

12.6 磁気光学材料

12.6.1 磁気光学効果の基礎

磁気光学効果は物質の光学応答が磁化に依存する効果の総称である。磁気光学効果は、電子準位間の光学遷移を通じて磁性体における量子状態を比較的強く反映している。特にこのことは磁気光学スペクトルに強く現れる。以下では、電磁気学に基づいて磁気光学効果の現象論を概説した後、古典電子論および量子論に基づく微視的立場で磁気光学効果の起源を説明する。詳細は参考書にゆずりたい¹⁾。

a. 磁気光学効果の現象論

(1) ファラデー効果

ファラデー効果は、ファラデー配置(磁化ベクトル M の向きと、光の波動ベクトル k とが平行であるような配置)をとったときの物質の磁化に基づく旋光性(直線偏光の傾きが回転する効果)と円二色性(直線偏光が楕円偏光になる効果)の総称である。ファラデー効果は、磁化をもつ物質の左右円偏光に対する応答に違いがあると生じる。

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。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異なっておれば両者を合成した軌跡は、入射光の偏光方向から傾いた直線偏光となっている。その傾きをファラデー回転 θ_F と呼ぶ。この値は、

$$\theta_F = -\frac{\theta_R - \theta_L}{2} = -\frac{\Delta\theta}{2} \quad (1)$$

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(左右円偏光に対する振幅の差)があると、軌跡は楕円偏光となる。楕円率 η_F は、

$$\eta_F = \frac{|E_R| - |E_L|}{|E_R| + |E_L|} \quad (2)$$

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。

次式のように複素旋光角 Φ_F を定義すると式の取り扱いが簡単になる。

$$\Phi_F = \theta_F + i\eta_F \quad (3)$$

すると、式(1)(2)をまとめて、

$$\Phi_F \approx i \frac{E_R - E_L}{E_R + E_L} \quad (4)$$

と書くことができる。ここに E_R および E_L はそれぞれ右円偏光、左円偏光の複素振幅を表している。

右円偏光および左円偏光に対する複素屈折率をそれぞれ N_+ 、 N_- とすると、(4)は次式のように書き換えられる。

$$\Phi_F \approx -\frac{\omega(N_+ - N_-)\ell}{2c} = -\frac{\pi\Delta N\ell}{\lambda} \quad (5)$$

ここに $\Delta N = N_+ - N_-$ 、 ℓ は波長、 ℓ は試料の長さである。

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

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

で表される。ここに ϵ_0 は真空の誘電率で、 $\tilde{\epsilon}$ は比誘電率と呼ばれ、2階のテンソルで表される。

等方性媒質が z 方向の磁化を持つとき、その比誘電率 $\tilde{\epsilon}$ は次式のテンソルで表される。

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

ここに、対角成分は磁化 M の偶数次、非対角成分は M の奇数次のべきで表され、

$$\begin{aligned} \epsilon_{xx} &= \epsilon_{xx}^{(0)} + \epsilon_{xx}^{(2)} M^2 + \dots \\ \epsilon_{xy} &= \epsilon_{xy}^{(1)} M + \epsilon_{xy}^{(3)} M^3 \end{aligned} \quad (8)$$

で与えられる。非対角成分がファラデー効果に寄与し、対角成分はコットンムートン効果に寄与する。

この比誘電率を持った媒質を進む電磁波の伝搬は、次式のようなマクスウェルの方程式(Maxwell's equation)で記述することができる。

$$\text{rot rot } E(\omega) + \frac{\tilde{\epsilon}(\omega)}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(\omega) = 0 \quad (9)$$

この式に(7)式で表される誘電率テンソルを代入し、いま、光の電界、磁界ベクトルとして $\exp\{-i\omega(t-Nx/c)\}$ の形の時間・空間依存性を仮定して、固有方程式を作る。これを解くと、複素屈折率 $N(=n+i\kappa)$ の固有値として、次の2つのものを得る。

$$N_{\pm}^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy} \quad (10)$$

これらの2つの固有値 N_+ 、 N_- に対応する電磁波の固有解は、それぞれ、右円偏光、左円偏光であることが導かれる。もし、 $\epsilon_{xy} = 0$ であれば、 $N_+ = N_-$ となり、左右円偏光に対する媒質の応答の仕方が等しいこととなり光学活性は生じない。従って、 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。(5)式より、複素旋光角 Φ_F 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(9)から

$$\Delta N = N_+ - N_- \approx i \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}}}$$

を求め(4)式に代入して

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

が得られる。これより、 θ_F 、 η_F は、

$$\theta_F = -\frac{\pi\ell}{\lambda} \cdot \frac{\kappa\epsilon'_{xy} - n\epsilon''_{xy}}{n^2 + \kappa^2} \quad (12)$$

$$\eta_F = -\frac{\pi\ell}{\lambda} \cdot \frac{n\epsilon'_{xy} + \kappa\epsilon''_{xy}}{n^2 + \kappa^2}$$

