

第6章 金属人工格子の非線形磁気光学

佐藤勝昭

「非線形磁気光学」というのは、磁気光学効果が非線形応答を示す現象ではなく、非線形光学効果が磁化に応答する現象を指している。特に、磁化誘起第2高調波発生(MSHG)の現象は、反転対称をもつ物質ではバルクからは生じず、対称性が破れる表面や界面で生じるため、表面磁性の新しい観測手段として注目される。本章では、初めに非線形光学の一般的な入門からスタートして、非線形磁気光学効果とは何か、この効果からどのような情報が得られるかについて、マクロ、ミクロ両面から理論を解説し、これまでに行われた実験結果を紹介している。次に、FeとAuからなる金属人工格子について、MSHGの実験方法と実験結果を記述している。特に、MSHGの強度が試料の方位角に大きく依存し、基板と同じ4回対称性を示すという実験結果、および、大きな非線形カー回転が生じ、回転角の方位依存性もまた4回対称を示すことを紹介し、これらの結果が非線形感受率テンソルの対称性に基づく解析によって説明できることを述べている。

6.1 非線形磁気光学効果の基礎¹⁾

6.1.1 磁性を考えないときの非線形光学効果²⁾

通常の光学現象（透過，反射，屈折）においては，物質中に誘起される電気分極 \mathbf{P} が光の電場 \mathbf{E} に比例し， $\mathbf{P} = \hat{\chi}\epsilon_0\mathbf{E}$ と表される．ここに $\hat{\chi}$ は電気感受率で， \mathbf{P} も \mathbf{E} もベクトルであるから一般に $\hat{\chi}$ はテンソル量である．数学的には，テンソルの成分を用いて，

$$P_i^{(1)} = \chi_{ij}^{(1)}\epsilon_0 E_j \quad (6.1)$$

と書き表すことができる．ここに繰り返される添え字については，和をとるというテンソル計算の約束に従う．

光の電場が十分に弱いときには，分極は式(6.1)のように扱っても差し支えない．しかし，光の電場が強くなると $\hat{\chi}$ もはや式(6.1)は成り立たず，一般的に電気分極 \mathbf{P} は電場 \mathbf{E} のべき級数で展開することができ，

$$P_i = \epsilon_0(\chi_{ij}^{(1)}E_j + \chi_{ijk}^{(2)}E_jE_k + \chi_{ijkl}^{(3)}E_jE_kE_l + \dots) \quad (6.2)$$

と表すことができる． $\chi^{(n)}$ は n 次の電気感受率である．この効果を非線形光学効果とよぶ．

2つの電磁波 $E_j(t)$ （角周波数 ω_1 ）と $E_k(t)$ （角周波数 ω_2 ）が時刻 $t=0$ で物質に印加されたとする．このときの2次の非線形分極 $\mathbf{P}^{(2)}(t)$ は，2次の電気感受率を用いて

$$P_i^{(2)}(t) = \int d\tau_1 d\tau_2 \chi_{ijk}^{(2)}(\tau_1, \tau_2) E_j(t-\tau_1) E_k(t-\tau_2) \quad (6.3)$$

のように畳み込み積分で与えられる．この式に

$$E_j(t) = \{E_{1j} \exp(i\omega_1 t) + E_{2j} \exp(i\omega_2 t) + \text{cc.}\} \quad (6.4)$$

を代入すると，2次の非線形分極として次式が得られる．

$$P_i^{(2)}(t) = P_i^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) \exp\{i(\omega_1 + \omega_2)t\} + P_i^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) \exp\{i(\omega_1 - \omega_2)t\} + P_i^{(2)}(0) + P_i^{(2)}(2\omega_1 t) \exp\{i2\omega_1 t\} + P_i^{(2)}(2\omega_2 t) \exp\{i2\omega_2 t\} + \text{cc.} \quad (6.5)$$

ここに，各項の係数は $P(t)$ のフーリエ変換となっており，

* 入射光の強度（単位時間当たりのエネルギー密度）が 10 MW/cm^2 くらいから非線形効果が観測可能となるといわれている．通常の非線形光学の実験は 1 GW/cm^2 程度の強度のレーザー光を用いて行われる．

$$P_i^{(2)}(\omega_1 + \omega_2) = \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 + \omega_2; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (6.6)$$

$$P_i^{(2)}(\omega_1 - \omega_2) = \chi_{ijk}^{(2)}(\omega_1 - \omega_2; \omega_1, \omega_2) E_j(\omega_1) E_k(\omega_2) \quad (6.7)$$

など書くことができる．ここに一般化された2次の電気感受率の表式 $\chi_{ijk}^{(2)}(\omega_3; \omega_1, \omega_2)$ は，角周波数 ω_1, ω_2 の2つの波が入射し，角周波数 ω_3 の分極が生じた場合の感受率を表している．式(6.5)の第1項と第2項は，それぞれ和と差の周波数が得られることを表し，第3項は直流成分が，第4項と第5項は入射光の2倍の周波数成分が得られることを示している．第1項(和周波発生，sum frequency generation)，第2項(差周波発生，difference frequency generation)を光パラメトリック過程，第3項を光整流過程(optical rectification)，第4，第5項を第2高調波発生(second harmonic generation, SHG)過程という．2次の非線形過程は，3階のテンソルで表されるように3つの波が関与しているので3波混合ともよばれる．以下ではSHGの場合に話を限って記述する．

一般に非線形感受率テンソルは，媒質の点群に属する対称操作に対して不変である．その結果，テンソルの要素のうちある要素はゼロとなり，ある要素は他の要素と関係をもつため，最終的には独立な要素の数は非常に少なくなる³⁾．

一般に，対象となる物質がどのような結晶点群に属するかを知られば，3階のテンソルのうち消えない要素がどれとどれで，そのうちどれが独立な要素であるかを知ることができる⁴⁾．

表6.1には，すべての非反転対称結晶点群に対して，有限の値をもつ独立な3階のテンソル要素をすべて書き出してある．反転対称性がある場合には，3階の感受率テンソルの全要素がゼロになる⁵⁾．Fe, Co, Niなど磁性体の多くが反転対称をもつので，バルクの3階の感受率は有限な値をもたない．反転対称をもつ系でもSHGを示す場合がある．式(6.5)の展開式は，電場 \mathbf{E} の変動が波長に比べて十分に緩やかな場合の近似である．電場が距離に対して大きく変動しているような系を考えると，電場は $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 + r\nabla E$ のように展開できるはずである．これを考慮すると，非線形分極の式には四重極

¹⁾ Non-symmorphic 結晶の場合，non-primitive translation とよばれる微小な並進が関与するため，電子状態などを議論する場合，空間群を用いて議論する必要があるが，光学的な感受率テンソルはマクロな量なので，現象は空間格子にかかわる結晶点群に支配されると考えられる．

²⁾ χ_{ijk} という感受率テンソルを考えよう．このテンソルは積 $x_i x_j x_k$ と同じ変換を受ける．反転操作を施すと $x_i x_j x_k$ は $(-x_i)(-x_j)(-x_k) = -x_i x_j x_k$ になる．したがって，反転対称をもつ $\chi_{ijk} = -\chi_{ijk}$ となり，テンソル要素は消える．

表6.1 各点群におけるゼロでない独立な3階テンソル要素¹⁾
independent nonvanishing elements of $\chi^{(3)}$ ($\omega = \omega_1 + \omega_2$) for
crystals of certain symmetry classes

symmetry class	independent nonvanishing elements
triclinic	
1	all elements are independent and nonzero
monoclinic	
2	$\chi_{yz}, \chi_{zy}, \chi_{xy}, \chi_{yx}, \chi_{xz}, \chi_{zx}, \chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{yz}, \chi_{zy}, \chi_{xy}, \chi_{yx}$ (two fold axis parallel to y)
m	$\chi_{xx}, \chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{xz}, \chi_{zx}, \chi_{yz}, \chi_{zy}, \chi_{xy}, \chi_{yx}, \chi_{zz}, \chi_{zz}, \chi_{zz}, \chi_{zz}$ (mirror plane perpendicular to y)
orthorhombic	
222	$\chi_{yz}, \chi_{zy}, \chi_{xz}, \chi_{zx}, \chi_{xy}, \chi_{yx}$
mm2	$\chi_{xz}, \chi_{xz}, \chi_{yz}, \chi_{zy}, \chi_{xx}, \chi_{yy}, \chi_{zz}$
tetragonal	
4	$\chi_{yz} = -\chi_{xz}, \chi_{zy} = -\chi_{zx}, \chi_{xz} = \chi_{zy}, \chi_{zx} = \chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{zy} = -\chi_{yx}$
$\bar{4}$	$\chi_{yz} = \chi_{xz}, \chi_{zy} = \chi_{zx}, \chi_{xz} = -\chi_{zy}, \chi_{zx} = -\chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{zy} = \chi_{yx}$
422	$\chi_{yz} = -\chi_{xz}, \chi_{zy} = -\chi_{zx}, \chi_{xy} = -\chi_{yx}$
4 mm	$\chi_{xz} = \chi_{zy}, \chi_{xz} = \chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{zz}$
$\bar{4}2m$	$\chi_{yz} = \chi_{xz}, \chi_{zy} = \chi_{zx}, \chi_{xy} = \chi_{yx}$
cubic	
432	$\chi_{yz} = -\chi_{zy} = \chi_{xz} = -\chi_{zx} = \chi_{xy} = -\chi_{yx}$
$\bar{4}3m$	$\chi_{yz} = \chi_{zy} = \chi_{xz}$
23	$= \chi_{xz} = \chi_{zy} = \chi_{yx}$
trigonal	
3	$\chi_{xx} = -\chi_{yy} = -\chi_{zz}, \chi_{yz} = -\chi_{xz}, \chi_{zy} = -\chi_{zx}, \chi_{xz} = \chi_{zy}, \chi_{zx} = \chi_{yy}, \chi_{yy} = -\chi_{xx} = -\chi_{zz} = -\chi_{yx},$ $\chi_{zz} = \chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{zy} = -\chi_{yx}$
32	$\chi_{xx} = -\chi_{yy} = -\chi_{zz}, \chi_{yz} = -\chi_{xz}, \chi_{zy} = -\chi_{zx}, \chi_{xy} = -\chi_{yx}$
3 m	$\chi_{xz} = \chi_{zy}, \chi_{xz} = \chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{yy} = -\chi_{xx} = -\chi_{zz} = -\chi_{yx}$ (mirror plane perpendicular to x)
hexagonal	
6	$\chi_{yz} = -\chi_{xz}, \chi_{zy} = -\chi_{zx}, \chi_{xz} = \chi_{zy}, \chi_{zx} = \chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{zy} = -\chi_{yx}$
$\bar{6}$	$\chi_{xx} = -\chi_{yy} = -\chi_{zz}, \chi_{yz} = -\chi_{xz} = -\chi_{yx} = -\chi_{xy}$
622	$\chi_{yz} = -\chi_{xz}, \chi_{zy} = -\chi_{zx}, \chi_{xy} = -\chi_{yx}$
6 mm	$\chi_{xz} = \chi_{zy}, \chi_{xz} = \chi_{yy}, \chi_{zz}, \chi_{zz}$
$\bar{6}m2$	$\chi_{yy} = -\chi_{xx} = -\chi_{zz}$

