阪大基礎工・固体物理セミナー

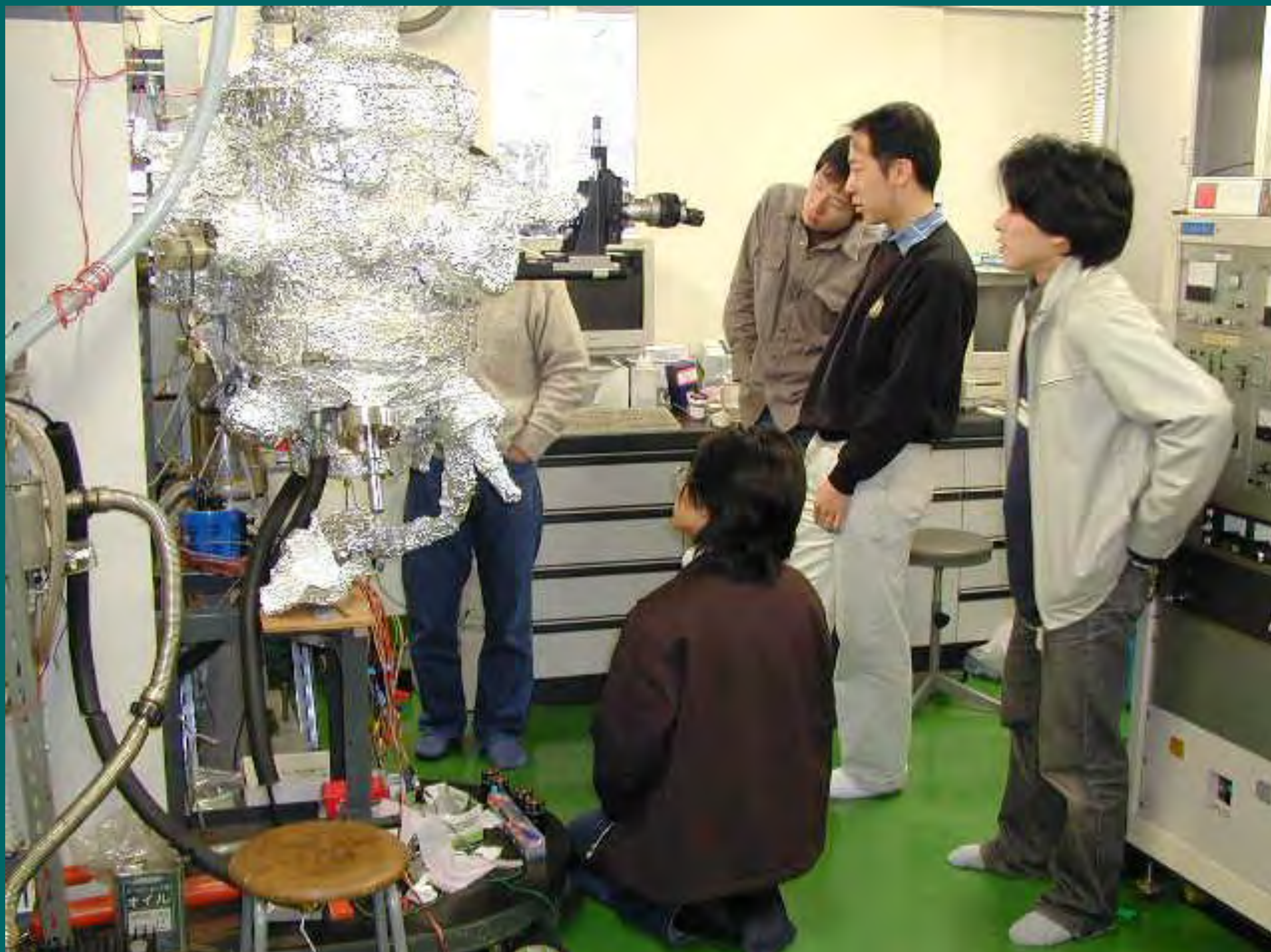
# 磁気光学効果の最近の展開
## ―非線形磁気光学効果を中心に―

東京農工大学
佐藤勝昭

# 内容

1. 非線形磁気光学効果
2. 近接場磁気光学効果

# 実験室風景:もの作り系1



- MBE装置を使って酸化物高温超伝導体や磁性半導体の薄膜を作製します。

# 実験室風景:
# もの作り系2

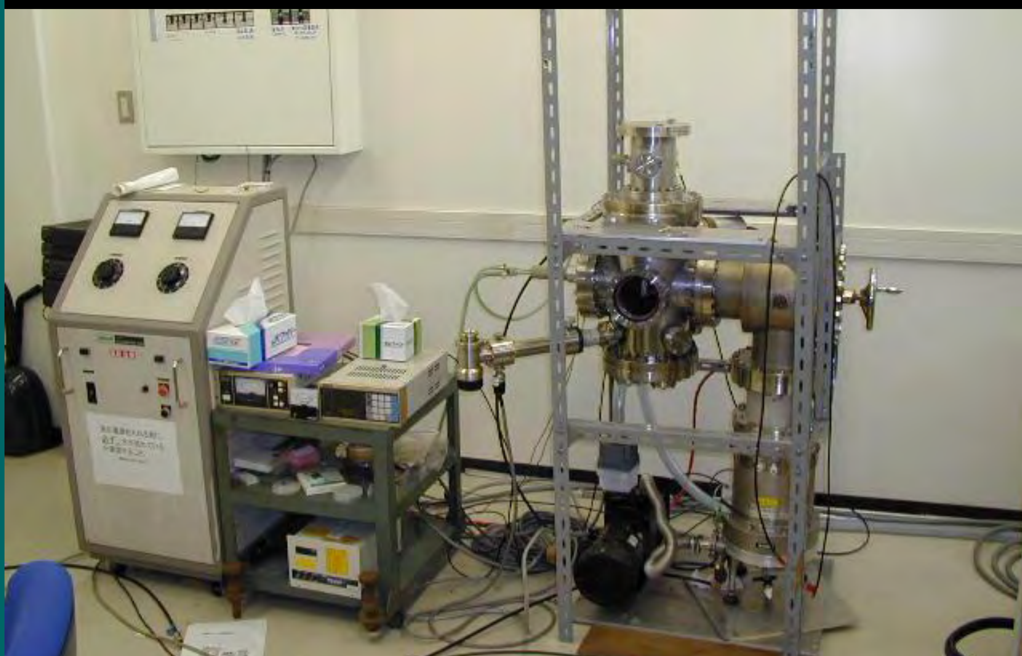
- 電子ビームリソグラフィや
- 集束イオンビーム装置

を使って磁性体ナノ構造を作っています。

# 実験室風景：もの作り系3

スパッタ法や電子ビーム蒸着法で磁性体薄膜を作ります。

電子ビーム蒸着装置↓



RFマグネトロンスパッタ装置↑

# 実験室風景:評価系1

←VSM装置で物質の磁化を測定します。

- 磁気光学スペクトル測定装置を使って磁性体の電子構造などを調べています。→

# 実験室風景：評価系2

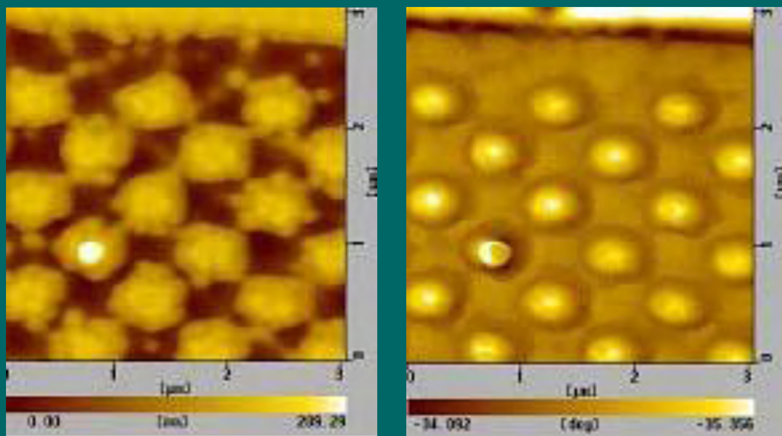

- AFMやSEMを使ってナノメートル領域の表面を観察します。

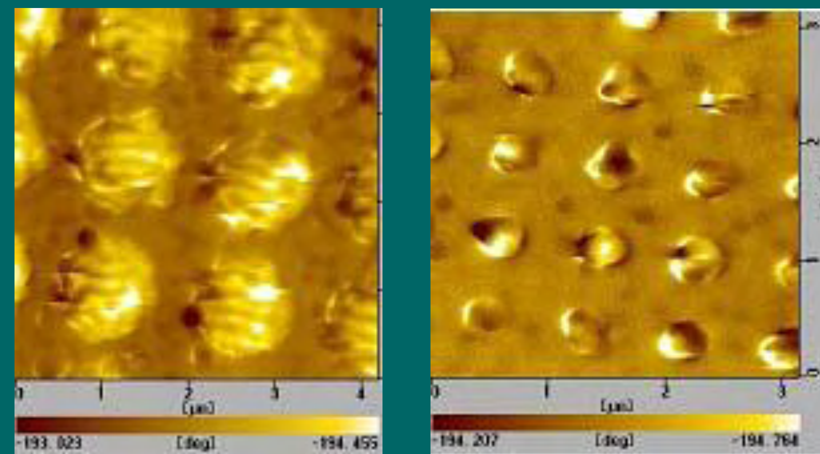
VBLにあるFE・SEM

# 実験室風景：評価系3

- 100フェムト秒という超短パルスレーザを用いて非線形磁気光学の実験をしています。

# ナノサイズ加工

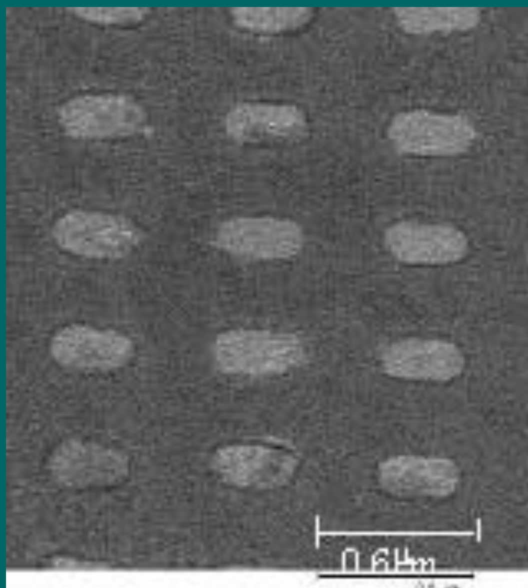


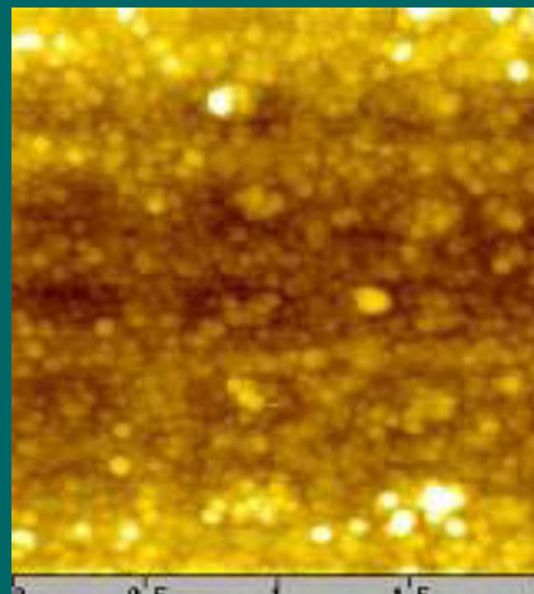


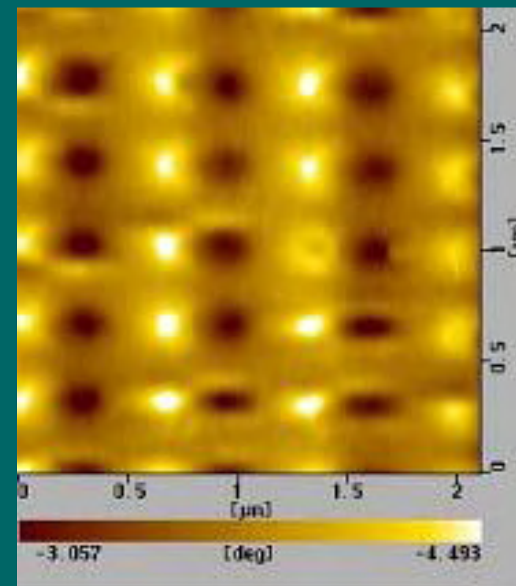
- CoCrPt
  AFM/MFM

- Co　MFM
- 1μm, 0.3μm

# ナノサイズ加工(2)

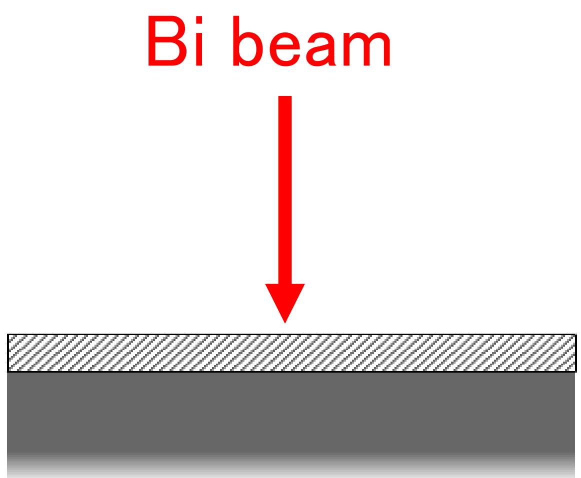



- EBリソを用いてDamascene法でSiに埋め込んだPermalloyドット(100nm×300nm 深さ100nm)

# 作製プロセス･条件



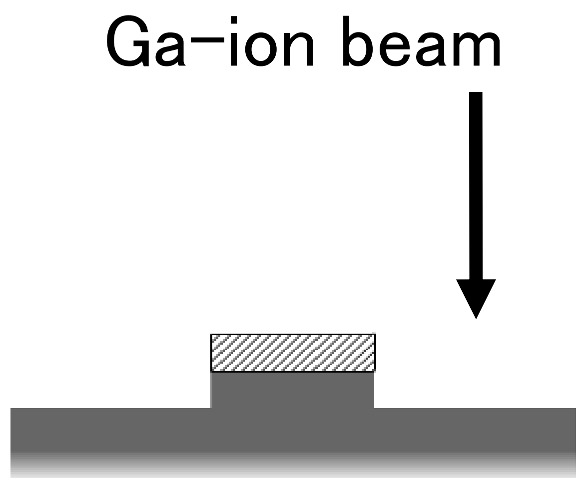

## Bi保護膜の蒸着

Growth Rate

0.13Å/sec.

Thickness

100 – 150nm



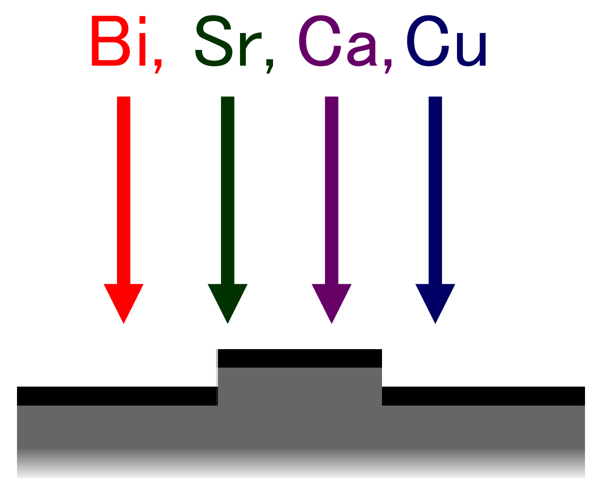

## FIBによる加工

Diameter of Ga Beam

50nm

Depth of grooves

0.5μm




## MBEによる成膜

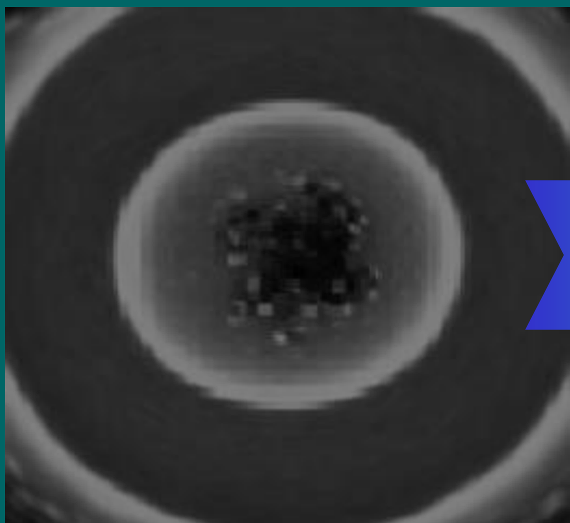
Growth Rate

0.42Å/sec.

