\theta_A = pt$ と書けるので、検出器出力 I_D は、

$$\begin{aligned}
 I_D &= I_0 \cos^2(\theta_F - \theta_A) \\
 &= (I_0/2) \{1 + \cos 2(\theta_F - pt)\}
 \end{aligned} \tag{6-47}$$

と表されるので、角周波数 $2p$ の成分の位相のズレを位相検出形のロックインアンプによって測定すれば、 θ_F が求められる。フーリエ変換によって位相を求めることもできる。

d. ファラデーセル法

図 6-11 に示すように、ファラデーセルを用い直線偏光に

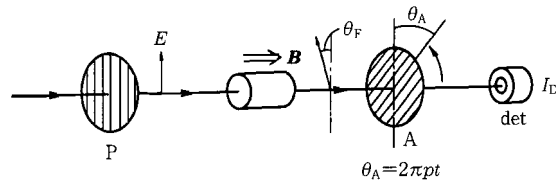


図 6-10 回転検光子法.

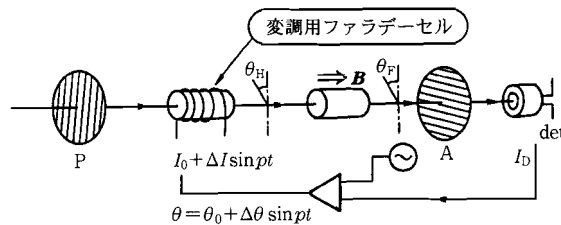


図 6-11 ファラデーセル法.

$$\theta = \theta_0 + \Delta\theta \sin pt$$

だけの回転を与える。ここに、 θ_0 は直流成分、 $\Delta\theta$ は角周波数 p の交流成分の振幅である。

このとき検出器出力 I_D は、

$$\begin{aligned}
 I_D &= I_0 \sin^2(\theta_0 - \theta_F + \Delta\theta \sin pt) \\
 &= (I_0/2) \{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F + \Delta\theta \sin pt)\} \\
 &= (I_0/2) \{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F) \cos(2\Delta\theta \sin pt) + \sin 2(\theta_0 - \theta_F) \sin(2\Delta\theta \sin pt)\} \\
 &\approx (I_0/2) \{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F) J_0(2\Delta\theta)\} \\
 &\quad + I_0 \sin 2(\theta_0 - \theta_F) J_1(2\Delta\theta) \sin pt \\
 &\quad - I_0 \cos 2(\theta_0 - \theta_F) J_2(2\Delta\theta) \cos 2pt
 \end{aligned} \tag{6-48}$$

となって、 p 成分の強度は $\sin(\theta_0 - \theta_F)$ に比例する。もし、この信号を 0 にするように ($\theta_0 = \theta_F$ となるように) ファラデーセルに流す電流の直流成分にフィードバックすると、この直流成分は回転角に比例する。この方法は、零位法なので精度の高い測定ができるという利点をもつが、コイルに流す直流電流による発熱によって、変調振幅がドリフトすること、試料に加える磁場をファラデーセルが感ずること、ベルデ定数の波長依存性のため、スペクトルの測定がむずかしいことなどの欠点もある。

6-4-2 楕円率の評価法

6-4-1 項に記した方法で楕円率を評価するためには、4 分の 1 波長板 (以下 $\lambda/4$ 板と略称する) を用いて楕円率角を回転に変換して測定する。以下には、その原理について述べる。

図 6-12 に示すように楕円率角 η [rad] の楕円偏光が入射したとすると、その電場は $E = E_0(\cos \eta i + i \sin \eta j)$ で表される。(i, j はそれぞれ x, y 方向の単位ベクトル) x 方向に光軸をもつ $\lambda/4$ 板を通すと、 y 方向の位相は 90° 遅れるので、出射光の電場は

$$E' = E_0(\cos \eta i + i \exp(-i\pi/2) \sin \eta j) = E_0(\cos \eta i + \sin \eta j) \tag{6-49}$$

となるが、これは、 x 軸から η [rad] 傾いた直線偏光を表している。したがって、入射楕円偏光の長軸の方向に $\lambda/4$ 板の光軸をあわせれば、6-4-1 項に述べたいずれかの回転角を測定する方法で楕円率角を測定できる。 $\lambda/4$ 板は、通常結晶の屈折率の異方性を用いているので、原則として波長ごとに変える必要がある。

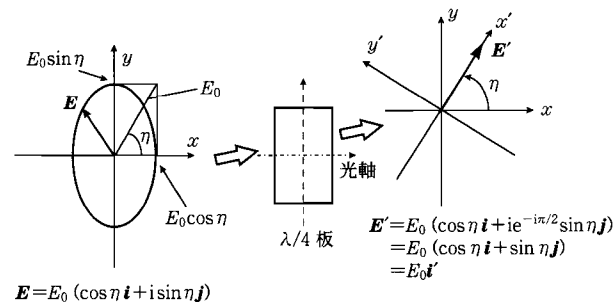


図 6-12 4分の1波長板による楕円率測定の様式図。

が、最近では、屈折率の分散を利用したアโครマティックなλ/4板も市販されている。

広い波長範囲で楕円率を測定するには、バビネソレイユ板とよばれる光学素子がある。これはくさび形の複屈折素子を2個使い、光路長をネジマイクロメータで調整することによって、位相差の調整ができるようになっている。波長にあわせて、順次マイクロメータを調整すれば、広い波長範囲を追跡できる。

しかし、楕円率を評価するのに最も適しているのは下記の方法である。

6-4-3 光学遅延変調法：回転角、楕円率角の同時測定^{[4],[15]}

図6-13のように偏光子のすぐ後にピエゾ光学変調器（商品名PEM=光弾性変調器）をおき、光学遅延（リターデーション）を変調する。偏光子の偏光角はPEMの光学軸と45°になるように、また、検光子の角度は光学軸と平行になるようにセットする。変調器による光学遅延δが

$$\delta = \delta_0 \sin pt$$

となるならば、光検出器の出力 I_0 は

$$I_0 = (I_0/2) \{1 + 2\eta_k \sin(\delta_0 \sin pt) - \sin 2\theta_k \cos(\delta_0 \sin pt)\} \quad (6-50)$$

$$\approx (I_0/2) \{1 - 2\theta_k J_0(\delta_0)\} + I_0 \cdot 2\eta_k J_1(\delta_0) \sin pt - I_0 \cdot 2\theta_k J_2(\delta_0) \cos 2pt$$

となり、 p 成分が楕円率に、 $2p$ 成分が回転角に比例する。変調器による複屈折の変調振幅を Δn とすると、 $\delta_0 = 2\pi \Delta n l / \lambda$ であるから、もし Δn が一定であれば、 δ_0 は波長依存性をもち、したがって、上式の $J_1(\delta_0)$ 、 $J_2(\delta_0)$ は波長依存性をもってしまふ。しかし、PEMでは、複屈折の変調振幅 Δn を外外部から電圧制

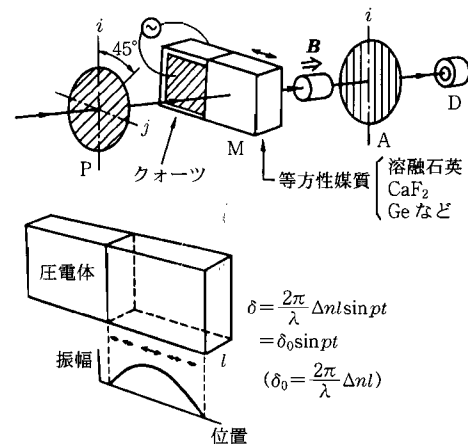


図 6-13 光学遅延変調法の原理図。

御できるので、 $0.2 \mu\text{m}$ から $2 \mu\text{m}$ の広範囲にわたって、光学遅延の変調振幅 δ_0 を一定に保つことができる。

この方法は、一つのセッティングによって回転角と楕円率の両者のスペクトルを広い波長範囲で測定できるので、便利な方法である。6-4-10項で詳述する磁気光学スペクトルの実例のほとんどはこの手法で測定されたものである。

6-4-4 ファラデー効果と電磁石

ファラデー効果を測定するには、磁場と光の進行方向が平行になるよう配置する。これをファラデー配置という。磁束密度数十mT (100 kOe) 以下の弱い磁場であれば空心ソレノイドを用いることができるが、100 mT ~ 2 T (1 ~ 20 kOe) の磁場を必要とする場合、磁極を貫通する孔をもった鉄心の電磁石を用いる。さらに強い磁場 (1 ~ 10 T (10 ~ 100 kOe)) が必要となるときには超伝導電磁石を用いる。数十 T の強磁場についてはパルス電磁石が用いられる。