子項(quadrupole term)とよばれるEVEの項が必要であることがわかる。2次の非線形分極 $P_i(2\omega)$ についてEVEの項を含めて展開式を書き表すと、

$$P_i(2\omega) = \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(D)} E_j(\omega) E_k(\omega) + \chi_{ijkl}^{(Q)} E_j(\omega) \nabla_k E_l(\omega) + \dots \quad (6.8)$$

となる。ここに、添え字 j, k, l, m は x, y, z のいずれかを表している。(D)は電気双極子、(Q)は電気四重極子を表している。この場合には、3階の感受率テンソルと4階の感受率テンソルの両方が必要となる。4階のテンソルは、反転対称をもつ系でも有限の値をもつ。バルク結晶内部では電場の変動は波長に比べ十分に滑らかであると考えられ

るので、この項の寄与は通常無視されるが、薄膜、多層膜では表面・界面付近での電場変動の寄与が大きいためこの項を無視できない。

バルク物質では、たとえ非線形感受率にゼロでない要素があったとしても、入射光と発生した2次光との位相整合がとれなければ、2次光の強度は距離とともに振動しながら減衰する(この振動をメーカ-の干渉縞という)ため観測されないのであるが、表面からの2次光を観測するかぎりにおいては、この問題は考えなくてよい[#]。

反転対称をもつ結晶であっても、表面や界面では反転対称性が破れるため $\chi_{ijk}^{(2)}$ は有限な値をもち、表面や界面に基づくSHGが生じる。たとえば、等方性の非磁性物質の表面では、 $\chi_{xxx} = \chi_{xzz} = \chi_{yyz} = \chi_{xyy}$, $\chi_{xzz} = \chi_{zyy}$, χ_{zzz} の3成分がゼロでない値をもちうる。すなわち;

$$\chi^{2,D} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & \chi_{xzz} \\ 0 & 0 & 0 & \chi_{xzz} & 0 & 0 \\ \chi_{xzz} & \chi_{xzz} & \chi_{xzz} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (6.9)$$

と表すことができる。したがって、SHGは反転対称をもつ物質の表面・界面に特有の物性を調べるための有用な手段となる。

6.1.2 波動方程式と非線形磁気光学効果

線形の磁気光学効果は、磁性体に入射した直線偏光が磁性体の磁化の向きに応じて右回りまたは左回りの楕円偏光になり、楕円の主軸の方向が磁化の向きに応じて右または左方向に回転する効果である。前者を磁気円二色性、後者を磁気旋光性とよぶ。

このような磁気光学応答は、磁性体の複素屈折率が左右円偏光に対して異なることから生じている。磁化によって左右円偏光に対する光学応答が異なる微視的な原因は、スピン-軌道相互作用に求めることができる。磁気旋光性などの光学現象は巨視的には、マクスウェルの方程式

$$\text{rot rot } \mathbf{E}(\omega) + \frac{\tilde{\epsilon}(\omega)}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E}(\omega) = 0 \quad (6.10)$$

を用いて説明することができる。図6.1に示すような縦カー配置と座標系を考え、磁化 \mathbf{M} は試料面内にあり入射面に平行であるとすると、誘電率テンソルは

[#] 多層膜の場合には、多くの界面が存在するため干渉項を考える必要があるが、ここでは触れない。

$$\tilde{\epsilon}(\omega) = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{xx} & -\epsilon_{yz} \\ 0 & \epsilon_{yz} & \epsilon_{xx} \end{pmatrix} \quad (6.11)$$

で与えられる。ここに、対角成分 ϵ_{xx} は磁化の反転に対して対称であるのに対し、非対角成分 ϵ_{yz} は磁化の反転に対して反対称である。入射角 θ_i で直線偏光が入射したときのマクスウェル方程式を解くと、固有値として、複素屈折率が

$$N^\pm = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{yz} \sin \theta_i \quad (6.12)$$

のように求められる。

このとき、反射光の複素カー回転角 Ψ_K は

$$\tan \Psi_K^{(1)}(\omega) = -\frac{\chi_1^{(1)} \sin \theta_i \cos \theta_i}{\chi_0^{(1)} \sqrt{\cos^2 \theta_i + \chi_0^{(1)}}} \frac{\cos(2\theta_i) + \chi_0^{(1)}}{\cos(2\theta_i) + \chi_0^{(1)} \cos^2 \theta_i} \quad (6.13)$$

で与えられる。ここに、 $\chi_1^{(1)} = \epsilon_{yz}$, $\chi_0^{(1)} = \epsilon_{xx} - 1 = N^2 - 1$ である。

これに対して非線形磁気光学効果は、SHG過程で磁性体表面に生じた非線形分極がもとになって、左右円偏光に対する光学応答の差が生じることによって起きる。

この場合の波動方程式は、表面に非線形分極 $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ が存在してこれがソース項として働くと考えて、次式のように表すことができる。

$$\text{rot rot } \mathbf{E}(2\omega) + \frac{\tilde{\epsilon}}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{E}(2\omega) = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{P}^{(2)}(2\omega) \quad (6.14)$$

ここに、 $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ は入射光の電場 $\mathbf{E}(\omega)$ によって磁性体に誘起された非線形分極で、電気双極子の範囲では

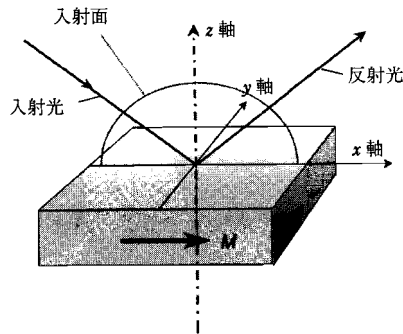


図6.1 縦カー効果の配置と座標系の定義。

$$P_i^{(2)}(2\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) E_j^{(1)}(\omega) E_k^{(1)}(\omega) \quad (6.15)$$

のように表される。

もし物質が反転対称をもっているならばバルクの $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ は存在しないが、界面においては対称性が破れるため非線形分極 $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ は有限の値をもつ、つまり、非線形分極は界面にのみ形成される。

式(6.14)の解は、斉次方程式の一般解と非斉次方程式の特殊解の和となる。斉次方程式の解は、線形の場合と同様に透過第2高調波に対する複素屈折率

$$N_i^\pm = \epsilon_{xx}(2\omega) \pm i\epsilon_{yz}(2\omega) \sin \theta_{2i} \quad (6.16)$$

を与えるが、これは角振動数 2ω における通常の線形の磁気光学効果である。一方、非斉次部分は屈折率 N^\pm 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。ここで、フレネルの公式を用いて左右円偏光について反射光の電場の振幅を計算し、線形の場合と同様に、

$$\tan \Psi_K^{(2)} = \theta_K^{(2)} + i\eta_K^{(2)} = i \frac{E_r^{+(2)}(2\omega) - E_r^{-(2)}(2\omega)}{E_r^{+(2)}(2\omega) + E_r^{-(2)}(2\omega)} \quad (6.17)$$

の式を用いて複素カー回転角を求める。いま、図6.1の縦カー配置について考察する。光は入射角 θ_i で斜め入射するものとし、磁化 \mathbf{M} は入射面と試料面に平行、入射光の電場成分は入射面内において進行方向に垂直に振動していると仮定する。 $\mathbf{M} = 0$ ならば、界面非線形分極 $\mathbf{P}^{(2)}$ が表面に垂直な場合に最大のSHG効率が得られる。Pustogowaらによれば、反射光の電場の振幅は次式で与えられる⁴⁾。

$$E_r^{(2)\pm}(2\omega) = -\frac{P^{(2)\pm}(2\omega) \sin \theta_i}{\epsilon_0 c^2} \frac{F_1^\pm}{F_3^\pm F_2^\pm} \quad (6.18)$$

ここに、 F_1^\pm , F_2^\pm , F_3^\pm は、 $\chi^{(1)}$, $\chi^{(2)}$ および θ_i のやや複雑な関数であって、次式のように表される。

$$\left. \begin{aligned} F_1^\pm &= \sin^2 \theta_i + \frac{1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)}{1 + \chi_0^{(1)\pm}(2\omega)} S_1^\pm(\theta_i) S_2^\pm(\theta_i) \\ &+ \frac{\chi^{(1)\pm}(2\omega) - \chi_0^{(1)\pm}(2\omega)}{\chi^{(1)\pm}(\omega) - \chi_0^{(1)\pm}(\omega)} \left[\frac{1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)}{1 + \chi_0^{(1)\pm}(2\omega)} [1 + \chi^{(1)\pm}(\omega)] - 2\sin^2 \theta_i \right] S_1^\pm(\theta_i) S_2^\pm(\theta_i) \\ F_2^\pm &= [1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)] S_1^\pm(\theta_i) + [1 + \chi^{(1)\pm}(\omega)] S_2^\pm(\theta_i) \\ F_3^\pm &= [1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega)] \cos \theta_i \end{aligned} \right\} \quad (6.19)$$

上の式で、 $S_1^\pm(\theta_i) \equiv \sqrt{1 + \chi^{(1)\pm}(\omega) - \sin^2 \theta_i}$, $S_2^\pm(\theta_i) \equiv \sqrt{1 + \chi^{(1)\pm}(2\omega) - \sin^2 \theta_i}$ である。

式(6.18)の E_i^* を式(6.17)に代入することによって非線形複素カー回転角 $\Psi_K^{(2)}$ は次式のように表すことができる。

$$\tan \Psi_K^{(2)} = i \left(\frac{\chi^{(2)+} F_1^+ F_2^- F_3^- - \chi^{(2)-} F_1^- F_2^+ F_3^+}{\chi^{(2)+} F_1^+ F_2^- F_3^- + \chi^{(2)-} F_1^- F_2^+ F_3^+} \right) = i \left(\frac{\chi^{(2)\text{odd}}}{\chi^{(2)\text{even}}} + \text{高次項} \right) \quad (6.20)$$

ここに、 $\chi^{(2)\text{even}}$ および $\chi^{(2)\text{odd}}$ は、 $\chi^{(2)*} = \chi^{(2)\text{even}} \pm i\chi^{(2)\text{odd}}$ と表したときの実数部と虚数部で、前者は非磁性項 (M について偶)、後者は磁性項 (M について奇) である。

線形磁気光学効果と非線形磁気光学効果の大きな違いは2つある。1つは、線形の場合のカー効果は χ_{xy}/χ_{xx} のように非対角成分と対角成分の比で与えられており、一般にこの比は1よりかなり小さいのに対し、非線形カー効果は式(6.20)に示したように $\chi^{(2)\text{odd}}/\chi^{(2)\text{even}}$ という比で与えられ、この項は後で述べるように、S偏光入射の場合 χ_{yz}/χ_{yz} と書き換えることができるように同程度のテンソル要素同士の比であることである。

もう1つは、式(6.13)に示したように線形の場合には $1/\sqrt{\cos 2\theta_i + \chi_0^{(1)}}$ の因子がかかることによって $\Psi_K^{(2)}$ を小さくしているのに対し、非線形磁気光学効果の場合にはこのような因子が存在しないことである。これは、非線形磁気光学効果が、線形の場合のように左右円偏光に対する屈折率の差から生じるのではなく、式(6.14)のソース項である界面の非線形分極 $\mathbf{P}^{(2)}(2\omega)$ から生じていることに原因していると考えられる。