Thickness

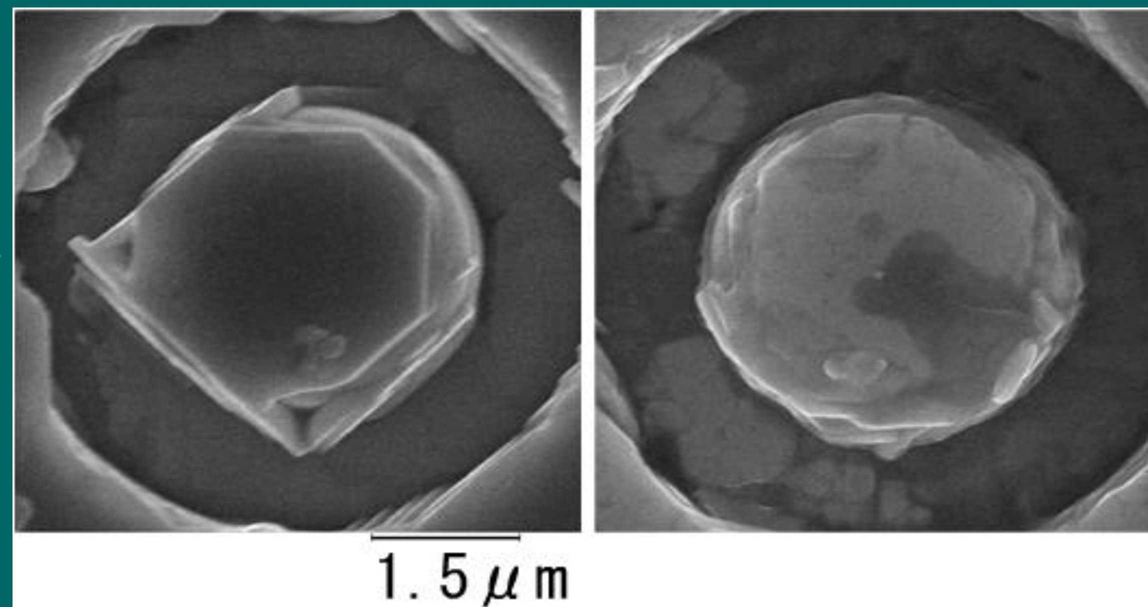
150nm

# ファセット成長



成膜前

BSCCO
evaporation
by MBE



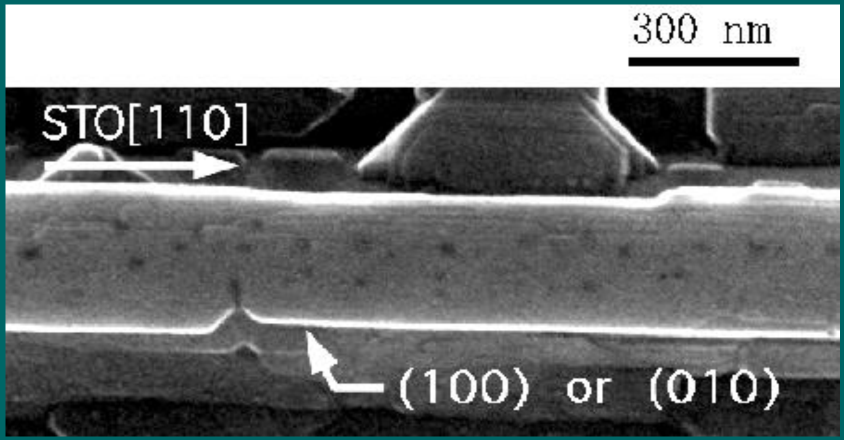

2212相

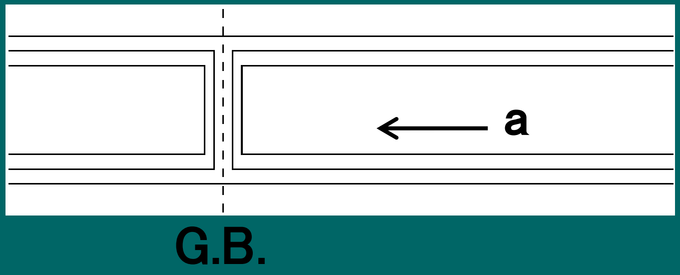
2223相

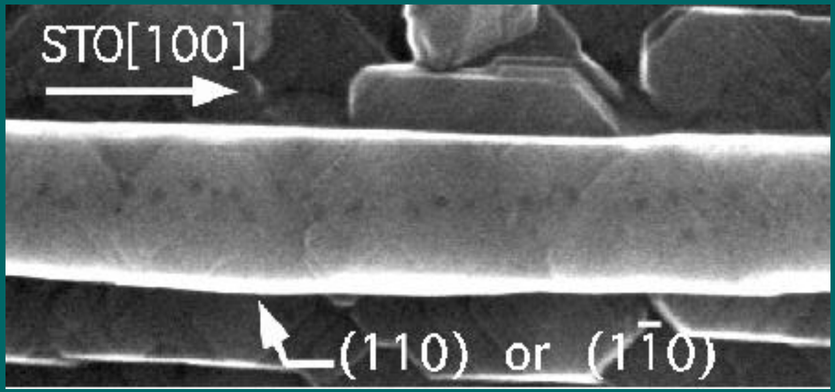
[100]
[010]
$SrTiO_3$

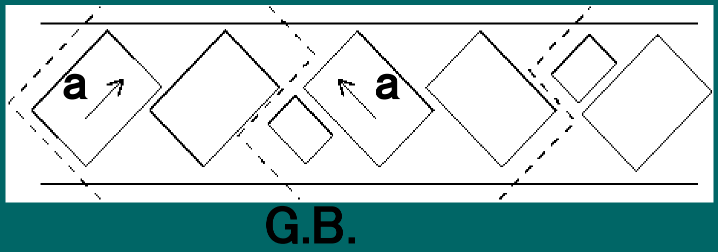
[010]
[100]
BSCCO

# ラインパターン



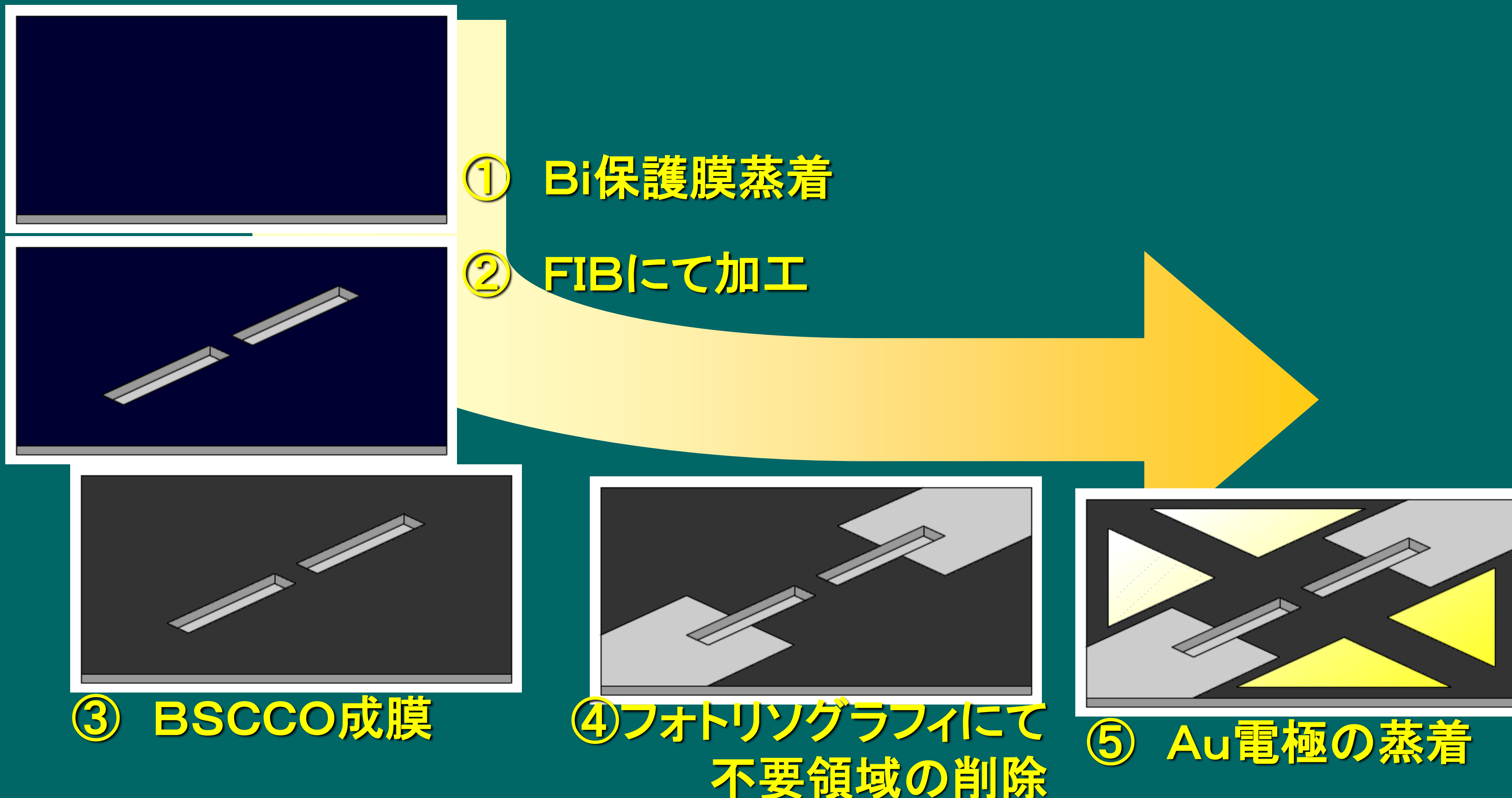



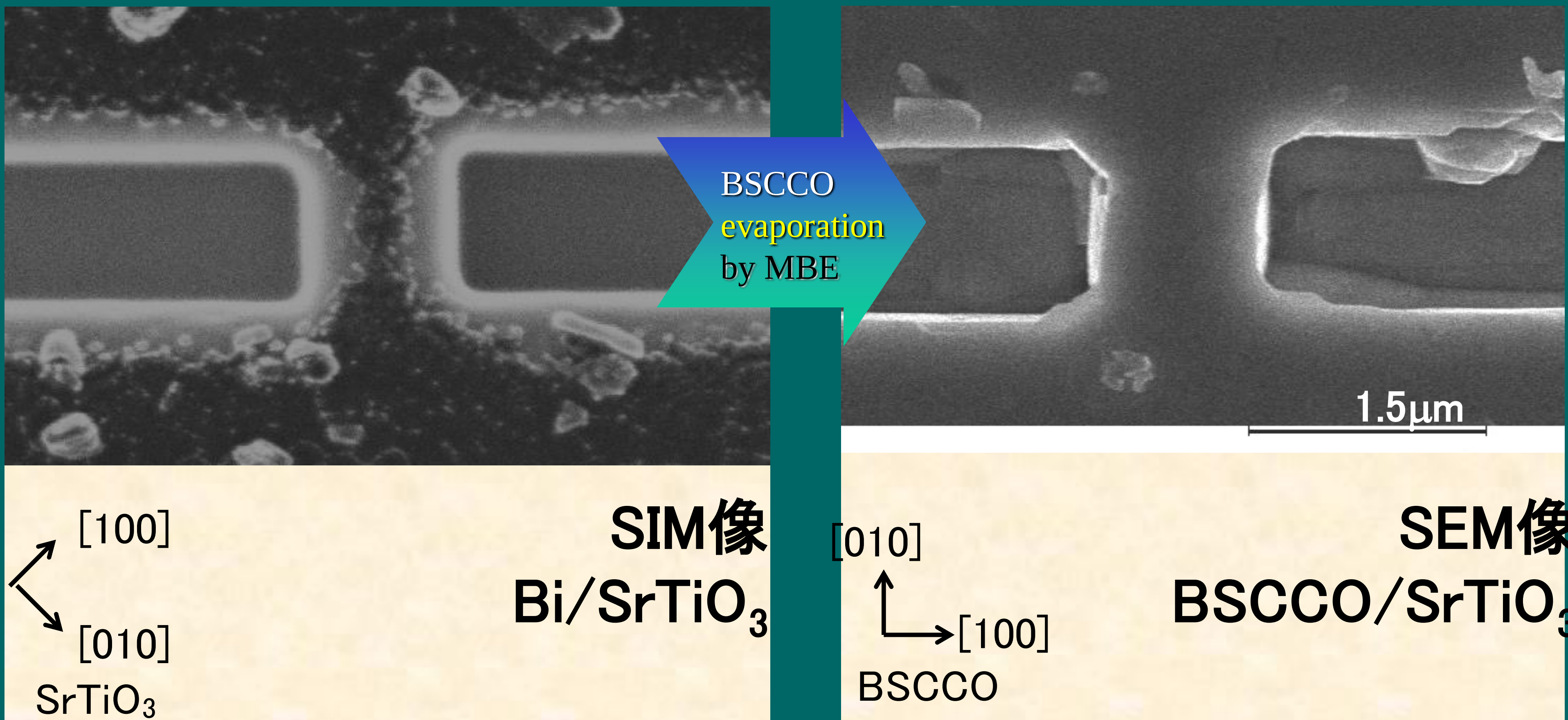




本研究室　石橋隆幸助手らによる

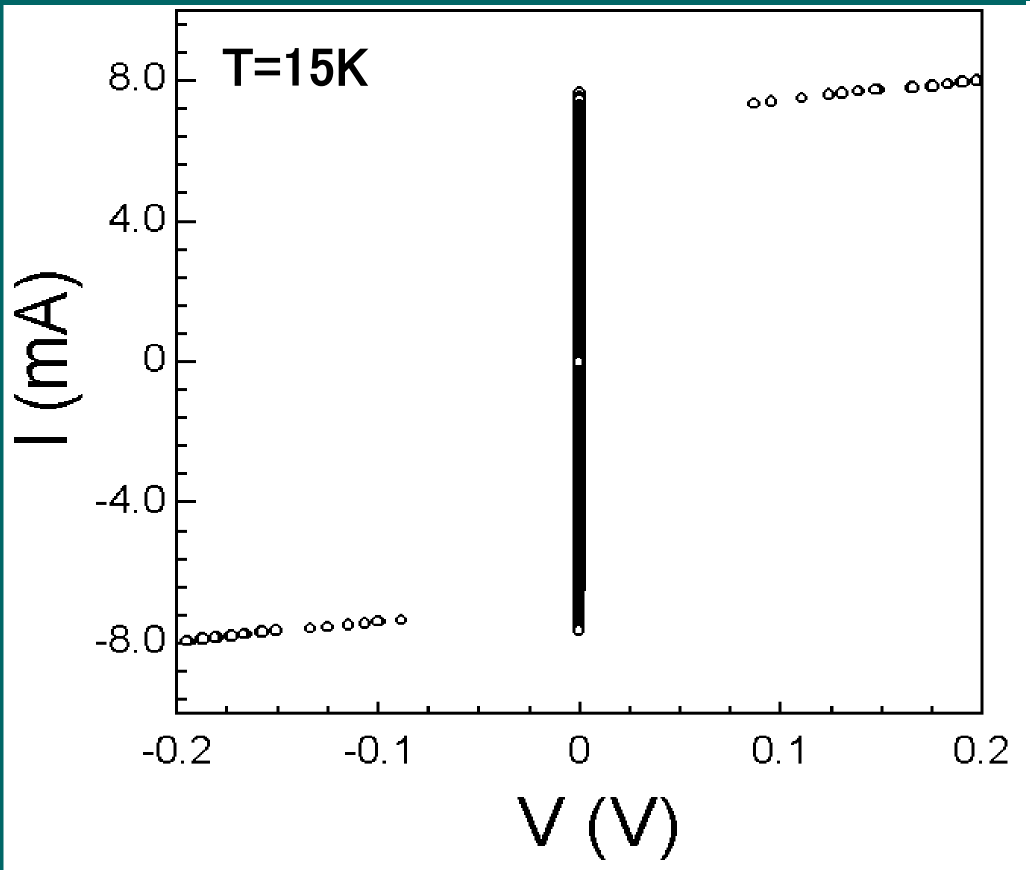
# Bridge構造の作製



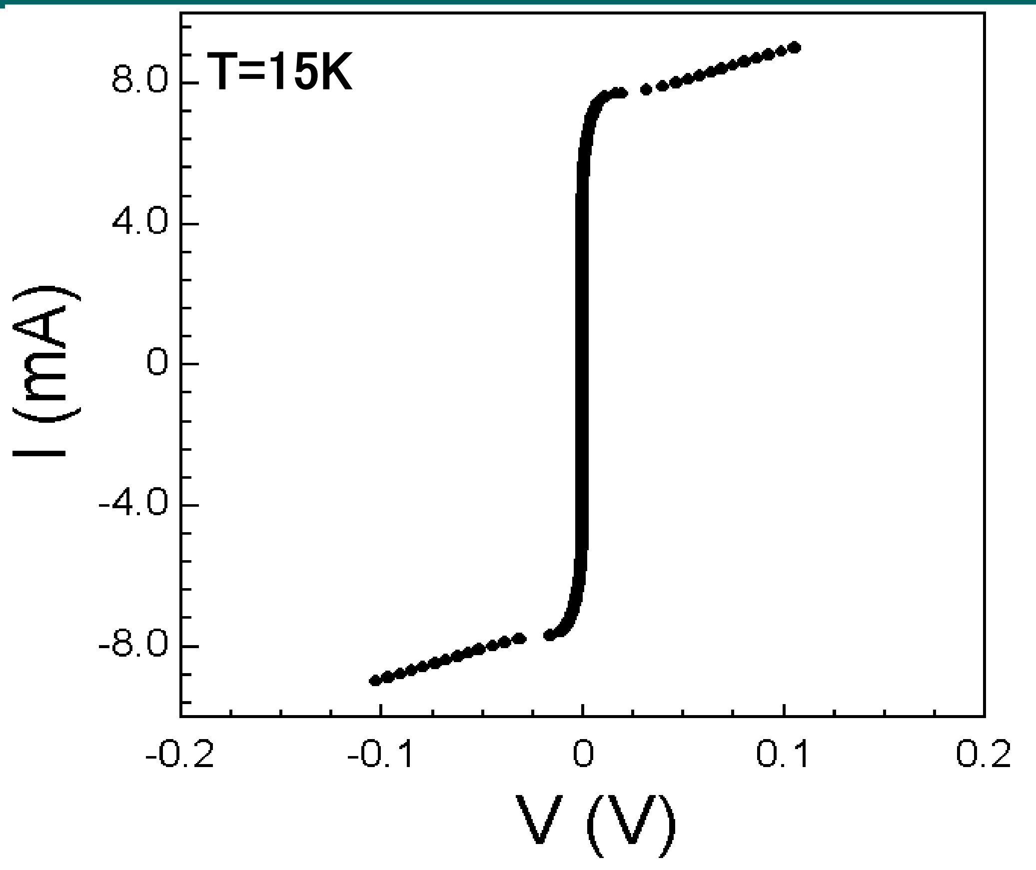
# 作製したBridge構造



# 電流-電圧特性




Bridge−$A_1$　d = 0.9 μm
Ic = 4.75 mA
Jc = 3.52 × $10^6$ A/$cm^2$




Bridge−$A_2$　d = 3.0 μm
Ic = 5.75 mA
Jc = 1.28 × $10^6$ A/$cm^2$

# 非線形磁気光学効果

- 非線形光学効果とは
  第２高調波光に対する磁気光学効果
- 非線形カー回転とは？
  P偏光が入射したとき、SH光にはP成分とS成分が生じ、入射面から回転する。
- 中心対称のある物質(Fe, Auなど）では、電気双極子によるSHGは起きない。表面界面に敏感

# 理論的予言と実験的検証

- 非線形磁気光学効果は、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[1)]、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[2,3)]。


1) W. Hübner and K.-H. Bennemann: Phys. Rev. **B40,** 5973 (1989)

2) Th. Rasing et al.: J. Appl. Phys. **79**, 6181 (1996)

3) Th. Rasing: J. Mag. Soc. Japan **20** (Suppl. S1), 13 (1996)

# 非線形磁気光学効果の表面敏感性

- 非線形磁気光学効果の応用

表面界面の対称性の破れに敏感 ⇒ 磁性人工格子の層間相互作用の評価、磁区のイメージング

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。

# 非線形光学効果

・For weak incident laser field E(ω) :

$$P_i^{(1)} = \chi_{ij}^{(1)} \varepsilon_0 E_j$$

linear response

・For strong incident laser field E(ω) :

Nonlinear response

$$\boxed{P_i = \varepsilon_0 (\chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \cdots)}$$

Third rank tensor is not allowed in *centrosymmetric* materials.

・Nonlinear polarization *$P^{(2)}$ for incident field of* $\boldsymbol{E}=\boldsymbol{E}_0 \sin \boldsymbol{\omega t}$

$$P^{(2)} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} \frac{E_0}{2} + \varepsilon_0 \chi^{(1)} E_0 \sin \omega t \boxed{- \varepsilon_0 \chi^{(2)} \frac{E_0^2}{2} \cos 2\omega t +} \cdots$$

Second harmonic generation (SHG)

# ２次の非線形分極

$$P^{(2)}{}_i(t) = \int d\tau_1 d\tau_2 \chi^{(2)}_{ijk}(\tau_1, \tau_2) E_j(t-\tau_1) E_k(t-\tau_2)$$

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

parametric process

$$P_i^{(2)}(t) = \boxed{P_i^{(2)}(\omega_1+\omega_2)\exp\{i(\omega_1+\omega_2)t\} + P_i^{(2)}(\omega_1-\omega_2)\exp\{i(\omega_1-\omega_2)t\}}$$

$$+ P_i^{(2)}\boxed{(0) + P_i^{(2)}}\boxed{(2\omega_1)\exp(i2\omega_1 t) + P_i^{(2)}(2\omega_2)\exp(i2\omega_2 t) + c.c}$$

光整流

SHG process

# 非線形感受率の定義

$$P_i^{(2)}(\omega_1+\omega_2)=\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1+\omega_2:\omega_1,\omega_2)E_j(\omega_1)E_k(\omega_2)$$

$$P_i^{(2)}(\omega_1-\omega_2)=\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1-\omega_2:\omega_1,\omega_2)E_j(\omega_1)E_k(\omega_2)$$

$$P_i^{(2)}(0)=(1/2)\chi_{ijk}^{(2)}(0:\omega,-\omega)E_j(\omega)E_k(\omega)$$

（ω＝ω１，ω２）

$$\boxed{\boldsymbol{P}_{\boldsymbol{i}}^{(2)}(2\omega)=(1/2)\chi_{\boldsymbol{ijk}}^{(2)}(2\omega:\omega,\omega)\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{j}}(\omega)\boldsymbol{E}_{\boldsymbol{k}}(\omega)}$$

（ω＝ω１，ω２）

反転対称をもつ物質 ➡ χijk(2)のすべての成分は消滅

（対称操作から）

表面や界面 ➡ 対称性の破れ ➡ 反転対称をもつ物質でも

有限の非線形感受率を示す

# 線形磁気光学効果の波動方程式

$$rot\,rot\,E(\omega) + \frac{\tilde{\varepsilon}(\omega)}{c^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2}E(\omega) = 0$$

$$\tilde{\varepsilon}(\omega) = \begin{pmatrix} \varepsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \varepsilon_{xx} & -\varepsilon_{yz} \\ 0 & \varepsilon_{yz} & \varepsilon_{xx} \end{pmatrix}$$

$\Psi_K=\phi_K+i\eta_K$（複素カー回転角）

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

$\chi_1^{(1)}=\varepsilon_{yz}$,  $\chi_0^{(1)}=\varepsilon_{xx}-1=N^2-1$

# 非線形磁気光学効果の波動方程式

$$\mathbf{rot\,rot}\,\boldsymbol{E}(2\omega)+\frac{\tilde{\varepsilon}}{\mathbf{c}^2}\frac{\partial^2}{\partial \mathbf{t}^2}\boldsymbol{E}(2\omega)=-\frac{1}{\varepsilon_0\mathbf{c}^2}\frac{\partial^2}{\partial \mathbf{t}^2}\boldsymbol{P}^{(2)}(2\omega)$$

$$\boldsymbol{P}_i^{(2)}(2\omega)=\boxed{\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega:\omega,\omega)}\,\boldsymbol{E}_j^{(1)}(\omega)\cdot\boldsymbol{E}_k^{(1)}(\omega)$$

非斉次部分は屈折率には依存せず

２次の表面応答関数$\chi^{(2)}$のみに結びつく

特殊解を与える。

# 非線形磁気光学効果

$$E_r^{(2)\pm}(2\omega) = -\frac{P^{(2)\pm}(2\omega)\sin\theta_s}{\varepsilon_0 c^2}\frac{F_1^{\pm}}{F_3^{\pm}F_2^{\pm}}$$

$$\boldsymbol{F}_1^{\pm} = \mathbf{sin}^2\,\theta_i + \frac{1+\chi^{(1)\pm}(2\omega)}{1+\chi_0^{(1)\pm}(2\omega)}\boldsymbol{S}_1^{\pm}(\theta_i)\boldsymbol{S}_2^{\pm}(\theta_i)$$

$$+\frac{\chi^{(1)\pm}(2\omega)-\chi_0^{(\pm)}(2\omega)}{\chi^{(1)\pm}(\omega)-\chi_0^{(\pm)}(2\omega)}\left[\frac{1+\chi^{(1)\pm}(2\omega)}{1+\chi_0^{(1)\pm}(2\omega)}\left[1+\chi^{(1)\pm}(\omega)\right]-2\,\mathbf{sin}^2\,\theta_i\right]\boldsymbol{S}_1^{\pm}(\theta_i)\boldsymbol{S}_2^{\pm}(\theta_i)$$

$$\boldsymbol{F}_2^{\pm} = \left[1+\chi^{(1)\pm}(2\omega)\right]\boldsymbol{S}_1^{\pm}(\theta_i)+\left[1+\chi^{(1)\pm}(\omega)\right]\boldsymbol{S}_2^{\pm}(\theta_i)$$

$$\boldsymbol{F}_3^{\pm} = \left[1+\chi^{(1)\pm}(2\omega)\right]\mathbf{cos}\,\theta_i$$

# 非線形カー回転角

$$\tan\Psi_K^{(2)} = i\left(\frac{\chi^{(2)+}\boldsymbol{F}_1^{+}\boldsymbol{F}_2^{-}\boldsymbol{F}_3^{-} - \chi^{(2)-}\boldsymbol{F}_1^{-}\boldsymbol{F}_2^{+}\boldsymbol{F}_3^{+}}{\chi^{(2)+}\boldsymbol{F}_1^{+}\boldsymbol{F}_2^{-}\boldsymbol{F}_3^{-} + \chi^{(2)-}\boldsymbol{F}_1^{-}\boldsymbol{F}_2^{+}\boldsymbol{F}_3^{+}}\right) = i\left(\frac{\chi^{(2)odd}}{\chi^{(2)even}} + \text{高次項}\right)$$

非線形カー効果は線形の場合と異なり

主として$\chi^{(2)odd}/\chi^{(2)even}$ が寄与する。

この項は反転対称をもつバルク結晶では0。

表面・界面では有限の値を持つ。

表面敏感性 → 表面磁性の研究に活用！

# 線形磁気光学効果と非線形磁気光学効果の違い

線形の場合：

$1\Big/\sqrt{\cos^2\theta_i+\chi_0^{(1)}}$ の因子がかかることによって、

$\Psi_K^{(1)}$ を小さくしている。

非線形の場合：

このような因子が存在しない。

# 非線形磁気光学効果のミクロな起源

SHG ⟸ 3光子プロセス

$$\chi^{(2)}_{xzz}\left(\mathbf{q},2\omega;\vec{\mathbf{M}}\right) \sim \frac{\lambda_{so}}{\hbar\omega}\sum_{\sigma}\langle \mathbf{k}+2\mathbf{q}|\mathbf{x}|\mathbf{k}\rangle\langle \mathbf{k}|\mathbf{z}|\mathbf{k}+\mathbf{q}\rangle\langle \mathbf{k}+\mathbf{q}|\mathbf{z}|\mathbf{k}+2\mathbf{q}\rangle \frac{\boldsymbol{F}_{\sigma}}{\varepsilon_{\mathbf{k}+2\mathbf{q},\sigma}-\varepsilon_{\mathbf{k},\sigma}-2\hbar\omega}$$

ここに

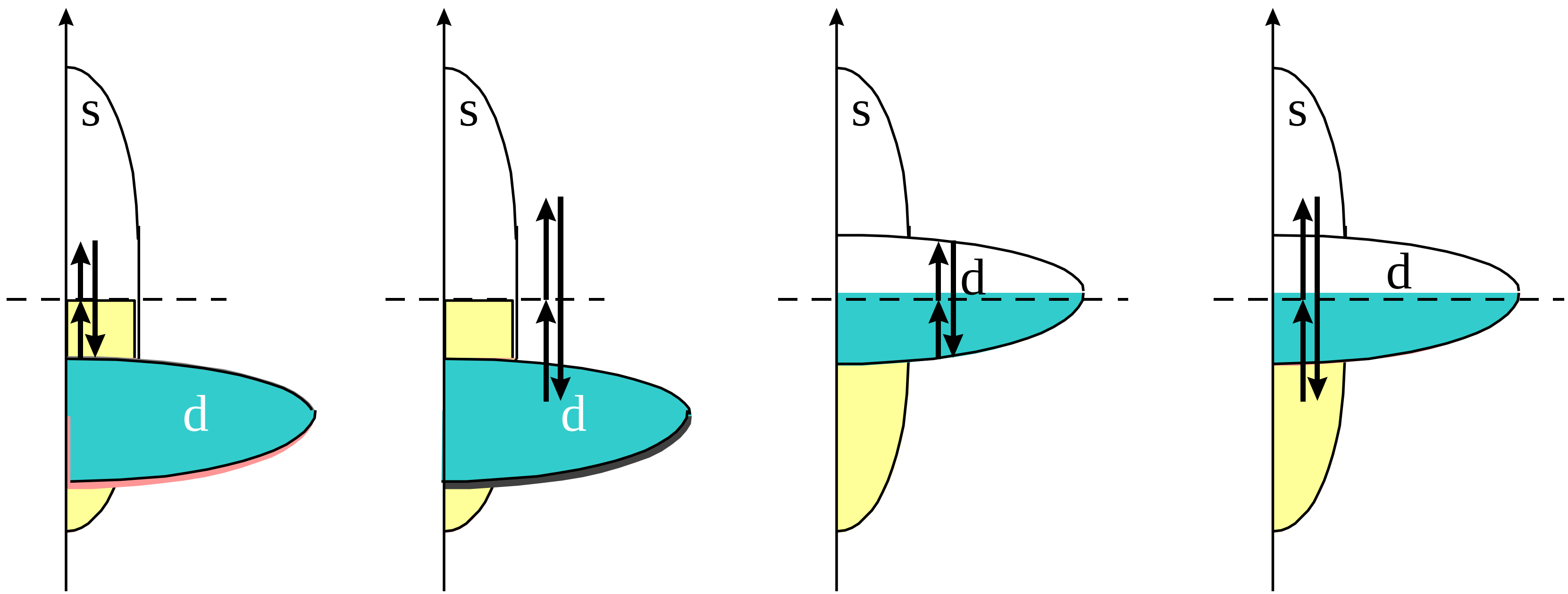
$$\boldsymbol{F}_{\sigma}=\frac{\boldsymbol{f}\left(\varepsilon_{\mathbf{k}+2\mathbf{q}}\right)-\boldsymbol{f}\left(\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}\right)}{\varepsilon_{\mathbf{k}+2\mathbf{q},\sigma}-\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}-\hbar\omega}-\frac{\boldsymbol{f}\left(\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q}}\right)-\boldsymbol{f}\left(\varepsilon_{\mathbf{k}}\right)}{\varepsilon_{\mathbf{k}+\mathbf{q},\sigma}-\varepsilon_{\mathbf{k},\sigma}-\hbar\omega}$$

$|k\,q_{//}l\rangle \to |k+q_{//}l'\rangle$ $\quad |k+q_{//}l'\rangle \to |k+2q_{//}l''\rangle$ $\quad |kl\rangle \to |k+2q//l''\rangle$

ω　　　ω　　　2ω

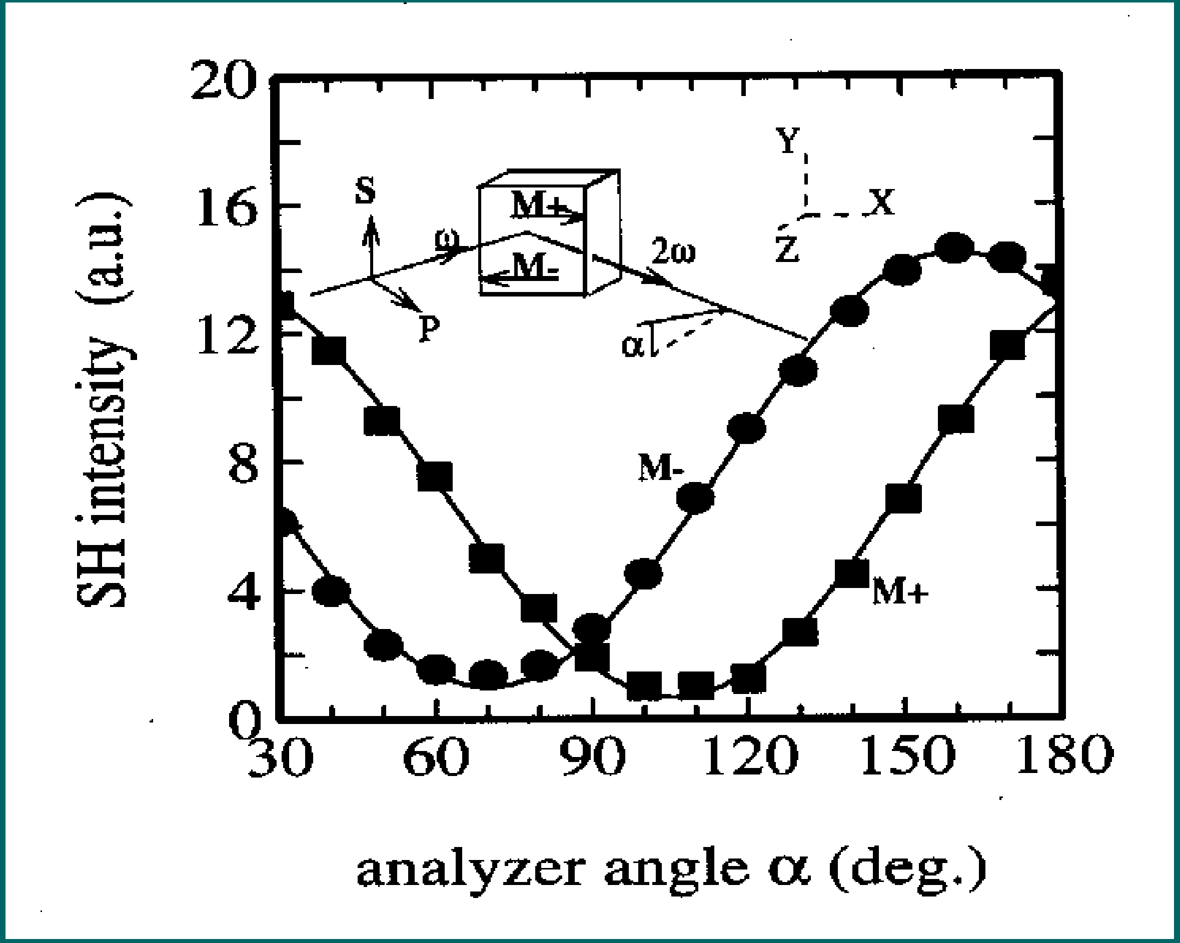
基底状態　　中間状態　　励起状態

# SHGプロセスのミクロな起源

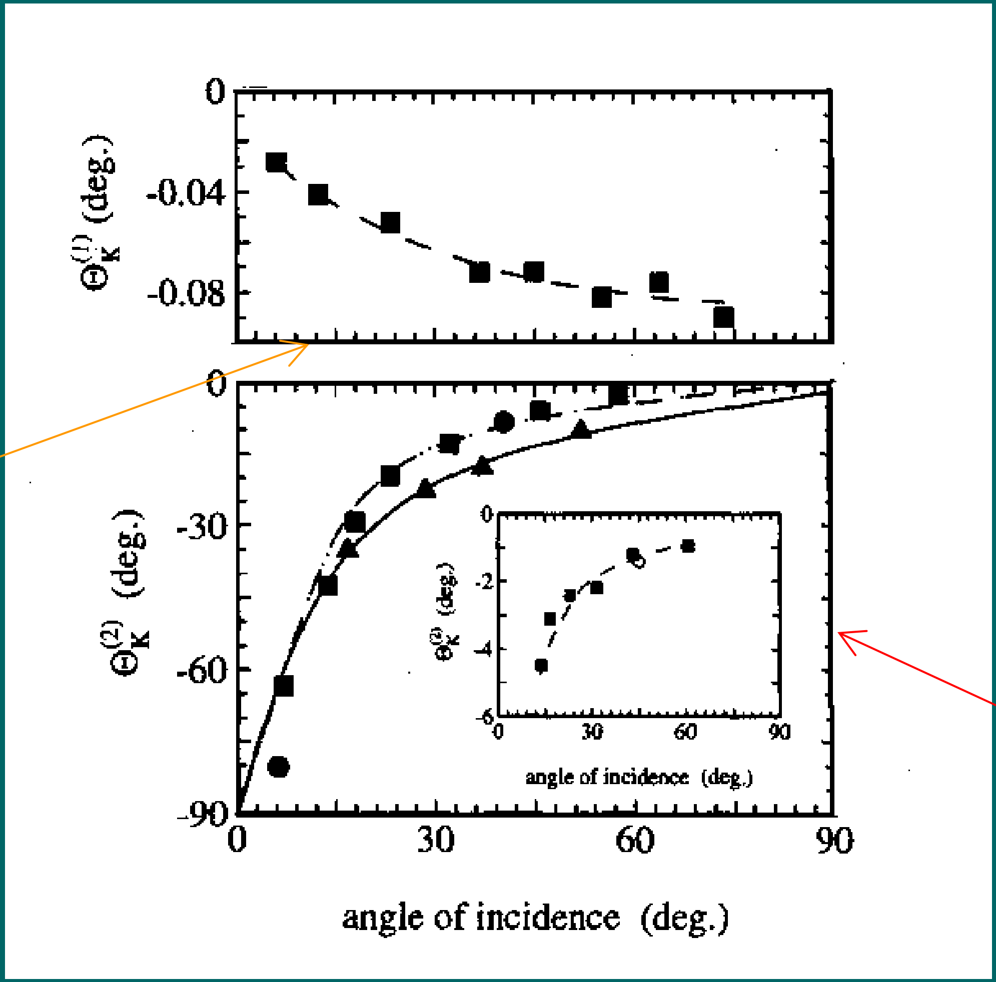



s→s d→s d→d s→s

# Feの非線形カー回転


SH intensity (a.u.)
analyzer angle α (deg.)
0
4
8
12
16
20
30
60
90
120
150
180
S
P
ω
2ω
M+
M-
α
Y
X
Z
M-
M+