6-4-5 磁気光学カー効果の光学素子の配置について

a. 極カー効果

極カー効果は垂直入射の反射についての磁気光学効果である。この測定のための最も簡便な方法は、図6-14(a)に示すようにハーフミラーを用いる方法で

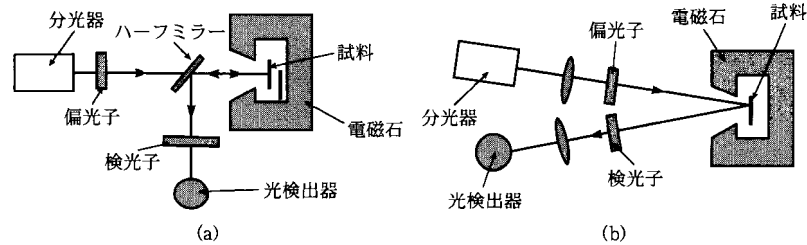


図 6-14 極カー効果の磁石配置。

ある。この方法は、入射光と反射光が同一軸上にあるので、磁極にあける孔は小さくてすむという利点をもつ。しかし、ハーフミラーを使って光を曲げるため、使用波長領域に制限があること、斜め反射されてくる光の偏光性が乱れるため、限られた波長領域でしか用いることができないなどの欠点がある。Crの蒸着ミラーを用いた場合、回転角の誤差を5%以内に抑えるには、波長範囲を400~800 nmに限らなければならない。He-Ne レーザの波長では、ハーフミラーを使用することによる誤差は1%以下である。

広い波長範囲にわたってカー効果を正確に測定するには、偏光子—変調器—試料—検光子の間の光路には、レンズ、ミラーなどの光学素子は一切挿入しないようにしなければならない。しかし、これを守ろうとすると、どうしても図6-14(b)に示すように、斜め入射の配置をとる必要がある。このことによる誤差は、斜め入射の場合の極カー効果を表す式(6-20)、すなわち、

$$\tan \Phi_K = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} = \frac{\epsilon_{xy} \cos \varphi_0}{\sqrt{\epsilon_{xx}} (\cos \varphi_0 + \sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_2}) (\cos \varphi_2 - \sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_0})}$$

$$= \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}} (1 + \sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_2 / \cos \varphi_0}) (1 - \sqrt{\epsilon_{xx} \cos \varphi_0 / \cos \varphi_2}) \cos \varphi_2}$$

がどの程度垂直入射の式(6-16)に近いかで評価できる。例として、磁性体の屈折率を2.5とすると、入射角 φ_0 を 6°, 8°, 10°, 12° と変えたとき $\cos \varphi_0$ は 0.9945, 0.9902, 0.9848, 0.9781, $\cos \varphi_2 = 0.9991, 0.9984, 0.9976, 0.9965$ となり、 $\cos \varphi_2 / \cos \varphi_0$ はそれぞれ、1.005, 1.008, 1.013, 1.019 となりこれを $1 + \Delta$ と置くと、上式は

$$\tan \Phi_K \approx \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}} (1 - \epsilon_{xx} + 2\sqrt{\epsilon_{xx} \Delta}) \cos \varphi_2}$$

$$\approx \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}} (1 - \epsilon_{xx}) (1 + 2\sqrt{\epsilon_{xx} \Delta} / (1 - \epsilon_{xx})) \cos \varphi_2}$$

と書くことができる。誘電率を10としたとき、入射角 φ_0 を 6°, 8°, 10°, 12° に対し計算すると、それぞれ 0.59%, 0.39%, 0.67%, 0.97% の誤差で垂直入射とみなせることがわかる。実用上入射角 10° 程度ならば 1% 以下の誤差で垂直入射とみなすことができる。

b. 縦カー効果

図6-15には、縦カー効果の測定のための斜め入射磁気光学スペクトル測定用の配置が示されている。縦カー効果は、磁性体が面内磁化をもつ場合に適しているので多くの磁性体薄膜の表面の磁化評価法としてよく用いられる。特に、高真空の成膜装置において in situ で磁化を観察する手段として用いられる。これを SMOKE (surface magneto-optical Kerr effect) と称する。

また、磁気ヘッドなどの磁化の状態を観測するための顕微鏡にも縦カー効果が用いられている。

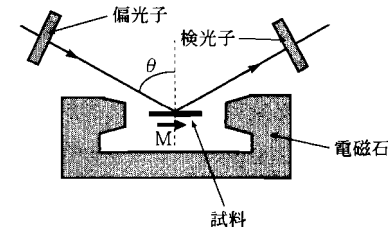


図 6-15 縦カー効果の磁石配置。

6-4-6 スペクトルの測定

図6-16に、磁気光学スペクトル測定系の模式図を示す。システムは、光源、分光器、偏光子、電磁石、クライオスタット、検光子、検出器から構成される。

光源としては、可視~赤外領域(400~2000 nm)にはハロゲンランプ、近紫外~可視~近赤外(200~1000 nm)には、キセノンランプを用いることができる。ハロゲンランプはスペクトル分布が平坦で、かつ、時間的に変動が少ない

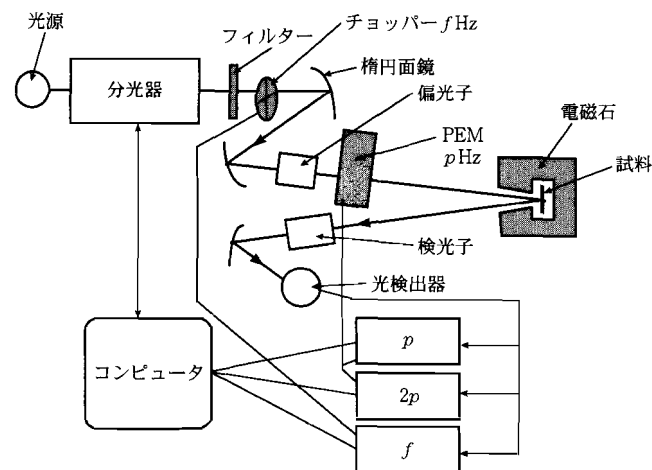


図 6-16 磁気光学スペクトル測定系原理図。

ので分光測定に適しているが、短波長の強度が弱いのが欠点である。キセノンランプは、波長 200 nm くらいの短波長でも十分な強度がとれるが、赤外部には輝線があるので、細かい測定をする場合、注意が必要である。キセノンランプには紫外光を出さないような窓材が使われているオゾンレスというタイプと広帯域用として売られている熔融石英窓を使ったものがあるので、注意が必要である。200 nm より短波長の測定には重水素ランプが使用される。このランプはたいへん強度が弱い、可視光の出力がほとんどないので、キセノンランプと違って、次に述べるような迷光の心配はない。

分光器は、測定する目的が高分解能を必要とする特殊な場合（たとえば、不純物として添加された希土類や遷移元素における多重項間の遷移の磁気光学効果）を除いて、分解能よりも明るさに重点を置いて選ぶ必要がある。焦点距離 25 cm 程度で、 f ナンバーが 3~4 のものが望ましい。また、キセノンランプを光源として紫外領域の測定を行う場合、シングルモノクロメーターでは迷光の可視光が強いため、誤った測定結果をもたらす心配がある。バンドパスフィルタを注意深く選択するか、ダブルモノクロメーターを使用することをお勧めする。また、回折格子のブレイズ波長より短波長側では、回折率が急に低下しているので測定に注意が必要である。紫外光のでる光源に長時間曝されると

回折格子、ミラーなどが劣化するので注意が必要である。

集光に用いる光学系は、測定波長範囲が狭いとき（たとえば、可視光領域 400~800 nm）はレンズで十分である。しかし、近紫外から近赤外に及ぶ広い波長範囲（たとえば、200~1000 nm）では色収差が大きく、焦点位置のずれは 1 cm 以上に達する。このような場合には楕円面鏡を用いるとよい。楕円面鏡は色収差がなく、像のゆがみも少ないという利点をもつが、高価であることが欠点である。また、きちんと調整しないと十分な性能を発揮しない。さらに、表面コーティング（通常、ふっ化マグネシウム）の厚みを正確に制御しないと、反射率が悪くなることもあるので要注意である。

偏光子の選択は、磁気光学効果の測定においては重要である。ポラロイド板などの二色性偏光子は、安価であること、狭い場所に挿入できることなどの利点があるが、消光比がせいぜい 1/100 程度なので、精密な測定には不向きである。また、使用できる波長範囲は異方性吸収帯の存在域に限られるためかなり狭い。

高い消光比を得るには、方位の異なるプリズム型の二つの複屈折結晶を貼りあわせた偏光子を用いる。最も、古くから知られているのはニコルプリズムとよばれるものであるが、現在はあまり使われない。近紫外—可視—赤外領域（300~2000 nm）で最もよく用いられるのは、方解石のグラントムソンプリズムである。この偏光子は、単像（一方の偏光のみ透過）で、視野角も比較的大きいので使いやすい。しかし、均質で大きな方解石の入手が困難なため、口径の大きなものは高価である。

250 nm より短波長では、方解石に含まれる不純物のために光が通らない。このため、石英やふっ化マグネシウムを用いたロションプリズムが使用される。この偏光子は複像であり、常光線と異常光線の分離角がかなり小さいため、不要な偏光を取り除くためのスリットなどが必要である。