6.1.3 ミクロな視点からみた非線形磁気光学効果⁵⁾

SHGの過程を電子遷移の観点から眺めてみよう。前に述べたように、SHGは3つの光子が関与する過程である。Hübnerらは摂動論によって2次の非線形感受率 $\chi_{ijk}^{(2)}$ として次の式を導いた^{4,6)}。

$$\chi_{ijk}^{(2)}(q, 2\omega; \vec{M}) \sim \frac{\lambda_{so}}{\hbar\omega} \sum_{\sigma} \langle k+2q, l''\sigma | x | kl\sigma \rangle \langle kl\sigma | z | k+q, l'\sigma \rangle \langle k+q, l'\sigma | z | k+2q, l''\sigma \rangle \times \frac{F_{\sigma}}{\epsilon_{k+2q,\sigma} - \epsilon_{k,\sigma} - 2\hbar\omega} \quad (6.21)$$

ここに、

$$F_{\sigma} = \frac{f(\epsilon_{k+2q}) - f(\epsilon_{k+q})}{\epsilon_{k+2q,\sigma} - \epsilon_{k+q,\sigma} - \hbar\omega} - \frac{f(\epsilon_{k+q}) - f(\epsilon_k)}{\epsilon_{k+q,\sigma} - \epsilon_{k,\sigma} - \hbar\omega} \quad (6.22)$$

ここに、 λ_{so} はスピン-軌道結合の強さである。式(6.21)の3つの行列要素から、電気感受率が対称性の破れをどの程度敏感に感じるかが決まる。s電子、d電子の空間的な分布の違いのためにSHGの偏光依存性の違いが生じる。

式(6.21)は、 l 番目のバンドの波数 k 、スピン σ で指定される基底状態 $|kl\sigma\rangle$ にある電子系が、 $\hbar\omega$ のエネルギーをもつ1つの光子によって中間状態 $|k+q, l'\sigma\rangle$ に遷移、さらに、 $\hbar\omega$ のエネルギーをもつ2つ目の光子で励起状態 $|k+2q, l''\sigma\rangle$ に遷移し、 $2\hbar\omega$ のエネルギーをもつ3つ目の光子を放出して基底状態に戻る過程と解釈することができる。透明な誘電体の場合、 $2\hbar\omega$ はバンドギャップ E_g より小さいため、中間状態にも励起状態にも実過程としては存在せず、仮想的な過程としてSHGが起きる。これに対し、金属の場合には準位が連続的に分布するので、SHGには主として実過程の遷移が寄与する。すなわち、1つ目の光子でフェルミ面の下の満ちた状態からフェルミ面への遷移が起き、もう1つの光子でフェルミ面から、フェルミ面上の空いた準位へと遷移、2倍のエネルギーの光子を放出して元に戻る。式(6.21)のスピンに依存するエネルギー分母のために、SHGは金属のスピン偏極したバンド構造を反映したものになる。

図6.2に示すように、貴金属では、フェルミ面は広がったs電子的なバンドの中であり、狭いd電子帯はフェルミ面より数eV下に存在する[#]。この場合の励起過程としては、低エネルギーの光子についてはs(filled) \rightarrow E_F (s) \rightarrow s(empty)の過程が、高エネルギーの光子についてはd(filled) \rightarrow E_F (s) \rightarrow s(empty)の過程がそれぞれ関与している。一方、遷移金属では、フェルミ面が狭いd電子帯に存在するため、低エネルギー

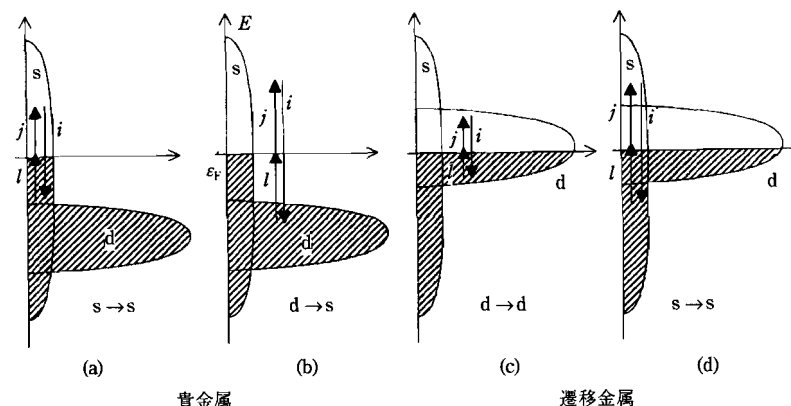


図6.2 SHGの電子過程。貴金属では(a)の場合d電子系は光学的に励起されないが、(b)の場合d電子系の励起が起きうる。一方、遷移金属では(c)の場合主としてd電子系がSHGに寄与するのに対し、(d)では励起はs電子系から起きる。

[#] Cuでは1.9 eV, Auでは1.8 eV。

一光子については $d(\text{filled}) \rightarrow E_F(d) \rightarrow d(\text{filled})$ の過程が、高エネルギー光子については $s(\text{filled}) \rightarrow E_F(d) \rightarrow s(\text{empty})$ の過程が関与している。非線形磁気光学効果は、 d 電子状態のスピンの分極とスピン-軌道相互作用を通じて生じるので、たとえば、貴金属と遷移金属の界面において貴金属に誘起された磁化による非線形磁気光学効果を求めるには、波長の短い光を使った方がよいことがわかる。

6.1.4 磁化がある場合の非線形感受率テンソル

式(6.8)の P を磁界の関数として表すと、

$$P_i^{(2)}(M) = \chi_{ijk}^{(D)}(M) E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(Q)}(M) E_j \nabla_l E_k \quad (6.23)$$

と書ける。ここでも繰り返される添え字については、和をとるということが暗黙のうちに約束されている。(D)は電気双極子、(Q)は電気四重極子を表す。6.1.1節に述べたように、反転対称をもつ物質においてはバルクの $\chi^{(D)}$ はゼロとなるが、表面では対称性の破れのため有限の値をもつ。電気四重極子の項は、反転対称をもつバルクにおいても現れる。

一方、磁化 M の存在そのものは対称性の破れにつながらない。なぜなら、 M は軸性ベクトルなので反転対称によっても向きを変えないからである。このことは、中心対称をもつ系では、磁化が存在するだけではバルクからの電気双極子による SHG は生じないことを意味し、磁化された試料でも MSHG の表面界面敏感性は成立する。しかし、磁化 M が存在すると表面の対称性が低下するため、テンソル成分に新たにゼロでない要素が現れる。

このような対称性のもとでの非線形感受率を考察する。まず、電気双極子の寄与のみを考える。一例として、立方晶系の結晶の (001) 面を考え、横カー配置、すなわち、磁化 M は (001) 面内にあつてかつ入射面に垂直である ($M = My$) とする (横磁気カー配置)。

M がなければ、この (001) 面は $4mm$ ($[001]$ 軸を4回軸とし、 x 面、 y 面を鏡映面とする) の対称性を持ち、 x 面についての鏡映操作が存在する。しかし、 (001) 面内に磁化 $M = (0, M, 0)$ が存在すると、対称性は $4mm$ から $1m$ 的な対称性に低下する。この $1m$ 的な対称性のもとでは、系を不変にする操作は2つしかない。 x 面についての鏡映 (m_x) を行うと軸性ベクトル M は $-M$ となる。したがって、対称性を保証する操作は、 x 面に対する鏡映と磁化の反転をとともなう対称操作 m_x^- である。一方、 y 面についての鏡映 (m_y) によって $M = My$ は不変である。

$$m_x^- \circ \chi_{jkl}^{(D)}(My) = \chi_{jkl}^{(D)}(My) \quad (6.24)$$

χ_{xxx}, χ_{xyx} についてこの操作 m_x^- を施すと、

$$\chi_{xxx}^{(D)}(-My) = \chi_{xxx}^{(D)}(My) \quad (6.25)$$

および

$$\chi_{xyx}^{(D)}(-My) = -\chi_{xyx}^{(D)}(My) \quad (6.26)$$

が得られる。一方、

$$m_y^- \circ \chi_{jkl}^{(D)}(My) = \chi_{jkl}^{(D)}(My) \quad (6.27)$$

となる。

このような対称操作の結果、 $\chi^{(2)}$ には M について偶関数の成分 $\chi^{(2)\text{even}}$ と奇関数の成分 $\chi^{(2)\text{odd}}$ が含まれていることがわかる。

$$\chi_{ijk}^{(2)\text{even}}(-M) = \chi_{ijk}^{(2)\text{even}}(M), \quad \chi_{ijk}^{(2)\text{odd}}(-M) = -\chi_{ijk}^{(2)\text{odd}}(M) \quad (6.28)$$

横カー効果配置における等方性表面のゼロでない要素の完全なセットを表6.2に示す。比較のために、磁化のない場合のテンソル要素を表6.3に掲げる。

縦カー配置 ($M = Mx$) でのテンソル要素は、表6.2において x を y に入れ替えるだけで得られる。

極カー配置 ($M = Mz$) におけるテンソル要素は、面内磁化の場合とかなり異なる。なぜなら、鏡映 m_x, m_y に加えて回転 $R_{x,\alpha}$ の対称操作が加わるからである。詳細は、文献8)を参照されたい。

以上をまとめて、表6.4には縦カー効果、横カー効果、極カー効果における偶・奇それぞれの電気双極子感受率の独立な要素を書き出してある⁸⁾。第1行は、縦カー配置すなわち $M = (M, 0, 0)$ の場合の感受率である。同様に、横カー配置すなわち $M =$

表6.2 磁化された等方性の表面における電気双極子起源の非線形感受率 $\chi^{(D)}(M)$ のゼロでない要素 (磁化 M は y 軸に平行、 z 軸は表面の法線に平行、 x 軸は入射面内にある)

M について偶	$\chi_{xxz}(My) = \chi_{xxx}(My), \chi_{xyx}(My) = \chi_{yyx}(My), \chi_{xxx}(My), \chi_{xyx}(My), \chi_{zzz}(My)$
M について奇	$\chi_{xxx}(My), \chi_{xyx}(My), \chi_{xzz}(My), \chi_{xyx}(My) = \chi_{yxz}(My), \chi_{xxx}(My) = \chi_{zzx}(My)$

表6.3 磁化のない等方性の表面における電気双極子起源の非線形感受率 $\chi^{(D)}(M)$ のゼロでない要素⁸⁾

非磁性	$\chi_{xxx} = \chi_{zzz} = \chi_{yxx} = \chi_{yyx}, \chi_{xxx} = \chi_{xyx}, \chi_{zzz}$
-----	--

表6.4 磁化された等方性の表面における電気双極子起源の非線形感受率 $\chi^{(2)}(M)$ のゼロでない要素

	M について偶	M について奇
縦カー配置 $M // x$	$\chi_{xyy} = \chi_{yyx}, \chi_{xzz} = \chi_{zxx}$ $\chi_{xzz}, \chi_{zyy}, \chi_{zzz}$	$\chi_{yxz} = \chi_{xzy}, \chi_{zxy} = \chi_{zyx}$ $\chi_{yzz}, \chi_{zyy}, \chi_{zyx}$
横カー配置 $M // y$	$\chi_{xzz} = \chi_{zxx}, \chi_{yyz} = \chi_{zyy}$ $\chi_{xzz}, \chi_{zyy}, \chi_{zzz}$	$\chi_{xyx} = \chi_{yxx}, \chi_{xzz} = \chi_{zxx}$ $\chi_{xzz}, \chi_{zyy}, \chi_{zzz}$
極カー配置 $M // z$	$\chi_{xzz} = \chi_{zxx} = \chi_{yyz} = \chi_{zyy}$ $\chi_{xzz} = \chi_{zyy}, \chi_{zzz}$	$\chi_{xyx} = \chi_{yxx} = -\chi_{yzz} = -\chi_{zyz}$ $\chi_{xzz} = \chi_{zyy}$