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、 $\epsilon_{xx} = (n + i\kappa)^2$ を用いた。)

(2) 磁気カー効果

反射の磁気光学効果は、磁気カー効果と呼ばれる。磁化の向きが反射面に垂直で、光が面に垂直に入射する場合を極カー効果、に示すように磁化の向きが反射面内にある、かつ入射面に平行であるような場合を縦磁気カー効果、磁化の向きが反射面内にある、かつ入射面に垂直であるような場合を横磁気カー効果と呼ぶ。

はじめに、極磁気カー効果を考える。垂直入射の場合の右円偏光および左円偏光に対する振幅反射率は

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

によって表すことができる。

磁気カー一回転角 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一回転 Φ_K は、

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

で与えられる。この式に(13)を代入し、次式を得る。

$$\Phi_K = -i\frac{1}{2}\ln\left(\frac{(N_- - 1)/(N_- + 1)}{(N_+ - 1)/(N_+ + 1)}\right) \approx \frac{\varepsilon_{xy}}{(1 - \varepsilon_{xx})\sqrt{\varepsilon_{xx}}} \quad (15)$$

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、分母に来る対角成分 ε_{xx} にも依存することが分かる。金属のプラズマ端では $\varepsilon_{xx} = 0$ となるがこのとき Φ_K は大きな値をとることがある。これをプラズマエンハンスメントと呼んでいる。

次に、縦カー効果を考える。いま、入射光がp偏光で、入射面と反射面との交わる線をz軸とする。磁化はz軸に平行であるとする。法線の方向をxとする。入射角 φ_0 とし、界面を透過した光の屈折角 φ_2 とすると、複素カー一回転角 Φ_K は 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、反射s偏光成分が現れる比率を表し、 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。誘電テンソルを用いて、

$$r_{pp} = \frac{\sqrt{\varepsilon_{xx} \cos \varphi_0 - \cos \varphi_2}}{\sqrt{\varepsilon_{xx} \cos \varphi_0 + \cos \varphi_2}} \quad (16)$$

$$r_{sp} = \frac{\varepsilon_{xy} \cos \varphi_0 \sin \varphi_2}{\varepsilon_{xx} \cos \varphi_2 (\sqrt{\varepsilon_{xx} \cos \varphi_2 + \cos \varphi_0}) (\sqrt{\varepsilon_{xx} \cos \varphi_0 + \cos \varphi_2})}$$

によって与えられるⁱⁱ。 φ_0 と φ_2 の間にはスネルの法則が成立する。すなわち、

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

一方、横磁気カー効果は、縦磁気光学効果と異なり、磁化の方向を逆にしても偏光の傾きには変化を生じないが、反射光の強度に変化が生じる効果である。

(3) コットンムートン効果

コットンムートン効果は光の進行方向と磁界とが垂直な場合（フォークト配置）の磁気光学効果で、磁化に平行な偏光に対する屈折率と垂直な偏光に対する屈折率とに違いが生じることにより、光学遅延（リターデーション）を生じる。簡単のため $\varepsilon_{xy} = 0$ として光学的遅延 δ を計算すると

$$\delta = \omega(N_1 - N_2)\ell/c = \omega(\sqrt{\varepsilon_{xx}} - \sqrt{\varepsilon_{zz}})\ell/c$$

$$= \frac{\omega\ell}{2c} \frac{(\varepsilon_{xx}^{(2)} - \varepsilon_{zz}^{(2)})M^2}{\sqrt{\varepsilon_{xx}^{(0)}}} \quad (17)$$

となり、磁化の2乗に比例することがわかる。

b. 磁気光学効果の微視的起源

磁気光学効果をもたらす誘電率の非対角成分を、ローレンツ力のもとでの古典力学の運動方程式を用いて計算すると、磁界Bがz軸方向に印加されているとして、

$$\varepsilon_{xy} = i \frac{\omega_p^2 \omega_c \omega}{(\omega^2 + i\gamma\omega - \omega_0^2)^2 - \omega^2 \omega_c^2} \quad (18)$$

を得る。ここに、 $\omega_p^2 = ne^2/m^* \varepsilon_0$ 、 $\omega_c = eB/m^*$ で表される。半導体の赤外領域でのマグネトプラズマ共鳴などは、このような古典的な取り扱いでよく説明できる。し

かし、強磁性体における磁気光学効果は非常に大きく、 10^4T というような異常に大きな磁界が働いていると仮定しなければ説明できない。

強磁性体に見られる大きな磁気光学効果を説明したのは、量子力学の成果である。時間に依存する摂動論に従って、 ε_{xx} 、 ε_{xy} を計算すると、

$$\varepsilon_{xx} = 1 + \frac{Ne^2}{m\varepsilon_0} \sum \frac{(f_x)_{mn}}{\omega_{mn}^2 - (\omega + i\gamma)^2}$$

$$\varepsilon_{xy} = -i \frac{Ne^2}{2m\varepsilon_0} \sum \frac{\omega_{mn} \{(f_+)_{mn} - (f_-)_{mn}\}}{\omega(\omega_{mn}^2 - (\omega + i\gamma)^2)}$$
(18)