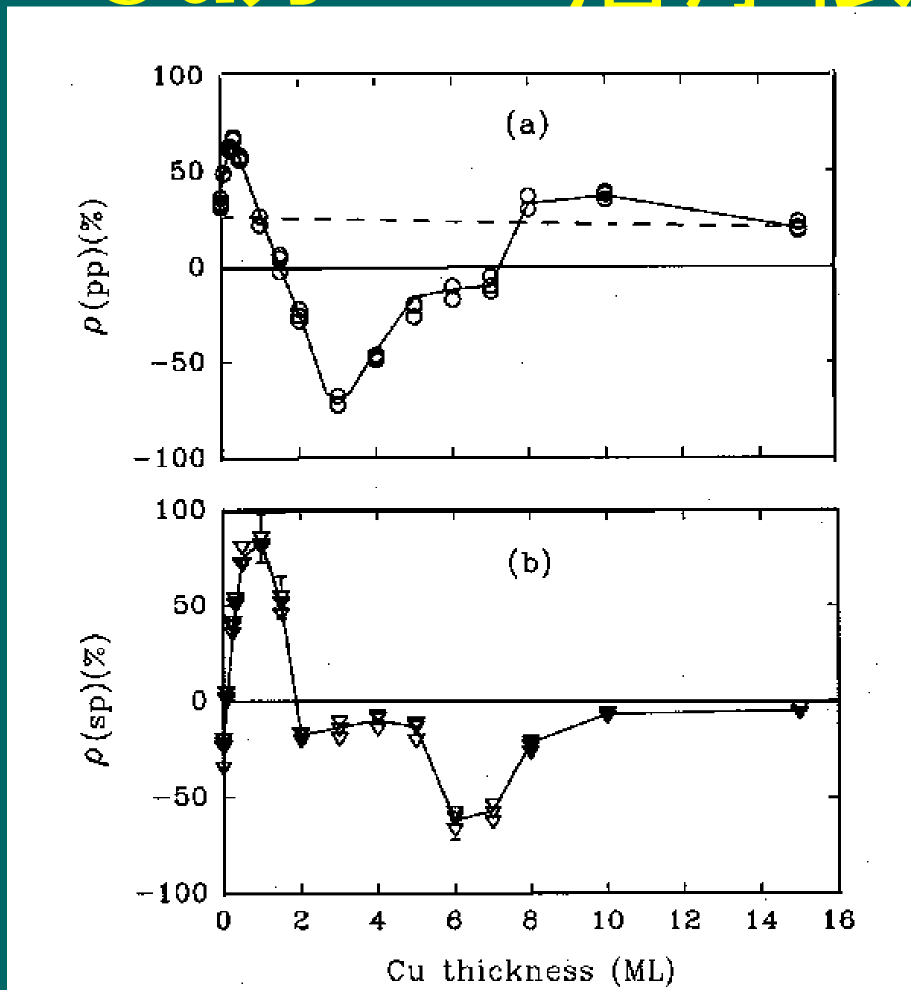
# 非線形カー回転角の入射角依存性



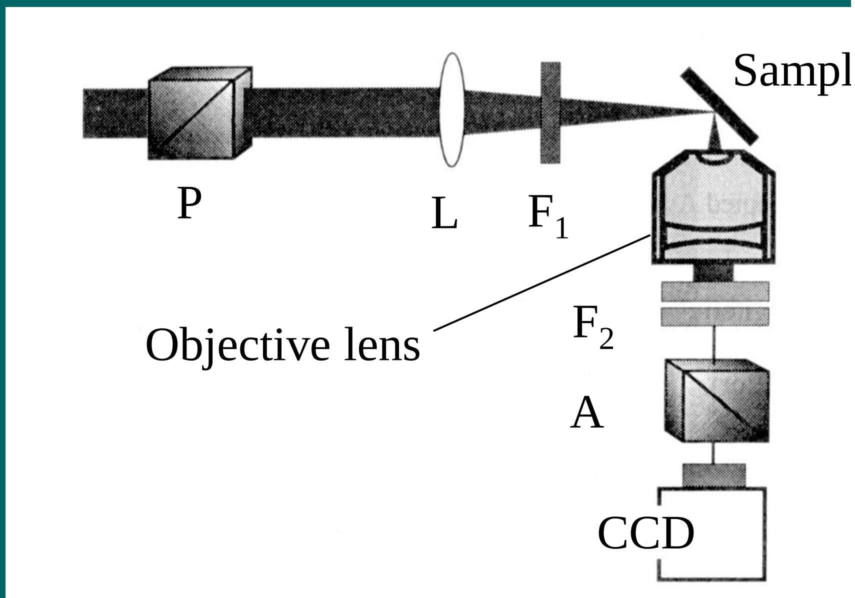

線形カー効果

非線形カー効果

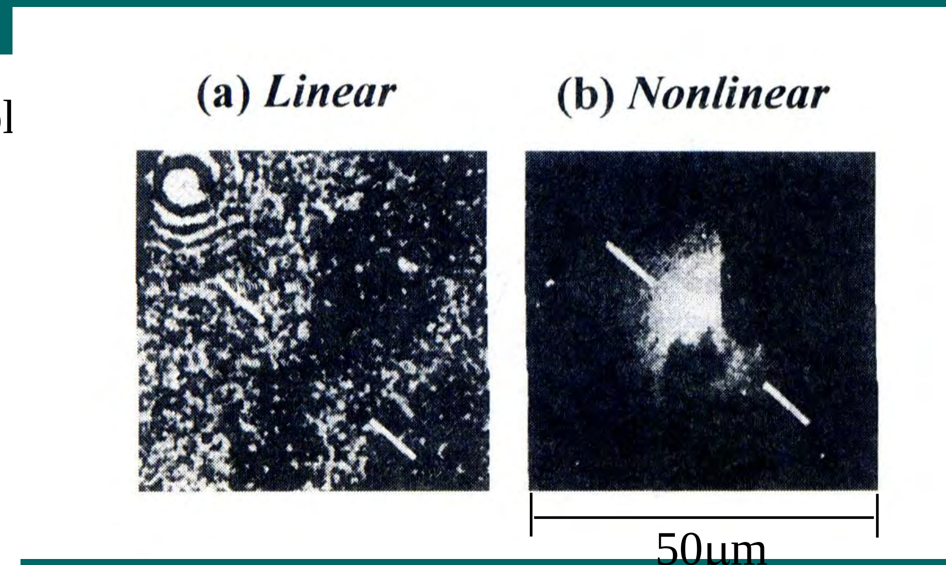
# Co10MLの非線形カー効果のCuカバー層厚依存性




# 非線形磁気光学顕微鏡

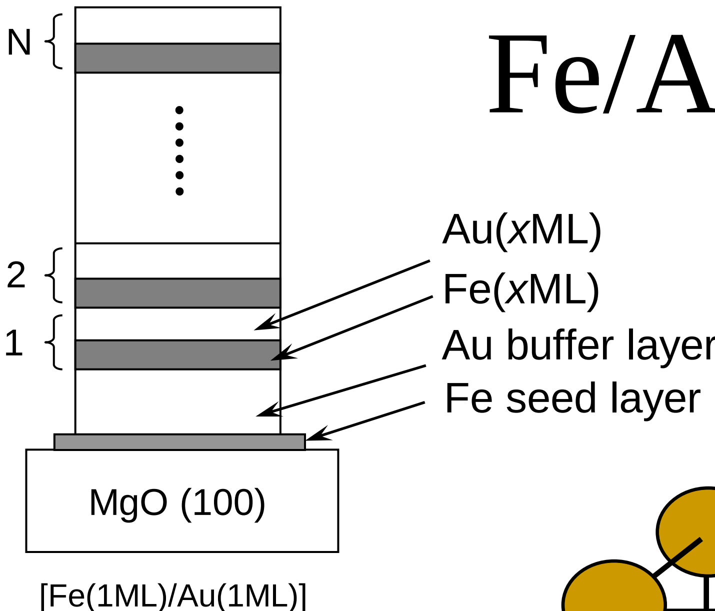



非線形磁気光学顕微鏡の模式図

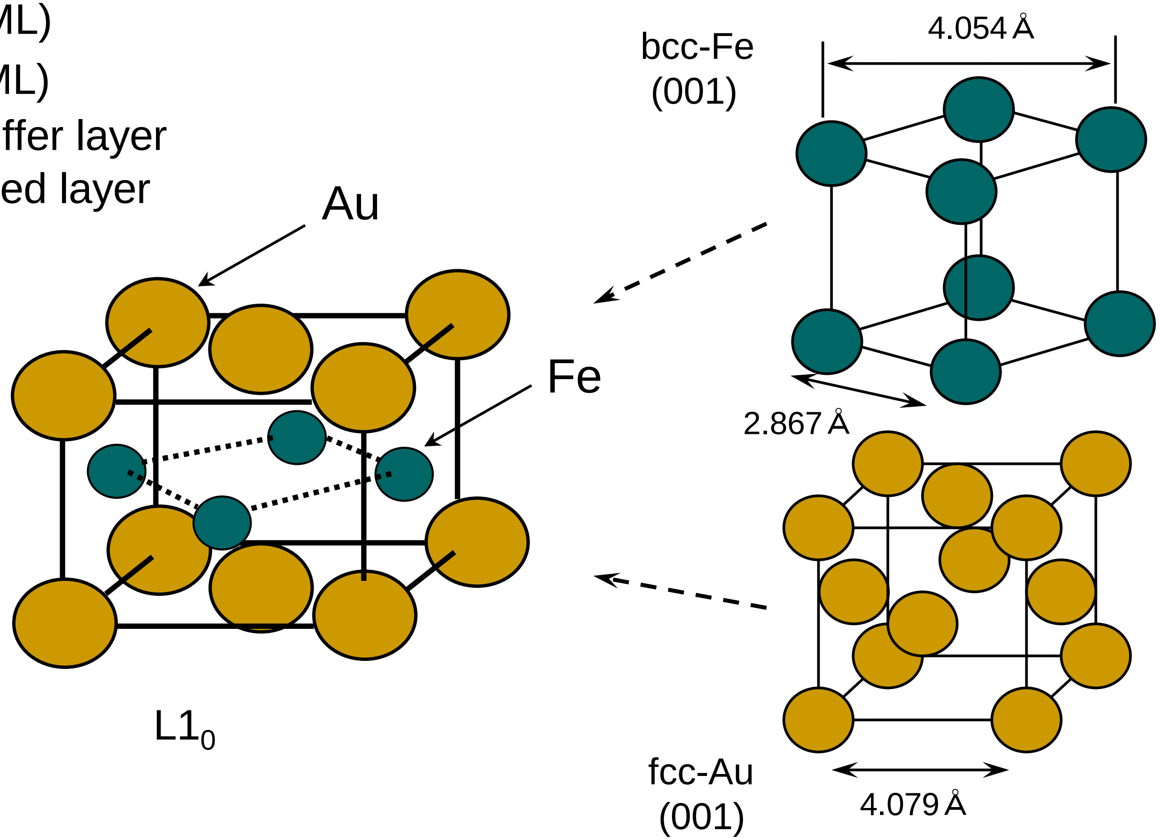



線形・非線型磁気光学顕微鏡で観測したCoNiの磁区

# Fe/Au人工格子の構造



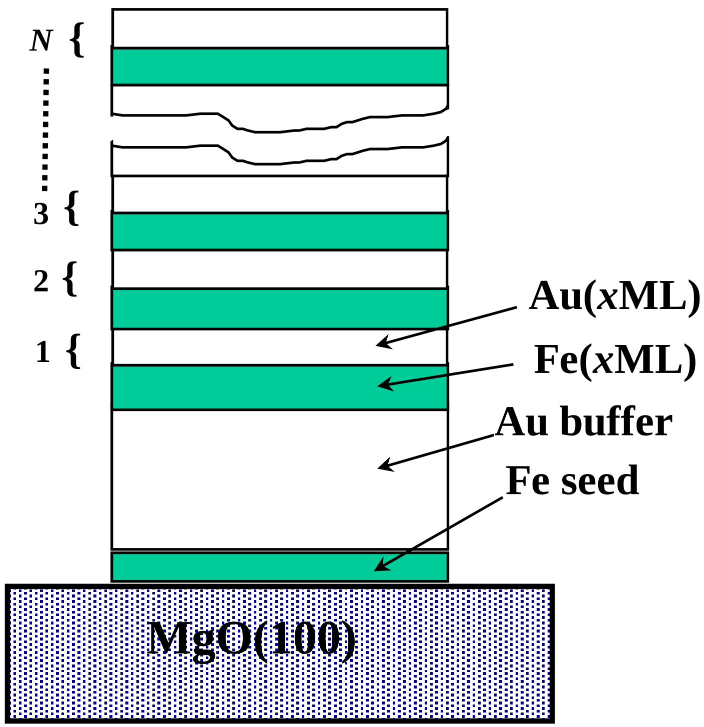

Schematic structure for the Fe/Au superlattice

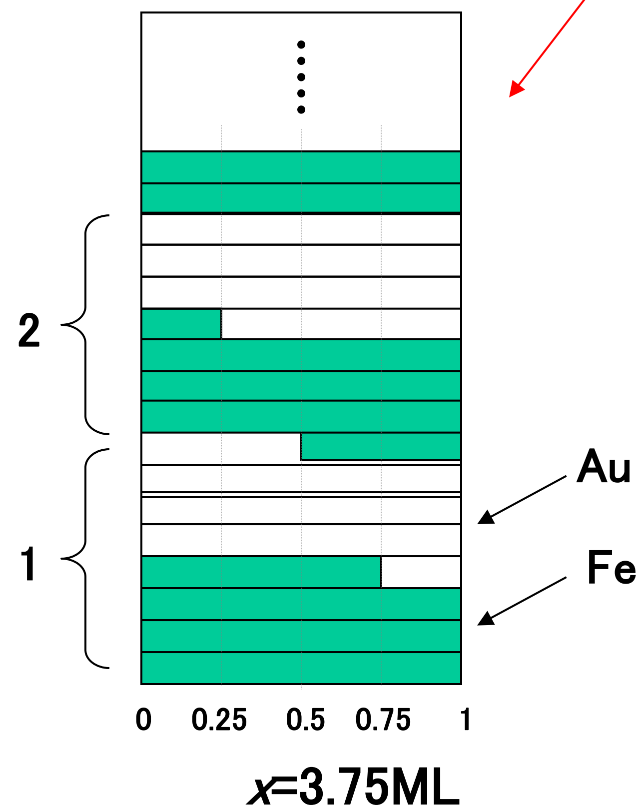



Atomic arrangement in a unit cell of Fe-Au with a $L1_0$ suructure.

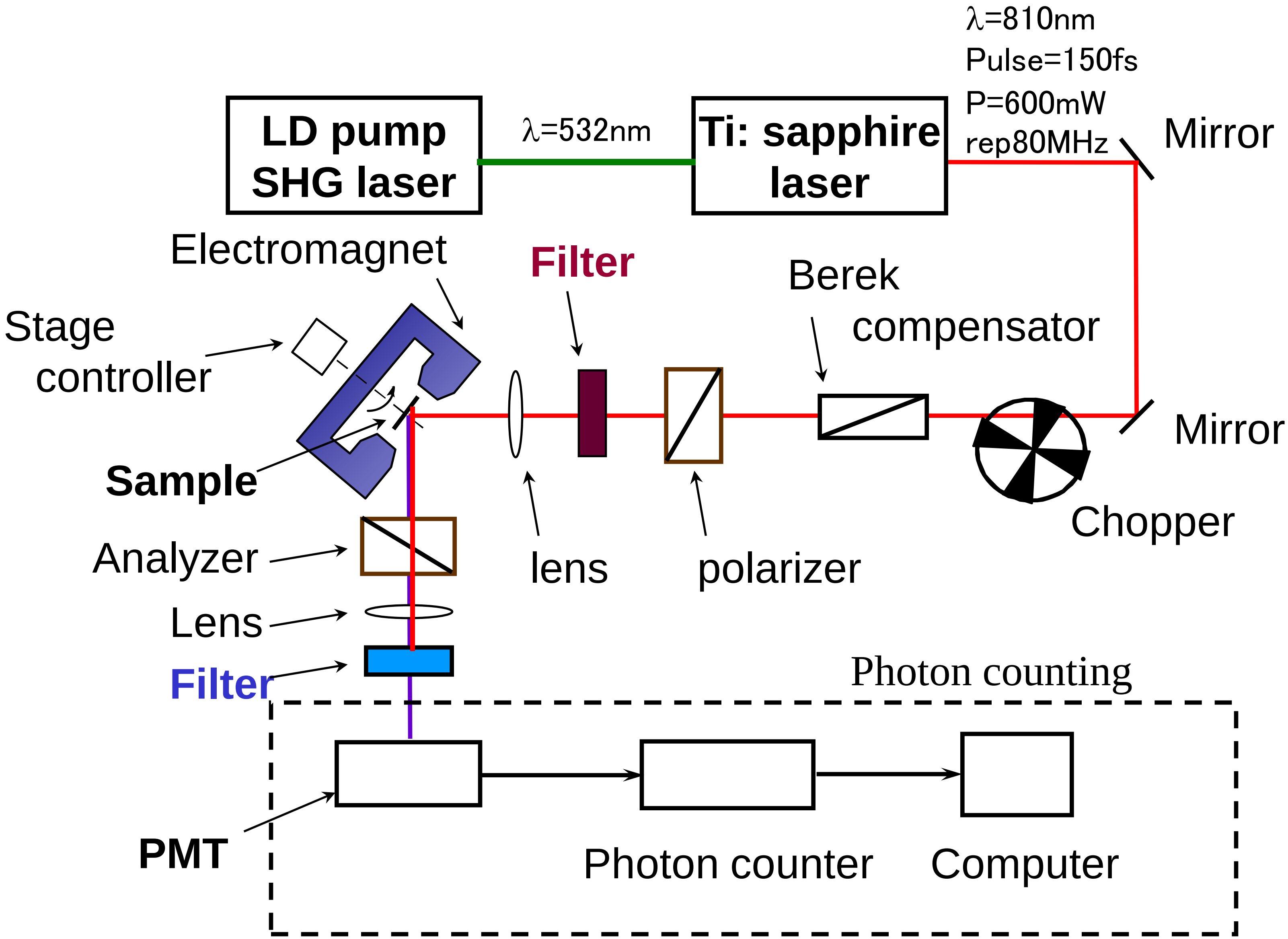
# 〔Fe(xML)/Au(xML)〕$_N$人工格子

**Integer** :x=1, 4, 6, 15
**Non-integer** : x=1.25, 1.5, 1.75, 2.25, 2.5, 2.75, 3.25, 3.5, 3.75

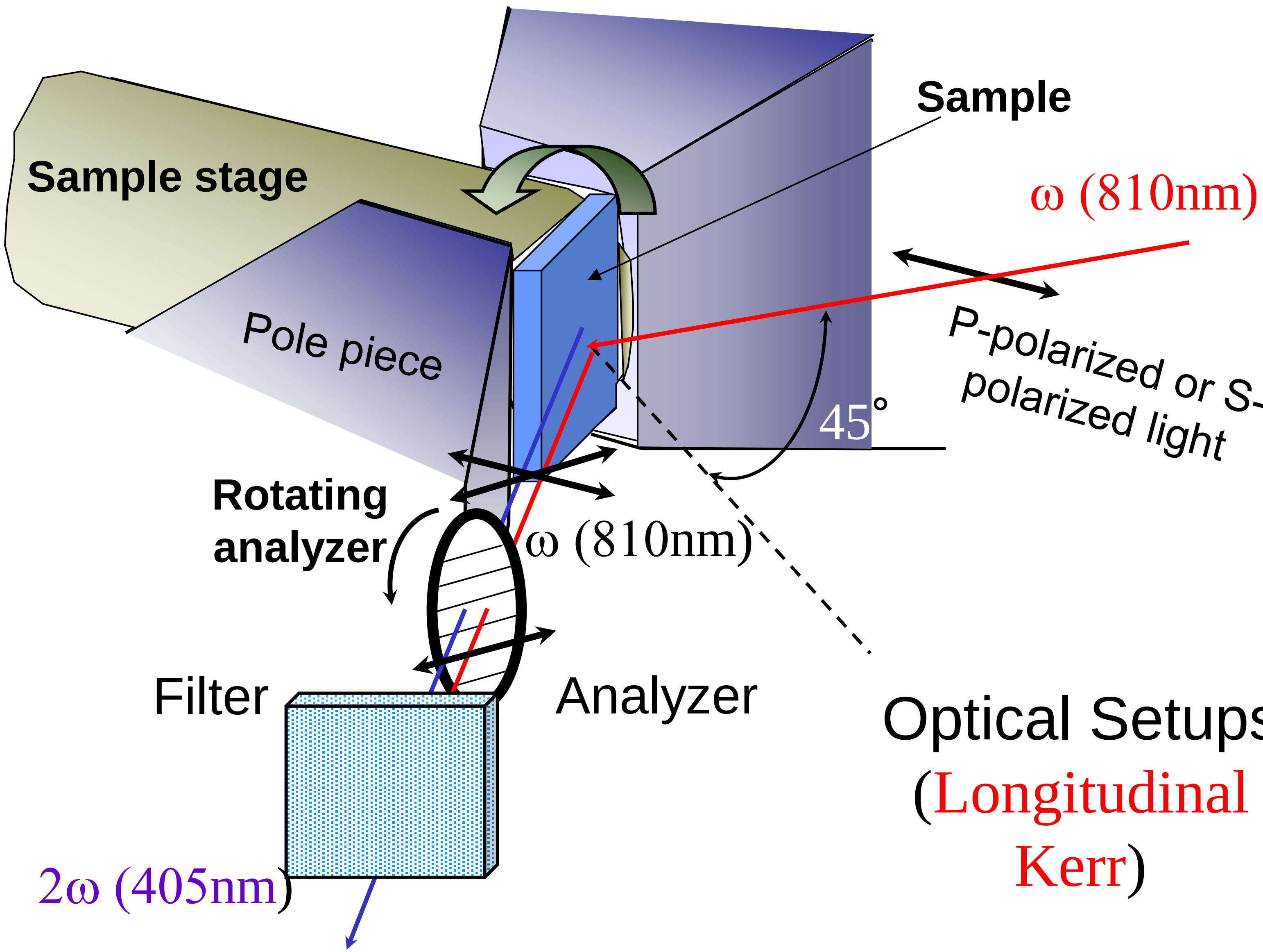


# MSHG測定系

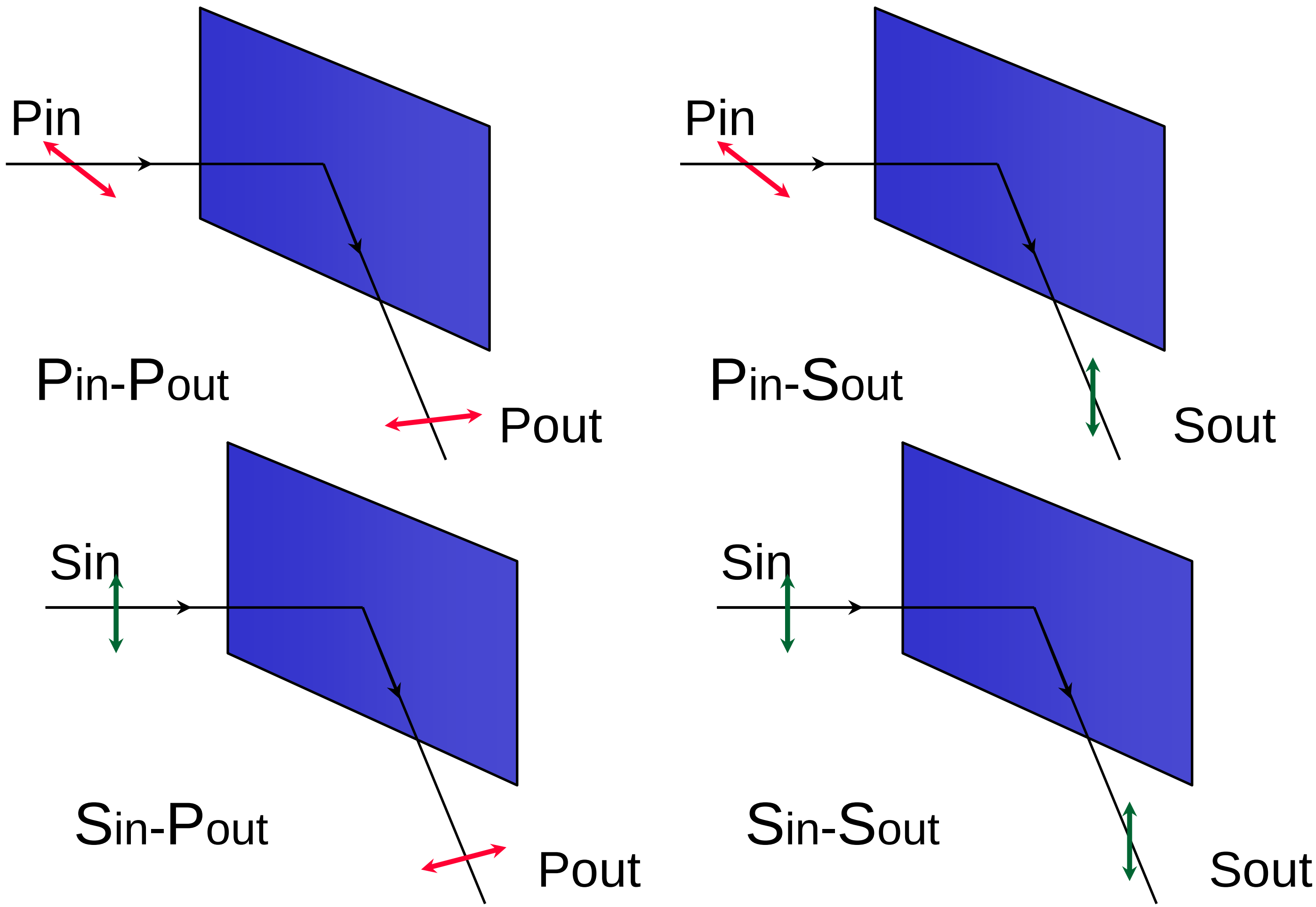

λ=810nm
Pulse=150fs
P=600mW
rep80MHz
LD pump SHG laser
λ=532nm
Ti: sapphire laser
Mirror
Electromagnet
Filter
Berek compensator
Stage controller
Mirror
Sample
Chopper
Analyzer
lens
polarizer
Lens
Filter
Photon counting
PMT
Photon counter
Computer

# MSHG測定系試料付近



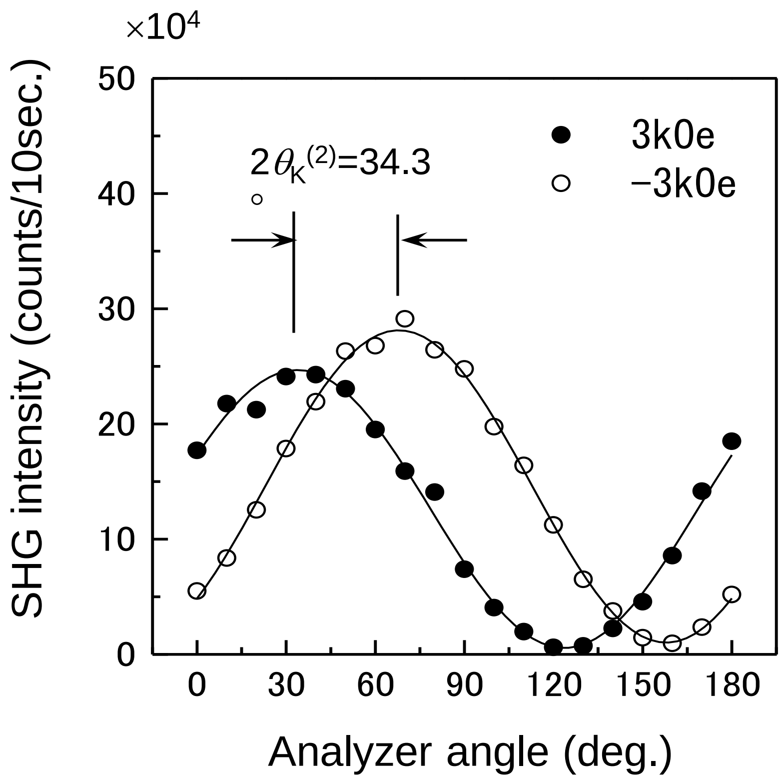

Optical Setups
(Longitudinal Kerr)

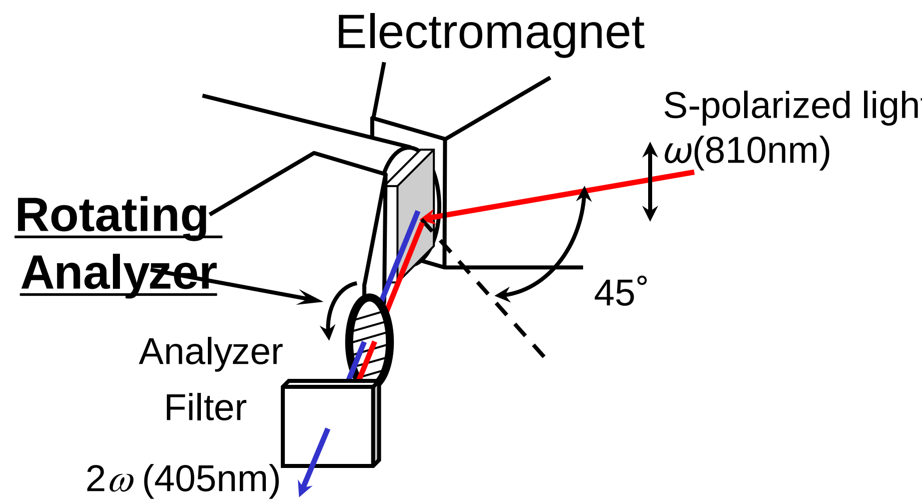
# 入射・出射光の偏光の組み合わせ



Result

# MSHGの検光子方位依存性




The curves show a shift for two opposite directions of magnetic field

$$\eta_K^{(2)} = \frac{1}{2}\left[\tan^{-1}\left(\frac{I_{MAX}(+)}{I_{MIN}(+)}\right) - \tan^{-1}\left(\frac{I_{MAX}(-)}{I_{MIN}(-)}\right)\right]$$

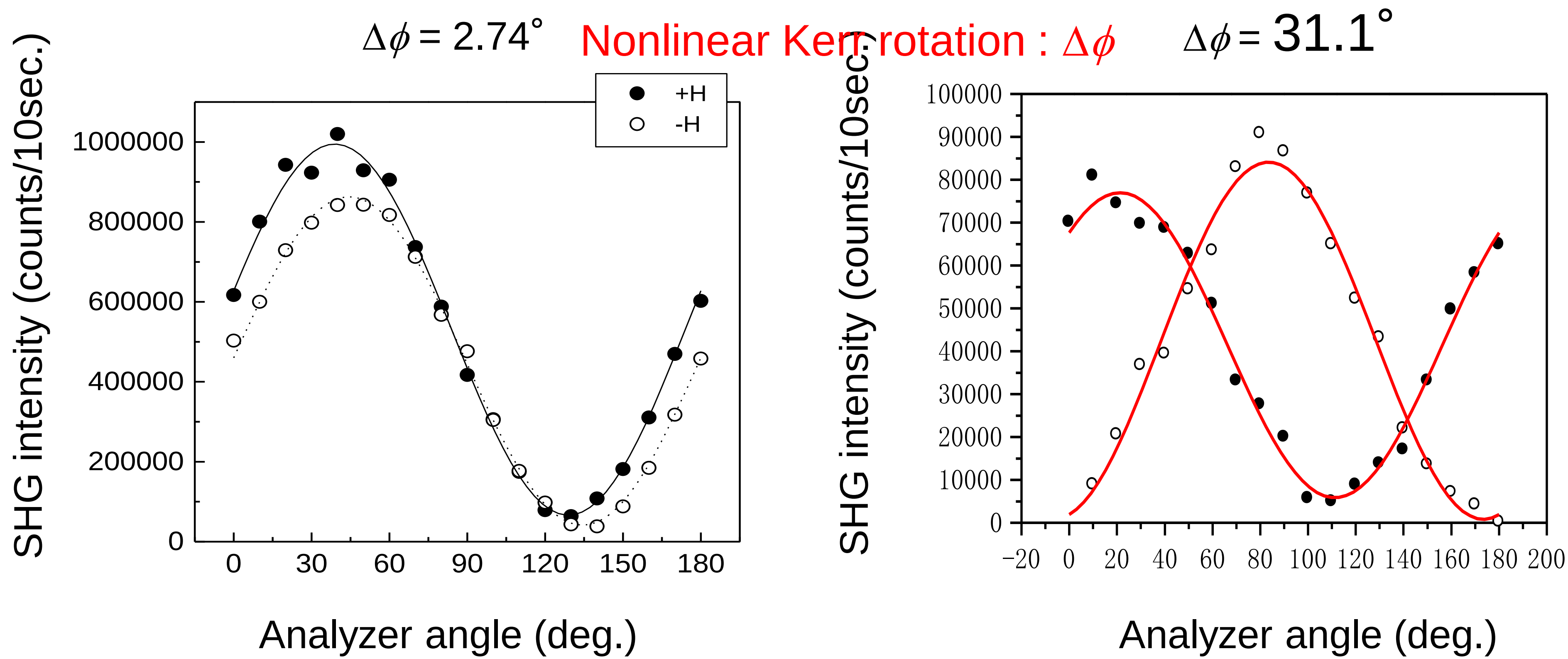
Analyzer angle-dependence for
[Fe(3.5ML)/Au(3.5ML)] superlattice (Sin)

Nonlinear Kerr rotation & ellipticity

$\theta_K^{(2)}$= 17.2 °

$\eta_K^{(2)}$=3°

# NOMOKE(非線形カー効果)



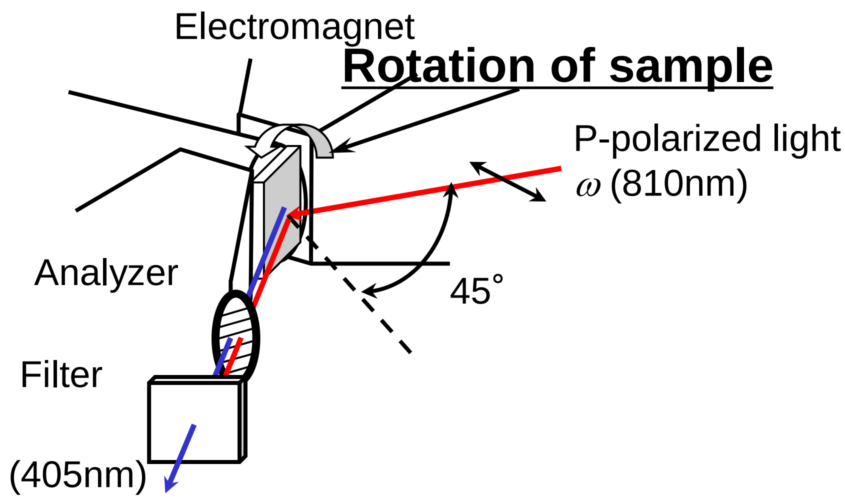

(a) Fe(1ML)/Au(1ML) Pin

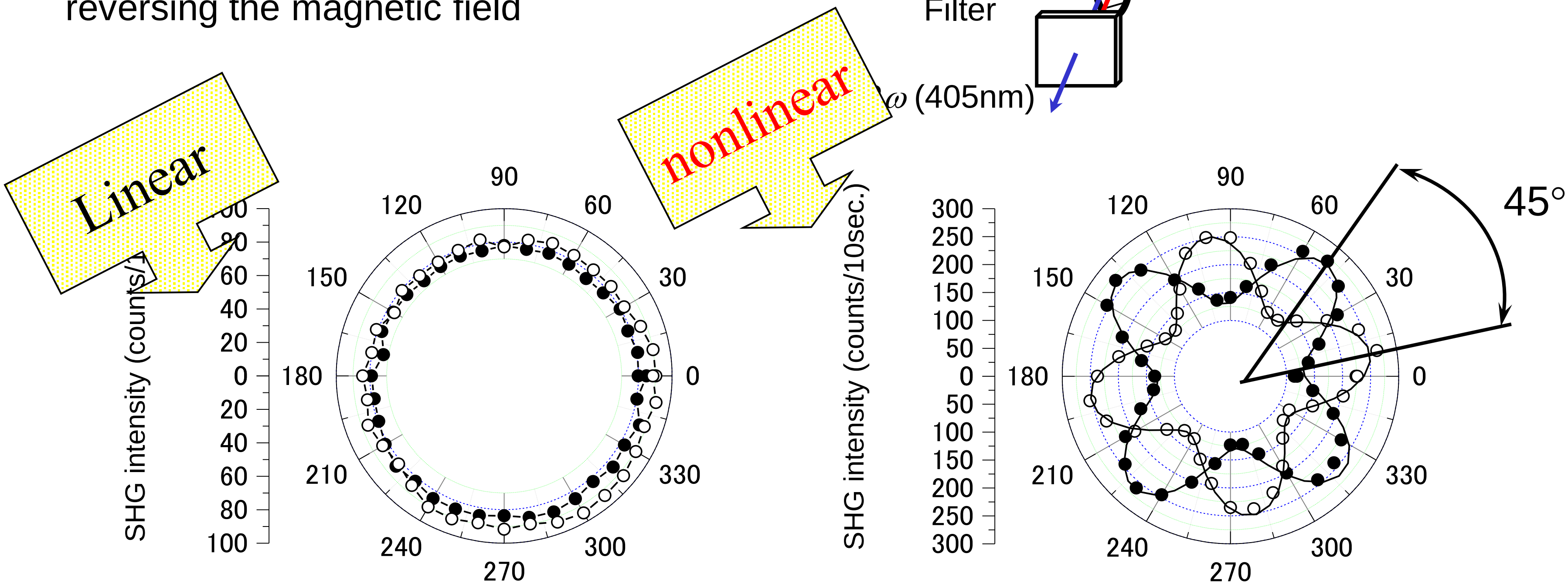
(b) Fe(1.75ML)/Au(1.75ML) Sin

Analyzer angle dependence

# MSHGの試料方位依存性

- Linear optical response (λ=810nm)
  The isotropic response for the azimuthal angle
- Nonlinear optical response (λ=405nm)
  The 4-fold symmetry pattern
  Azimuthal pattern show 45°-rotation by reversing the magnetic field