(0, M, 0)の場合には第2行, 極カー配置すなわち $M=(0, 0, M)$ に対しては第3行に示されるような独立な χ の要素が求められる。

一例として, 図6.1に示した縦カー配置 ($M//x$) で, S偏光 (E_y) が入力された場合を考える[#]. SHGは添え字 kl が等しい($E_k = E_l$)場合であるから, S偏光では $k=l=y$ の場合が対象となる. 表6.4から, M について偶関数の項は $\chi_{xyy}^{(2)}$ のみであり, P偏光が出力され, M について奇関数の項は $\chi_{zyy}^{(2)}$ のみであることからS偏光が出力されることがわかる. したがって, 合成された偏光の方向は磁化の向きに依存して変化することが理解されよう。

一方, 横カー配置($M//y$)でS偏光が入射したとき, 表6.4の第2行から, M について偶関数の項は $\chi_{xyy}^{(2)}$, 奇関数の項は $\chi_{zyy}^{(2)}$ のみで, いずれもP偏光である. したがって, 横カー配置では磁気旋光は起きない. しかし, 強度は磁化依存性を示し,

$$I_{2\omega}(\pm M) = |\alpha \chi_{xyy}^{(2)\text{even}} \pm \beta \chi_{zyy}^{(2)\text{odd}}|^2 \quad (6.29)$$

のように与えられる. ここに, α, β は入射ビームと出力ビームについてのフレネル因子を含む係数である. この式から, 反射光強度は磁化 M に依存して変化することがわかる. したがって, 横カー配置でも非線形磁気光学効果を測定できる. 時間反転対称の破れのため, 散逸項のない場合 $\chi^{(2)\text{even}}$ は実数, $\chi^{(2)\text{odd}}$ は虚数でなければならないことが導かれる。

6.2 非線形磁気光学効果の実験的検証

6.2.1 MSHGの大きさの評価と実験

実験に先立って, 非線形感受率の大きさについて理論的な評価が行われた. Niに

[#] 電場ベクトルの方向が入射面に含まれる直線偏光をS偏光, 入射面に垂直である直線偏光をP偏光と称する。

についての理論的な推定は研究者によりばらつきがあり, $\omega^2 \chi^{(2)}$ の値として $10^{12} \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-2} \text{ m}^3$, および $10^{17} \text{ V}^{-1} \text{ s}^{-2} \text{ m}^3$ という値が報告されている. SHGの検出限は $10^9 \sim 10^{10}$ なので, いずれにせよ十分に測定できる大きさである。

初期の実験はNd:YAGのQスイッチパルスレーザーを用いて測定された^{10,11)}. したがって, 生のデータはかなりのノイズを含んだものであった. その後, 繰り返し周期の高いチタン・サファイア・レーザーが使われるようになって¹²⁾, 実験の信頼性ははるかに向上し研究の幅も広がった。

一例として, Satoらが用いている装置の概略を図6.3に示す¹³⁾. 使用している光源はモードロックパルスチタン・サファイア・レーザー(波長810 nm, 繰り返し80 MHz, パルス幅150 fs)である. 偏光方向は, ベレック補償子を回転す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. レンズで集光したときのピーク光密度は, 試料面上で0.5 GW/cm^2 に達する. 色フィルター1は650 nmより短い波長をすべてカットすることにより, 試料で生成されたのではない2次高調波を取り除く. 試料は電磁石の磁極の間に置かれ, 縦カー配置(入射面内に平行に磁界を印加)をとる. 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(HOYA-Schott BG39)を2枚用いている. レンズ2は紫外線透過レンズで, SH光をフォトマルに集光する. チョッパ

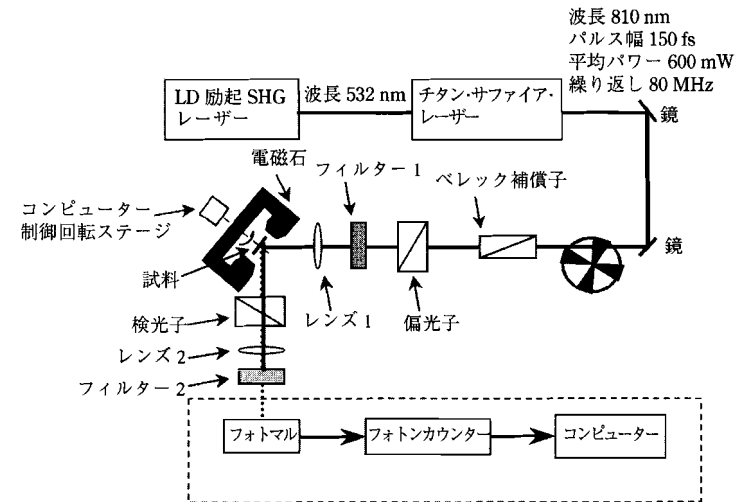


図6.3 非線形磁気光学効果測定系.

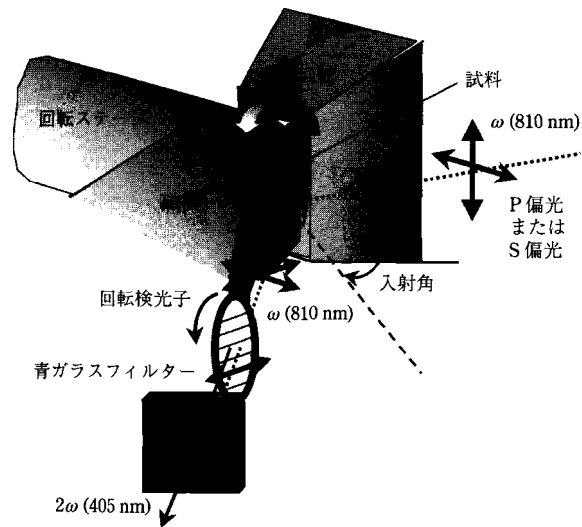


図6.4 試料付近の詳細図.

は、試料に当たる平均光強度を下げ、試料の損傷を防ぐためのものである。SH光は色ガラスフィルターで選択され、フォトンカウンティング法で測定される。試料付近のようすを図6.4に示す。試料は、SH光強度の方位角依存性を測定するため、コンピュータ制御の回転ステージに取り付けられた。また、非線形カー効果の測定のために、検光子もコンピュータ制御で回転できるようになっている。

6.2.2 磁気誘起第2高調波発生 (MSHG) と非線形カー効果

磁性体に強い光を入射したときに射出される第2高調波(SH)光が受ける磁気光学的応答を、磁気誘起第2高調波発生(MSHG)とよんでいる。MSHGの実験データは、1990年のAktsipetrovのBi添加磁性ガーネット薄膜についての研究¹⁰および1991年のReifらのFe表面についての研究¹¹が最初である。しかし、この頃のデータはばらつきが多く、かならずしも信頼性が高いとはいえなかった。Spieringsらは1993年、埋め込まれたCo/Auの境界面における非線形磁気光学効果を測定している¹²。Reifらは1993年、PtMnSbについて14°という大きな値を報告した¹⁴。

図6.5は、Fe(110)の横磁気カー配置のMSHGヒステリシスループ(a)を線形横カー効果のヒステリシスループ(b)と比較したものである¹⁵。MSHGの方が線形カー効果より高いSN比が得られている。

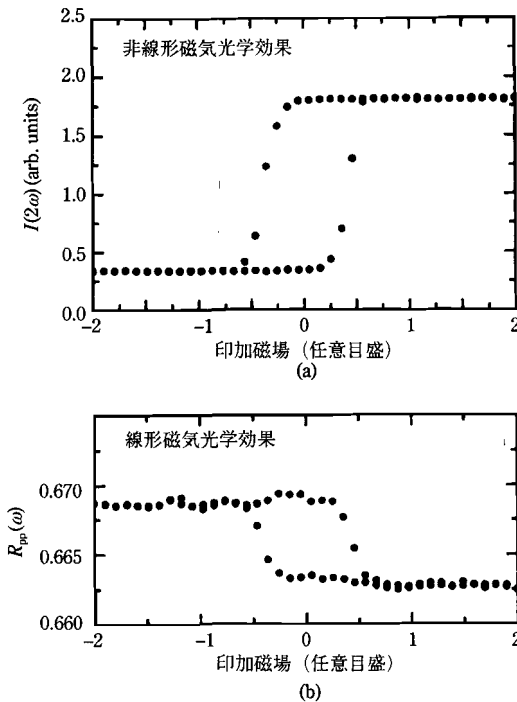


図6.5 MSHGヒステリシスループと線形カーヒステリシスループ.

MSHGは1994年以降急速に研究が進み、次々に信頼性のあるデータが報告されるようになった。ここでは、その数例を紹介する。

A. Fe 超薄膜および単結晶の非線形カー効果

Pustogowaらは、バンド計算に基づいてFeの非線形磁気光学スペクトルを理論的に導き、線形の場合に比べ、かなり大きな値をもつことを予言した⁴。

これを受けて、Rasingらは、スパッタ法で作製したFe/Cr膜において非線形磁気光学効果を測定した^{16,17}。測定には、チタン・サファイア・レーザーを用いた測定系を使用した。図6.6は、縦カー効果の配置でS偏光(波長770 nm)を45°斜め入射したときの射出光の第2高調波成分の偏光性を、検光子回転により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2つの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

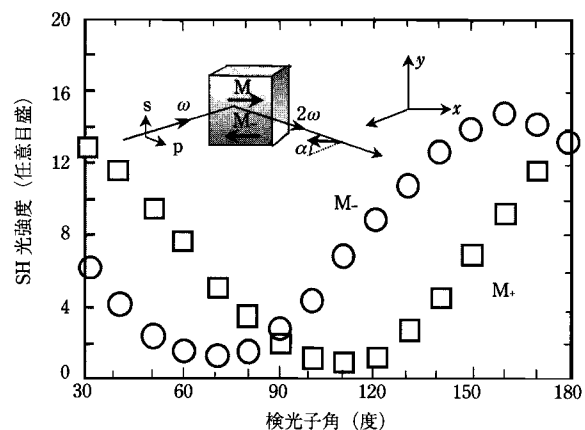


図6.6 Fe/Cr界面からのSH光強度の検光子角依存性.