という分散式で記述できる。ここに、 N は関与する電子の数、 e は電荷素量、 m は電子の有効質量、 f_x はx方向の直線偏光に対する電気双極子遷移の振動子強度、 f_+ 、 f_- はそれぞれ右および左円偏光に対する電気双極子遷移の振動子強度、 ω_{mn} は状態 $|n\rangle$ と状態 $|m\rangle$ の間の遷移エネルギー、 γ は状態の寿命の逆数である。(18)の第2式が磁気光学効果の量子的起源を与える。

スピン軌道相互作用の存在によって右円偏光による遷移と左円偏光による遷移のエネルギーが異なるような2遷移系では、磁気光学効果のピーク値はスピン軌道相互作用の大きさと、平均振動子強度に比例する。このことが磁気光学材料探索のための指針を与える。

12.6.2 磁気光学材料

磁気光学効果は、光磁気ディスクの再生、光通信用アイソレータの非相反素子、磁界センサなどとして用いられる。

a. 光磁気ディスク材料

MO（光磁気ディスク）、MD（ミニディスク）においては、記録媒体として主としてTbFeCoなどの希土類遷移金属(RE-TM)合金薄膜が用いられる。MOディスクは、記録溝が刻まれたポリカーボネート基板の上にSiNなどの誘電体膜、光磁気(MO)膜、誘電体膜、アルミニウム膜を積層した多層構造をとっている。誘電体膜は、酸化しやすいRE-TM膜の保護と、多重反射による磁気光学効果増強の2つの目的を兼ねている。アルミニウムは、反射層としての働きとヒートシンクとしての働きを兼ねている。RE-TM合金においては遷移金属(TM)のモーメントは強磁性にオーダーし、希土類(RE)のモーメントはTMと反強磁性的に結合しており、全体としてフェリ磁性的性質をもつ。MO膜としては面に垂直な磁気異方性をもつ膜が使われる。キュリー温度は 200°C 前後、補償温度は室温付近である。記録は、レーザーによりキュリー温度以上に加熱し、冷却の際に外部磁界の方向に配向させる。室温まで冷却すると補償温度付近で磁化が小さくなるので保磁力も増加し記録マークは安定である。読み出しは磁気光学効果を用いるが、誘電体膜による増強後の回転角が 2° 程度である。RE-TM膜の磁気光学効果は長波長域ではTMから、短波長域ではREから生じている。REとして軽希土類を使うと短波長の磁気光学効果が増大する。次世代材料としてPt/Co人工格子などが研究されている。

b. 光アイソレータ材料

光ファイバ通信において、線路からの戻りビームが半導体レーザーに入射すると大きな雑音源となる。これを防ぐために光を一方通行にするものが光アイソレータである。偏光方向の互いに 45° 傾いた2つの偏光子の間に、光透過性の磁性材料を置き、ファラデー回転角がちょうど 45° になるように試料の長さを調整する。磁性体とし

ては Bi 置換希土類鉄ガーネットが最もよく用いられる。磁性ガーネットはフェリ磁性体で、磁気光学効果は 2.5eV 付近にある酸素→鉄の電荷移動遷移によって生じる。希土類の一部を Bi で置換すると、置換量にほぼ比例してファラデー回転が増加する。通常は永久磁石を用いて、光の進行方向に平行に磁性体が飽和するのに十分な磁界を印加する。磁性ガーネットは、主として 1300nm-1500nm の赤外領域で用いられるが、800nm 付近にも透過波長領域があるので用いることができる。一方、磁性ガーネットが不透明な可視光域や 900nm 付近では、CdMnTe, CdHgMnTe などの希薄磁性半導体を用いることができる。これらの磁性半導体は自発磁化を持たないので、強い磁界を印加する必要がある。

c. 磁界センサ材料

送電用電力ケーブルなどの高圧線路の電流を測定する方法として磁気光学効果を用いる方法が知られている。偏光子・磁気光学素子・偏光子の組み合わせのセンサヘッドに光ファイバーを使って光を送り、光ファイバーを使って読み出す。電磁的な雑音に強く、かつ安全な電流測定方法として電力会社等で利用されている。磁性体としては磁性ガーネットが用いられるが、時には、光ファイバーの磁気光学効果を用いる場合もある。

ⁱ 佐藤勝昭：光と磁気（朝倉書店，東京，1988）

ⁱⁱ C.C. Robinson: J. Opt. Soc. Amer. 53, 681 (1963)