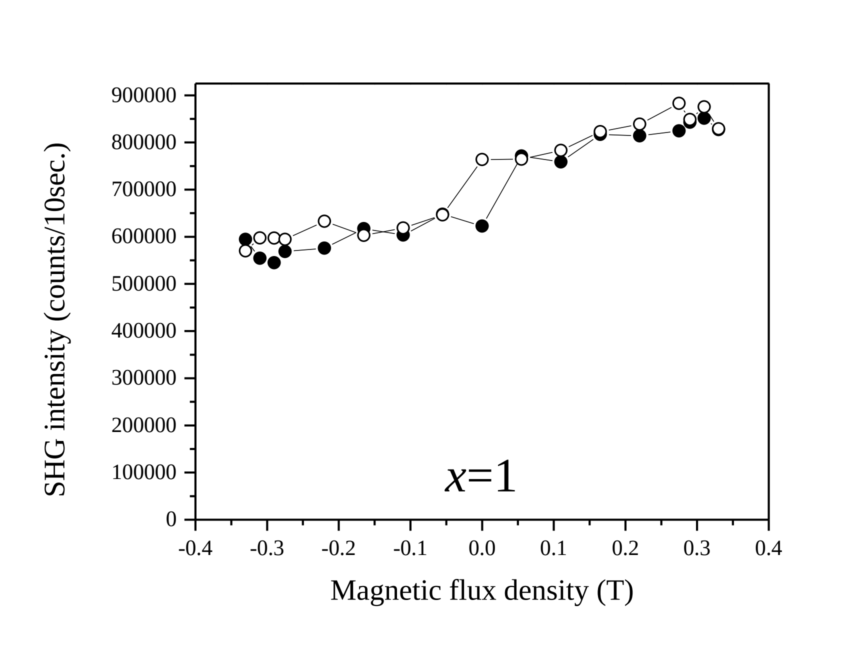


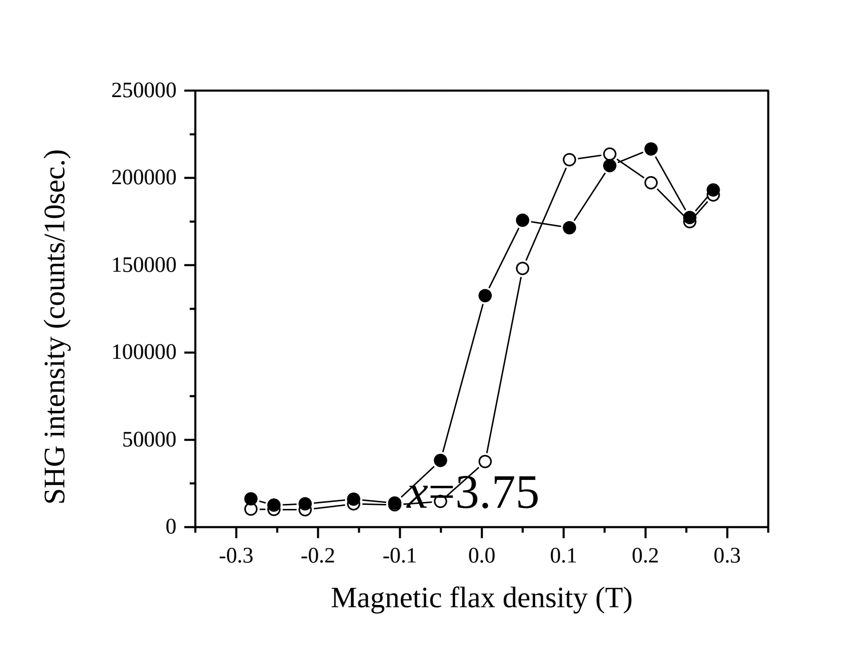




(a) Linear (810nm)　　(b) SHG (405nm)

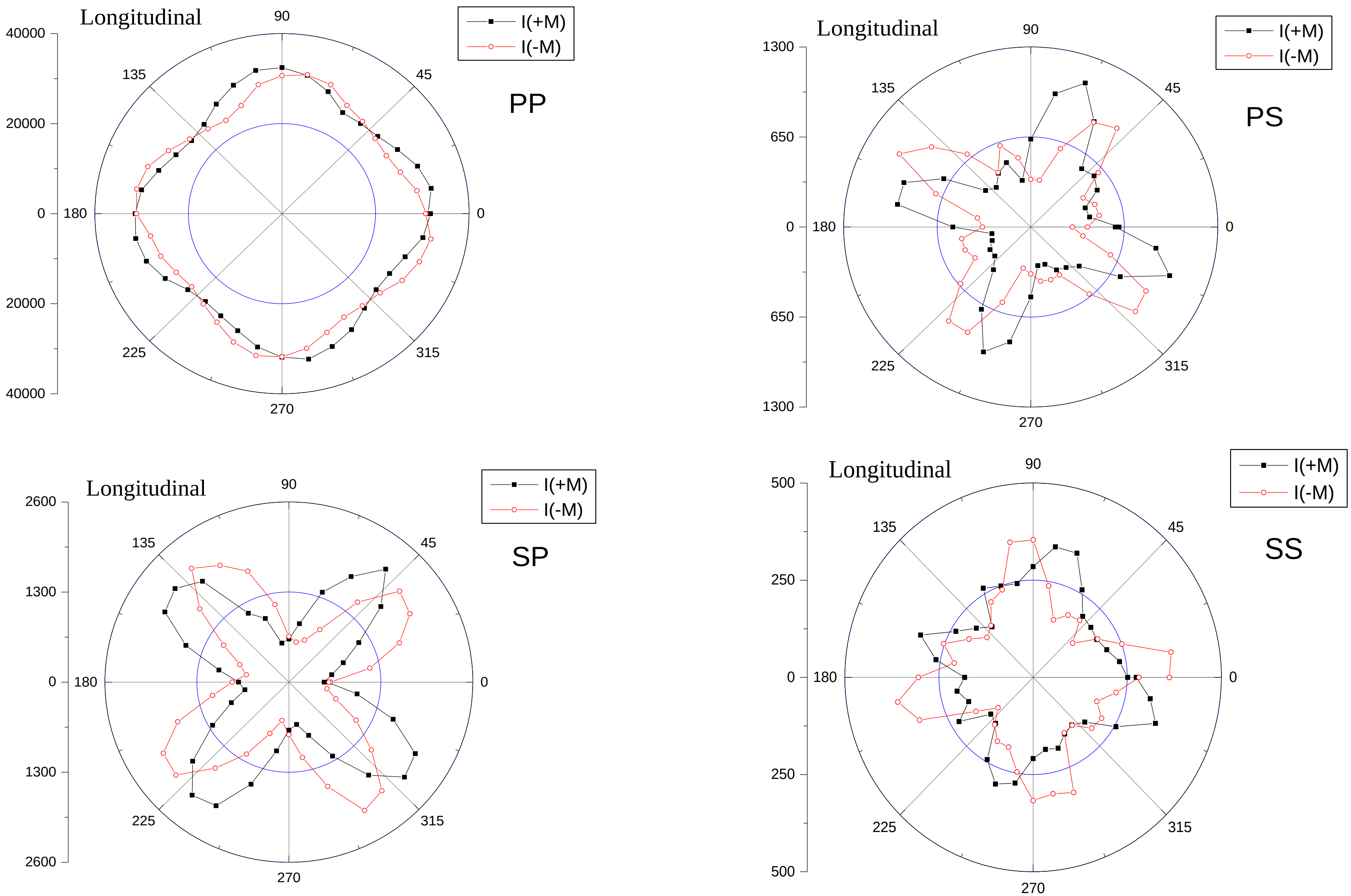
Azimthal angle-dependence of MSHG intensity for [Fe(3.75ML)/Au(3.75ML)] superlattice.
($P_{in}$ $P_{out}$)

# SHGのヒステリシスループ

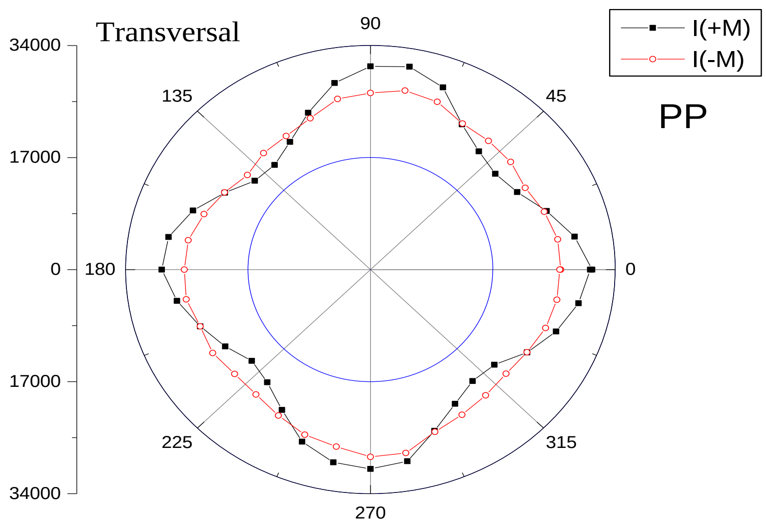


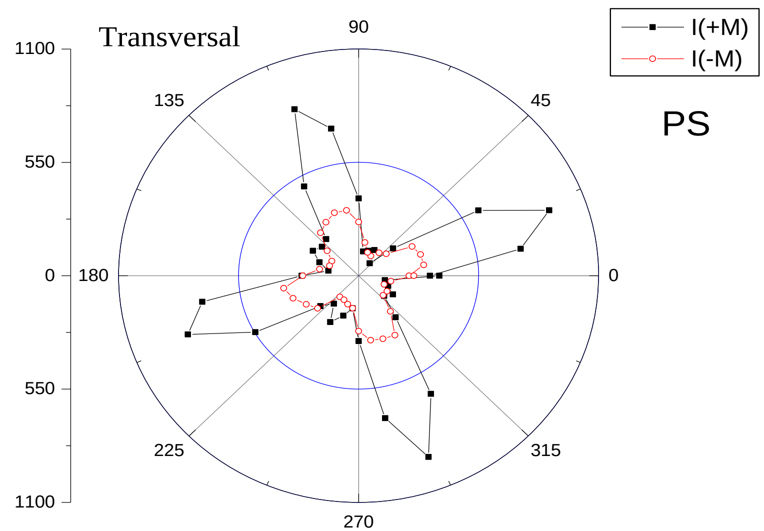



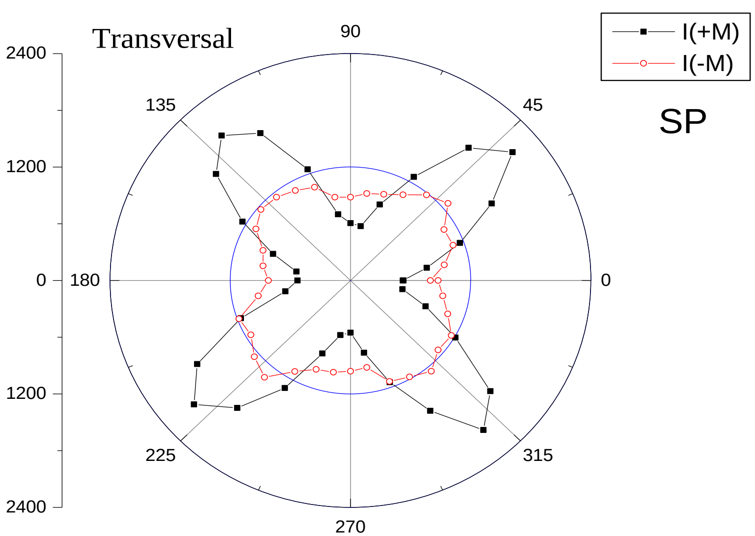
# Fe(15ML)/Au(15ML)人工格子(縦カー配置)

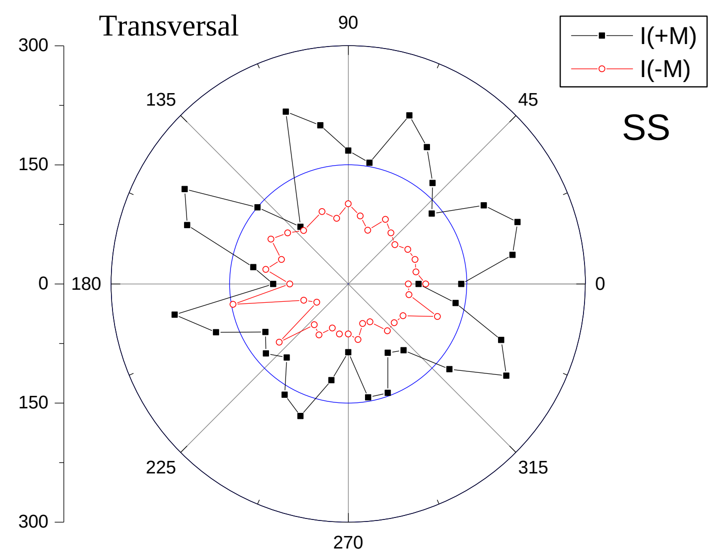


# Fe(15ML)/Au(15ML)人工格子(横力一配置)



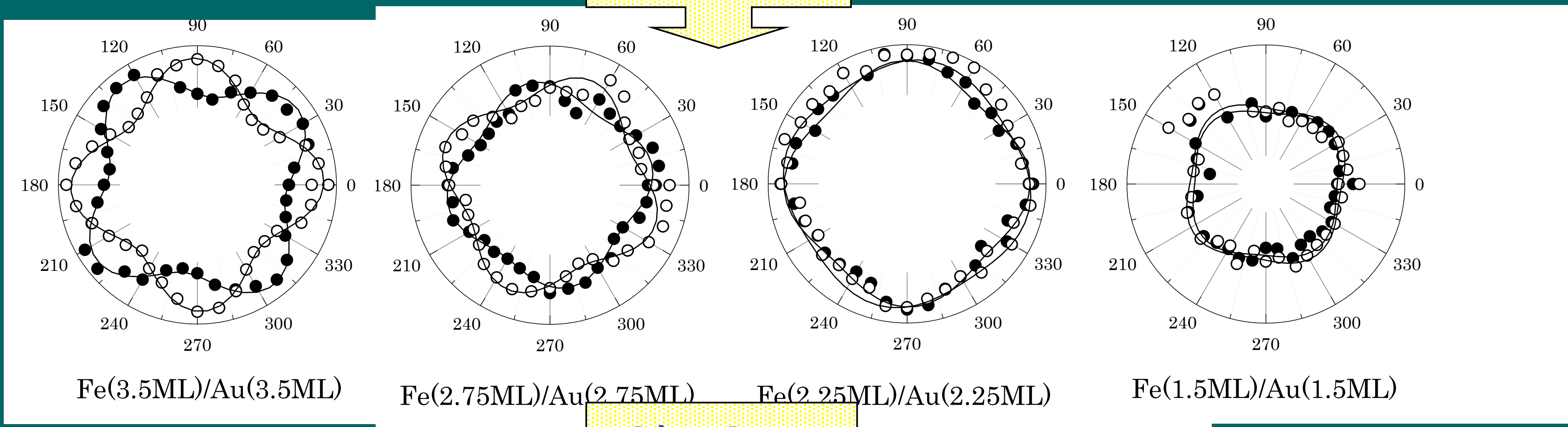



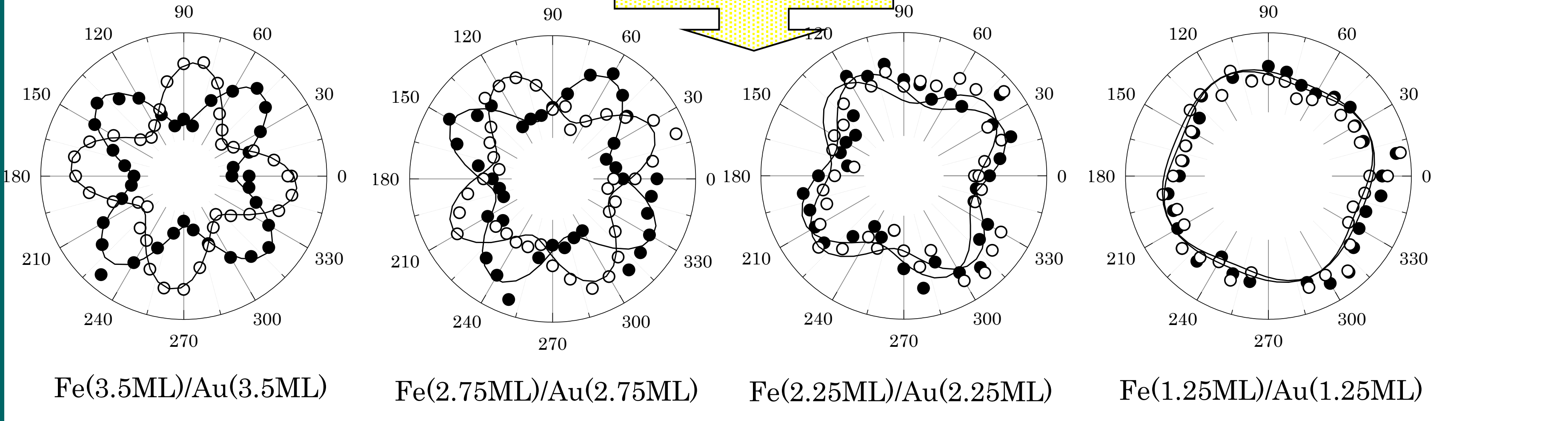



# 非整数人工格子のMSHG

Pin-Pout




Sin-Sout



# 考察

- 観測された4回対称: MgO (100) 基板の対称性を反映→Fe/Au人工格子が完全にエピタキシャルに成長していることを示している。
- 磁界方向の反転によるパターンの45° 回転: MSHG強度＝｜表面対称性の項＋磁化に比例する項｜$^2$ Cross-termから生じる。
- Soutの配置での磁界依存性: 4重極子項を入れないと説明できない。

# 非線形分極の理論式

$$P_i^{(2)}(M) = \chi_{ijk}^{(D)}(M)E_jE_k + \chi_{ijkl}^{(Q)}(M)E_j\nabla_lE_k$$

$$= \chi_{ijk}^{(D)}(0)E_jE_k + X_{ijkL}^{(D)}E_jE_kM_L + \chi_{ijkl}^{(Q)}(M)E_j\nabla_lE_k$$

表面非磁性　　表面　磁化誘起　　バルク　非磁性

表 2.5　磁化された等方性の表面における電気双極子非線形感受率$\chi^{(D)}(M)$のゼロでない要素[9)]

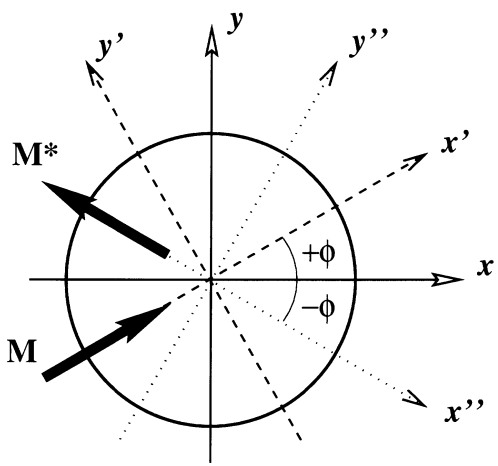
| | ***M*** について偶 | ***M*** について奇 |
|---|---|---|
| 縦カー配置 $M \parallel x$ | $\chi_{yzy}=\chi_{yyz}$, $\chi_{xzx}=\chi_{xxz}$ $\chi_{zzz}$, $\chi_{zyy}$, $\chi_{zxx}$ | $\chi_{xyx}=\chi_{xxy}$, $\chi_{zyz}=\chi_{zzy}$ $\chi_{yzz}$, $\chi_{yyy}$, $\chi_{yxx}$ |
| 横カー配置 $M \parallel y$ | $\chi_{xxz}=\chi_{xzx}$, $\chi_{yyz}=\chi_{yzy}$ $\chi_{zxx}$, $\chi_{zyy}$, $\chi_{zzz}$ | $\chi_{yxy}=\chi_{yyx}$, $\chi_{zxz}=\chi_{zzx}$ $\chi_{xxx}$, $\chi_{xyy}$, $\chi_{xzz}$ |
| 極カー配置 $M \parallel z$ | $\chi_{xxz}=\chi_{xzx}=\chi_{yyz}=\chi_{yzy}$ $\chi_{zxx}=\chi_{zyy}$, $\chi_{zzz}$ | $\chi_{xyz}=\chi_{xzy}=-\chi_{yxz}=-\chi_{yzx}$ $\chi_{zxy}=\chi_{zyx}$ |

# 電気4重極子テンソル要素

表 2.6　磁化された等方性の表面における電気四重極子非線形感受率$\chi^{(Q)}(M)$のゼロでない要素 (Wierengaによる[10])

| | ***M*** について偶 | ***M*** について奇 |
|---|---|---|
| 縦カー配置<br>$M \parallel x$ | $\chi_{yyyy}=\chi_{zzzz}$, $\chi_{yyxx}=\chi_{zzxx}$<br>$\chi_{yxxy}=\chi_{zxxz}$, $\chi_{yyzz}=\chi_{zzyy}$<br>$\chi_{yzzy}=\chi_{zyyz}$, $\chi_{yxyx}=\chi_{zxzx}$<br>$\chi_{yzyz}=\chi_{xxzz}$, $\chi_{xyxy}=\chi_{xzxz}$<br>$\chi_{xxxx}$ | $\chi_{yyyz}=-\chi_{zzzy}$, $\chi_{yyzy}=-\chi_{zzyz}$<br>$\chi_{yzzz}=-\chi_{zyyy}$, $\chi_{xyzx}=-\chi_{xzyx}$<br>$\chi_{yxxz}=-\chi_{zxxy}$, $\chi_{yzxx}=-\chi_{zyxx}$<br>$\chi_{xyxz}=-\chi_{xzxy}$, $\chi_{yzyy}=-\chi_{zyzz}$ |
| 横カー配置<br>$M \parallel y$ | $\chi_{xxxx}=\chi_{zzzz}$, $\chi_{xxyy}=\chi_{zzyy}$<br>$\chi_{xyyx}=\chi_{zyyz}$, $\chi_{xxzz}=\chi_{zzxx}$<br>$\chi_{xzzx}=\chi_{zxzx}$, $\chi_{xyxy}=\chi_{zyzy}$<br>$\chi_{yyxx}=\chi_{yyzz}$, $\chi_{yxyx}=\chi_{yzyz}$<br>$\chi_{yyyy}$ | $\chi_{xxxz}=-\chi_{zzzx}$, $\chi_{xxzx}=-\chi_{zzxz}$<br>$\chi_{xzzz}=-\chi_{zxxx}$, $\chi_{yxzy}=-\chi_{yzxy}$<br>$\chi_{xyyz}=-\chi_{zyyx}$, $\chi_{xzyy}=-\chi_{zxyy}$<br>$\chi_{yxyz}=-\chi_{yzyx}$, $\chi_{xzxx}=-\chi_{zxzz}$ |
| 極カー配置<br>$M \parallel z$ | $\chi_{xxxx}=\chi_{yyyy}$, $\chi_{xxzz}=\chi_{yyzz}$<br>$\chi_{xzzx}=\chi_{yzzy}$, $\chi_{xxyy}=\chi_{yyxx}$<br>$\chi_{xyyx}=\chi_{yxxy}$, $\chi_{xzxz}=\chi_{yzyz}$<br>$\chi_{xyxy}=\chi_{zzyy}$, $\chi_{zxzx}=\chi_{zyzy}$<br>$\chi_{zzzz}$ | $\chi_{xxxy}=-\chi_{yyyx}$, $\chi_{xxyx}=-\chi_{yyxy}$<br>$\chi_{xyyy}=-\chi_{yxxx}$, $\chi_{zxyz}=-\chi_{zyxz}$<br>$\chi_{xzzy}=-\chi_{yzzx}$, $\chi_{xzyz}=-\chi_{yxxz}$<br>$\chi_{zxzy}=-\chi_{zyzx}$, $\chi_{xyxx}=-\chi_{yxy}$ |

# 結晶座標系と実験室座標系への変換




変換行列Aijは次式で書ける。

$$A_{ij} = \begin{pmatrix} \cos\phi & \sin\phi & 0 \\ -\sin\phi & \cos\phi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}$$

実験室系の感受率の表式は

$$\chi^{Q}_{i'j'k'l'} = \sum_{ijkl} A_{i'i} A_{j'j} A_{k'k} A_{l'l} \chi^{Q}_{ijkl}$$

# 理論解析結果のまとめ

## 方位角依存性

| input-output polarization | surface non-magnetic | bulk non-mangetic | surface magnetization-induced | sum |
|---|---|---|---|---|
| $S_{in}$-$S_{out}$ | 0 | $\lvert B\sin4\phi\rvert^2$ | $\lvert \pm A_{ss} \pm C\cos4\phi\rvert^2$ | $\lvert \pm \boldsymbol{A}_{ss} + \boldsymbol{B}\sin4\phi \pm \boldsymbol{C}\sin4\phi\rvert^2$ |
| $S_{in}$-$P_{out}$ | $\lvert A'_{sp}\rvert^2$ | $\lvert A_{sp} - B\cos4\phi\rvert^2$ | $\lvert \pm C\sin4\phi\rvert^2$ | $\lvert \boldsymbol{A}_{sp} - \boldsymbol{B}\cos4\phi \pm \boldsymbol{C}\sin4\phi\rvert^2$ |
| $P_{in}$-$S_{out}$ | 0 | $\lvert -B\sin4\phi\rvert^2$ | $\lvert \pm A_{ps} \mp C\cos4\phi\rvert^2$ | $\lvert \pm \boldsymbol{A}_{ps} - \boldsymbol{B}\sin4\phi + \boldsymbol{C}\cos4\phi\rvert^2$ |
| $P_{in}$-$P_{out}$ | $\lvert A'_{pp}\rvert^2$ | $\lvert A_{pp} + B\cos4\phi\rvert^2$ | $\mp\lvert C\sin4\phi\rvert^2$ | $\lvert \boldsymbol{A}_{pp} + \boldsymbol{B}\cos4\phi \mp \boldsymbol{C}\sin4\phi\rvert^2$ |

## 非線形カー回転角

$$\Theta_K^{(2)} = (\psi_+ - \psi_-)/2$$

$S_{in}$

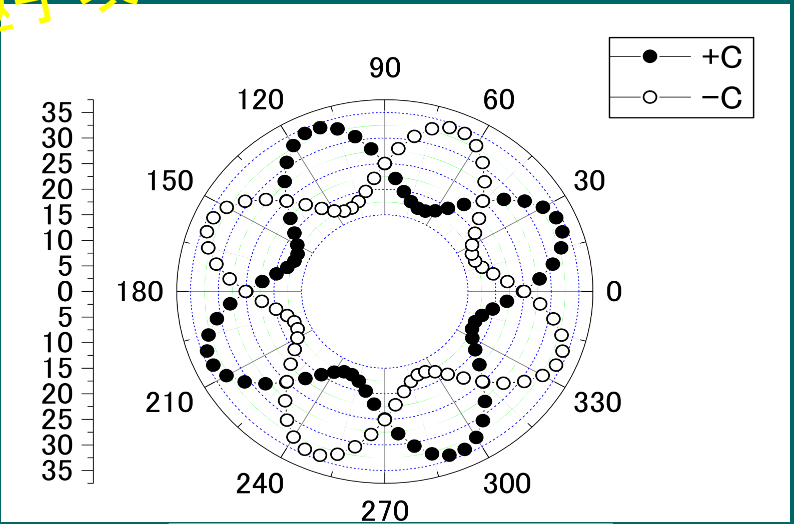
$$\tan 2\psi_\pm = \frac{2(A_{SP} - B\cos 4\phi \pm C\sin 4\phi)(\pm A_{SS} + B\sin 4\phi \pm C\cos 4\phi)}{(A_{SP} - B\cos 4\phi \pm C\sin 4\phi)^2 - (\pm A_{SS} + B\sin 4\phi \pm C\cos 4\phi)^2}$$

$P_{in}$

$$\tan 2\psi_\pm = \frac{2(A_{PP} + B\cos 4\phi \mp C\sin 4\phi)(\pm A_{PS} - B\sin 4\phi \pm C\cos 4\phi)}{(A_{PP} + B\cos 4\phi \mp C\sin 4\phi)^2 - (\pm A_{PS} - B\sin 4\phi \pm C\cos 4\phi)^2}$$

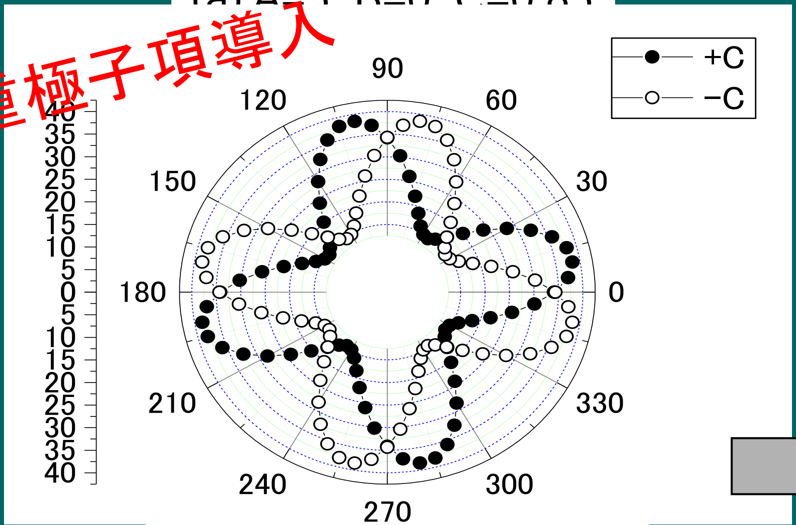
# 4重極子項の効果

双極子項のみ




(a) A=5, B=0, C=0.85

4重極子項導入




(b) A=5, B=0.85, C=0.85

The equation of the azimuthal angle-dependence by theoretical analysis

$$I^{SP} = \left| A^{SP} - B\cos 4\varphi \pm C\sin 4\varphi \right|^2$$

(a) A=5, B=0, C=0.85

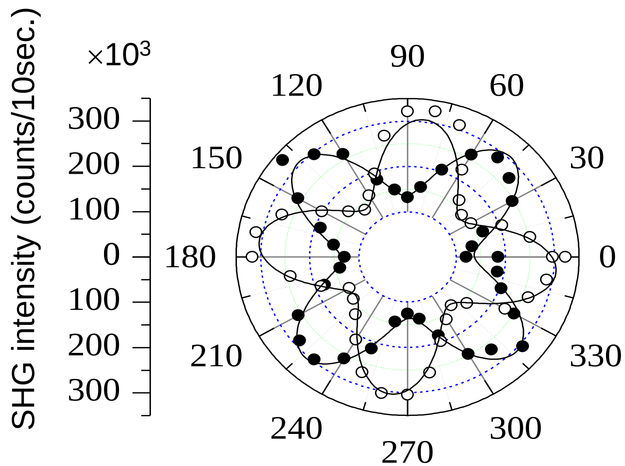
- For B much smaller than C, the polar pattern shows 45° rotation for the magnetization reversal.

(b) A=5, B=0.85, C=0.85

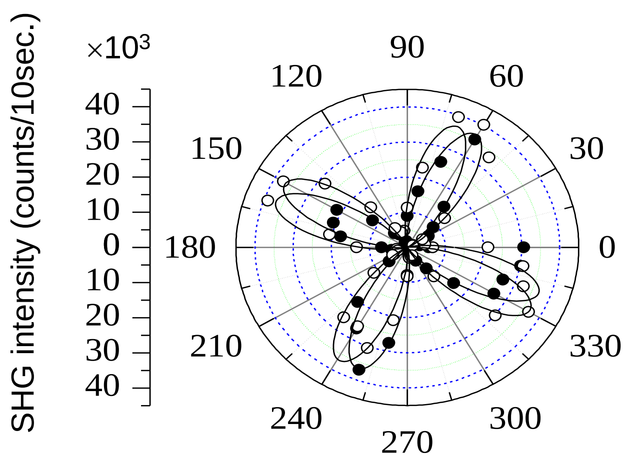
- For B comparable C, the polar pattern undergo a smaller rotation.