したところ 0.03° であったという。非線形カー効果は、線形カー効果に比べ大きな値をもつことが証明された。

非線形磁気光学効果の入射角依存性が、Feのひげ（ウィスカー）単結晶を用いて測定された。図6.7は、表面にCrのキャップを付けたFe（▲）、Auのキャップを付けたFe（●）およびキャップを付けないFe（■）の線形および非線形カー回転角の入射角依存性を示している。線は理論的にフィットした曲線である。80°という巨大な非線形磁気光学効果が観測された。縦磁気カー効果は、線形の場合には図の上段のように入射角がゼロに近づくとき減少するのに対し、非線形の場合には図の下段のように入射角が減少するとともに増加し、垂直入射（入射角ゼロ）付近では非常に大きな値になる。

B. サンドイッチ膜のMSHGの量子振動

第7章に詳細に論じるように、磁性超薄膜においては電子がスピン依存量子閉じ込めを受けることが知られている¹⁸⁾。ここでは、Cu/Co/Cu(0 0 1)サンドイッチ構造膜における、量子井戸状態の電子が関与する非線形磁気光学効果のあらましを紹介する。

Rasingらは、Cu(0 0 1)基板に成長したCo(10 ML)にCuキャップ層を付けた2層膜について、非線形光学応答の磁気効果 $\rho^{(2)}$ (pp) (P偏光入射P偏光出射)、および $\rho^{(2)}$ (sp) (S偏光入射P偏光出射)のCu層厚依存性を測定した。図6.8に示すように、これらの応答には人工格子の巨大磁気抵抗効果(GMR)にみられるような振動構造が

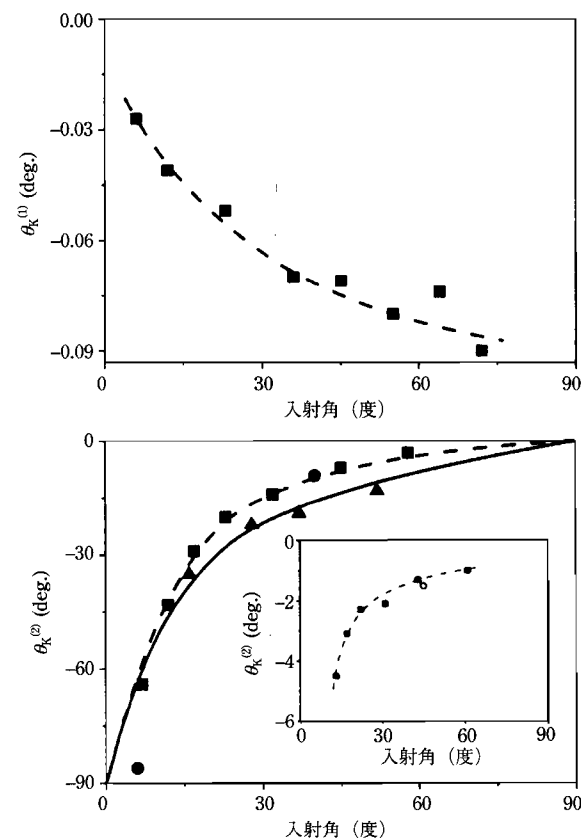


図6.7 S偏光入力ときのFe表面の縦カー回転角の入射角依存性。▲: Fe/Cr, ●: Fe/Au, ■: キャップなしFe。挿入図はP偏光入力ときの非線形カー回転。

観測された¹⁹⁾。しかし、線形磁気光学効果には振動構造はみられなかった。この振動には、5 MLと2~3 MLの2つの振動周期がみられる。長い周期は光電子スペクトルにみられるもの²⁰⁾と同じであり、短い周期は以前にCo/Cu/Co系で線形カー効果にみられているもの²¹⁾と同じであることから、Cu層にスピン偏極量子閉じ込めを受けることによって誘起された磁化が原因であると解釈される。線形効果ではみられないものが非線形効果でみられたことについては、超薄膜における量子効果が界面付近の状態密度に主に影響されること²²⁾が原因であると考えられている。非線形磁気光学効果は、スピン依存量子サイズ効果の感度の高い測定手段である。Vollmerらは、さらに

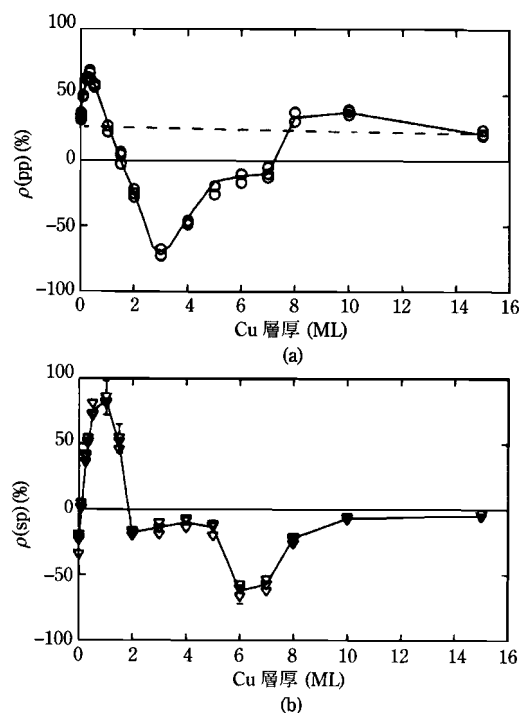


図6.8 Cu/Co 2層膜における非線形磁気光学効果のCu層厚(単位 ML=monolayer)依存性.
(a) $\rho(pp)$: $P_{in}-P_{out}$ のSHGに対する磁気効果, (b) $\rho(sp)$: $S_{in}-P_{out}$ のSHGに対する磁気効果.

詳細な実験を行い, 理論的に論じている¹⁵⁾.

C. 反強磁性体の非線形磁気光学効果

線形磁気光学効果は反強磁性体では観測されないが, 非線形磁気光学効果は有限の値をもつことが報告されている. Fiebigらは, 図6.9に示すような反強磁性体 Cr_2O_3 のSHGスペクトルを報告している²³⁾. SHGスペクトルは左右円偏光に対し異なる応答を示したが, ネール温度(T_N)以上では一致した. 反強磁性ベクトルの異なる磁区では, 左右の応答は逆転した. 磁気対称性を考慮した理論によれば, SH強度は非線形磁化に基づく3階の磁気双極子感受率による項, 非線形分極に基づく3階の電気双極子感受率, および, 両者の干渉項からなり, 左右円偏光を逆転するか, 時間を反転する(つまり, 反強磁性ベクトルを反転)ことによって符号を変える. 反強磁性体の非線形磁気光学のスペクトルは, Tanabeらにより, 磁気点群を考慮した理論によって説

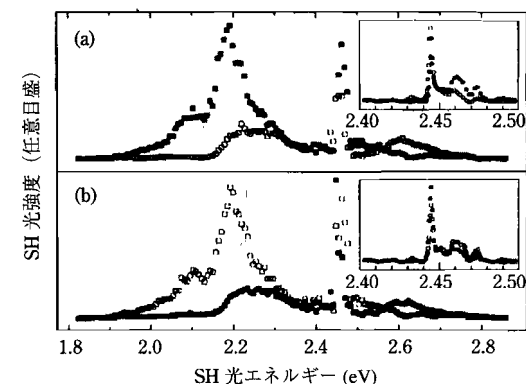


図6.9 反強磁性体 Cr_2O_3 の第2高調波スペクトル (●右円偏光, ○左円偏光).
(a)と(b)とは異なる反強磁性磁区に対応.

明された²⁴⁾. 理論の詳細は, 第3章を参照されたい.

6.3 Fe/Au人工格子の非線形磁気光学効果¹³⁾

6.3.1 はじめに

Satoらは, MgO(1 0 0)単結晶基板上にエピタキシャル成長した $[Fe(xML)/Au(xML)]_N$ 人工格子について線形の磁気光学効果の測定を行ってきた. 平衡状態図ではFeとAuは非固溶である. したがって, FeAuという合金は天然には存在しない. しかし, 原子層制御によって $Fe(1 ML)/Au(1 ML)$ 人工格子をlayer-by-layerに成長した場合には, $L1_0$ 型の正方晶の規則合金が形成されることがTakanashiらにより明らかにされている²⁵⁾. また, FeとAuを x 原子層ずつ積層した場合にも, 界面にこの合金層を形成し, 全体として規則的な格子をつくるのが明らかになっている. Satoらは, これまでに, 一連の人工格子について(線形の)磁気光学スペクトルを測定し, この人工格子の電子構造は単なるFe, Auの積層としては解釈できず, 特有の電子構造をもつとして解釈されるべきである, ということを明らかにしてきた²⁶⁾. この考えは, 第一原理バンド計算から求められた磁気光学スペクトルからも支持された²⁷⁾.

Satoらは, さまざまな x の $[Fe(x ML)/Au(x ML)]_N$ 人工格子について, S偏光入射およびP偏光入射に対するSHG強度の試料方位依存性を測定した²⁸⁾. この結果, Fe/Au人工格子から出射されるSH光の強度は, 基板結晶の方位に依存して大きく変化すること, すなわち, SH光の強度は明瞭な4回対称のパターンを示すことなどを見いだ

した。また、このパターン形状は、入射光と出射光の偏光の組み合わせによって大きく異なること、磁界を反転するとこのパターンは最大45°回転することなどが明らかになった。さらに、非線形カー回転角は、線形の場合の値(0.3°程度)に比べ桁違いに大きいこと、回転角は、層厚 x および結晶方位角に依存するが、最も大きな $x=1.75$ MLの場合には31°に達することがわかった。非線形カー回転角の方位依存性は、SH光強度と同様に4回対称であった²⁹⁾。

この節では、これらの実験結果を非線形電気感受率テンソルの対称性に基づいて解析する。

6.3.2 エピタキシャルFe/Au人工格子

使用した試料はMBE法で作製された³⁰⁾もので、図6.10に示すように基板としてMgO(100)を用い、1 nm厚のFeシード層を堆積した上にAuバッファ層を200 °Cで50 nm成長した後、500 °Cで30分～1時間アニールしたものを下地として、Fe(x ML)/Au(x ML)人工格子を70 °Cにおいて交互蒸着法で作製した。Fe, Auの層厚は単原子層(mono layer, ML)の整数倍($x=1, 2, 3, 4, 5, 6, 8, 10, 15$)、および、非整数倍($x=1.25, 1.5, 1.75, 2.25, 2.5, 2.75, 3.25, 3.5, 3.75$)とした。

Fe/Au人工格子の磁気ヒステリシス曲線をMSHGを用いて測定した。例として図6.11に、 $x=1$ および3.5の場合についてSHG強度の磁場依存性を示す。 $x=1$ のMSHGヒステリシスは、3 kOeで飽和を示さなかったが、 $x=3.5$ のMSHG強度は ± 1 kOe以上の磁界で飽和した。これは、 $x=1\sim 2$ に対してFe/Au人工格子の容易磁化方向は垂

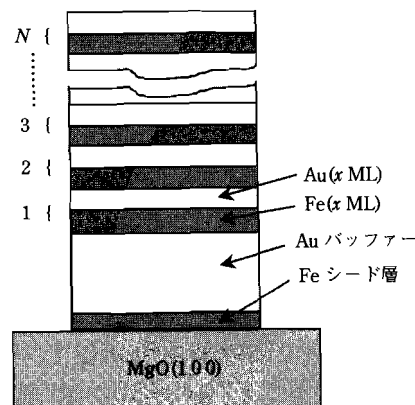


図6.10 実験に用いたFe/Au人工格子の構造。

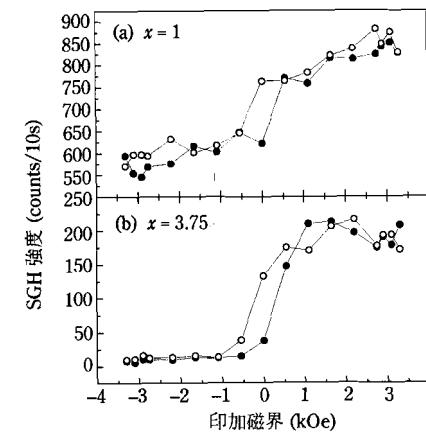


図6.11 第2高調波強度の磁気ヒステリシス (a) $x=1$ ML, (b) $x=3.75$ ML.