光検出器は、紫外から近赤外までの範囲で、光電子増倍管（PMT）が用いられる。分光感度特性がなるべく広いものが望ましい。親和力を下げた半導体（GaAs, GaInAs など）を光陰極として有する PMT が特に広い波長特性をもつ。現在では 1.8 μm の赤外線まで使える PMT が市販されている。PMT の場合、光陰極と陽極の間にかかる電圧を増減することによって、感度を制御できるので、変調法の測定では、DC 成分が一定になるように、フィードバックをか

けて用いると、信頼性のある磁気光学信号が得られることが知られている。赤外領域に関しては、半導体のフォトダイオードが用いられるが、PMTに比べ有効なフィードバック方法がないため、光源の明るさを制御するなどの方法が採られることもある。フォトダイオードとしては、Si, Ge, InSb, CdHgTeなどが用いられている。

6-4-7 絶対値の較正について

ファラデーセルのような零位法による測定の場合には、フィードバックして0にするのに必要な電流とファラデーセルの回転角との関係をあらかじめ較正しておく必要がある。

光学遅延変調法の場合、回転角の較正には、試料のかわりに鏡をおき、検光子を45°回転して通常と同様に測定し、係数などのパラメーターを決定する方法^[4]や、検光子をわずかな角度回転したときの信号の変化をあらかじめ調べておき、それとの比較から決めるという方法が用いられる^[5]。また、楕円率の較正には、適当な厚みのサファイア板を使う。波長を変えた測定を行った場合、光学遅延が±90°のときに信号が正負のピークをもつことからその包絡線関数を較正に用いることができる^[6]。

6-4-8 磁気光学スペクトルから誘電率テンソルの非対角成分を求める方法

本項では、前項の測定によって磁気旋光角 θ と磁気楕円率角 η （または、磁気円二色性）が得られた場合に、誘電率テンソル（または導電率テンソル）の非対角成分のスペクトルを計算する方法について述べる。

巨視的に見た場合、磁気光学効果は誘電率テンソル（または導電率テンソル）の非対角成分に由来するが、6-2節の式(6-11)（ファラデー効果）および式(6-15)（カー効果）に示すように、複素旋光角 ϕ は誘電率テンソルの非対角成分 ϵ_{xy} だけでなく、対角成分 ϵ_{xx} にも依存する。

したがって、誘電率テンソルによる解析のためには、何らかの方法で光学定数 n, χ または、誘電率の対角成分 ϵ_{xx} の実数部および虚数部のスペクトルが必要である。

光学定数 n, χ のスペクトルを直接求める方法としては、分光エリプソメトリという方法がある。エリプソメトリというのは、斜め入射での反射の際に、p偏

光とs偏光が受ける光学的応答の違いを利用して、物質の光学定数を求める方法で、偏光解析ともよばれる。ある物質のp偏光に対するフレネル係数を r_p 、s偏光に対するそれを r_s とすると、 $r_p/r_s = \rho \exp i\Delta = \tan \Psi \exp i\Delta$ と書けるが、エリプソメトリ装置で直接測定できるのはこの Ψ と Δ である。入射角がわかるとこれらの値から計算によって光学定数を求めることができる。分光エリプソメトリは、この操作を波長を変えて行うものである。

市販の分光エリプソメーターのカバーする領域は800 nm（近赤外）～300 nm（近紫外）の狭い波長範囲である。これより広い波長範囲で光学定数を求めるためによく用いられるのが反射スペクトルのクラマース・クローニヒ解析から求める方法である。この方法は、測定した反射スペクトル $R(\omega)$ に適当な外挿を行って、クラマース・クローニヒの関係式、

$$\Delta\theta(\omega) = \frac{\omega}{\pi} \mathcal{P} \int_0^{\infty} \frac{\ln R(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad (6-51)$$

を用いて反射の際の位相変化（移相量） $\Delta\theta(\omega)$ を求め、 $R(\omega)$ と $\Delta\theta(\omega)$ から $n(\omega), \chi(\omega)$ を計算する。実際に測定されるエネルギー範囲は有限であるから、それ以上のエネルギーの範囲については外挿を行う。このパラメーターを適当に調節して分光エリプソメーターの実験値を再現するようにしている。

$$n(\omega) = \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega) + 2\sqrt{R(\omega)} \cos \Delta\theta(\omega)} \quad (6-52)$$

$$\chi(\omega) = \frac{2\sqrt{R(\omega)} \sin \Delta\theta}{1 + R(\omega) + 2\sqrt{R(\omega)} \cos \Delta\theta(\omega)}$$

このようにして求めた $n(\omega), \chi(\omega)$ を用いて、磁気旋光角 θ および楕円率角 η から ϵ_{xy} が次のように計算できる。ファラデー効果の場合、

$$\epsilon_{xy}' = -\frac{2c}{\omega l} (\chi\theta_F + n\eta_F) \quad (6-53)$$

$$\epsilon_{xy}'' = \frac{2c}{\omega l} (n\theta_F - \chi\eta_F)$$

極カー効果の場合、

$$\epsilon_{xy}' = n(1 - n^2 + 3x^2)\theta_K - x(1 - 3n^2 + x^2)\eta_K \quad (6-54)$$

$$\epsilon_{xy}'' = x(1 - 3n^2 + x^2)\theta_K + n(1 - n^2 + 3x^2)\eta_K$$

によって計算できる。

6-4-9 コットン・ムートン効果の測定^[7]

6-3節で述べたように、コットン・ムートン効果は、光の進行方向と磁場（磁化）の方向が垂直である場合の磁気光学効果である。この効果は、光学遅延（リターデーション）として現れる。

図6-17は、PEM（光弾性変調器）を用いた磁気複屈折の測定装置である。この測定装置は基本的には6-4-3項に述べた光学遅延変調法によるファラデー効果、磁気光学カー効果の測定法と同じである。偏光子の偏光角はPEMの光学軸と45°になるように配置する。違う点は、ファラデー効果の場合、検光子の角度は光学軸と平行になるようにセットしたのに対し、コットン・ムートン効果の場合は光学軸と45°の方向にセットすることである。

PEMによる光学遅延 δ が

$$\delta = \delta_0 \sin pt \quad (6-55)$$

で表されると仮定し、試料による光学遅延を δ_s と仮定するならば、光検出器の出力 I_0 は

$$I_0 = I_0 \{ 1 + \cos \delta_s \cos(\delta_0 \sin pt) - \sin \delta_s \sin(\delta_0 \sin pt) \} \approx I_0 + I_p \sin pt \quad (6-56)$$

ここに直流成分 I_0 および交流成分 I_p は

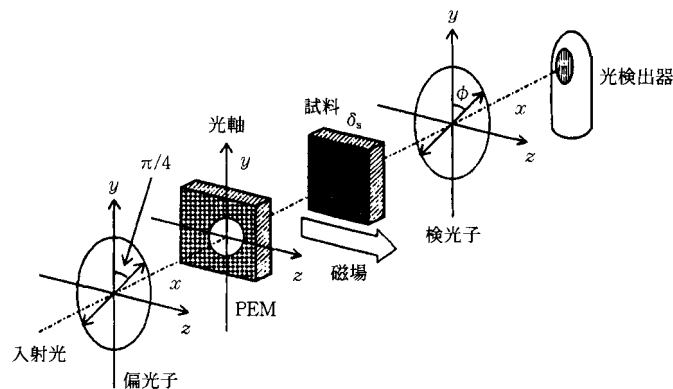


図6-17 コットン・ムートン効果測定系。

$$I_0 = 1 + J_2(\delta_0) \cos \delta_s \approx 1 + J_2(\delta_0) \quad (6-57)$$

$$I_p = -J_1(\delta_0) \sin \delta_s \approx -J_1(\delta_0) \delta_s$$

で表される。したがって、p成分と直流成分の比をとることによって光学遅延 δ_s が得られる。

6-4-10 磁気光学スペクトル測定と解析の実例

この項では、いくつかの物質で測定された磁気光学スペクトルとそれから計算された誘電率テンソルの非対角成分、または、導電率テンソルの非対角成分のスペクトルを示す。

a. 磁性半導体 CdCr_2Se_4 ^[8]

スピネル型結晶構造をもつ磁性半導体 CdCr_2Se_4 はキュリー温度 (130 K) 以下で大きな磁気光学効果を示す。したがって、磁気光学スペクトルの測定には低温での実験が必要である。低温でカー回転を測定しようとするとクライオスタットに用いる窓材のファラデー回転が短波長になるに従い増大し、測定したい試料のカー回転角より大きくなる場合があり信頼性のあるデータを得るのはたいへん難しい。これに対し、ガラスの磁気円二色性は試料の信号に比べ小さいので、カー回転角のスペクトルの測定はあきらめ、カー楕円率のスペクトルを測定しクラマース・クローニヒの変換によってカー回転角を求める方法