The azimuthal pattern was interpreted in terms of combination of B and C.

# フィッティング結果




(a) Sin-Pout




(b) Sin-Sout

The equation of the azimuthal angle-dependence by theoretical analysis

Sin-Pout

$$I^{SP} = \left| A^{SP} - \underline{\boldsymbol{B}} \cos 4\varphi \pm \underline{\boldsymbol{C}} \sin 4\varphi \right|^2$$

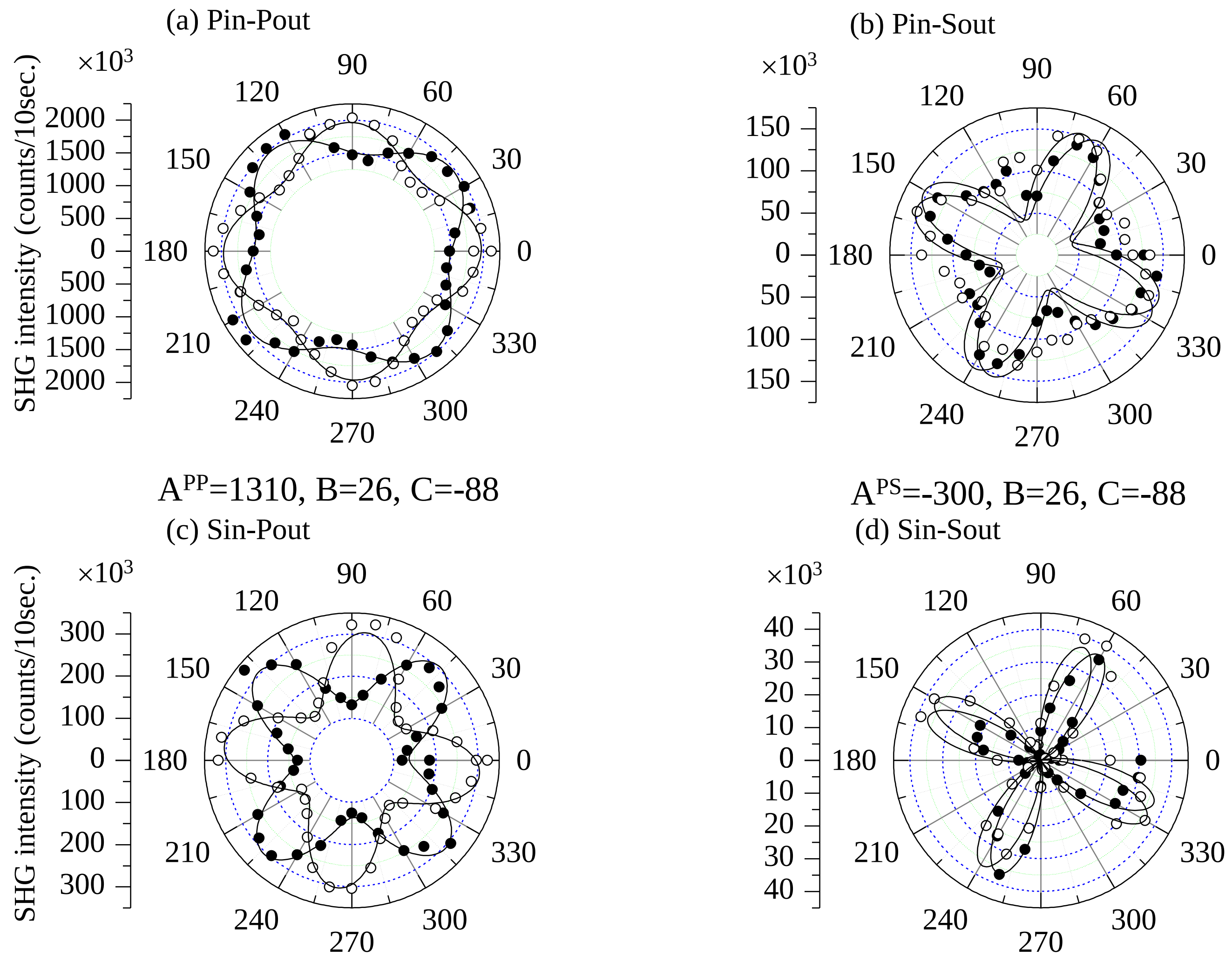
Sin-Sout

$$I^{SS} = \left| \pm A^{SS} \pm \underline{\boldsymbol{C}} \cos 4\varphi + \underline{\boldsymbol{B}} \sin 4\varphi \right|^2$$

| | | |
|---|---|---|
| $A^{SP}$(surface nonmagnetic term) | = | 460 |
| $A^{SS}$(surface nonmagnetic term) | = | 100 |
| B(bulk nonmagnetic term) | = | 26 |
| C(surface magnetic term) | = | -88 |

# フィッティング結果

Dots：exp.
Solid curve：calc.




$A^{PP}$=1310, B=26, C=-88

$A^{PS}$=-300, B=26, C=-88

$A^{SP}$=460, B=26, C=-88

$A^{SS}$=100, B=26, C=-88

# フィッティングパラメータの層厚依存性

$$I^{SP} = \left| A^{SP} - B\cos 4\varphi \pm C\sin 4\varphi \right|^2$$

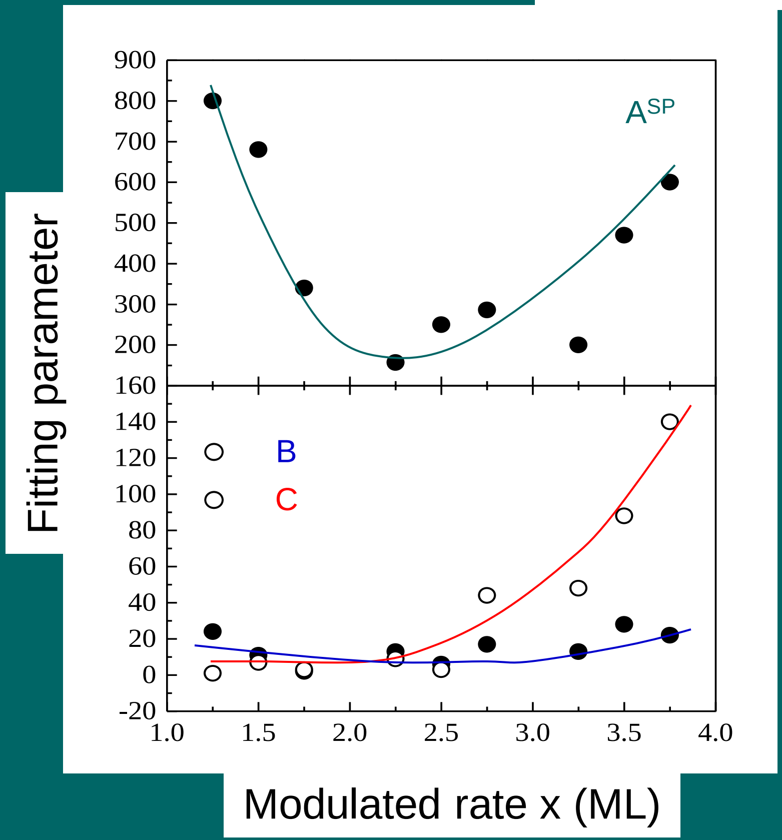



Fig. The fitting parameter of azimuthal angle-dependence for [Fe(xML)/Au(xML)] (1.25≤x≤3.75) superlattices.

Contribution of $A^{SP}$ term

- Surface nonmagnetic term
- Dependence on focused beam power

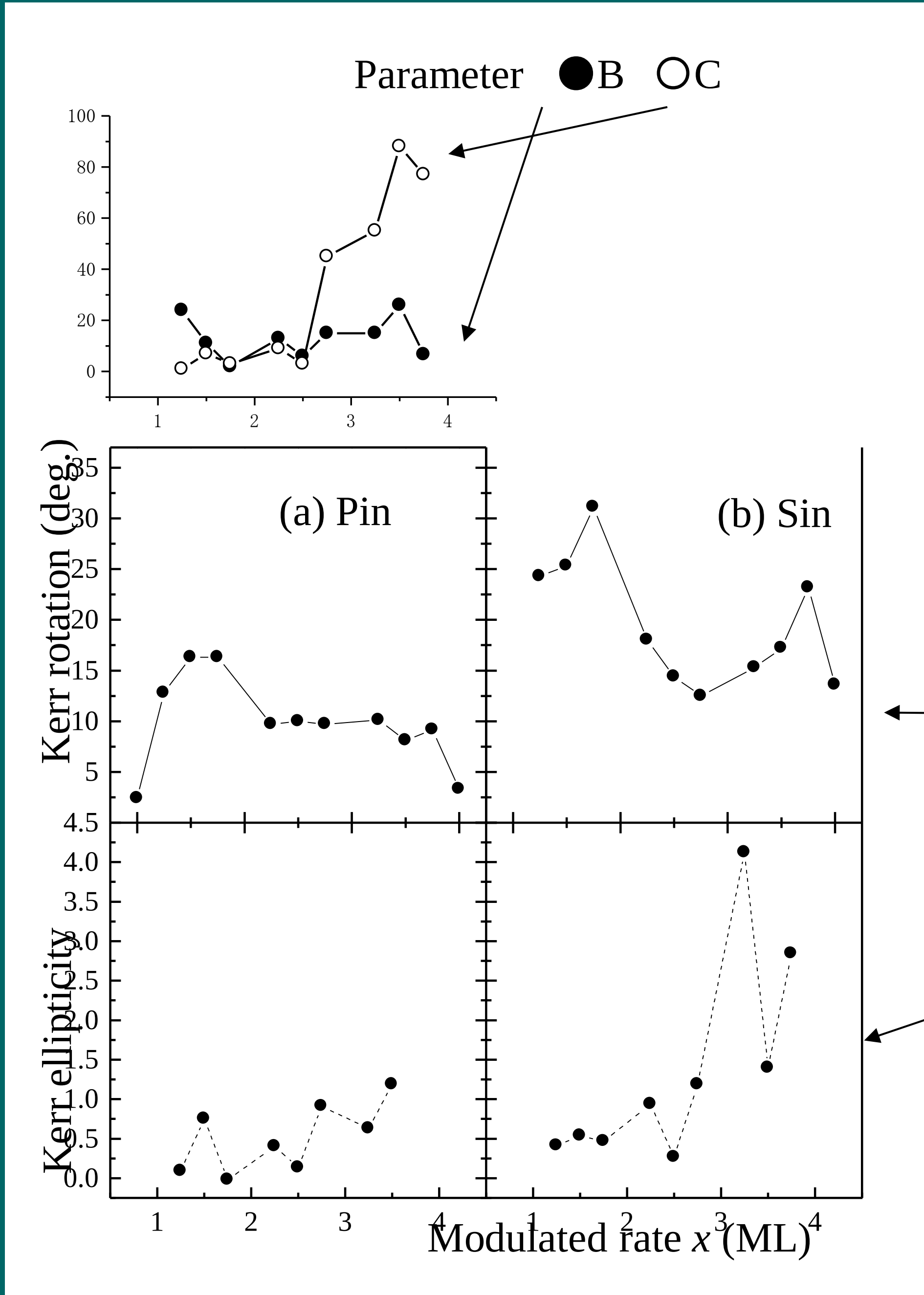
Contribution of B term

- Bulk nonmagnetic term
- The parameter B is constant for the modulation x.

Contribution of C term

- Surface magnetic term
- Decrease of the parameter C for the azimuthal patern rotation

# 非線形カー回転と非線形カー楕円率




The modulation period-dependence of fitting parameters and nonlinear Kerr rotation angle and ellipticity in [Fe($x$ML)/Au($x$ML)] ($1\leq x\leq 4$) superlattices.

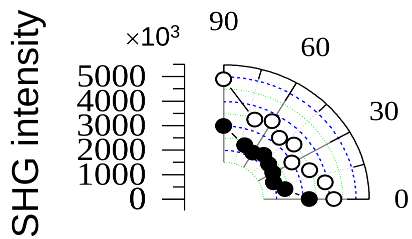
Input polarization is (a)Pin and (b)Sin.

Nonlinear Kerr rotation

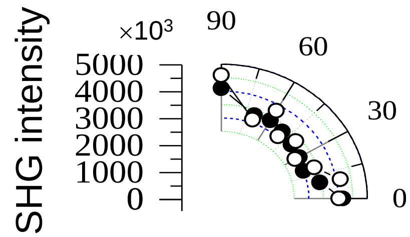
Nonlinear Kerr ellipticity

# 非線形カー回転角の方位依存性

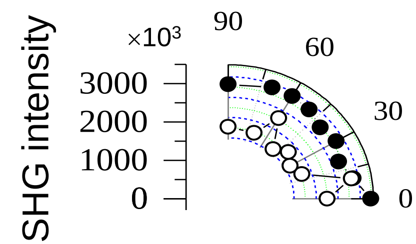
Fe(1.25ML)/Au(1.25ML)




Analyzer angle = 30°

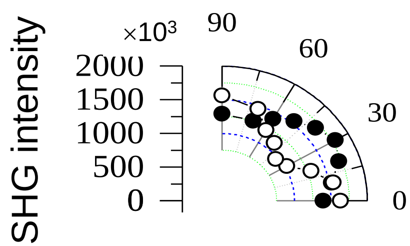



Analyzer angle = 60°
(Pin-Pout)

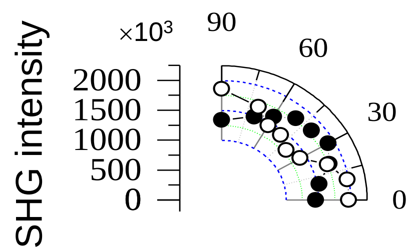



Analyzer angle = 90°

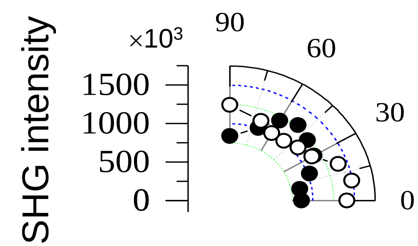
Fe(3.5ML)/Au(3.5ML)




Analyzer angle = 30°




Analyzer angle = 60°
(Pin-Pout)




Analyzer angle = 90°

# NOMOKEの方位依存性のシミュレーション

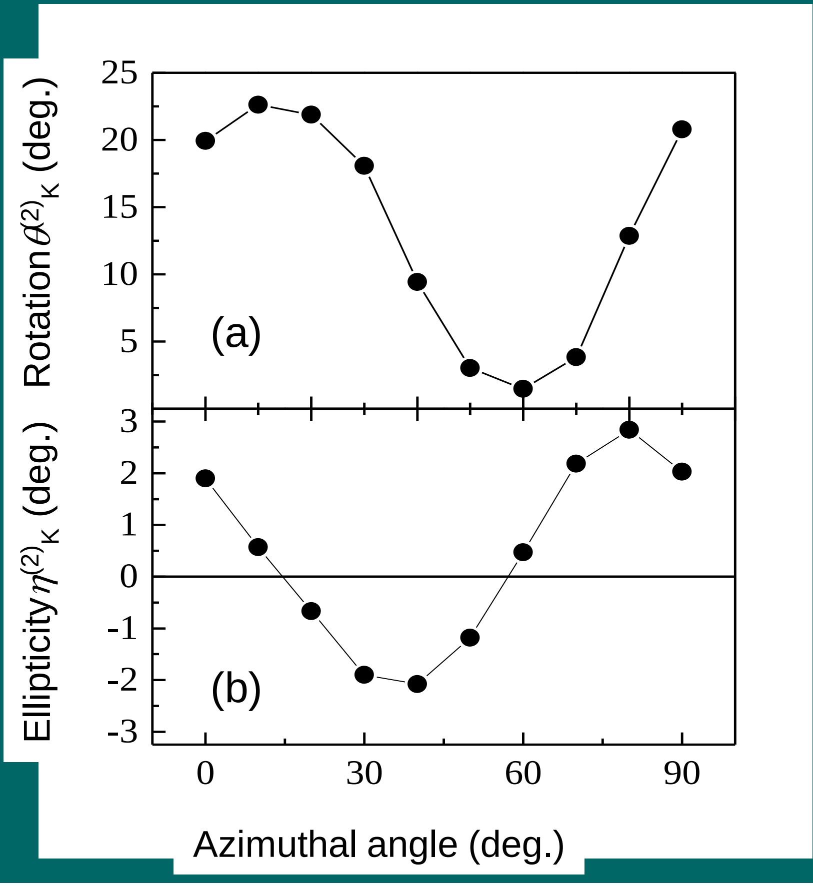



Fig. Calculated azimuthal angle-dependence of nonlinear Kerr rotation $\theta^{(2)}_K$ and ellipcity $\eta^{(2)}_K$ for a Fe(3.75ML)/Au(3.75ML) superlattice.

(a) Nonlinear Kerr rotation

- Azimuthal angle-dependence of nonlinear Kerr ellipticity is found to be sinusoidal.

(b) Nonlinear Kerr ellipticity

$$\eta_K^{(2)} = \frac{1}{2}\left[\tan^{-1}\left(\frac{I_{MAX}(+)}{I_{MIN}(+)}\right) - \tan^{-1}\left(\frac{I_{MAX}(-)}{I_{MIN}(-)}\right)\right]$$

I: Analyzer angle dependence of the MSHG intensity

- Azimuthal angle-dependence of nonlinear Kerr ellipticity showed 45°-shift compared to Kerr rotation.
- Ellipticity $\eta^{(2)}_K$ was about zero for the maximum $\theta^{(2)}_K$ and the minimum $\theta^{(2)}_K$.

# NOMOKEの方位依存性の実験結果

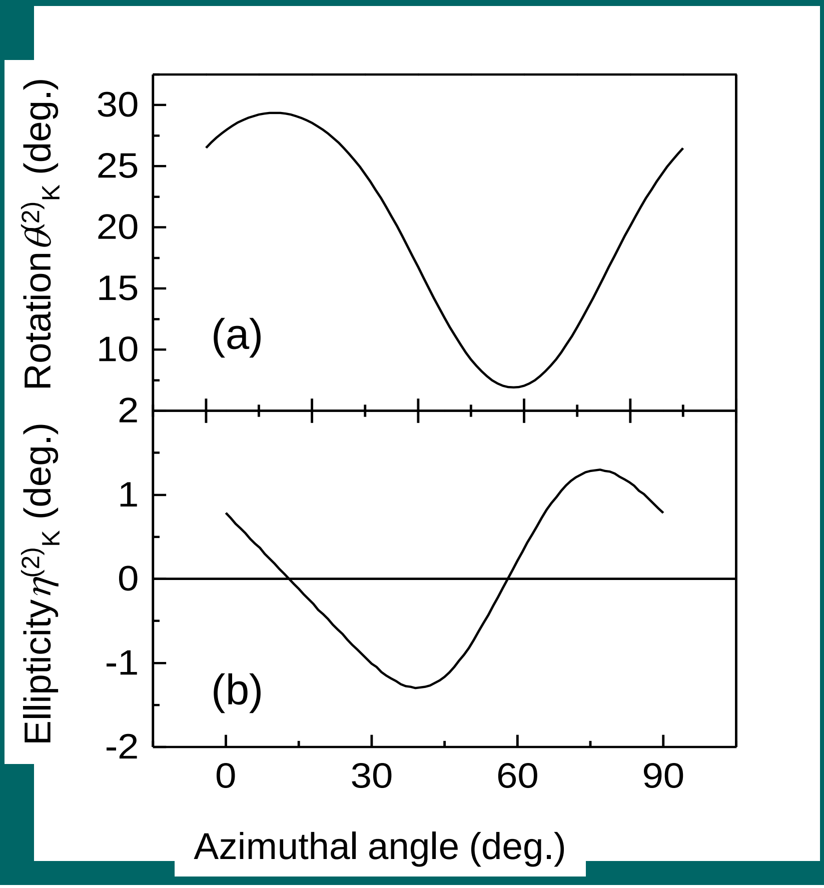



Fig. Experimental azimuthal angle-dependence of nonlinear Kerr rotation $\theta^{(2)}_K$ and ellipcity $\eta^{(2)}_K$ for a Fe(3.75ML)/Au(3.75ML) superlattice.

(a) Nonlinear Kerr rotation $\theta^{(2)}_K$

$$\tan\psi_\pm = \frac{2\left(A^{SP} - B\cos 4\varphi \pm C\sin 4\varphi\right)\left(\pm A^{SS} + B\sin 4\varphi \pm C\cos 4\varphi\right)}{\left(A^{SP} - B\cos 4\varphi \pm C\sin 4\varphi\right)^2 - \left(\pm A^{SS} + B\sin 4\varphi \pm C\cos 4\varphi\right)^2}$$

$$\Rightarrow \quad \theta_K^{(2)} = \frac{\psi_+ - \psi_-}{2}$$

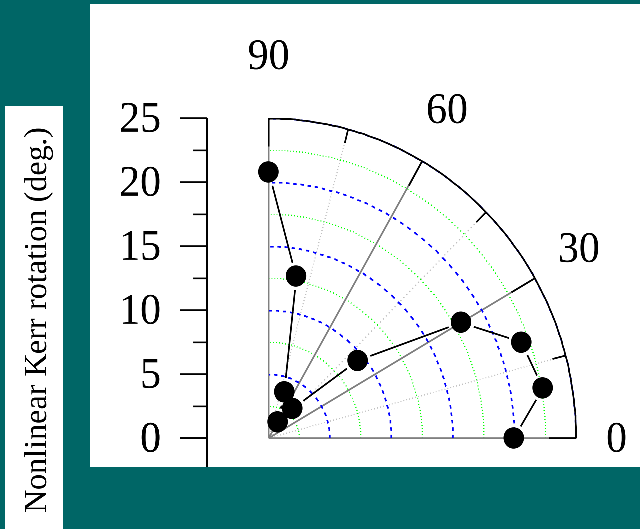
(b) Nonlinear Kerr ellipticity $\eta^{(2)}_K$

$$I^{Sin}(\theta) = |P^{SP}\cos\theta + P^{SS}\sin\theta|^2$$

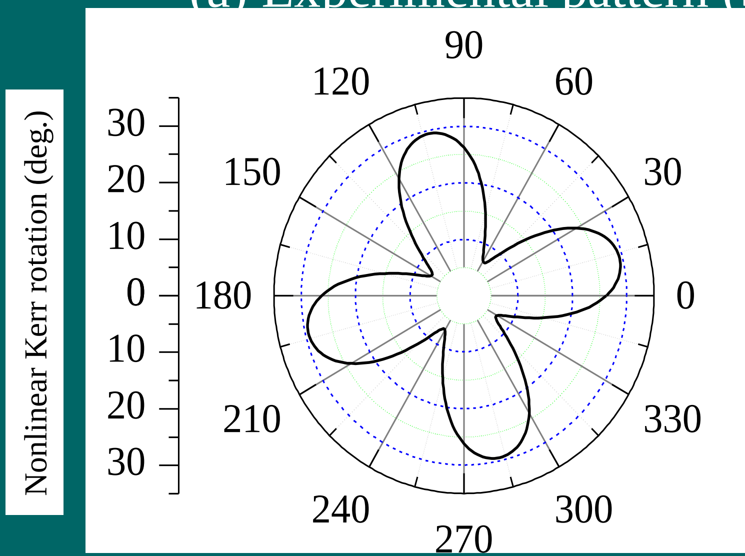
I: Analyzer angle-dependence of MSHG intensity for Pin configulation.

$$\Rightarrow \quad \eta_K^{(2)} = \frac{1}{2}\left[\tan^{-1}\left(\frac{I_{MAX}(+)}{I_{MIN}(+)}\right) - \tan^{-1}\left(\frac{I_{MAX}(-)}{I_{MIN}(-)}\right)\right]$$

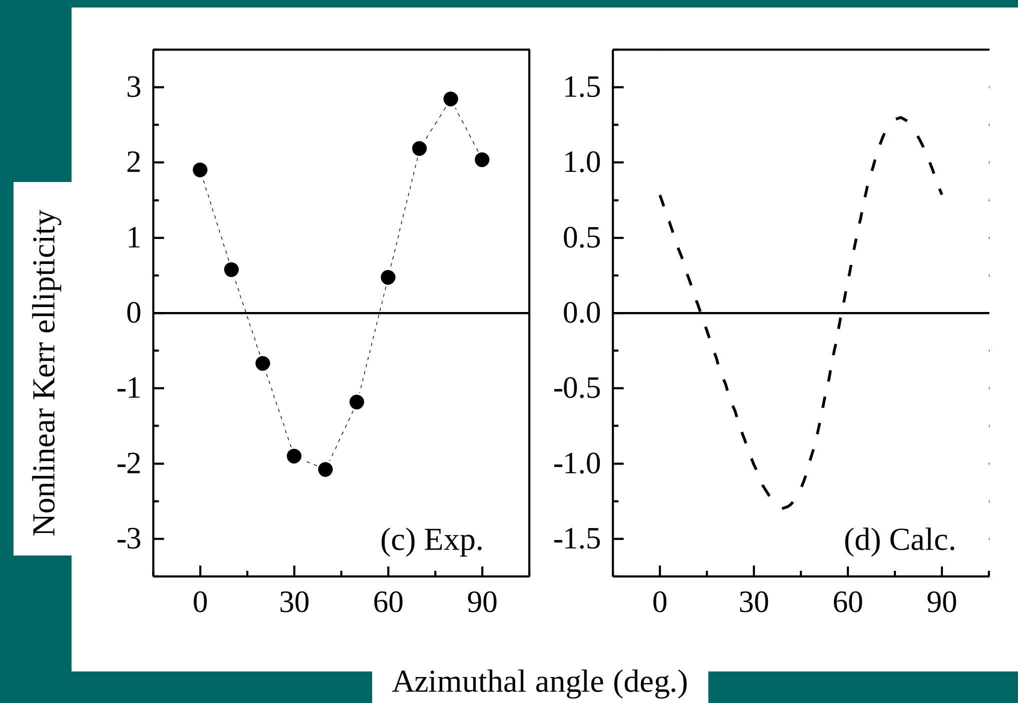
# 計算結果と実験の比較1




(a) Experimental pattern (Sin)

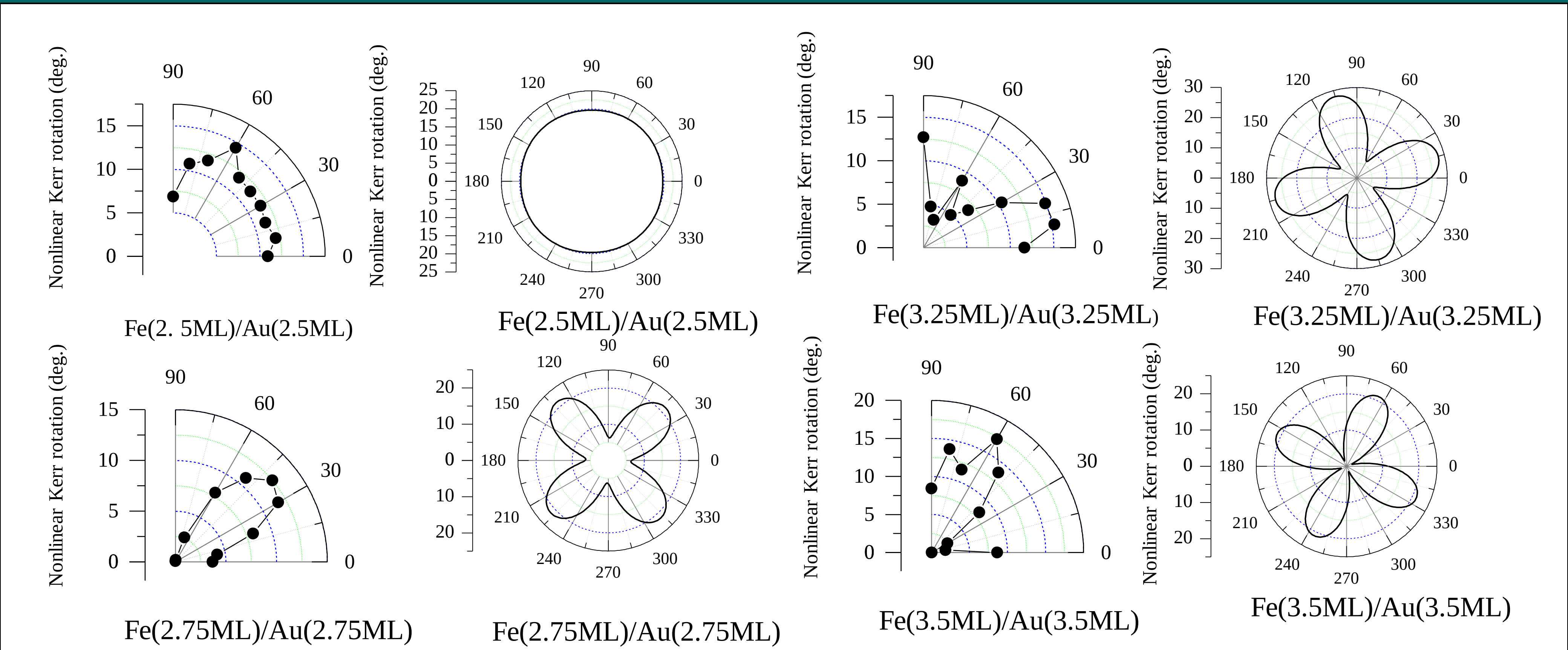



(b) Calculated pattern (Sin)




The azimuthal angle-dependences of nonlinear Kerr rotation angle and ellipticity in [Fe(3.75ML)Au(3.75ML)]

# 計算結果と実験の比較2




Sin configuration: (a) Experimental data,
(b) Calculated using *parameters determined by fitting to the azimuth patterns*

# NOMOKEの最大値の層厚依存性

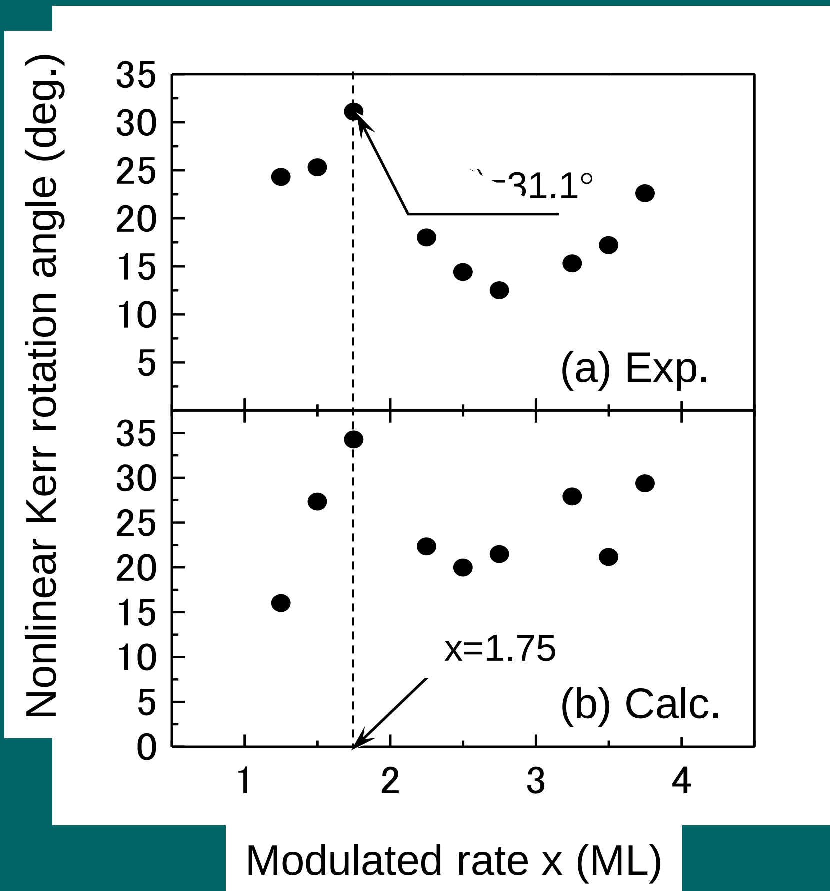



Fig. Nonlinear Kerr rotation angle of [Fe(xML)/Au(xML)] (1.25≤x≤3.75) superlattices [(a)Calculation, (b)Experiment]

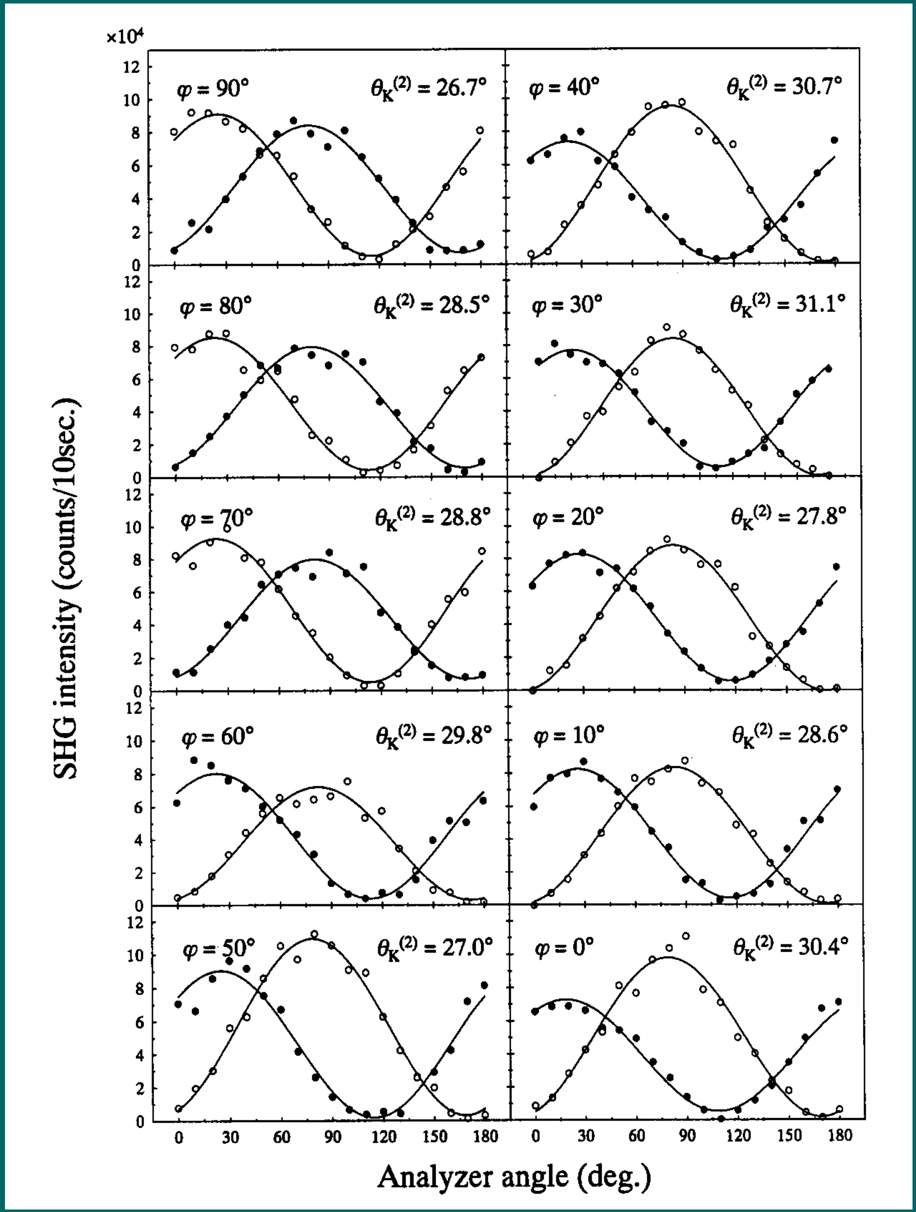
## Calculation and experimental result

Calculated nonlinear Kerr rotation angle $\theta_K^{(2)}$ using the fitting parameter $A^{SP}$, $A^{SS}$, B, C of the azimuthal pattern
(The maximum $\theta_K^{(2)}$ was selected for azimuth angle)

- The experimental maximum $\theta_K^{(2)}$ for x=1.75 superlattice was 31.1°.
- The calculated $\theta_K^{(2)}$ reproduced the muximum $\theta_K^{(2)}$ for x=1.75 superlattice.