直であることが知られており³¹⁾、今回用いた電磁石の最大磁界3 kOeでは面内磁化は飽和せずマイナーループを示しているのに対し、 $x=3.5$ のFe/Au人工格子は面内に容易軸をもち、3 kOeで十分磁氣的に飽和したものと考えられる。

6.3.3 実験結果

A. MSHGの方位角依存性

いくつかの入射・出射偏光の組み合わせ[#]に対して、試料台を回転させることによってSH信号強度の方位角依存性を測定した。図6.12は、 $x=3.75$ の人工格子にP偏光を入射したときの出射P偏光強度($P_{in}-P_{out}$)の方位角依存性である。(a)は、入射光の波長(810 nm)において測定した反射光の方位角依存性である。当然のことながら、このパターンは等方的である。白丸と黒丸は、互いに反対方向の磁界を印加した場合の実験値である。磁化の反転に対して強度はほとんど変化しない。ところが、青色フィルターを用いて入射光の半分の波長(405 nm)を選択して観測したところ、SH光は(b)に示すように明瞭な4回対称の異方性を示し、磁化を反転するとパターンが回転した。

これまでの研究で使われた試料はスパッター法で作製された多結晶薄膜であったため等方性の応答しか示さなかったのに対し、この研究で使われた試料はMgO単結晶基板にエピタキシャル成長した人工格子薄膜であったため結晶の対称性を反映したも

[#] P偏光入射-P偏光出射($P_{in}-P_{out}$ と表記)、P偏光入射-S偏光出射($P_{in}-S_{out}$)、S偏光入射-P偏光出射($S_{in}-P_{out}$)、S偏光入射-S偏光出射($S_{in}-S_{out}$)の4つの組み合わせがある。

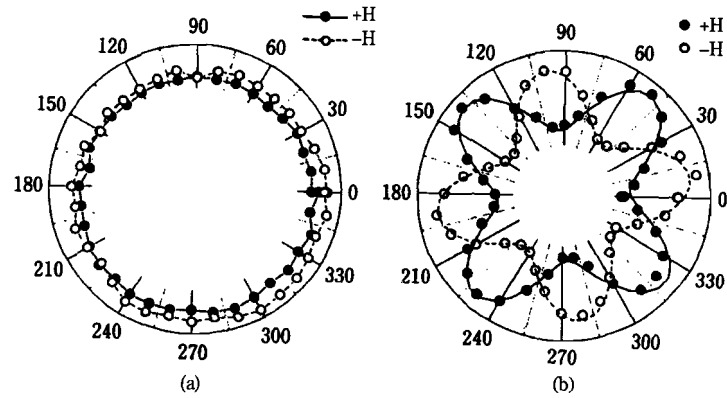


図6.12 第2高調波信号強度の方位角依存性. (a) 線形(810 nm), (b) 非線形(405 nm).

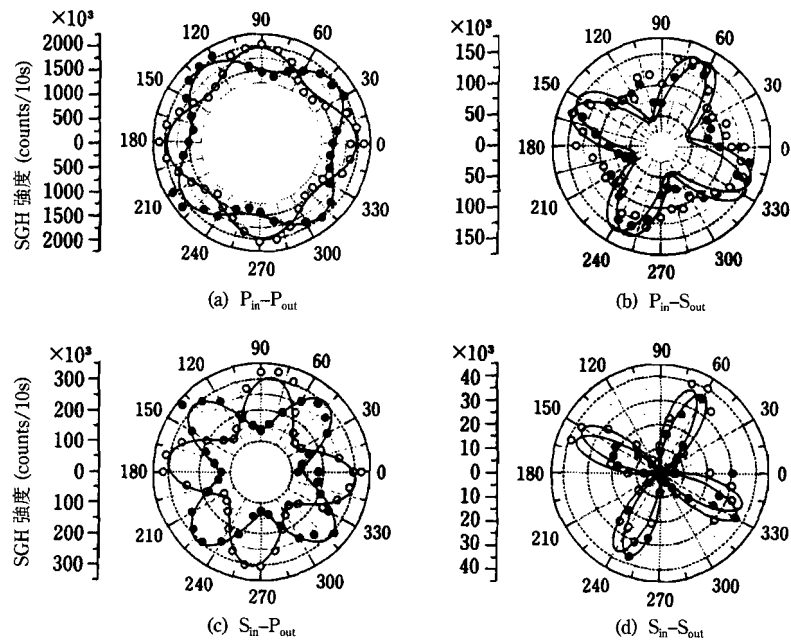


図6.13 $x = 3.5$ の人工格子におけるSHG強度の方位角依存性.

のと考えられる。

図6.13の白丸と黒丸は、入射・出射偏光の4つの組み合わせ($P_{in}-P_{out}$, $P_{in}-S_{out}$, $S_{in}-P_{out}$, $S_{in}-S_{out}$)に対する $x = 3.5$ の人工格子のSH強度のパターンで、互いに反対方向の磁界を印加した場合の実験値である。 $P_{in}-P_{out}$ の場合が最も信号が強く、 $S_{in}-S_{out}$ の場合が最も弱い。 $P_{in}-S_{out}$, $S_{in}-P_{out}$ の信号強度は、これらの中間の値である。方位依存性は等方性の成分と異方性の成分に分けられ、 $P_{in}-P_{out}$ では等方性成分の寄与が大きく、四角形状となるが、 $S_{in}-S_{out}$ では等方成分の寄与はほとんどない。図中の実線は、理論解析の式を用いてフィットした結果で、詳細は6.3.4項に述べる。

B. 方位角依存性パターンの層厚依存性

$x = 1$ と $x = 4$ の間の非整数の層厚について、SH強度の方位角パターンを測定した。そのうち、 $x = 1.5, 2.25, 2.75, 3.5$ のデータを図6.14に示した³²⁾。白丸と黒丸は、磁場強度 ± 3 kOeに対する測定点である。(a)は $P_{in}-P_{out}$ 、(b)は $S_{in}-P_{out}$ の場合のパターンである。図中の実線は、6.3.4項に後述する理論式を用いてフィットさせた計算結果である。 $S_{in}-P_{out}$ の方が $P_{in}-P_{out}$ より明確な異方性がみられている。層厚 x を小さくしていくにつれ、方位角依存性は小さくなり、磁界反転によるパターンの回転も小さくなった。

C. 非線形カー回転

図6.15は、S偏光を入射した場合のFe/Au人工格子におけるSH信号の検光子回転角依存性の一例として、 $x = 1.75$ の測定結果である。白丸と黒丸は、正・負の磁界に

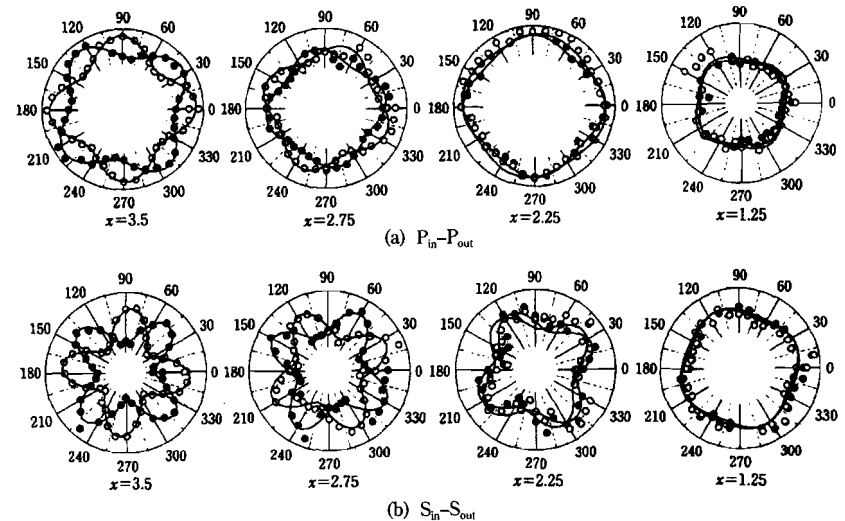


図6.14 方位角パターンの層厚依存性.

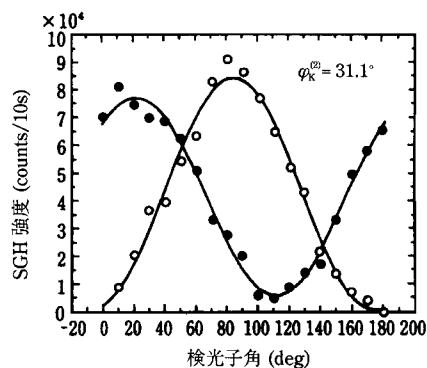


図6.15 $x = 1.75$ の人工格子におけるS偏光入射の場合の非線形カー回転.

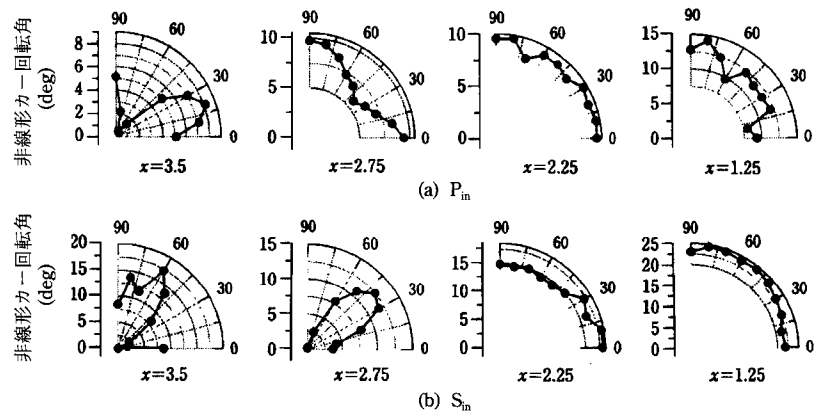


図6.16 非線形カー回転角の方位角依存性.

対するプロットである。SH信号は正弦波的な角度依存性を示し、磁界の反転により曲線は左右にシフトする。図の曲線は、最もよく実験を再現する正弦関数である。正・負の曲線の位相差の1/2が、非線形カー回転角 $\phi_K^{(2)}$ である。これより、 $x = 1.75$ の人工格子において、非線形カー回転角は $\phi_K^{(2)} = 31.1^\circ$ という大きな値をとることがわかった。Fe/Au人工格子の線形磁気カー回転はせいぜい 0.3° であるから²⁶⁾、100倍にも達することがわかる³³⁾。

実際には、非線形カー回転角 $\phi_K^{(2)}$ は、入射面と試料の方位のなす角度に依存する。図6.16は、上に述べた方法で求められた回転角の方位角依存性である。図において、動径方向の目盛りは非線形カー回転角(deg)である。極グラフの角度軸は、基板のほぼ

(100)方位からの角度(deg)である。(a)はP偏光入射の場合、(b)はS偏光入射の場合である。非線形カー回転角の方位依存性は 90° の周期をもち、基本的には4回対称であるが、試料により異なり、 $x = 3.5$ では明瞭な異方性を示すのに対し、 x を小さくするにつれて等方性に近づく傾向がみられた。

6.3.4 理論解析³⁴⁾

A. 非線形感受率

ここで、結晶および表面の対称性に基づく非線形電気感受率テンソルの解析を行う。バルクFeはbcc、バルクAuはfcc、 $L1_0$ のFe(1 ML)/Au(1 ML)人工構造はfccであるから、いずれも中心対称をもつ。したがって、いずれの場合も3階のテンソルはゼロとなるので電気双極子起源のバルクSHGは存在しない。