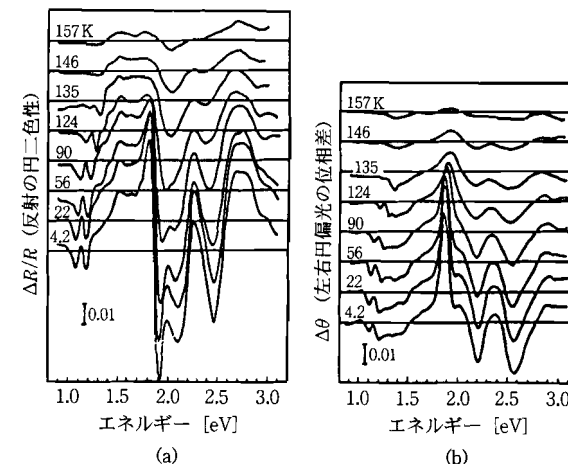


図6-18 磁性半導体 CdCr_2Se_4 の磁気光学スペクトルの温度依存性^[8]。

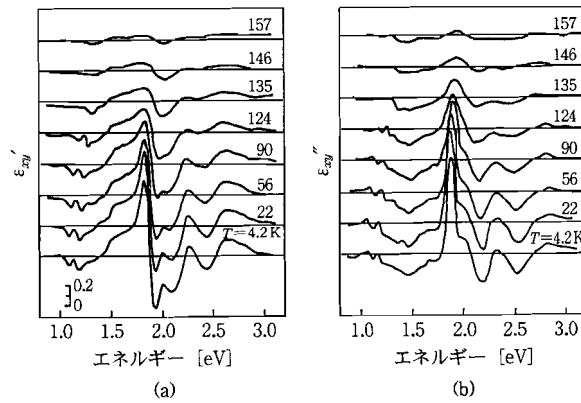


図 6-19 CdCr₂Se₄ の誘電率テンソルの非対角成分^[8].

をとることができる。図 6-18 の左図に示す $\Delta R/R (= -4\eta_K)$ はこのようにして測定した反射磁気円二色性スペクトルである。一方、右図の $\Delta\theta (= -2\Delta\theta_K)$ は $\Delta R/R$ よりクラマース・クローニヒ変換により求めたものである。図 6-19 には図 6-18 より計算によって求めた誘電率テンソルの非対角成分を示している。この計算に用いた光学定数は便宜上室温での反射スペクトルのクラマース・クローニヒ変換から求めたものを使っている。光学吸収端 (1.1 eV at 4.2 K) 付近の構造は温度の増大とともに高エネルギー側にシフトする。最も強い構造は 1.9 eV 付近に見られる。バンド構造との対応はまだ十分議論されていない。興味深いのはこの物質の磁気光学効果がキュリー温度以上でも見られていることである。これは近距離秩序がキュリー温度以上でも存在していることを示唆している。

b. CoS₂ の磁気光学スペクトル^[9]

パイライト構造をもつ一連の遷移金属ダイカルコゲナイドは、磁性および電気伝導性が原子あたりの 3d 電子数に大きく依存することで知られている。CoS₂ は金属伝導性を示す強磁性体でキュリー温度は 116 K である。CdCr₂Se₄ 同様、低温の磁気光学効果はカー楕円率についてののみ測定されカー回転はクラマース・クローニヒ変換によって求められた。図 6-20 は 4.2 K における磁気光学スペクトルである。非常に顕著なピークが 0.8 eV 付近に観測された。この物質の反射スペクトルには 0.8 eV 付近に反射率の急激な低下が見られ、伝導

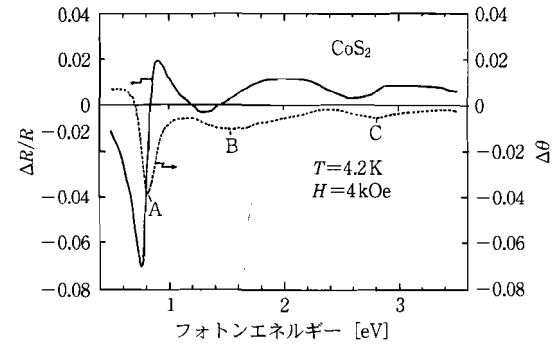


図 6-20 CoS₂ の 4.2 K における磁気光学スペクトル^[9].

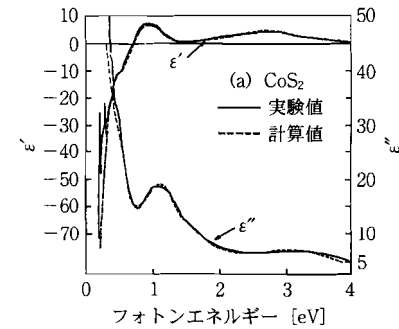
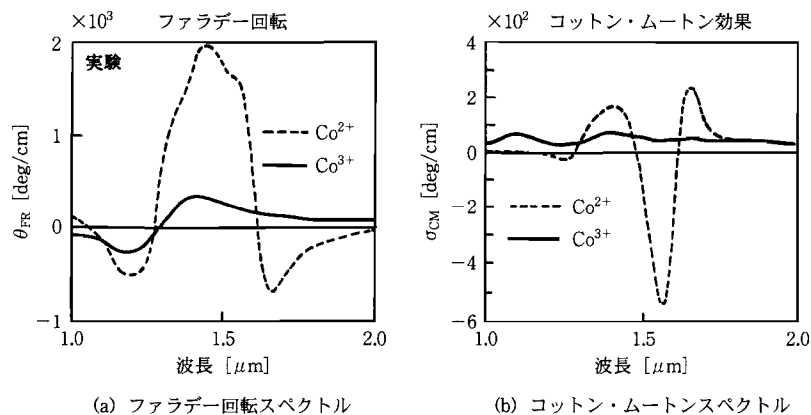


図 6-21 CoS₂ の誘電率テンソルの対角成分^[9].

電子のプラズマ共鳴があると考えられる。このため、磁気光学効果の構造は式 (6-15) の分母が小さくなることによってカー回転に見かけの極大を生じる Feil-Haas 効果ではないかと疑われたが、図 6-21 に示すように誘電率の実数部は 0 を横切るエネルギー位置で虚数部は 10 以上の値をもち式 (6-15) の分母は決して小さくないので真性の効果であることがわかる。バンド計算から $d\epsilon \rightarrow d\gamma$ -p 遷移がこの位置に現れると予想されており強い磁気光学効果はこの遷移によるとアサインされる。CoS₂ の磁気光学効果は、CdCr₂Se₄ とは異なり、キュリー温度以上で急速に消失する。この物質では近距離秩序が大きくないものと考えられる。

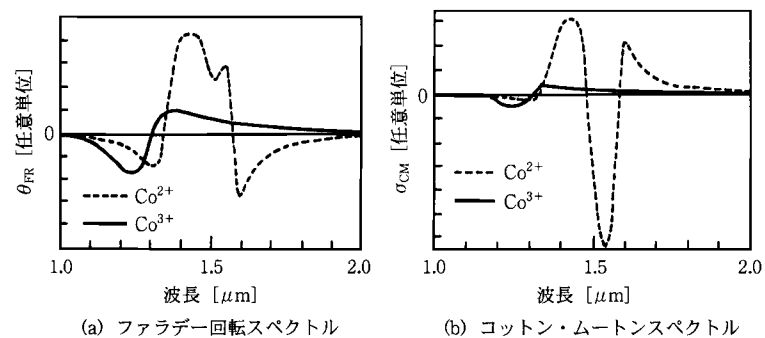
c. Co 添加磁性ガーネットのファラデー効果、コットンムートン効果^{[7],[10]}

磁性ガーネット R₃Fe₅O₁₂ はよく知られたフェリ磁性体で赤外域で透明で



(a) ファラデー回転スペクトル

(b) コットン・ムートンスペクトル

図 6-22 Co 添加磁性ガーネットの磁気光学スペクトルの実験結果^[9].

(a) ファラデー回転スペクトル

(b) コットン・ムートンスペクトル

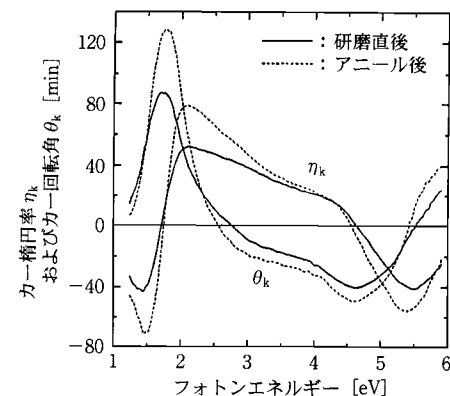
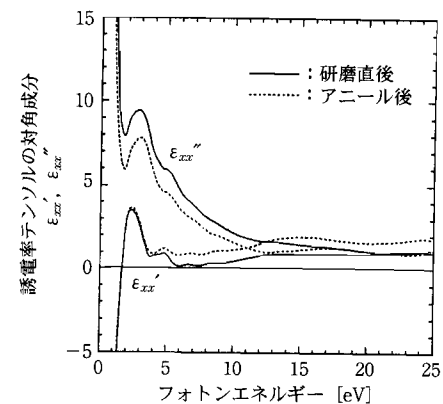
図 6-23 Co 添加磁性ガーネットの磁気光学スペクトルの理論解析^[10].