The nonlinear Kerr rotation was explained by theoretical analysis.

# 検光子方位をパラメータとしたMSHGの方位依存性




Sin
NOMOKE
Fe*(xML)*/Au*(xML)*
*x*=1.75

# 結論

The four-fold pattern clearly reflects the symmetry of the MgO(100) substrate. This suggests that the Fe/Au superlattice is perfectly epitactic to the substrate.

- The azimuthal angle dependence was analyzed in terms of nonlinear electrical susceptibility tensor taking into account the magnetic symmetry of the superlattice.

- The azimuthal pattern was explained by symmetry analysis, taking into account the surface non-magnetic A, bulk non-magnetic B and surface magnetic C contributions.

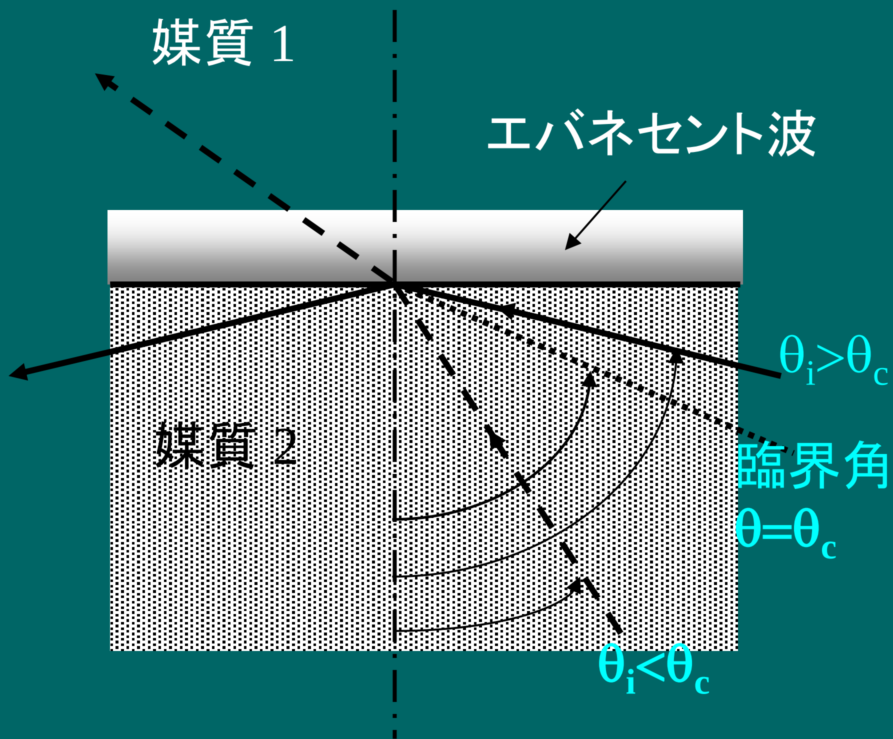
- MSHG was shown to lead to a nonlinear Kerr rotation $\theta^{(2)}_K$ that can be orders of magnitude larger than its linear equivalent (0.2°), e.g., $\theta^{(2)}_K$ for x=1.75 was 31.1°

- We observed azimuthal angle-dependence of the nonlinear Kerr rotation for the first time.

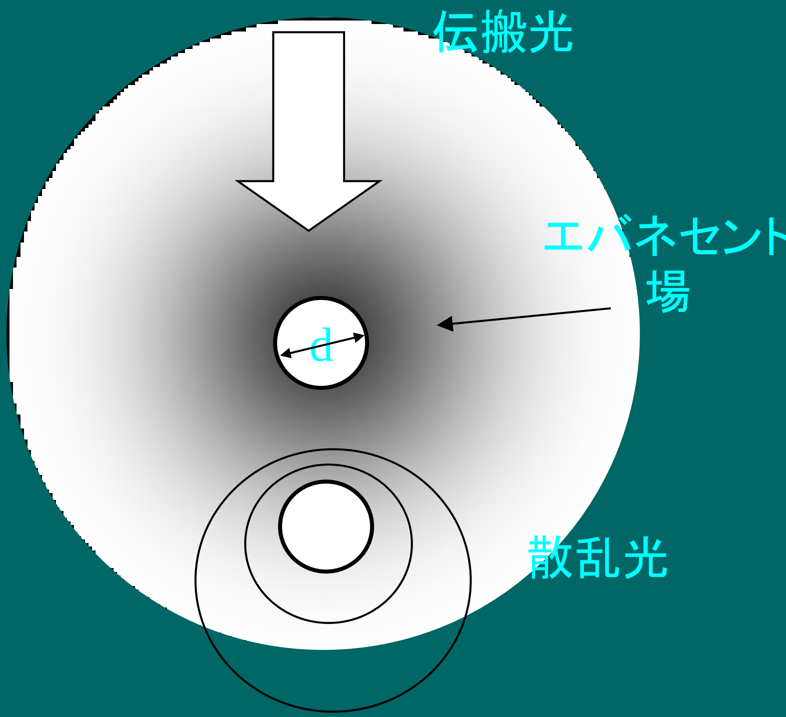
- The azimuthal angle-dependence of the nonlinear Kerr rotation were explained using parameters determined from azimuthal patterns of MSHG response

- Modulation period dependence of parameters:
  - A (Surface nonmagnetic) is large for short period
  - B (Bulk nonmagnetic) is nearly constant
  - C (Surface magnetic) becomes larger with modulation Period.

# 近接場とは




全反射とエバネセント波




微小物体の周りのエバネセント場に置かれたもう１つの微小物体による散乱光

# 光ファイバプローブを用いたSNOM

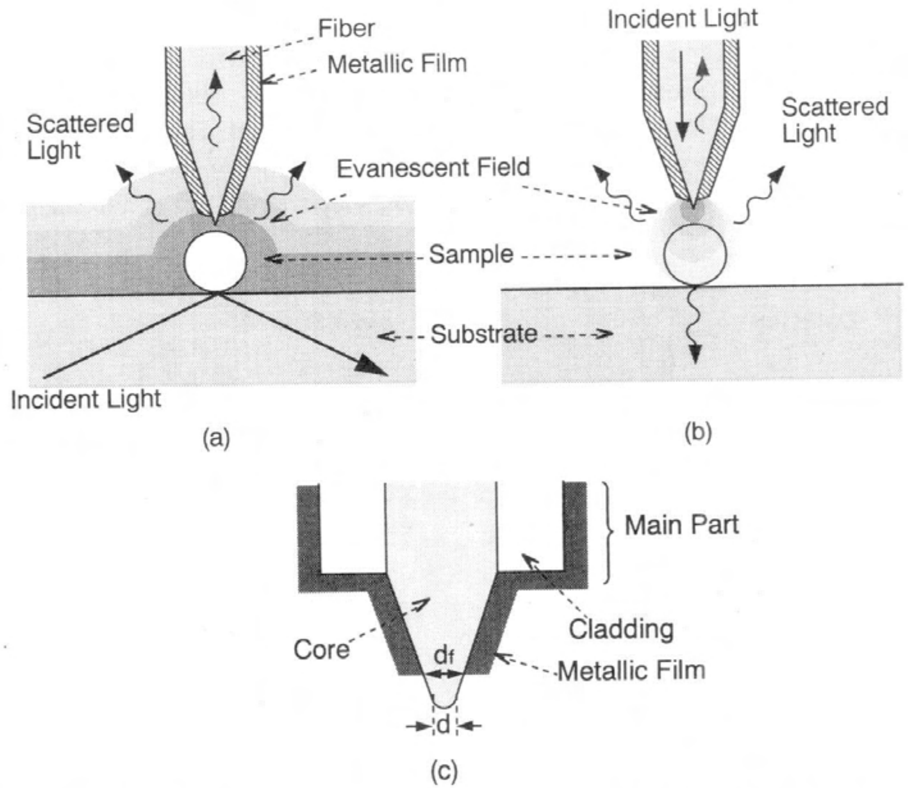
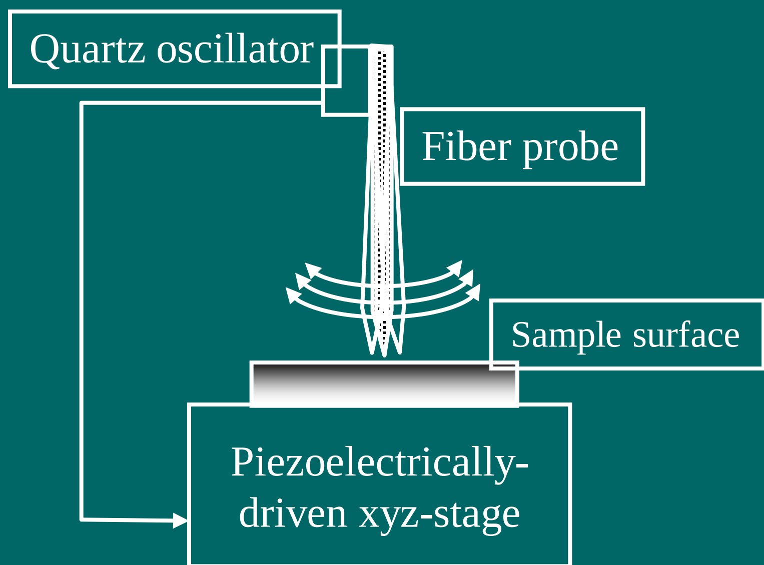
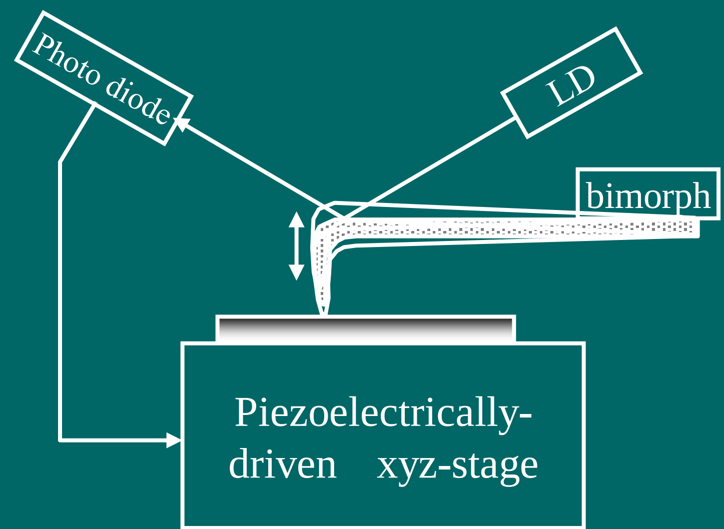



Figure 3.2. Practical basic structure of the NOM using an inverted conical probe, which is a sharpened fiber core protruding from the metal film. (a) Collection mode (C-mode). (b) Illumination mode (I-mode). (c) Definition of the foot diameter $d_f$ and apex diameter $d$.

# プローブの高さ制御

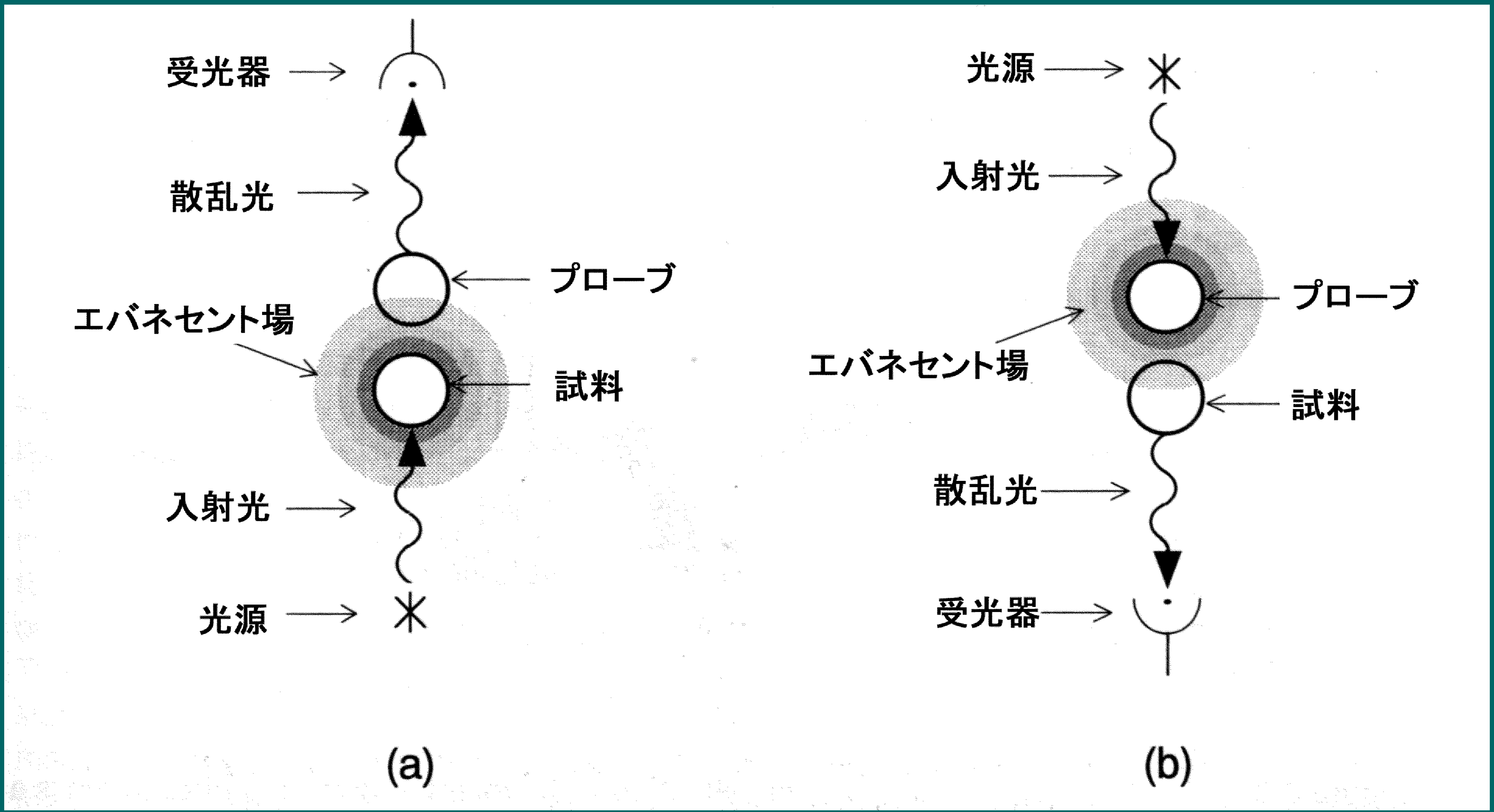



Shear force(剪断力)方式

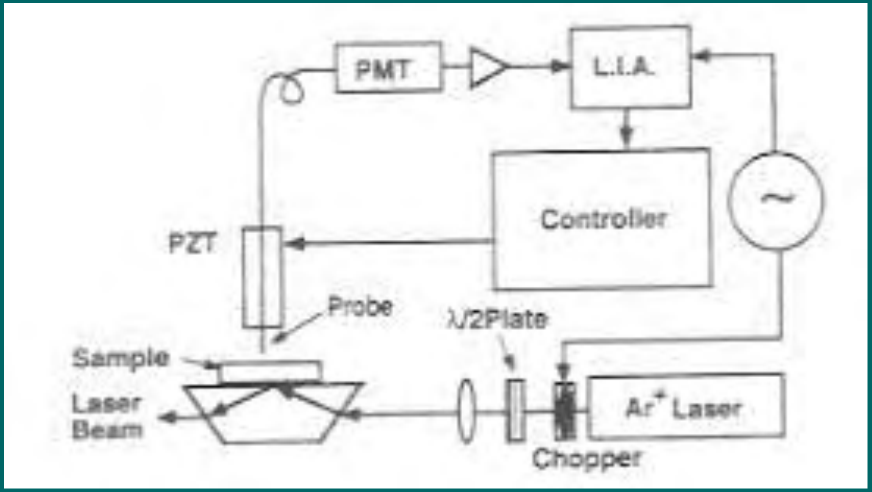


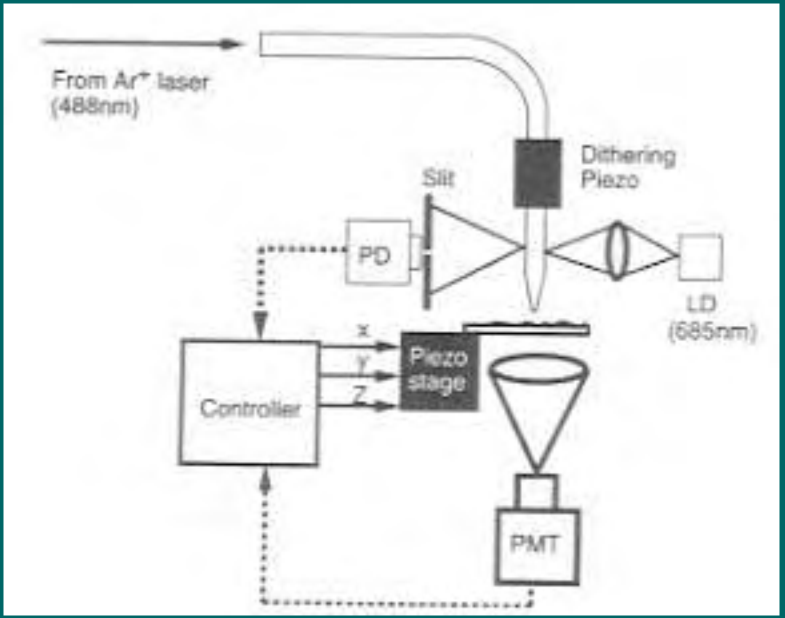

カンチレバー方式

# 集光モード(a)と照射モード(b)



# 集光モード、照射モードのSNOM

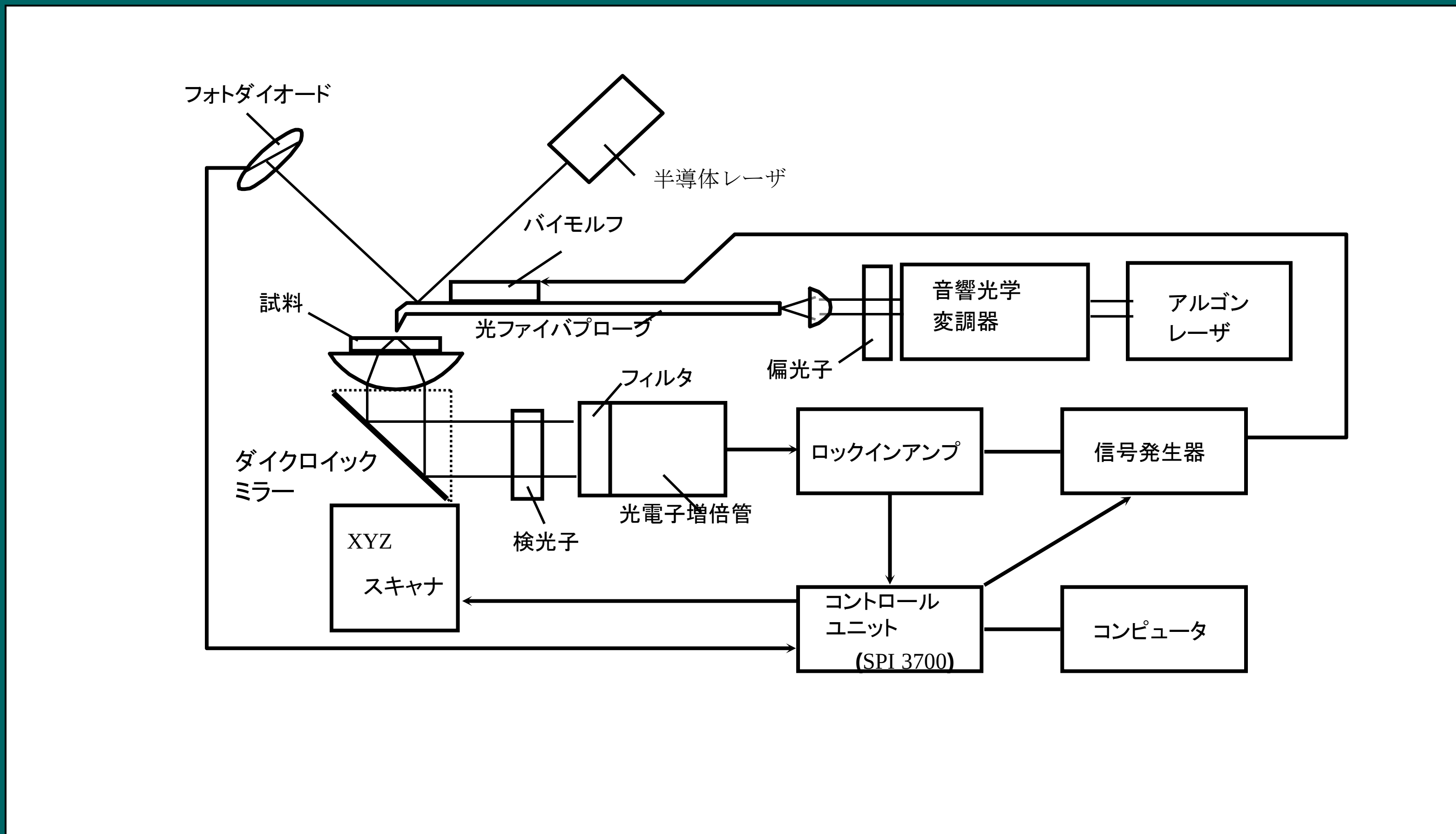


# SNOMによる磁気光学測定

- 1991 Betzig : 光ファイバーをテーパー状に細めたプローブ で光磁気記録・再生に成功
- 1992 Betzig : 超微細加工した金属細線リングの偏光像
- 多くの研究あるが、高解像度のMO-SNOM像は得られていない
- 偏光をファイバを通して伝えるのが困難

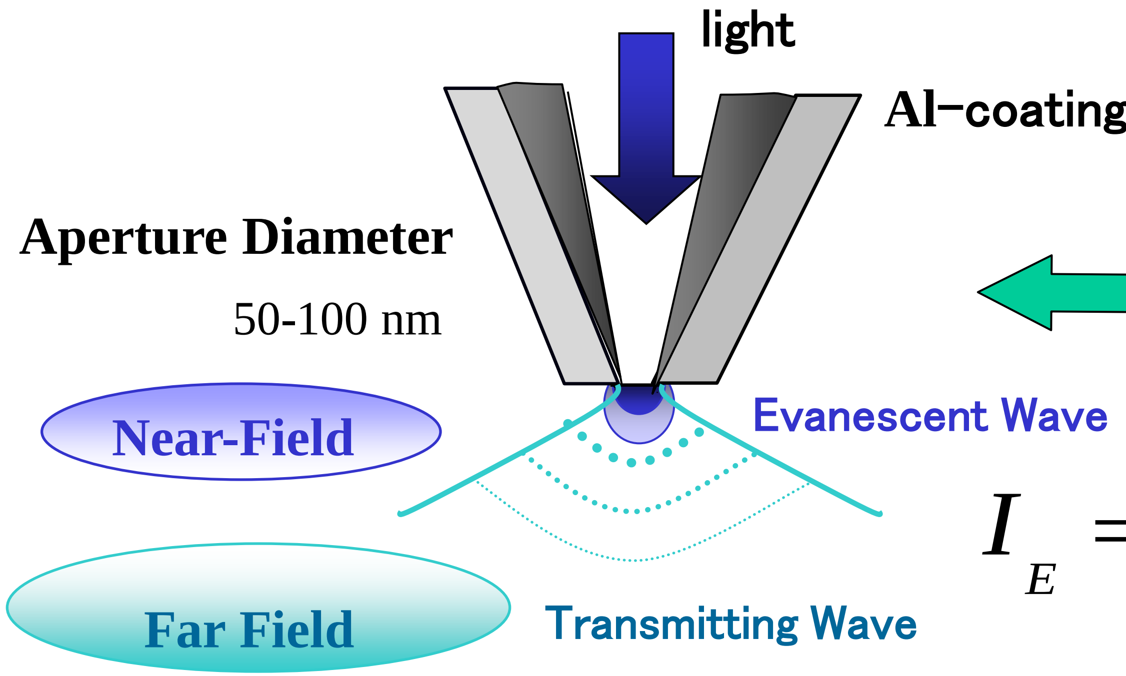
# SNOMのブロック図

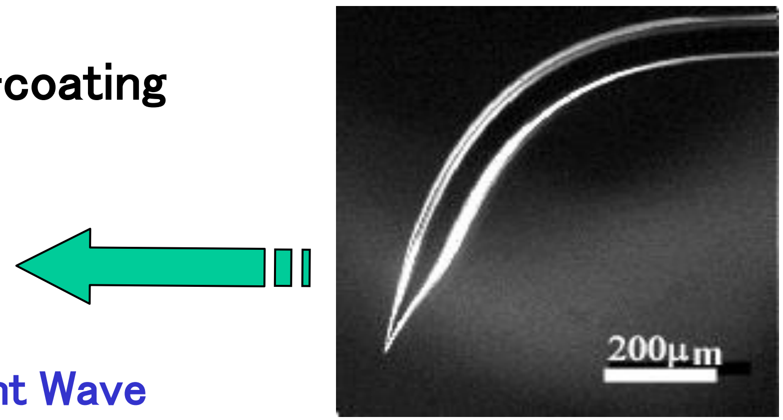


フォトダイオード
半導体レーザ
バイモルフ
試料
光ファイバプローブ
音響光学
変調器
アルゴン
レーザ
偏光子
フィルタ
ダイクロイック
ミラー
ロックインアンプ
信号発生器
光電子増倍管
検光子
XYZ
スキャナ
コントロール
ユニット
(SPI 3700)
コンピュータ

# ベントファイバプローブ

# Optical Fiber Probe and Near-Field Optics



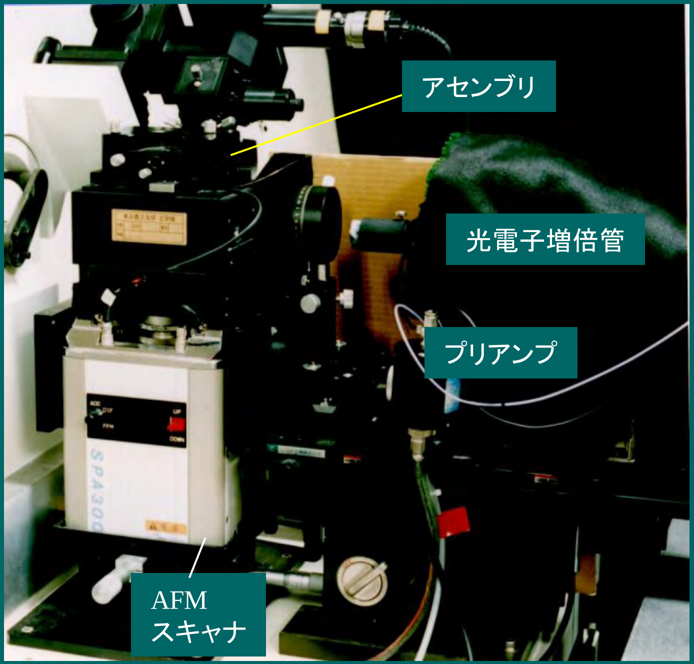

$$I_E = I_0 \exp[-\alpha \cdot z]$$

Application to MO-SNOM ⟹ Transmission Prop.