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

$$\chi^{(2),I_1} \approx -\chi^{(2),I_2} \quad (6.30)$$

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

人工格子の層の厚みは光の波長に比べると十分に小さいので、巨視的な平均電場と平均の非線形感受率を導入すると、試料内部は実効的なパラメータをもつ均質な媒質で置き換えられる。このような実効媒質近似のもとでMSHGの応答には、(i) 最表面における電気双極子型の感受率 χ^S による分極

$$P_i^S(2\omega) = \chi_{ijk}^S E_j^{\text{eff}}(\omega) E_k^{\text{eff}}(\omega) \quad (6.31)$$

の寄与、(ii) 界面感受率の電気双極子型の感受率 χ^{Id} に基づく分極

$$P_i^{Id} = \chi_{ijk}^{Id} E_j^{\text{eff}}(\omega) E_k^{\text{eff}}(\omega) \quad (6.32)$$

の寄与、および、(iii) 巨視的な実効電場の空間的変動に基づく電気四重極子型の感受率による分極

$$P_i^{I,Q}(2\omega) = \chi_{ijkl}^{I,Q} E_j^{\text{eff}}(\omega) \nabla_l E_k^{\text{eff}}(\omega) \quad (6.33)$$

からの寄与からなる。

B. 表面・界面からの寄与

この項では、上に述べた第1近似として(i)および(ii)の寄与、すなわち、電気双極子型の項にのみ注目し、(iii)の電場の変動成分による項は6.3.4項Fのバルクの項に含めて考えることにする。平面波の近似のもとで、 β (= p or s) 偏光の基本波 $E_0^\beta(\omega)$ を入射したときの双極子型の非線形感受率に基づく MSHG 出力の α (= p or s) 偏光成分 $E_{2\omega}^\alpha$ は、フレネル係数 $\tilde{F}_i^\alpha(2\omega)$ および $F_j^\beta(\omega)$ を用いて、

$$E_{2\omega}^{\alpha,\beta} = \sum_{ijk} \chi_{ijk} \tilde{F}_i^\alpha(2\omega) F_j^\beta(\omega) F_k^\beta(\omega) E_0^\beta(\omega)^2 \quad (6.34)$$

と表される。ここに、 χ_{ijk} は実験室座標系における最表面および界面に起因する全実効非線形感受率である。線形磁気光学効果は非線形光学応答に比べ十分小さいので、フレネル因子に対する磁化の影響は無視することができ、フレネル係数は等方的で方位角 φ に対する依存性をもたない。したがって、MSHG の方位角および磁化に対する依存性は非線形感受率 $\chi_{ijk}(\varphi, M)$ で決定される。双極子感受率の磁化依存性は弱いので、磁化のべき関数として展開でき、 $\chi_{ijk}(M) = \chi_{ijk}(0) + X_{ijkl} M_L + \dots$ と書ける。ここに、 X は4階のテンソルである。以下では M について線形の近似のみを考え、高次の項は無視する。

C. 表面非磁性成分の寄与

表面、界面においては中心対称が破れるが、4mm の点群のもとで3階のテンソルは4回対称を与えることはない。Shen によれば、4mm において独立な要素は、 $xxx = yzy$, $xxz = yyz$, $zxx = zyy$, zzz の4つの要素のみである²⁾。さらに $ijk = ikj$ を考慮すると、テンソルは3つの要素 zxx , zzz , zxy を使って次の形で表される。

$$\chi_{ijk} = \begin{pmatrix} xxx & xyy & xzz & xyz & zxx & xxy \\ yxx & yyy & yzz & yyz & yzx & yxy \\ zxx & zyy & zzz & zyz & zzx & zxy \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & xxz & 0 \\ 0 & 0 & 0 & xxz & 0 & 0 \\ zxx & zxx & zzz & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (6.35)$$

方位角依存性の理論式を導く。試料を回転したときの方位角依存性は、試料座標系から実験室座標系への電気感受率テンソルへの変換を考慮しなければならない。試料座標系 xyz と実験室座標系 $x'y'z'$ が z 軸を共通軸として角度 φ だけ回転していると定義する。結晶座標系 xyz から実験室座標系 $x'y'z'$ への変換テンソル A_{ij} は次式で与えられる。

$$A_{ij} = \begin{pmatrix} \cos \varphi & \sin \varphi & 0 \\ -\sin \varphi & \cos \varphi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \quad (6.36)$$

$S_{in}-S_{out}$, $P_{in}-S_{out}$ の場合は、関与するすべてのテンソル要素がゼロである。したがって、入射偏光が P, S いずれであっても出射 SHG には S 偏光成分は現れない。これに

対し $S_{in}-P_{out}$ の場合には、 $\chi_{xy}^{SP} = A_{zz} A_{yx}^2 \chi_{zxx} + A_{zz} A_{yy}^2 \chi_{zyy} = (\sin^2 \varphi + \cos^2 \varphi) \chi_{zxx} = \chi_{zxx}$ が寄与するが、一定値となり異方性をもたない。一方、 $P_{in}-P_{out}$ の場合には、 $\chi_{xx'}^{xx}$, $\chi_{xx'}^{xy}$, χ_{zz} のいずれもが寄与するが、同様の計算により、 $\chi_{zz}^{PP} = (\sin^2 \varphi + \cos^2 \varphi) \chi_{zxx} = \chi_{zxx}$, $\chi_{xx'}^{PP} = (\sin^2 \varphi + \cos^2 \varphi) \chi_{zxx} = \chi_{zxx}$, $\chi_{zz}^{PP} = \chi_{zxx}$ となり、いずれも純粋に等方的で回転異方性をもたらさない。図 6.13(a) に示したような $P_{in}-P_{out}$ 応答には大きな等方性成分の寄与があるが、これは、 $z \parallel z, z \parallel //, // \parallel z$ のすべての成分が関与するからである。これに対して、図 6.13(c) の $S_{in}-P_{out}$ 応答の等方性成分は小さいが、これは、 $z \parallel //$ 成分のみしか寄与しないからである。図 6.13(b), (d) に示す $P_{in}-S_{out}$, $S_{in}-S_{out}$ における等方性成分は、6.3.4 項 F で述べる電気四重極子項からの寄与である。

D. 表面磁性依存成分の寄与

次に、非線形感受率の表面磁性依存成分を求めよう。磁気対称性の議論から、3階のテンソル要素のうち、空間的に4mmの対称性をもち面内に磁化をもつ系の磁化 M について奇関数となるものは χ_{yyy} , χ_{yzz} , χ_{zyz} , $\chi_{zyx} = \chi_{xyy}$, $\chi_{zyx} = \chi_{zyy}$ の5要素のみである。

$$\chi_{ijk} = \begin{pmatrix} xxx & xyy & xzz & xyz & zxx & xxy \\ yxx & yyy & yzz & yyz & yzx & yxy \\ zxx & zyy & zzz & zyz & zzx & zxy \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & xxy \\ yxx & yyy & yzz & 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & zzy & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (6.37)$$

縦磁気カー効果なので、磁化 M は XY 面内にあり、 M で展開するとき、 X_{ijkl} テンソルの $ijk//$ 成分にのみ着目する。結晶方位からみた場合、 $//$ (磁界に平行な) 成分は X, Y のつくる面内にあるから、 $L = X, Y$ である。対称性の考察から、結局 SHG に寄与する X_{ijkl} テンソル成分は、次の5要素のみである。

$$xxyX \equiv xyxX = -yyxY, yxxX = -xyyY, yyyX = -xxxY, yzzX = -xzzY, zzyX \equiv zyzX = -zzxY$$

ここで、変換行列 (6.36) を用いて、試料座標系から実験室座標系に変換する。このとき、4階のテンソルは次のように変換する。

$$\chi_{i'j'k'l'}^{SD} = A_{i'i} A_{j'j} A_{k'k} A_{l'l} \chi_{ijkl}^{SD} \quad (6.38)$$

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

$S_{in}-S_{out}$ の場合

$$\begin{aligned} X_{y'y'x'}^S &= A_{y'z}^3 A_{x'y} X_{zxx}^S + A_{y'y}^3 A_{x'x} X_{yyy}^S \\ &\quad + A_{y'z}^2 A_{y'y} A_{x'x} X_{zxy}^S + A_{y'y}^2 A_{y'z} A_{x'y} X_{yyz}^S \\ &\quad + A_{y'y} A_{y'z}^2 A_{x'x} X_{zxx}^S + A_{y'z} A_{y'y}^2 A_{x'y} X_{yyy}^S \\ &= (\sin^4 \varphi + \cos^4 \varphi) X_{yyy}^S + 2 \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi X_{zxy}^S + 2 \sin^2 \varphi \cos^2 \varphi X_{yyz}^S \\ &= X_{yyy}^S + \frac{1}{4} \zeta_m (\cos 4\varphi - 1) \end{aligned} \quad (6.39)$$

ここで, $\zeta_m = X_{xxx} - 2(X_{yxx} + 2X_{zxx})$ とおいた. 他の組み合わせについても同様に計算する.

S_{in} - P_{out} の場合

$$X_{x'y'y'x'} = \frac{1}{4} \zeta_m \sin 4\varphi \quad (6.40)$$

P_{in} - S_{out} の場合

$$X_{y'x'x'x'} = X_{yxx} + \frac{1}{4} \zeta_m (1 - \cos 4\varphi) \quad (6.41)$$

$$X_{y'zz'x'} = X_{yzz} \quad (6.42)$$

P_{in} - P_{out} の場合

$$X_{x'x'x'x'} = -\frac{1}{4} \zeta_m \sin 4\varphi \quad (6.43)$$

となり, S_{out} の場合は定数項と 90° 周期の余弦関数の和, P_{out} の場合は 90° 周期の正弦関数で表される. 異方性をもつ項の応答は, 偏光の組み合わせのいかにかわらず同じパラメーター ζ_m を用いて表されることが導かれた.

E. 表面の寄与のまとめ

これまでに述べた表面からの非磁性, 磁性の寄与をあわせて, SHG 光の電場強度 $E_{2\omega}^{(0)}$ を式(6.34)を用いて求め, 出射 SHG 強度 $I = c/(2\pi) |E_{2\omega}^{(0)}|^2$ を見積ると

$$\left. \begin{aligned} I^{SS}(\varphi, \pm M) &= |\pm A^{SS} \pm C^{SS} \cos 4\varphi|^2 = |A^{SS} + C^{SS} \cos 4\varphi|^2 \\ I^{SP}(\varphi, \pm M) &= |A^{SP} \pm C^{SP} \sin 4\varphi|^2 \\ I^{PS}(\varphi, \pm M) &= |\pm A^{PS} \mp C^{PS} \cos 4\varphi|^2 = |A^{PS} - C^{PS} \cos 4\varphi|^2 \\ I^{PP}(\varphi, \pm M) &= |A^{SS} \mp C^{SP} \sin 4\varphi|^2 \end{aligned} \right\} \quad (6.44)$$

と表される. ここに, 磁気対称性に基づく異方性パラメーター $C^{SS}, C^{SP}, C^{PS}, C^{PP}$ は $\zeta_m M$ のほかフレネル因子 F を含むが, この因子 F_x^P と F_y^S は, 誘電率の高い媒質への比較的小さな入射角での反射に対してはほぼ等しいと考えられ, $C^{SS} \approx C^{SP} \approx C^{PS} \approx C^{PP}$ とおいて差し支えない.