磁気光学効果を示すことから、光アイソレータ材料として用いられる。また、R のサイトを Bi で置換することにより磁気光学効果が大きく増強することが知られている。これらについては他の文献を参照いただくことにし、ここでは、筆者らの行った Co 置換 $Y_3Fe_5O_{12}$ エピタキシャル薄膜の磁気光学スペクトルについて示す。

図 6-22 (a) (b) は、それぞれ、 Co^{2+} および Co^{3+} 置換磁性ガーネットのファラデー効果およびコットン・ムートン効果のスペクトルを示している。品川らは、この系の電子構造を理論的に求め、それにもとづき磁気光学効果を計算し、図 6-23 のような結果を得た。計算は実験結果をよく再現している。

d. ホイスラー化合物 PtMnSb 単結晶の磁気カー効果

PtMnSb は立方晶のホイスラー化合物で、強磁性を示し、Buschow らの精力的な研究により大きな磁気光学効果をもつことが知られている^[11]。筆者らはブリッジマン法で作製した単結晶を用いて磁気光学効果の測定を行った^[12]。図 6-24 に示すように研磨したままの結晶に比べ、研磨後真空中でアニールした結晶のカー回転角は非常に増大しており、1.8 eV のピークにおいて 2° を越える大きな値をもつことがわかる。この試料の反射スペクトルからクラマース・クロ

図 6-24 PtMnSb 単結晶の磁気光学スペクトル^[12].図 6-25 PtMnSb 単結晶の誘電率テンソルの対角成分のスペクトル^[12].

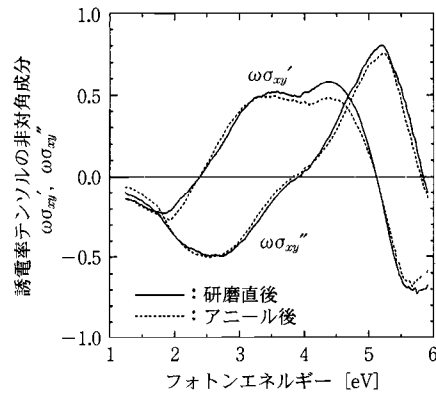


図 6-26 PtMnSb 単結晶の導電率テンソルの非対角成分のスペクトル^[12].

一ニヒ変換して得られた誘電率の対角成分のスペクトルを図 6-25 に示す。アニール前に比べアニール後のスペクトルは誘電率の虚数部が大幅に減少していることがわかる。このデータを使って求めた $\omega\sigma_{xy}$ (導電率テンソルの非対角成分に角周波数を乗じたもの) のスペクトルを図 6-26 に示す。 $\omega\sigma_{xy}$ のスペクトルはアニール前後でほとんど変化していないことがわかる。このことから、1.8 eV のピークは誘電率の対角成分の絶対値の減少によるエンハンス効果を反映していることが明らかになった。

e. Fe/Cu 組成変調多層膜の磁気光学効果

スパッタ法で交互に積層した層厚 t の比較的大きな Fe 層と Cu 層からなる

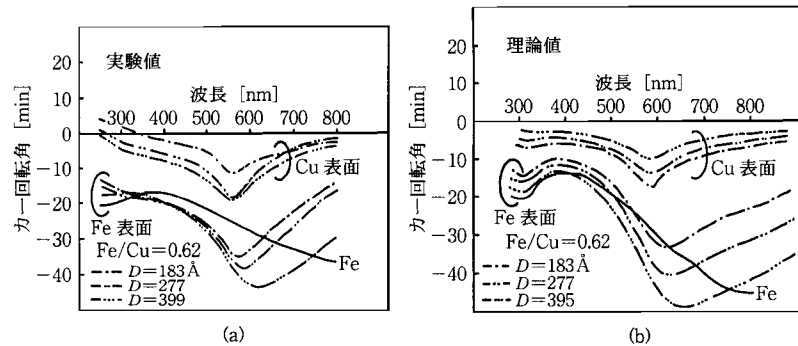


図 6-27 Fe/Cu 組成変調多層膜の、(a) 磁気光学スペクトル、(b) シミュレーション^{[13],[14]}.

多層膜の磁気光学カー効果のスペクトルが、片山らによって図 6-27(a) のように報告された^[13]。これによると、Fe/Cu の多層膜の磁気光学スペクトルは、Fe のみの膜のスペクトルと形状が異なっており、Fe 面からの測定では、Fe よりも大きくなることもある。このエンハンス結果は、現在では Cu の吸収端による誘電率変化がもたらすエンハンス効果として広く知られているが、発見当時は Fe によって Cu の界面に誘起された磁化が原因ではないかとも考えられ議論が巻き起こった。この効果が純粋に光学的な原因によることは、筆者らの仮想光学定数法^{*2}によるシミュレーションの結果(図 6-27(b))から明らかにされた^[14]。

f. Pt/Co, Pd/Co 人工格子の磁気光学効果

Pd および Pt、それぞれ、4d および 5d 遷移金属で、それ自身は磁性をもたないが、合金中で近接した磁性イオンとの相互作用により容易に磁気モーメントが誘起される元素であることが知られている。PtCo, PdCo とともに永久磁石材料として研究された物質であるが、面内磁気異方性のため、光磁気記録には向かないとされていた。Carcia らは、数 Å というきわめて薄い Pt と Co 層からなる人工格子を作製し、この膜が垂直磁気異方性をもち、かつ、短波長の磁気光学効果が大きいと報告した^[15]。しかしそのスペクトルは Co の膜とは異なり PtCo 合金のそれにきわめて類似していると報じた。筆者らは一連の Pt/Co および Pt/Fe の人工格子および合金において広い波長範囲の磁気光学スペクトルを測定し、仮想光学定数法による解析を行った結果、界面に 6~8 Å 程度の合金層ができると仮定すればスペクトルの形状および大きさを説明できることを明らかにした^[16]。図 6-28 は Pt₃Co₂ 合金および層厚の異なる Pt/Co 人工格子において測定された磁気光学カースペクトルである。図 6-29 は Pt/PtCo/Co/PtCo/Pt... というように界面に合金層を仮定した解析の結果、最もよく実験を再現した場合のシミュレーション結果である。仮定した界面合金層の厚みは、Pt(10 Å)/Co(5 Å), Pt(18 Å)/Co(5 Å), Pt(40 Å)/Co(20 Å) について、それぞれ、6.4 Å, 7.8 Å, 11 Å であった。X 線解析から得られた合金層厚は 2 原子

*2 屈折率の異なる 2 層からなる物質を実効的な 1 層の物質に置き換えるのが仮想光学定数法である。この操作を繰り返すことによって多層膜の実効的な屈折率を求めることができる。磁気光学効果を評価するには、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^- について同様の操作を行えばよい。

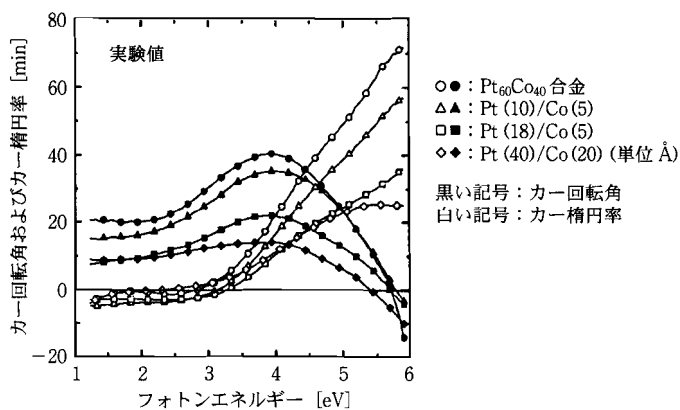


図 6-28 Pt/Co 人工格子のカースペクトル^[16].

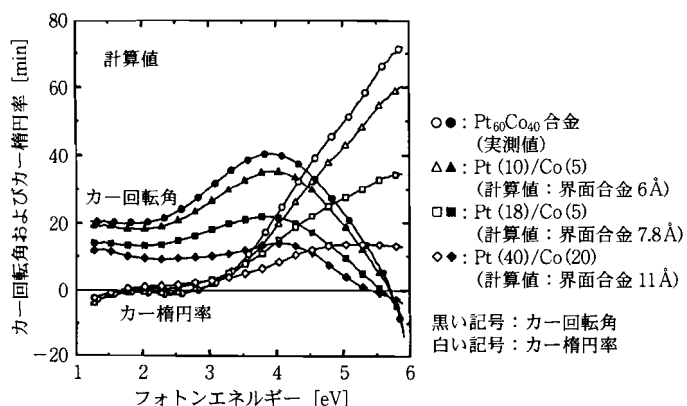


図 6-29 界面に PtCo 合金が形成されると仮定した場合のシミュレーション結果^[16].