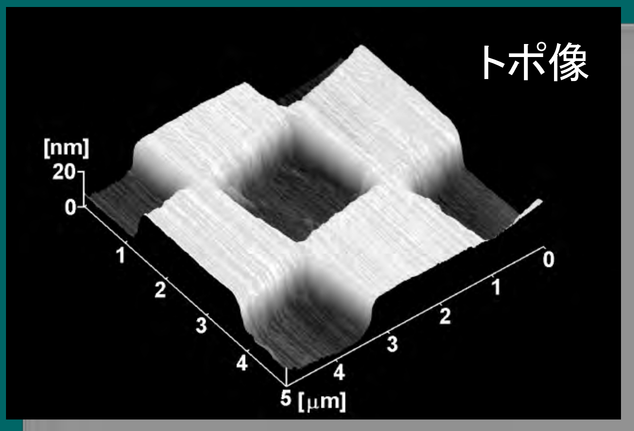
# ファイバホルダー

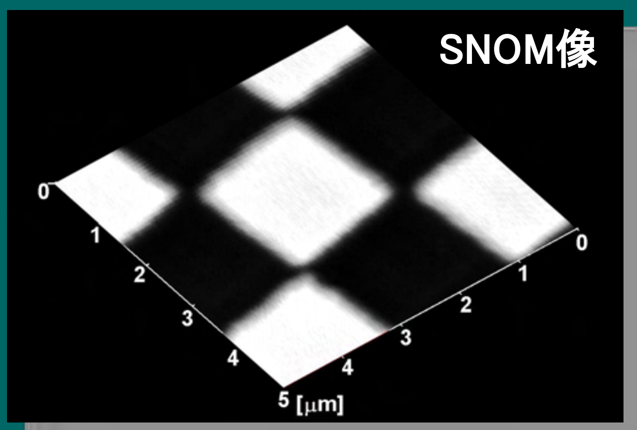
図3

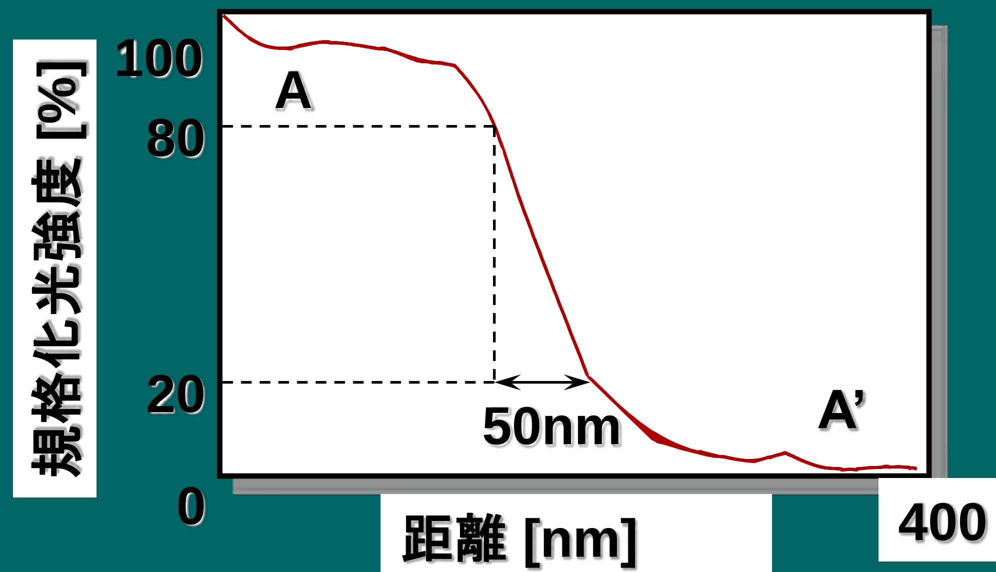
# SNOMアセンブリー



# Cr市松模様のトポ像とSNOM像

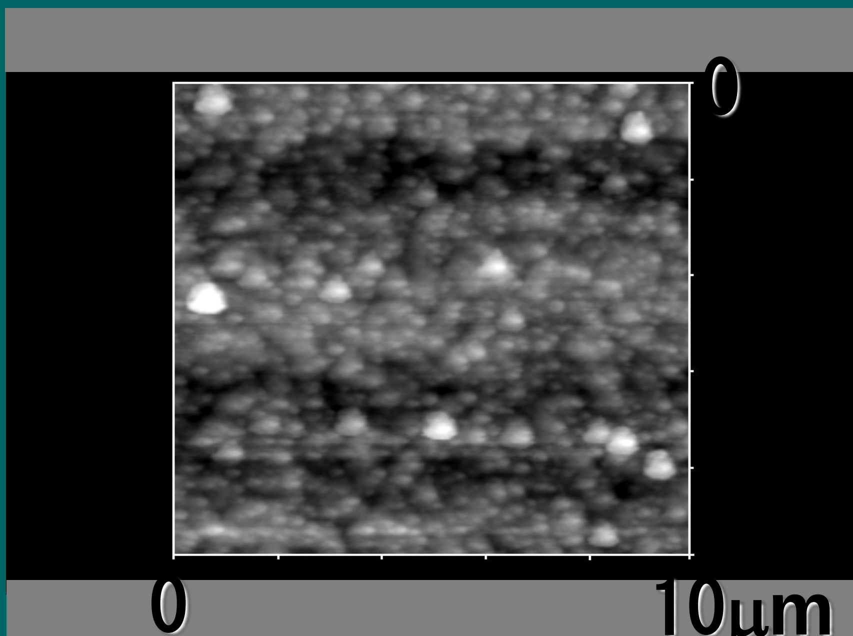


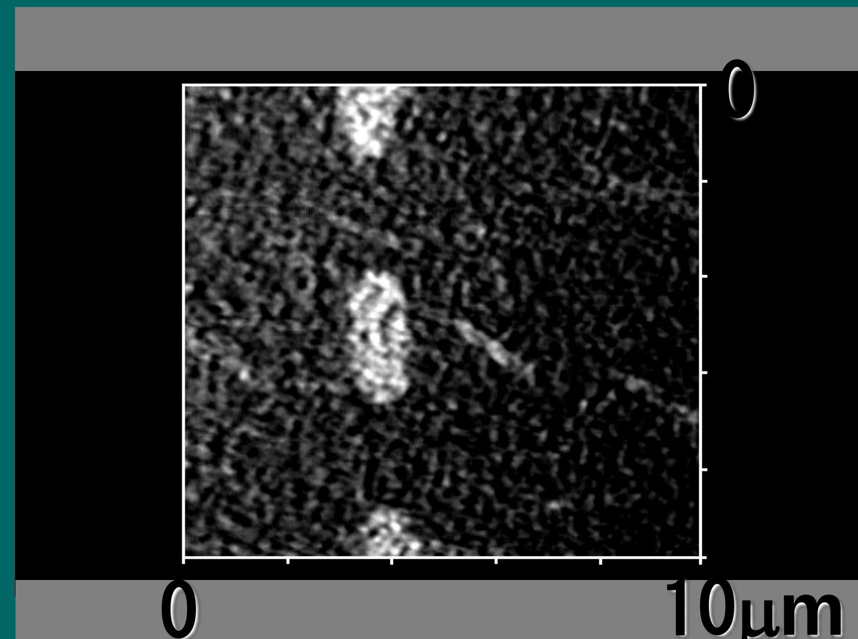



# Near-field magneto-optic images of conventionally written domains in garnet film

Bismuth-substituted dysprosium-iron-garnet film
(Thickness : 100nm)

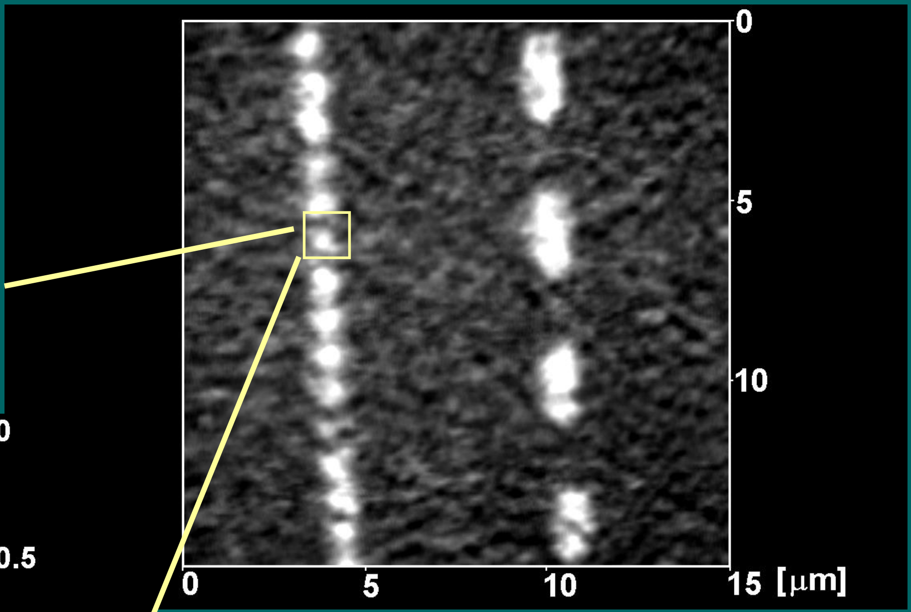



Topographic image

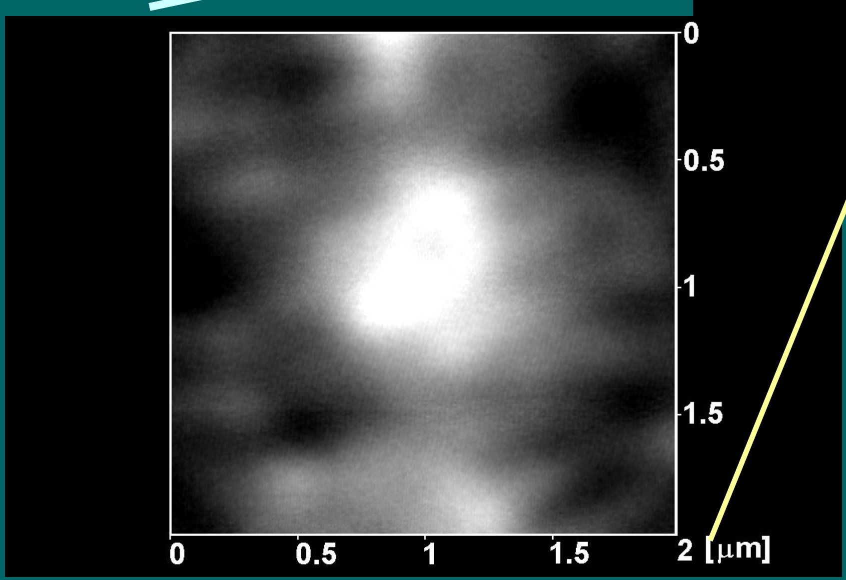



Magneto-optical image
(Wavelength : 488 nm)

# DyIGに記録されたマークの像



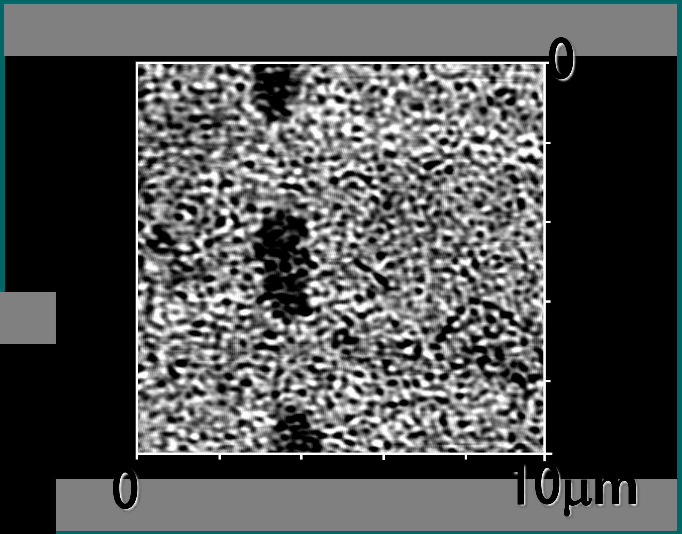

DyIG膜の記録マークの偏光像
(波長488nm)

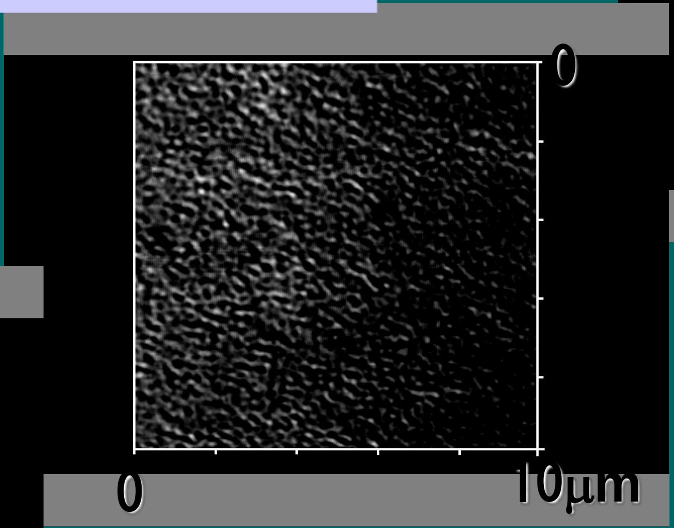


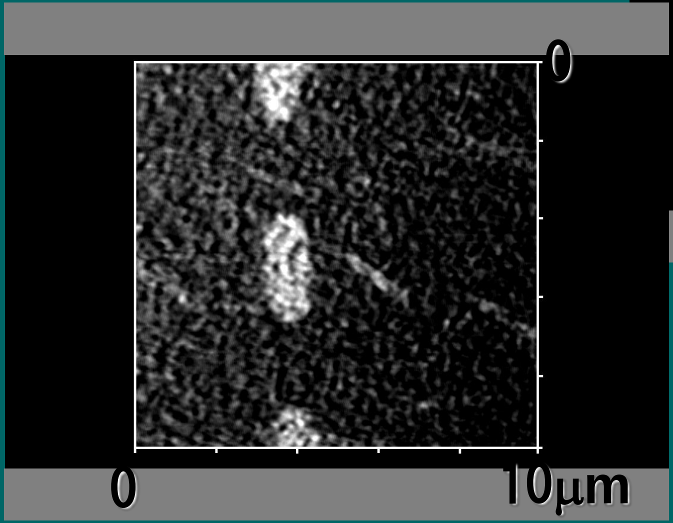

拡大図

# Near-field magneto-optic images of conventionally written domains in garnet film

Polarization contrast for different analyzer angles
Wavelength : 488 nm

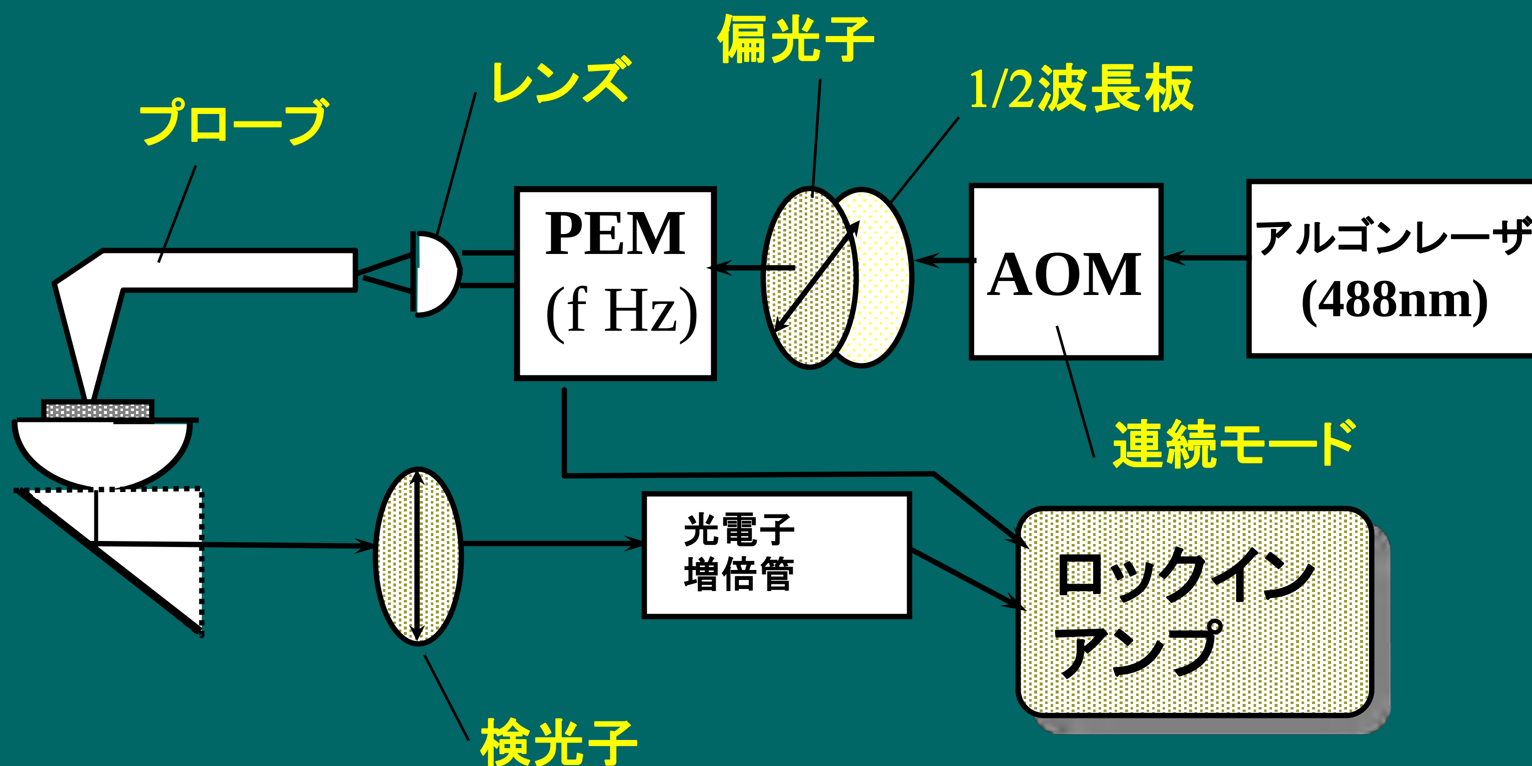


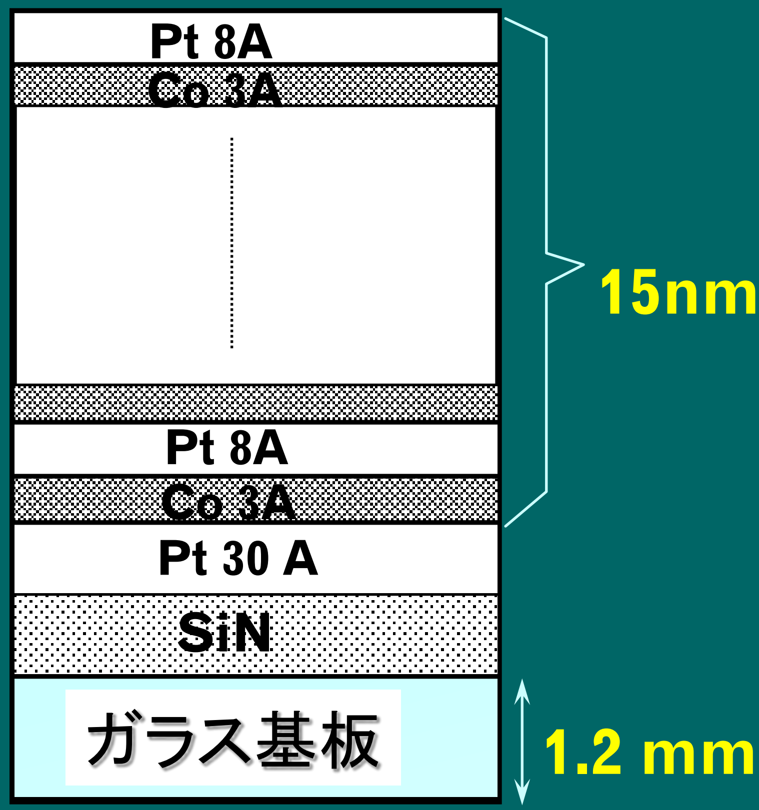




Bismuth-substituted dysprosium-iron-garnet film
(Thickness : 100nm)

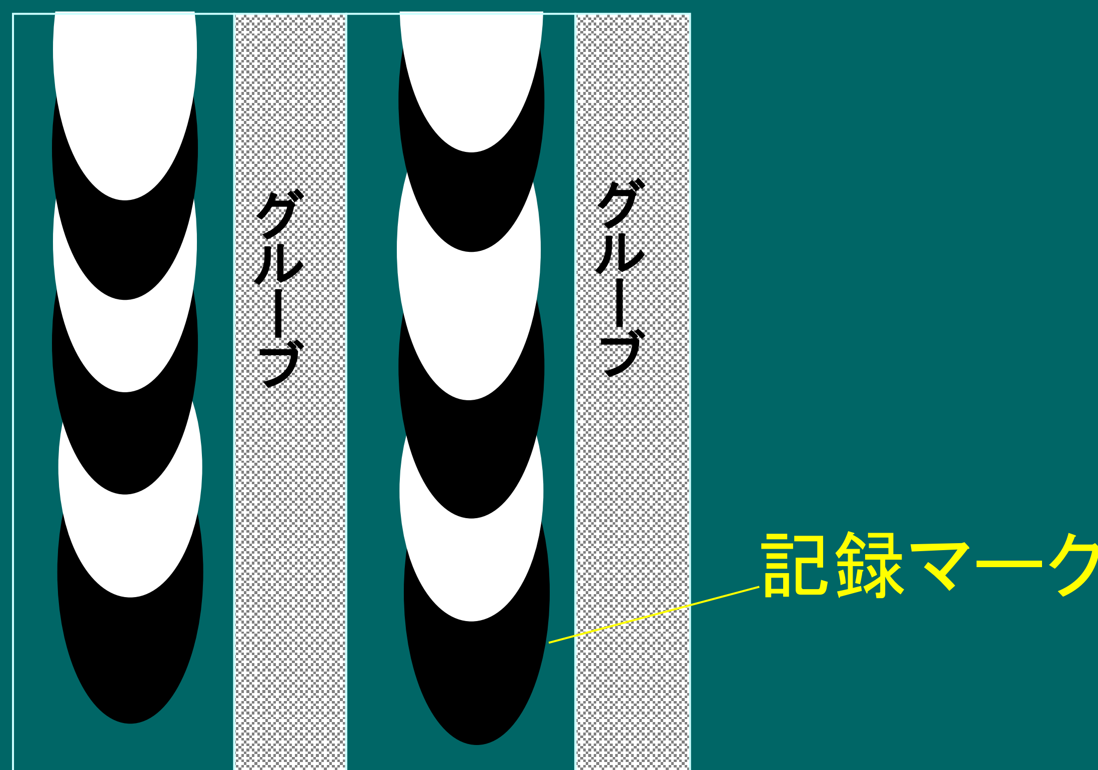
# PEMを使ったSNOMシステム



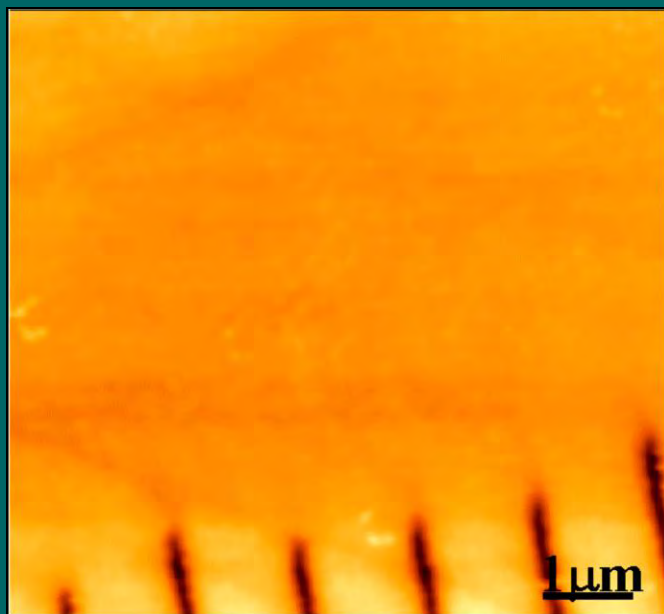
# 測定したPt/Co MOディスクの構造



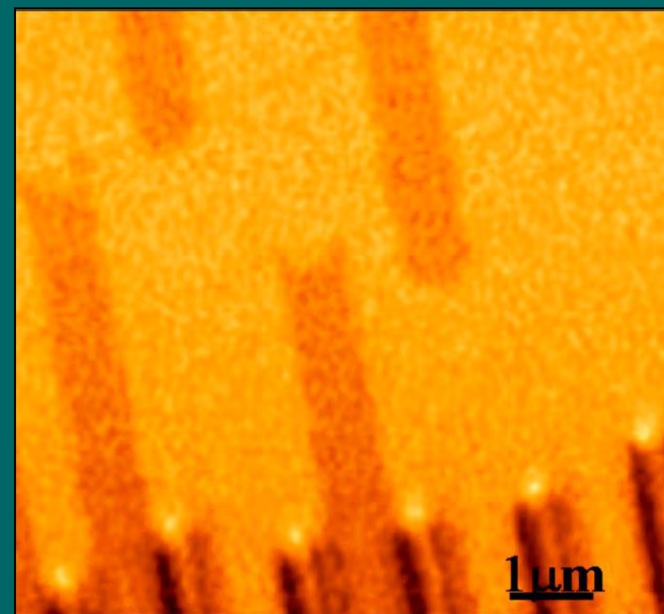
# 磁界変調記録の矢羽型記録マーク



# Pt/Coディスクの記録マークのトポ像と磁気光学像




トポグラフ像




磁気光学像

# ストークスパラメータ

$$\mathbf{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ E_y \end{pmatrix}$$

Electric field vector of light

$$S_0 = \left\langle \left| E_x \right|^2 \right\rangle + \left\langle \left| E_y \right|^2 \right\rangle$$

Intensity of light

$$S_1 = \left\langle \left| E_x \right|^2 \right\rangle - \left\langle \left| E_y \right|^2 \right\rangle$$

Intensity of linearly polarized light along x axis

$$S_2 = \left\langle E_x \cdot E_y^{\,*} \right\rangle + \left\langle E_x^{\,*} \cdot E_y \right\rangle$$

Intensity of linearly polarized light oriented by 45 degrees

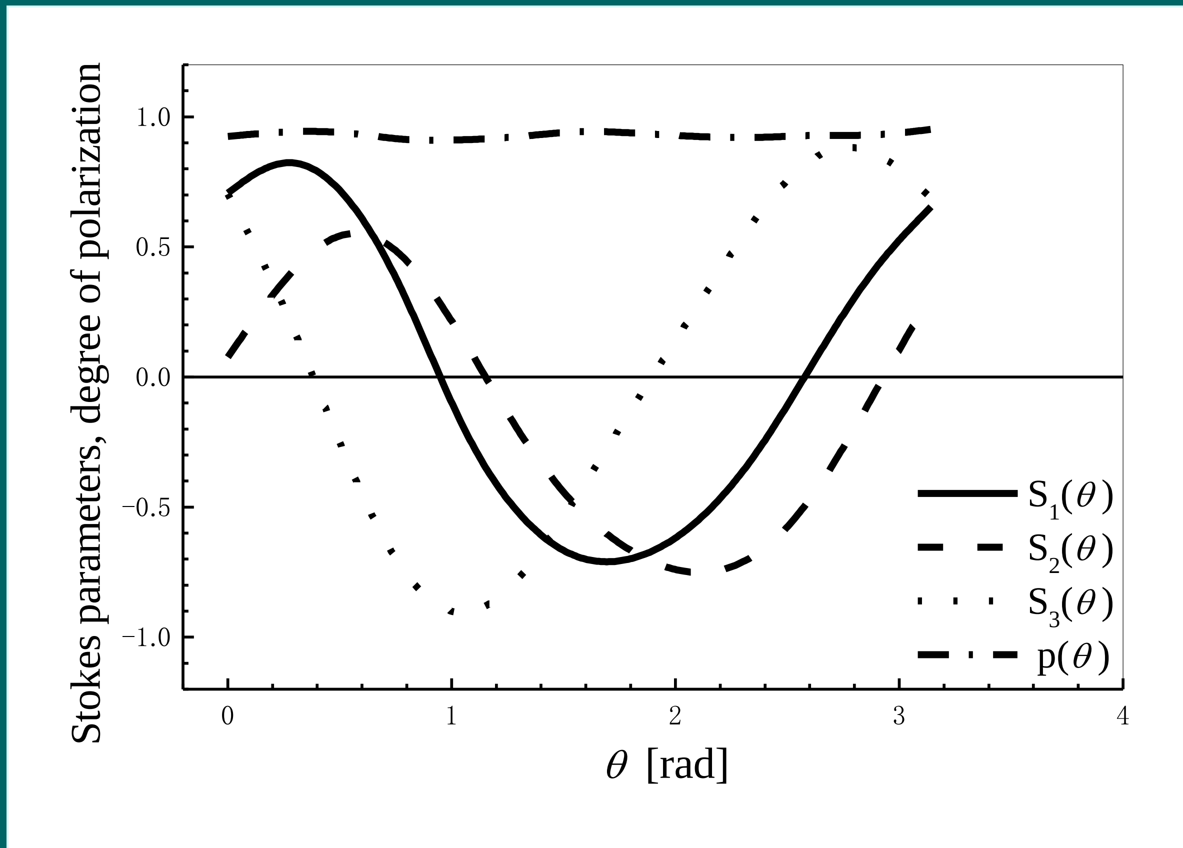
$$S_3 = -i\left[ \left\langle E_x \cdot E_y^{\,*} \right\rangle - \left\langle E_x^{\,*} \cdot E_y \right\rangle \right]$$

Intensity of circularly polarized light

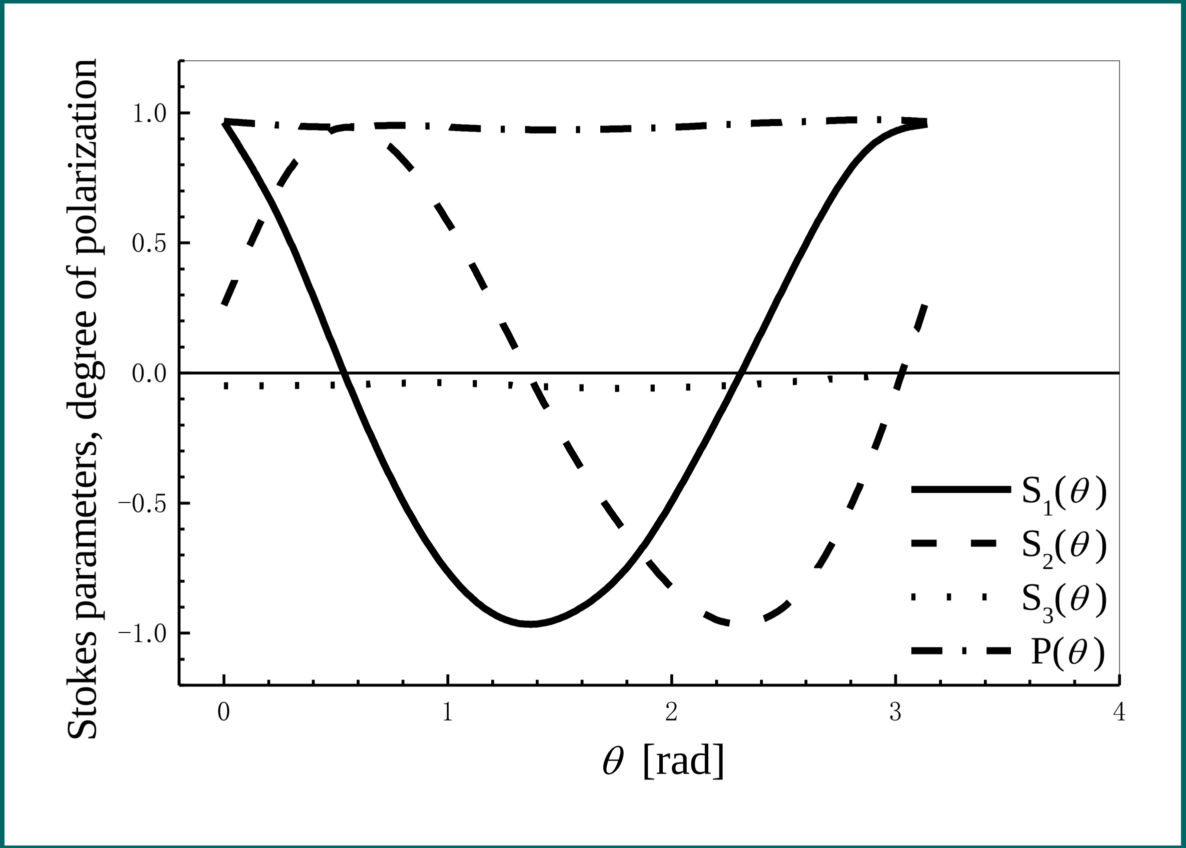
$$P = \frac{\sqrt{S_1 + S_2 + S_3}}{S_0}$$

Degree of polarization

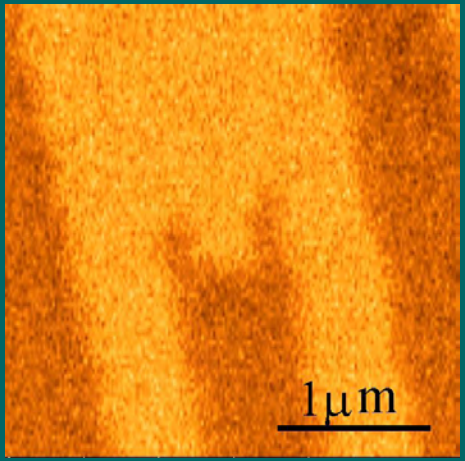
# 補償前のファイバプローブのストークスパラメータ



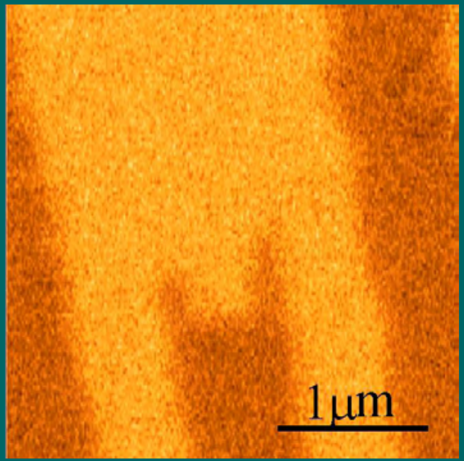
# 補償後のプローブのストークスパラメータ



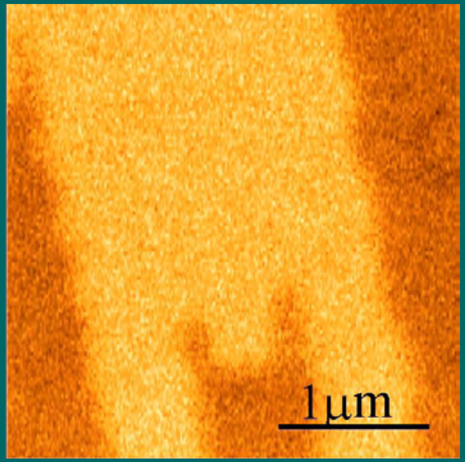
# 補償後の磁気光学像



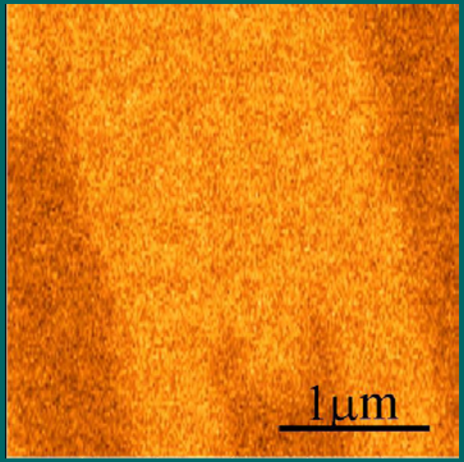

(a) 1f component (Δ=0)




(b) 2f component (Δ=0)



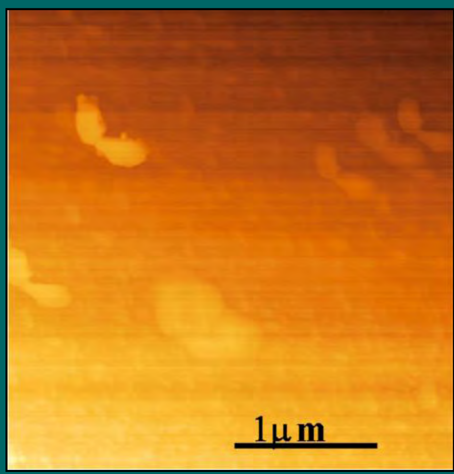

(c) 1f component (Δ=π/2)



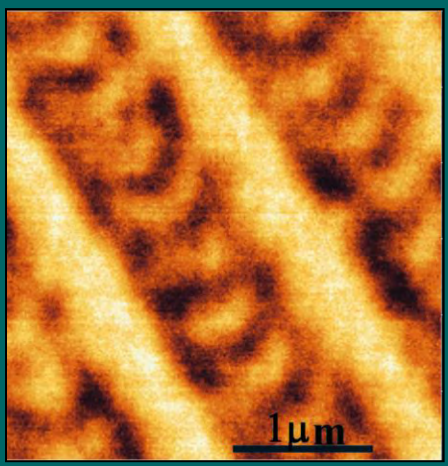

(d) 2f component (Δ=π/2)

# 0.2μm マークのトポ像と磁気光学像

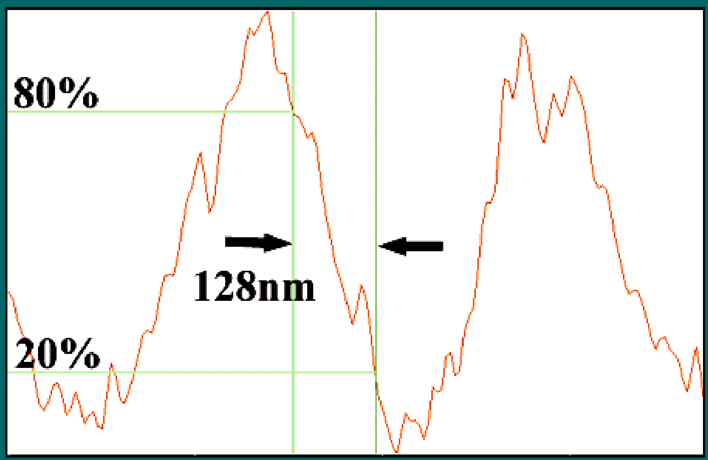
解像度の定義



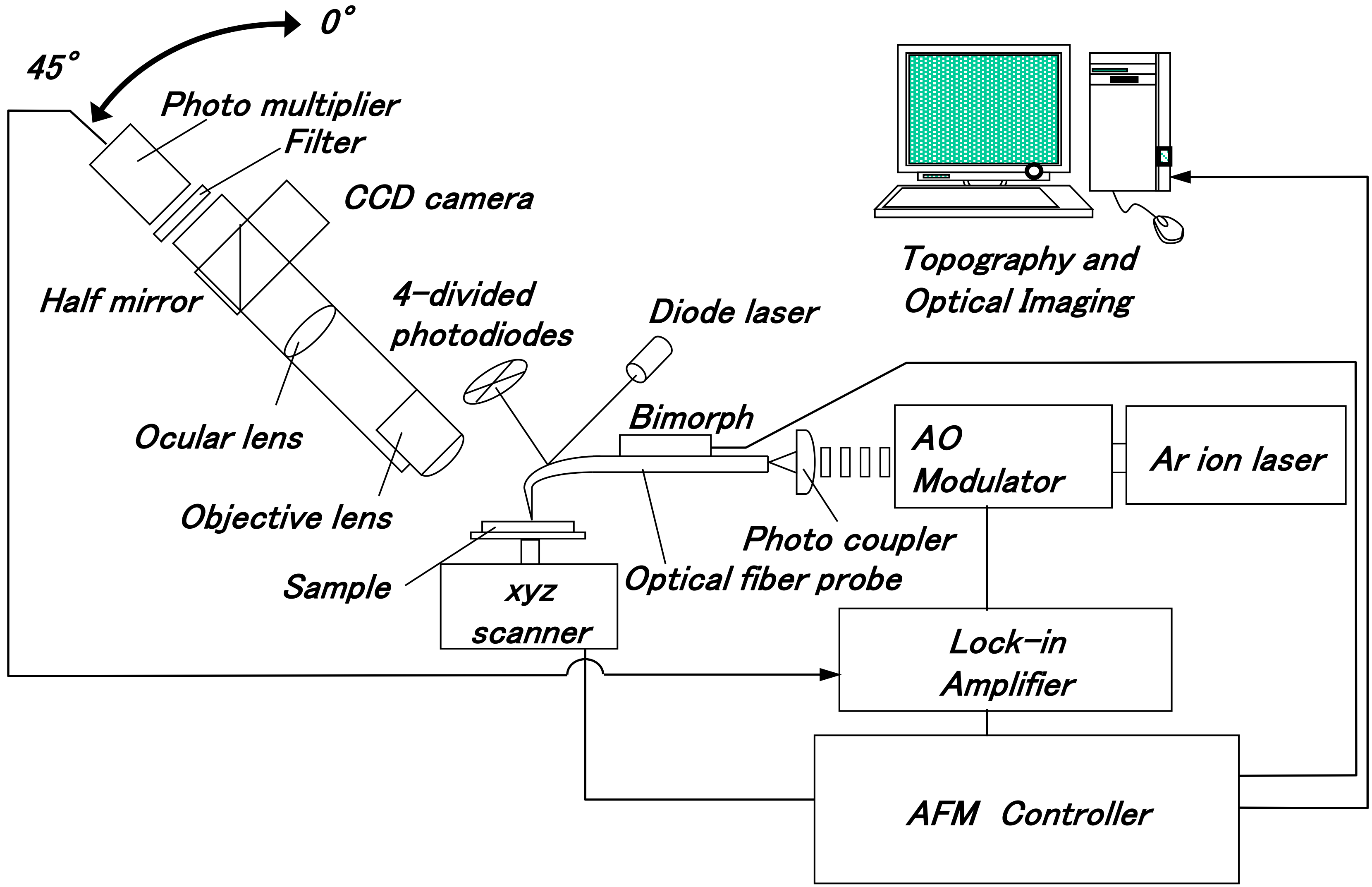

トポ像




MO 像

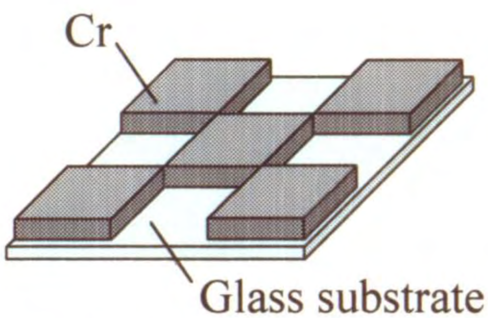



ラインプロファイル

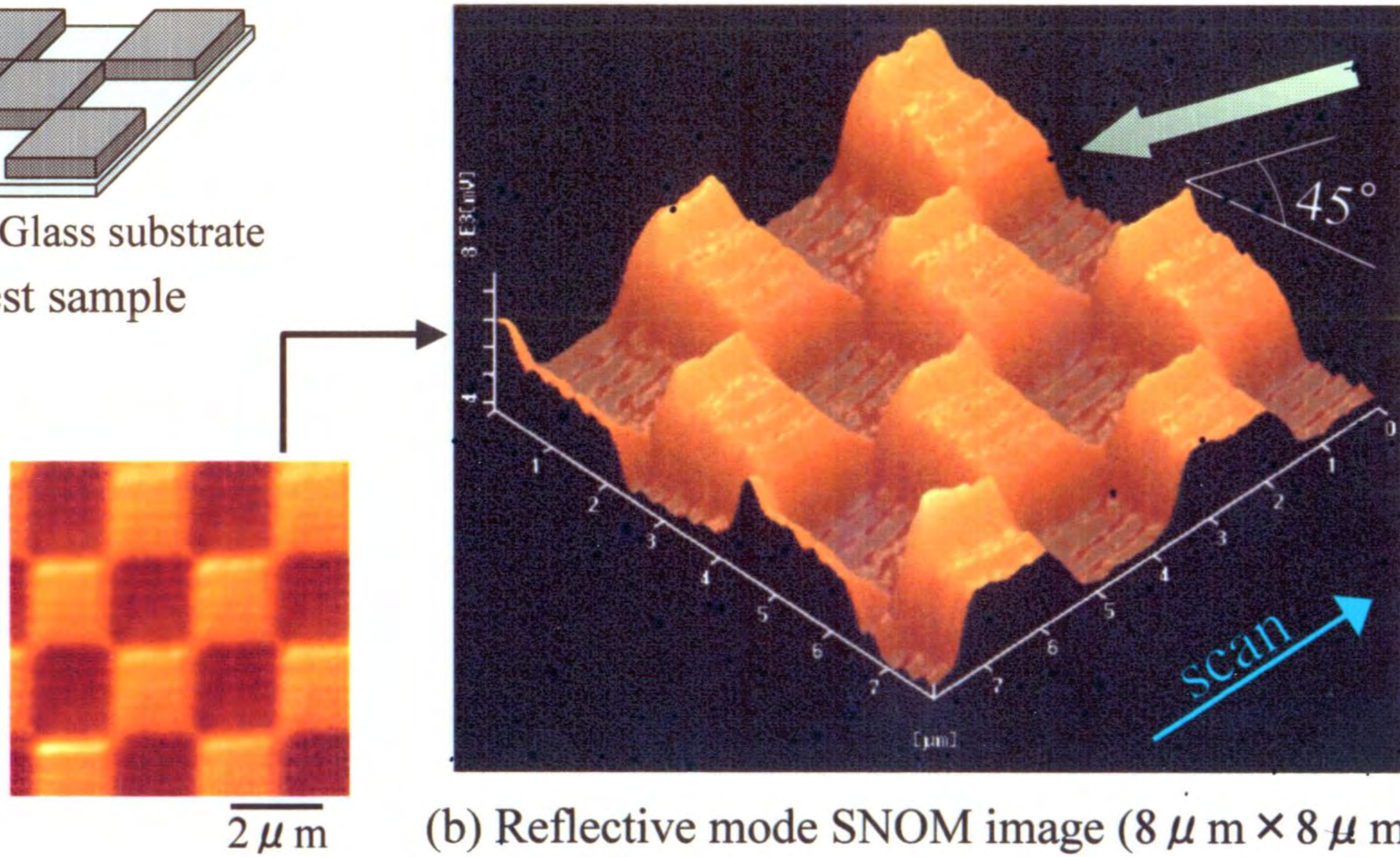



反射モードSNOM装置構成図

# 反射モードSNOM像

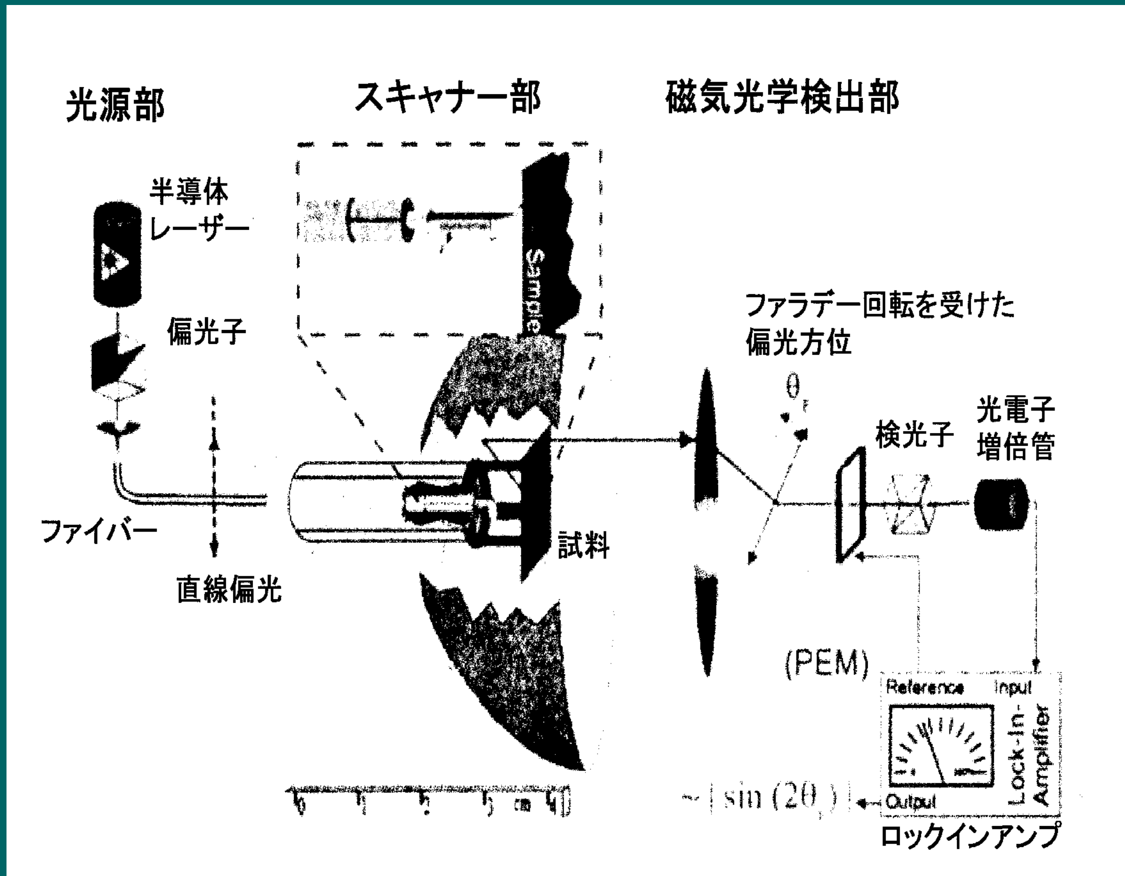



(a) Test sample



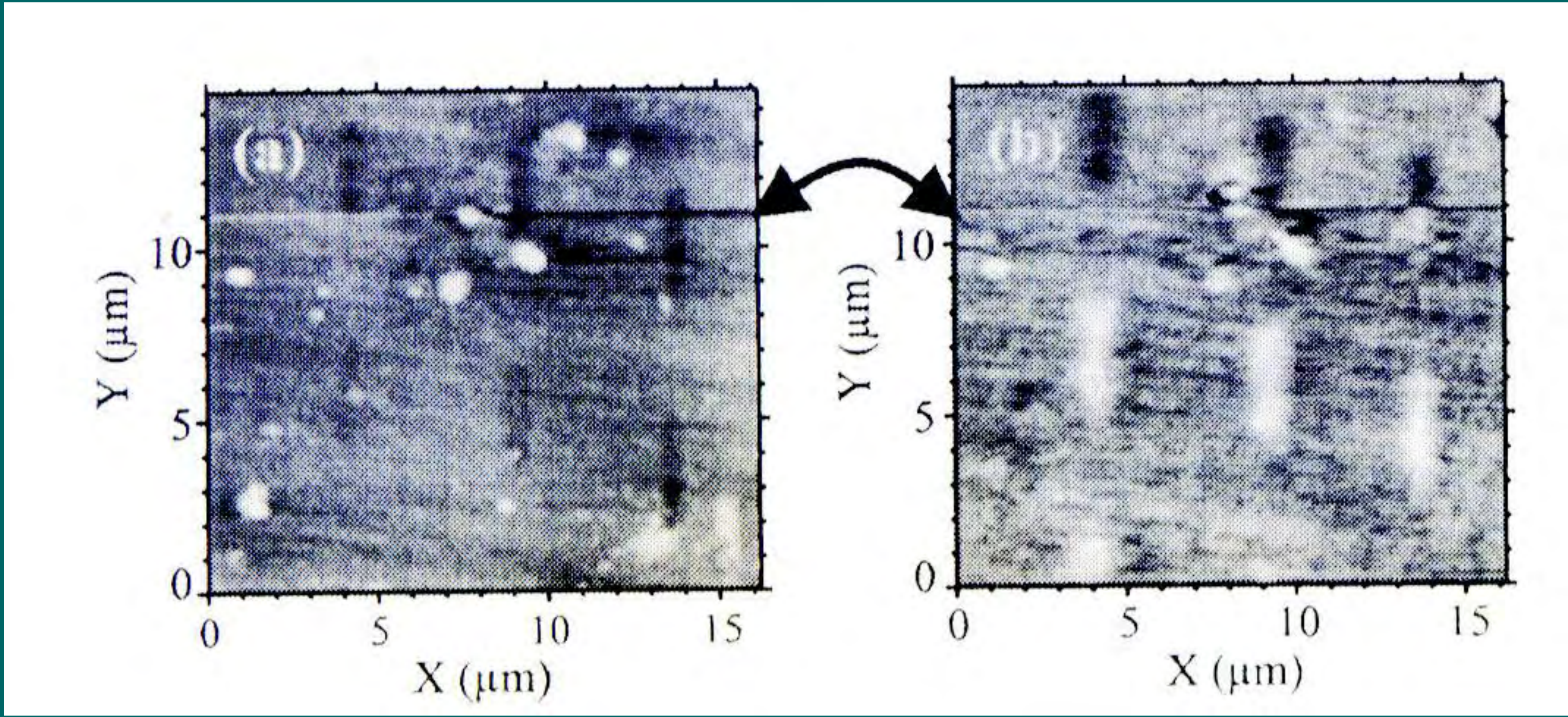

(b) Reflective mode SNOM image (8 μm × 8 μm).

# 放物面鏡を用いた反射SNOM



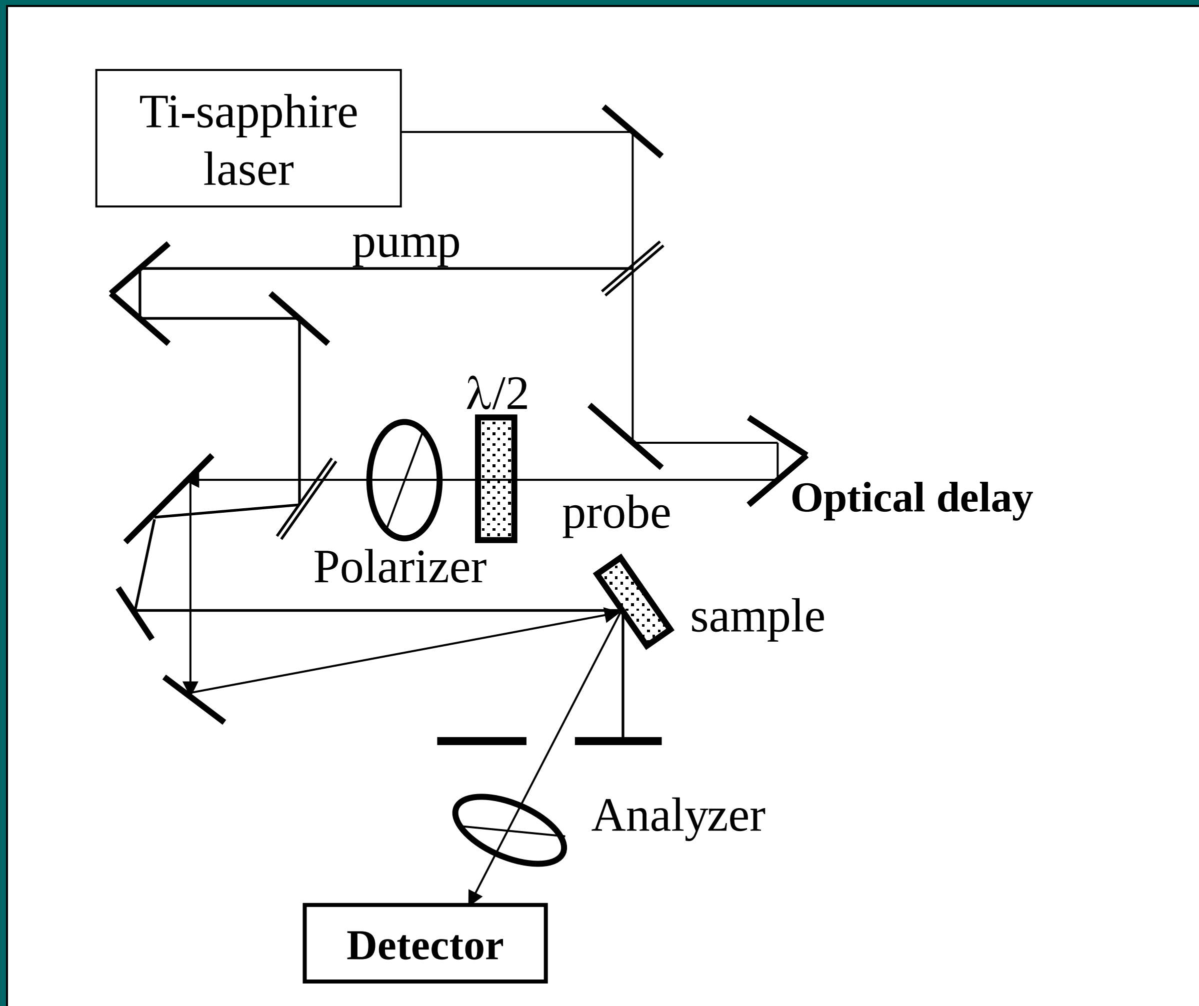

凹面鏡を集光に用いた反射型SNOM
の構成図

# 放物面鏡を用いた反射型SNOM

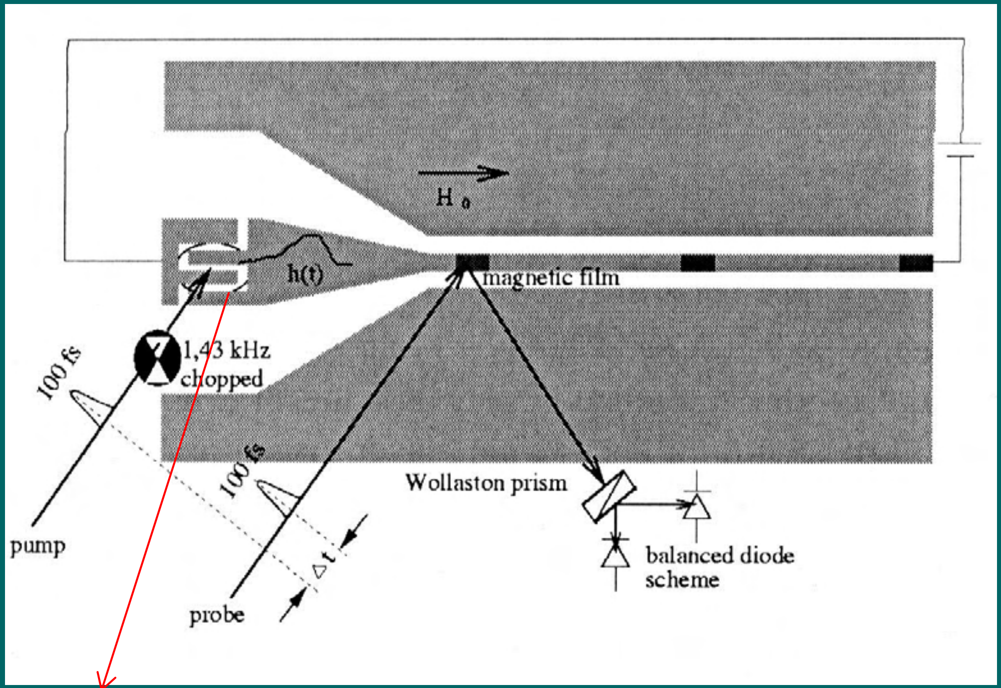


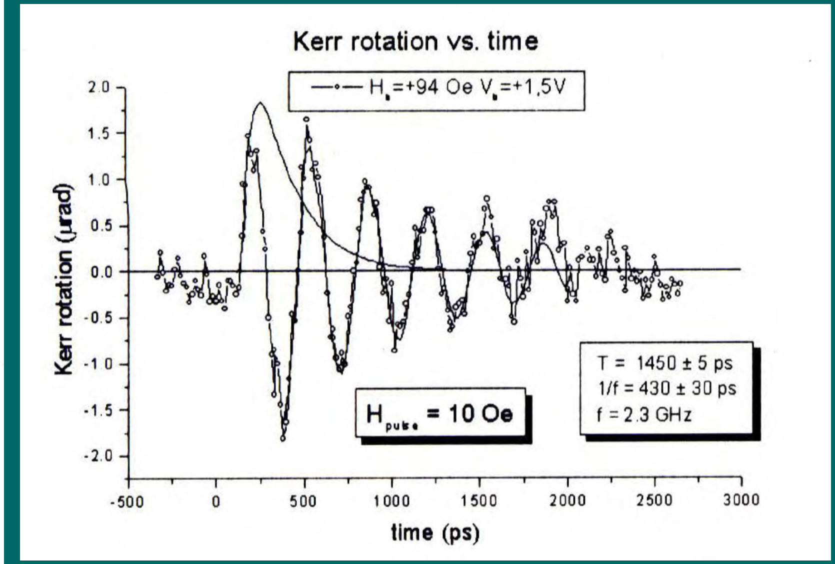

P. Fumagalli, A. Rosenberger, G. Eggers, A. Münnemann, N. Held, G. Güntherodt: *Appl. Phys. Lett.* **72**, 2803 (1998)

# ポンププローブ磁気光学測定



# 微小領域磁性のスピンダイナミクス




GaAs高速
光スイッチ

Th. Gerrits, H. van den Berg, O. Gielkens, K.J. Veenstra and Th. Rasing: Digest Joint MORIS/APDSC2000, Nagoya, October 30-November 2, 2000, TuC-05, p.24.

# 光スピニクス今後の課題

## ーより広範な領域をめざしてー

- $t$: 超短パルス光→ps, fsレーザを用いた時間分解磁気光学測定、ポンププローブ測定
- $\omega$: 広い波長領域、シンクロトロン放射光
- $k$: 回折現象、磁気散乱、磁性パターンの回折磁気光学
- $x$: 微小領域観察、アパーチャレスSNOM、スピンSTM、X線顕微鏡
- $\varphi$: 位相の直接測定: サニャック干渉計

# 終わりに

- 磁性の世界がナノテクノロジーという道具を得て大きく変革しつつある。
- 電子のもつ電荷とスピンの２つの機能を有効に使う技術がスピンエレクトロニクスである。
- これまで、自然に作りつけであると考えていた磁気的相互作用を人類はついに制御する技術を得た。
- 光とスピンの相互作用は、近接場技術、フェムト秒技術などを得て次世代の高速高密度記録技術への道を開きつつある。