層程度なので、これらの値は過大評価となっている。合金層の形成と Pt の磁気分極の効果とを分離することは難しい。

図 6-30 の実線は Pd(8 Å)/Co(4 Å) 人工格子の極カースペクトルである^[17]。同じ比率の PdCo 合金が界面に存在するとしてシミュレーションを行ったが、図 6-30 のスペクトルに示すように、どのような合金層厚を仮定しても実験を再現できない。そこで、Pd の比率の異なる合金の磁気光学スペクトルの変化から求めた仮想的な磁性 Pd のスペクトルを仮定してシミュレーションを行ったところ、スペクトルの形状を比較的良好に説明できることが明らかになっ

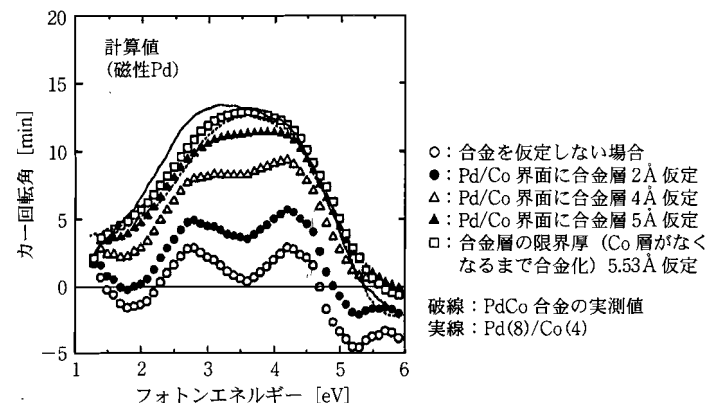


図 6-30 Pd/Co の磁気光学スペクトルと磁気 Pd の存在を仮定した場合のシミュレーション結果^[17].

た。

g. Au/Fe/Au サンドイッチ膜における量子井戸準位の形成と磁気光学効果の振動

鈴木らは、MBE 法で MgO 基板の上にエピタキシャル成長した Au(2000 Å) を下地として作製した Fe の超薄膜 ($d=2\sim 100$ Å) に Au の保護層 (20 Å) をつけたサンドイッチ構造において、Fe の層厚とともにシフトする磁気光学スペクトルの構造を発見した^[18]。その後、Fe 層をくさび形に作製することにより同じ成膜条件で Fe 層厚変化を正確に見ることができるようになった^[19]。図 6-31 に示すように磁気光学スペクトルには 3~5 eV に構造が観測され、層厚とともにピーク位置が移動することがわかった。詳細な解析からこの磁気光学構造は Fe の層内に閉じこめられた電子による量子準位に関係したものであることが明らかにされた。また、彼らは逆に Au 超薄膜に閉じこめられた少数スピン電子による量子準位に関係した遷移を観測している。特に、光のエネルギーを固定して Au 層厚を変化したときに、磁気光学効果が層厚とともに振動する現象を見だし、バンド計算で得られた k 空間の等エネルギー差面における停留ベクトルから求められる振動周期との対応が非常によいことを報告している。

h. [Fe(xML)/Au(xML)]_N 人工規則合金の磁気光学効果

高梨らは MBE 法により層厚が正確に制御された Fe(n ML)/Au(n ML) の

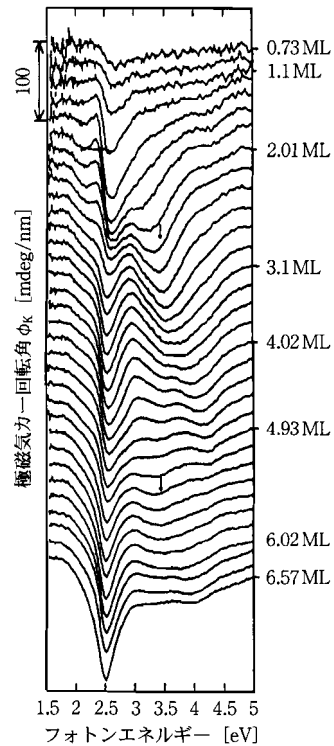


図 6-31 Fe 超薄膜の磁気光学スペクトル^[19].

人工格子を作製した。特に $n=1$ の場合に、自然界に存在しない $L1_0$ 構造の FeAu 規則合金ができていて、Fe1 原子あたりの磁気モーメントは、バルク Fe の $2.2 \mu_B$ に比べ大幅にエンハンスされ $2.75 \mu_B$ に達すること、膜は垂直磁気異方性を示すことを明らかにした^[20]。また、 n を増加したとき Fe の層厚 t と磁気異方性定数 K_u の積は直線に乗ること、格子定数は界面に Fe(1 ML)/Au(1 ML) 合金ができていて計算したものによく合うことなども報告している^[21]。筆者らは一連の Fe/Au 人工格子につき磁気光学スペクトルを測定し、図 6-32 のようなスペクトルを得た^[22]。層厚 n が小さいときの磁気光学スペクトルは $L1_0$ 構造の Fe/Au 人工格子のバンド計算から求められた磁気光学スペクトルとよく一致した。とくに、4 eV に見られる構造は Au の 5d バンドから Fe の少数スピンの 3d バンドへの遷移ではないかと推測している。一方、層厚 n が

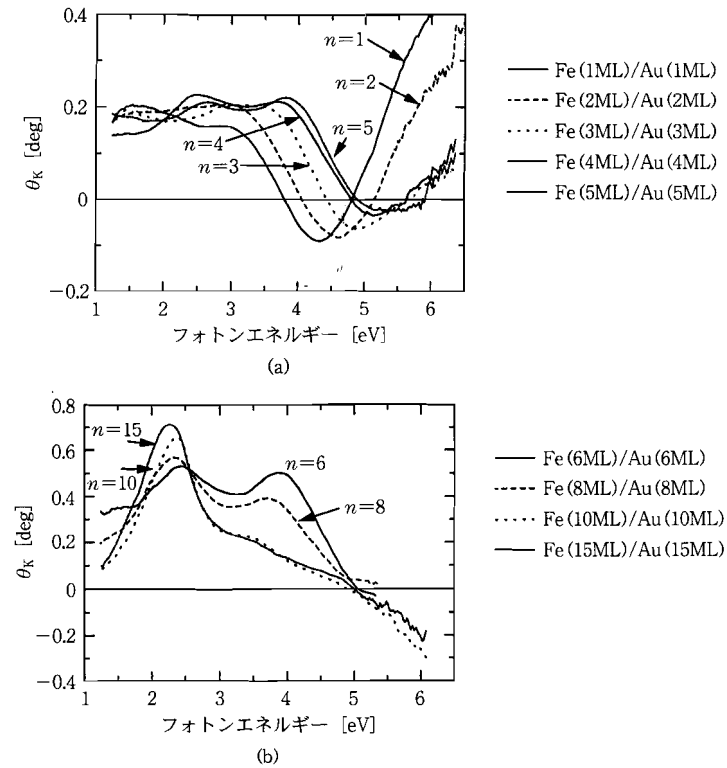


図 6-32 Fe(n ML)/Au(n ML) 人工格子の磁気光学スペクトル^[22]。(a) $n \leq 5$, (b) $n \geq 6$ 。

6, 8 付近では、前項に述べた量子閉じこめによるスペクトルとよく似たスペクトルが現れている。さらに n が大きくなった $n \geq 10$ のスペクトルは、バルク Fe, Au の光学定数を用いた光学シミュレーションでよく説明される。

6-4-11 発光の磁気光学スペクトル

絶縁性酸化物、半導体などに添加された遷移金属イオンや希土類イオンの電子状態の評価に発光の磁気光学効果が用いられることがある。磁性イオンにおける遷移強度が弱い場合でも明瞭な発光が観測される場合、吸収測定に比較して高感度で磁気光学効果を測定できるので、電子状態を容易に推定することができる。

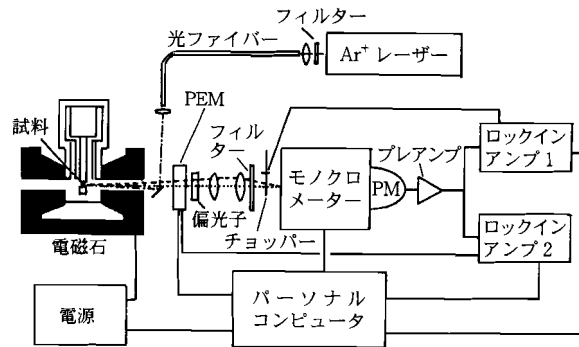


図 6-33 磁気円二色性発光スペクトルの測定装置.

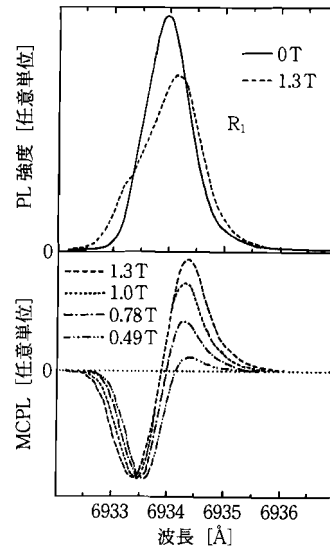
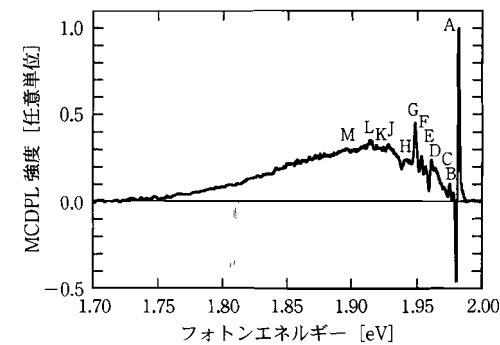
図 6-34 ルビー ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}$) 単結晶の磁気円二色性発光スペクトル^[23].

図 6-33 にルビー ($\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}$) の発光の磁気円二色性の測定系を模式的に示す。磁場中に試料を置き、アルゴンイオンレーザからの 514 nm 線を発光の励起光源として照射した。発光はレンズで集光し、光弾性変調器 PEM によって変調された直線偏光に変換され、偏光子を経て分光器のスリットに導かれた。このようにして測定したルビーの発光の磁気円二色性スペクトルを図 6-34 に掲げる^[23]。同じ装置を用いて、測定された $\text{CaS}:\text{Eu}^{2+}$ の発光の磁気円二色性スペクトル

図 6-35 $\text{CaS}:\text{Eu}^{2+}$ の磁気円二色性発光スペクトル^[24].

ルが図 6-35 に示されている^[24]。

6-5 多磁区構造のカーヒステリシスループと磁化曲線

磁気光学カー効果を用いて磁化曲線を評価することはしばしば行われている。しかし、観測されたカー回転は本当に磁化 M を反映しているのだろうか。この疑問に対して初めて定量的な扱いを提示したのは、沼田らであった^[25]。以下では、彼らの取扱いを紹介しておく。多磁区材料では、磁区ごとの磁気光学効果は多くの場合印加磁場に関わらず一定であり磁区の体積のみが変化する。しかし、多磁区試料の場合一つの磁区内で $\Theta_F = (M/M_s)\theta_F$ が成立したとしても、多磁区全体での偏光は、一様な偏光方向をもつわけではないので、多磁区試料の見かけの磁化 M を用いて単純に $\Theta_F = (\bar{M}/M_s)\theta_F$ とするわけにはいかない。多磁区材料においては磁区による光の回折の効果を考えなければならない。

図 6-36 に示すような縞状磁区で回折される場合を考える。この多磁区材料の見かけの磁化 \bar{M} は、 $+M_s$ の磁区の幅を w 、正負一周期の長さを p として、

$$\bar{M} = M_s(2w - p)/p \quad (6-58)$$

で与えられる。

光は縞状磁区で回折され、 $n=0, 1, 2, \dots$ の次数の回折光となって散乱される。偏光角が θ となるのは 0 次回折光のみで、1 次以上の回折光の偏光方位は 90° となる。0 次および n 次回折光の光量 $I^{(0)}$ および $I^{(n)}$ 、偏光方向 $\theta^{(0)}$ および $\theta^{(n)}$

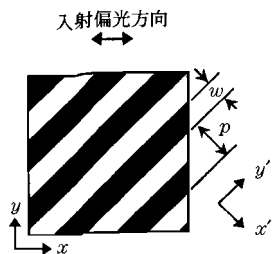


図 6-36 縞状磁区 (模式図).

はそれぞれ次式で表される.

0 次光については,

$$I^{(0)} = \cos^2 \theta_F + \left(\frac{\bar{M}}{M_s}\right)^2 \sin^2 \theta_F \tag{6-59}$$

$$\theta^{(n)} = \tan^{-1} \left\{ \left(\frac{\bar{M}}{M_s}\right)^2 \tan \theta_F \right\}$$

であり, n 次光については,

$$I^{(n)} = \frac{8}{n^2 \pi^2} \sin^2 \left\{ \frac{n\pi}{2} \left(1 + \frac{\bar{M}}{M_s}\right)\right\} \sin^2 \theta_F \tag{6-60}$$

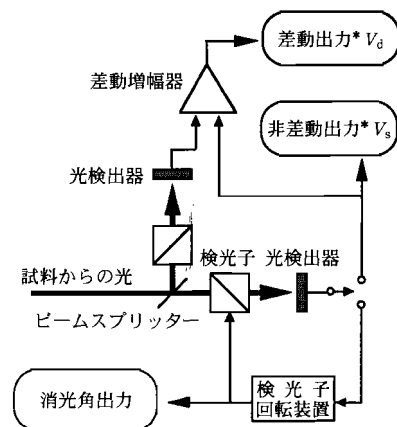
$$\theta^{(n)} = \frac{\pi}{2}$$

である.

ファラデーローブの観測法として直交検光子法 (消光法) と固定検光子法とがあるが, 固定検光子法には, さらに非差動法と差動法に分けることができる. 図 6-37 にはこれらの方法がまとめて示されている.

表 6-1 は, これらの三つの場合に観測された信号が磁化のどのような関数になっているかを示したものである. 消光法において測定量が正確に磁化に比例するのは, 単磁区の場合のみで, 多磁区の場合には, 見かけの磁化 \bar{M} の非線形関数になる. 一方, 非差動形固定検光子系では, 測定された信号は, $0 \sim \infty$ のすべての次数の回折光を用いた場合のみ見かけの磁化 \bar{M} に比例する成分が得られ, その他の場合は非線形関数となる. これに対して, 差動形固定検光子法では, 多磁区試料のすべての場合について, 多磁区の見かけの磁化 \bar{M} に比例する出力を得る.

差動構成は, 測定における信号対雑音比の改善を目的として広く用いられる



*検光子はこの条件でのセッティングとなっている.

図 6-37 ファラデーローブ測定法のまとめ.

表 6-1 観測された信号の磁化に対する関数型

	固定検光子法		消光法 (EX)
	非差動出力 (SFA)	差動出力 (DFA)	
0 次光検出 ($N=0$)	SFZ $V_s^z = \frac{1}{2} \left(\cos \theta_F + \frac{\bar{M}}{M_s} \sin \theta_F \right)^2$	DFZ	EXZ $\phi^z = \tan^{-1} \left(\frac{\bar{M}}{M_s} \tan \theta_F \right)$
0 ~ N 次光検出	SFN $V_s^{(n)} = V_s^z + \frac{1}{2} \sum_{n=1}^N I^{(n)}$	DFN $V_d^z = V_d^{(n)} = V_d^r = \frac{\bar{M}}{M_s} \sin 2\theta_F$	EXN * 下記参照
実像検出 ($N=\infty$)	SFR $V_s^r = \frac{1}{2} \left(1 + \frac{\bar{M}}{M_s} \sin 2\theta_F \right)$	DFR	EXR $\phi^r = \frac{1}{2} \tan^{-1} \left(\frac{\bar{M}}{M_s} \tan 2\theta_F \right)$
単一磁区	SFS $V_s = \frac{1}{2} \left\{ 1 + \sin \left(\frac{2M}{M_s} \theta_F \right) \right\}$	DFS $V_d = \sin \left(\frac{2M}{M_s} \theta_F \right)$	EXS $\phi = \frac{M}{M_s} \theta_F$

が, 結果的にこの方法は, ヒステリシスループ測定において, 磁化曲線と同じ形状の曲線を得る方法として好都合であることが明らかにされた.

6-6 非線形磁気光学効果^[26]

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 (SHG) 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づけられた。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る。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。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。紙数の制限のため、ここでは理論的背景を省略し、非線形磁気光学効果の測定法と結果の一部を紹介するにとどめる。詳細は筆者の解説^[27]を参照されたい。

図 6-38 は Rasing らが実験に用いている非線形磁気光学効果測定のための光学系である^[26]。光源はアルゴンレーザー励起のモードロックチタンサファイアレーザーで、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

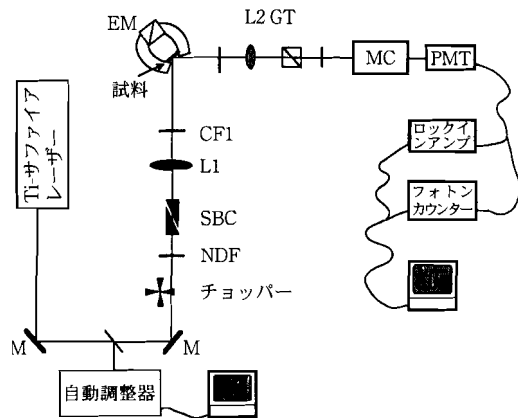


図 6-38 非線形磁気光学効果の測定系模式図。

は 835 nm で 1.3 W である。レーザー光量はニュートラルデンシティフィルター NDF によって調整される。偏光方向はバビネ板を $\lambda/2$ 板として用いることにより任意の方向に設定される。レーザービームはレンズ 1 によって試料上に 50 μm 程度のスポットに絞られる。色フィルター 1 は 570 nm より短い波長をすべてカットすることにより、試料以外の光学素子で生成された 2 次高調波を取り除く。試料は電磁石の磁極の間におかれ縦カー配置 (入射面内に平行に磁場を印加) または横カー配置 (入射面に垂直にの磁場を印加) をとる。垂直磁化をもつ場合には極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、フィルターの選択が非常に重要な意味をもつ。図では 1 次光を取り除くために色フィルター 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ーとロックインアンプの組み合わせ、または、フォトンカウンティング法を使っている。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。ここでは一例として Fe 超薄膜の巨大非線形カー効果を紹介するにとどめる。

Rasing らは、スパッター法で作製した Fe/Cr 膜において非線形磁気光学効果を測定した^[28]。測定には先に述べた測定系を使用した。図 6-39 は縦カー効果 (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_+ と M_- の二つの

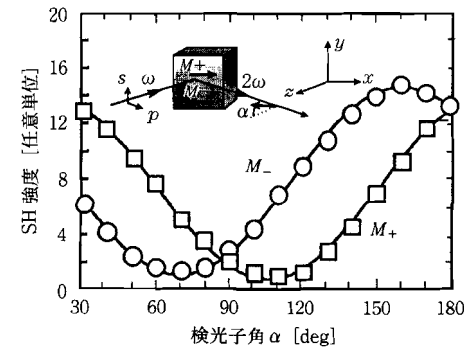


図 6-39 Fe 超薄膜の非線形磁気光学効果^[28]。

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。

最近、筆者らは MgO 基板にエピタキシャル成長した Fe/Au 人工格子において磁気 SHG の出力が試料の方位角に対し 4 回対称のパターンを示すことを得ている^[29]。

6-7 近接場磁気光学顕微鏡

光をレンズによって集光するとき、回折限界のためそのスポット径 d は $d = 0.6 \lambda / N_A$ 以下にすることができない。ここに N_A はレンズの開口数とよばれ $n \sin \alpha$ で表される。 α は焦点からレンズの開口を見込む角の半分である。

これに対して、近接場光を用いることにより波長の数分の1以下の高解像度を得ようとする方法が開発された^[30]。これは光ファイバーの先を細く引き延ばし、開口の大きさを波長の数分の1にしたプローブを用い、プローブの先端からエバネセント場に置かれた物質からの散乱を観測する方法である。

プローブの試料表面からの高さの制御には、プローブを振り子のように振動させてシアフォースとよばれる力を検出することによりアクチュエーターに帰還をかける方法、プローブを曲げて AFM のカンチレバーとして用い、振動させながら光格子で力を検出して帰還をかける方法などがある。近接場法で磁気光学効果を測定するには、光ファイバーを偏光が乱されず通過する必要があるが、

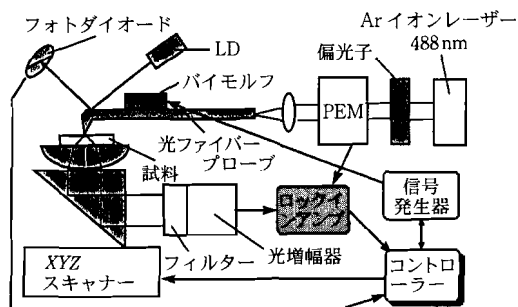


図 6-40 PEM を用いた近接場磁気光学顕微鏡の構成図。

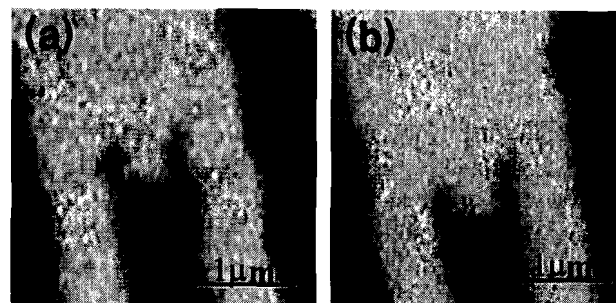


図 6-41 近接場磁気光学顕微鏡による Pt/Co 光磁気ディスクのビット形状観察。(a) 階円率像, (b) カー回転像。

一般にさまざまな理由によって直線偏光は楕円偏光となるため偏光子を組み合わせただけでは十分なコントラストがとれない。筆者は図 6-40 に示すような PEM を用いた近接場磁気光学顕微鏡を開発した^[31]。この方法によって測定した Pt/Co 人工格子膜に光磁気記録されたビットの像を図 6-41 に示す。透過の構造をとると試料内での散乱によって解像度が低下するので、反射光を測定するための装置の開発が検討されている。

6-8 おわりに

この章では、磁気光学効果について、基礎および実験法、実験結果、さらには、最近の展開について触れた。ここでは、大きな流れを理解していただければ幸いである。それぞれの詳細については専門書および原論文を参照されたい。

《文献》

- [1] 佐藤勝昭：光と磁気（朝倉書店、1988）。
- [2] 近 桂一郎（桜井良文編）：光マイクロ波磁気光学（丸善、1975）。
- [3] 佐藤勝昭ほか：光磁気ディスク材料（工業調査会、1993）。
- [4] K. Sato: Jpn. J. Appl. Phys. **20** (1981) 2403.
- [5] K. Sato, H. Hongu, H. Ikekame, Y. Tosaka, M. Watanabe, K. Takanashi and H. Fujimori: Jpn. J. Appl. Phys. **32** (1993) 989.
- [6] G. A. Osborne, J. C. Cheng and P. J. Stephans: Rev. Sci. Instrum. **44** (1973)

- 10.
- [7] 佐藤勝昭, 阿萬康知, 玉野井健, 齊藤敏明, 品川公成, 対馬立郎: 日本応用磁気学会誌 **13** (1989) 157.
- [8] K. Sato and T. Teranishi: *Nuovo Cimento* **2D** (1983) 1803.
- [9] K. Sato: *J. Phys. Soc. Jpn.* **51** (1982) 2955.
- [10] K. Shinagawa, K. Tamanoi, T. Saito, Y. Aman, K. Sato and T. Tsushima: *J. Phys. (France)* **49** C 8 (1988) C 8-959.
- [11] P. G. van Engen, K. H. J. Buschow, R. Jongebreur and M. Erman: *Appl. Phys. Lett.* **42** (1983) 202.
- [12] K. Sato, H. Ikekame, H. Hongu, M. Fujisawa, K. Takanashi and H. Fujimori: *Proc. 6th Int. Conf. Ferrites (ICF 6) Tokyo and Kyoto 1992*, p. 1647.
- [13] T. Katayama, H. Awano and N. Koshizuka: *J. Phys. Soc. Jpn.* **55** (1986) 2539.
- [14] K. Sato, H. Kida and T. Katayama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27** (1988) L 237.
- [15] P. F. Carcia: *J. Appl. Phys.* **63** (1988) 5066.
- [16] K. Sato, H. Hongu, H. Ikekame, J. Watanabe, K. Tsuzuki, Y. Togami, M. Fujisawa and T. Fukazawa: *Jpn. J. Appl. Phys.* **31** (1992) 3603.
- [17] Y. Tosaka, H. Ikekame, K. Urano, S. Kurosawa, K. Sato and S. C. Shin: *J. Magn. Soc. Jpn.* **18** (1994) 384.
- [18] Y. Suzuki, T. Katayama, S. Yoshida, K. Tanaka and K. Sato: *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) 3355.
- [19] Y. Suzuki, T. Katayama, A. Thiaville, K. Sato, M. Tanioka and S. Yoshida: *J. Magn. Magn. Mater.* **121** (1993) 539.
- [20] K. Takanashi, S. Mitani, M. Sano, H. Fujimori, H. Nakajima and A. Osawa: *Appl. Phys. Lett.* **67** (1995) 1016.
- [21] K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori and K. Sato: *J. Magn. Magn. Mater.* **177-181** (1998) 1199.
- [22] K. Sato, E. Takada, M. Akita, M. Yamaguchi, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori and Y. Suzuki: *J. Appl. Phys.* **86** (1999) 4985.
- [23] K. Sato, M. Hirai and T. Tamaki: *J. Phys. Soc. Jpn.* **61** (1992) 3803.
- [24] S. Kijima, K. Sato and T. Koda: *J. Lumines.* **55** (1993) 187.
- [25] 沼田卓久, 棚池博行, 井口征士, 桜井良文: 日本応用磁気学会誌 **14** (1990) 642; 棚池博行, 沼田卓久, 井口征士, 桜井良文: 日本応用磁気学会誌 **14** (1990) 648.
- [26] Th. Rasing: *Nonlinear Magneto-optics for Magnetic Thin Films; Notions and Perspectives of Nonlinear Optics*, ed. by O. Keller (World Scientific, Singapore, 1996) p. 339.

- [27] 佐藤勝昭: 日本応用磁気学会 **21** (1997) 879.
- [28] Th. Rasing, M. Groot Koerkamp and B. Koopmans: *J. Appl. Phys.* **79** (1996) 6181.
- [29] K. Sato, S. Mitani, K. Takanashi, H. Fujimori, A. Kirilyuk, A. Petukhov and Th. Rasing: *J. Magn. Soc. Jpn.* **23** (1999) 352.
- [30] E. Betzig, J. K. Trautmann, R. Wolfe, E. M. Gyorgy, P. L. Finn, M. H. Kryder and C. H. Chang: *Appl. Phys. Lett.* **61** (1992) 142.
- [31] T. Ishibashi, T. Yoshida, A. Iijima, K. Sato, Y. Mitsuoka and K. Nagajima: *J. Microscopy* **194** (1999) 374.