この式から, 表面の磁化依存項を考慮すると4回対称の方位角依存性が生じることがわかったが, 第1式と第3式に示されるように, S_{in} - S_{out} , P_{in} - S_{out} 配置に対しては $I(\varphi, +M) = I(\varphi, -M)$ となり, 磁化反転による SHG 強度の方位依存性パターンに変化は生じないことがわかる. しかし実験では, 図6.14に示したように S_{in} - S_{out} , P_{in} - S_{out} ともに磁化反転によるパターンの変化がみられており, 電気四重極子項を考慮しない解析では不十分であることがわかった.

F. 電気四重極子の寄与

ここでは, バルクおよび界面による電気四重極子の寄与を考える. この場合, 式(6.33)に示したように4階のテンソル χ_{ijkl} を考慮しなければならない. 対称性の議論によれば, バルクが $m3m$ の対称性をもつとき, χ_{ijkl} のうちゼロでない要素は $\chi_1 = \chi_{ijij}$, $\chi_2 = \chi_{ijji}$, $\chi_3 = \chi_{iiii}$ の独立な3要素のみである. 試料を回転したときの方位角依存性を求めるには, 6.3.4項Aと同様, 変換行列(6.36)を用いて結晶座標系 xyz から実験室座標系 $x'y'z'$ へ変換することにより求められる.

$$\chi_{i'j'k'l'}^Q = A_{i'i} A_{j'j} A_{k'k} A_{l'l} \chi_{ijkl}^Q \quad (6.45)$$

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

$$\zeta = \chi_3 - (\chi_2 + 2\chi_1) \quad (6.46)$$

の成分が異方性を与える.

具体的には, 次に掲げるテンソル成分のみが0にならずに残る.

S_{in} - S_{out} の場合

$$\chi_{y'y'x'y'} = \frac{1}{4} \zeta \sin 4\varphi \quad (6.47)$$

S_{in} - P_{out} の場合

$$\chi_{x'y'x'y'} = \frac{1}{4} \zeta (1 - \cos 4\varphi) \quad (6.48)$$

P_{in} - S_{out} の場合

$$\chi_{y'x'x'x'} = -\frac{1}{4} \zeta \sin 4\varphi \quad (6.49)$$

P_{in} - P_{out} の場合

$$\chi_{x'x'x'x'} = \frac{1}{4} \zeta (3 + \cos 4\varphi) \quad (6.50)$$

$$\chi_{zzz} = \zeta \quad (6.51)$$

となり, S_{out} の場合は 90° 周期の正弦関数の寄与が, P_{out} の場合は定数項と 90° 周期の余弦関数の両方の寄与があることが導かれる. 6.3.4項Bと同様, SH 光の異方性を表す三角関数の振幅は, 偏光の4通りの組み合わせに共通に同じパラメーター ζ を用いて表されるところが重要なポイントである.

電気四重極子項に基づいて生じる非線形分極は, $P_i^{(2)} = \chi_{ijkl} E_j \nabla_k E_l$ と書けるが, こ

の式は横波の光に対しては簡単になり、波動ベクトルの k 成分(進行方向の成分)を $q_k = 2\pi/\lambda = \omega/c$ とすれば、 $P_i^{(2)} = \chi_{ijk}(\omega/c)E_j E_k$ と表すことができるので、SHG 光の電場は式(6.34)と同様にしてフレネル係数を用いて求められる。

G. SHG 光強度の方位角依存性

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

各偏光配置に対する SH 電場 E および SH 光強度 I は、以下のように与えられる。

$S_{in}-S_{out}$ の場合

$$E^{SS}(\varphi, \pm M) = \pm A^{SS} + B^{SS} \sin 4\varphi \pm C^{SS} \cos 4\varphi \quad (6.52)$$

$$I^{SS}(\varphi, \pm M) = |\pm A^{SS} + B^{SS} \sin 4\varphi \pm C^{SS} \cos 4\varphi|^2 \quad (6.53)$$

$S_{in}-P_{out}$ の場合

$$E^{SP}(\varphi, \pm M) = A^{SP} - B^{SP} \cos 4\varphi \pm C^{SP} \sin 4\varphi \quad (6.54)$$

$$I^{SP}(\varphi, \pm M) = |A^{SP} - B^{SP} \cos 4\varphi \pm C^{SP} \sin 4\varphi|^2 \quad (6.55)$$

$P_{in}-S_{out}$ の場合

$$E^{PS}(\varphi, \pm M) = \pm A^{PS} - B^{PS} \sin 4\varphi \mp C^{PS} \cos 4\varphi \quad (6.56)$$

$$I^{PS}(\varphi, \pm M) = |\pm A^{PS} - B^{PS} \sin 4\varphi \mp C^{PS} \cos 4\varphi|^2 \quad (6.57)$$

$P_{in}-P_{out}$ の場合

$$E^{PP}(\varphi, \pm M) = A^{PP} + B^{PP} \cos 4\varphi \mp C^{PP} \sin 4\varphi \quad (6.58)$$

$$I^{PP}(\varphi, \pm M) = |A^{PP} + B^{PP} \cos 4\varphi \mp C^{PP} \sin 4\varphi|^2 \quad (6.59)$$

6.3.4項Cに述べたのと同様の議論から、表面磁性起源のパラメーター C 同様、電気四重極子項起源のパラメーター B についても、 $B^{SS} \approx B^{SP} \approx B^{PS} \approx B^{PP}$ が成立するので、4つの偏光配置の方位角依存性パターンの異方性を共通のパラメーター B, C で表せること、磁界の反転に対し $I(\varphi, -M) = I(-\varphi, +M)$ という関係が成立すること、 $P_{in}-S_{out}$ 、 $S_{in}-S_{out}$ においても磁化反転によるパターンの変化を期待できることなどがわかる。

この理論的考察を、 $x = 3.5$ の人工格子について検証した。図6.13の実験結果のSH強度の絶対値に意味はないが、異なる実験配置の間に強度の相対的な関係は保たれていると考えられるので、方位依存性が明瞭な $S_{in}-P_{out}$ の方位角依存パターン(図

6.13(c))について式(6.55)のパラメーターを求め、それを用いて他の実験の少なくとも異方性の大きさが説明できれば、上述の解析が正しいことになる。こうして図(c)から、 $A^{SP} = 460, B = 26, C = -88$ が得られた。この B, C の値を用いて、図6.13(a), (b), (d)に示した $P_{in}-P_{out}$ 、 $P_{in}-S_{out}$ 、 $S_{in}-S_{out}$ のパターンをどの程度再現できるかを調べた。この結果、図の実線に示すように、等方性パラメーターとして $A^{PP} = 1310, A^{PS} = -300, A^{SS} = 100$ という値をとることによって、ほぼ実験で得られたパターンを再現できることがわかった。

H. 非線形カー回転角のシミュレーション

式(6.52), (6.54), (6.56), (6.58)を用いれば、入射偏光を固定し、検光子を回転させたときのSH光強度の検光子方位角(θ)依存性を求めることができる。

S偏光入射の場合の強度は次式で与えられる。

$$I^{S_{in}}(\theta) = |P^{SP} \cos \theta + P^{SS} \sin \theta|^2 \quad (6.60)$$

P偏光入射の場合の強度は次式で表される。

$$I^{P_{in}}(\theta) = |P^{PP} \cos \theta + P^{PS} \sin \theta|^2 \quad (6.61)$$

式(6.61)に式(6.52), (6.54)を代入することにより、

$$I^{S_{in}}(\theta) = \frac{1}{2} \left\{ (A^{SP} \mp C^{SP} \sin 4\varphi - B^{SP} \cos 4\varphi)^2 + (\pm A^{SS} \pm C^{SS} \cos 4\varphi + B^{SS} \sin 4\varphi)^2 \right\} \times (1 + \cos(2(\theta - \psi_{\pm}))) \quad (6.62)$$

ここに ψ_{\pm} は次式で与えられる。

$$\tan 2\psi_{\pm} = \frac{2(A^{SP} \mp C^{SP} \sin 4\varphi - B^{SP} \cos 4\varphi)(\pm A^{SS} + B^{SS} \sin 4\varphi \pm C^{SS} \cos 4\varphi)}{(A^{SP} \mp C^{SP} \sin 4\varphi - B^{SP} \cos 4\varphi)^2 - (\pm A^{SS} + B^{SS} \sin 4\varphi \pm C^{SS} \cos 4\varphi)^2} \quad (6.63)$$

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

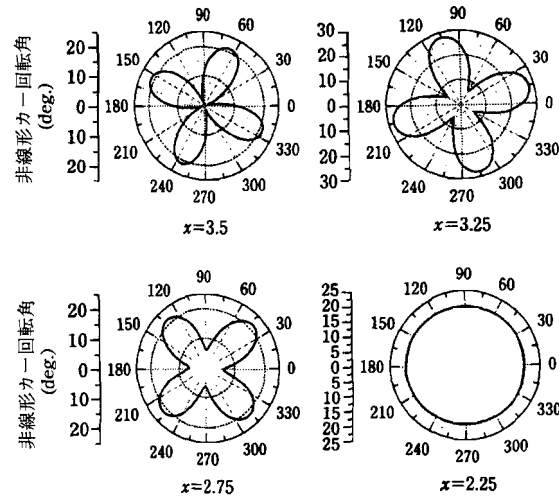
同様に、式(6.67)に式(6.62), (6.64)を代入して

$$I^{P_{in}}(\theta) = \frac{1}{2} \left\{ (A^{PP} \mp C^{PP} \sin 4\varphi + B^{PP} \cos 4\varphi)^2 + (\pm A^{PS} \mp C^{PS} \cos 4\varphi - B^{PS} \sin 4\varphi)^2 \right\} \times (1 + \cos(2(\theta - \psi_{\pm}))) \quad (6.64)$$

ここに次式が成り立つ。

$$\tan 2\psi_{\pm} = \frac{2(A^{PP} \mp C^{PP} \sin 4\varphi + B^{PP} \cos 4\varphi)(\pm A^{PS} - B^{PS} \sin 4\varphi \mp C^{PS} \cos 4\varphi)}{(A^{PP} \mp C^{PP} \sin 4\varphi + B^{PP} \cos 4\varphi)^2 - (\pm A^{PS} - B^{PS} \sin 4\varphi \mp C^{PS} \cos 4\varphi)^2} \quad (6.65)$$

6.3.4項CでSH光強度の方位依存性を再現するように決めた A, B, C のパラメーター

図6.17 非線形カー回転の方位角依存性のシミュレーション結果(S_m の場合).

式(6.63), (6.65)の理論式に代入して, 非線形カー回転角の方位依存性を計算した. その結果, 図6.17に示すように, 図6.16の実験結果にみられた4回対称のパターンを導くことができた. このように, SH光強度の方位角依存性の実験結果から求めたパラメーターを用いて理論的に計算したカー回転角の方位依存性は実験結果と一致した.

1. パラメーターの層厚依存性

$\text{Fe}(x \text{ ML})/\text{Au}(x \text{ ML})$ 人工格子において, 層厚が $1 \leq x \leq 4$ の範囲にある試料について測定されたSHG光の方位角依存性から求めたフィッティングパラメーター A^{sp} , B , C を x に対してプロットしたのが図6.18である. パラメーター A^{sp} は結晶起源の非磁性の寄与であるが, $x = 2.5$ 付近で極小値をとり, この層厚以下で急激に上昇している. 表面観察をしたわけではないので断定的なことはいえないが, おそらく $x < 2.5$ の試料の表面は原子レベルでの凹凸が大きくなっているのではないかと推測される. 一方, パラメーター B の値はほとんど変化していない. この項は, バルクまたは多数の界面の存在に基づく電場の非局所性に起因するもので, 非磁性の4回対称異方性の起源である. B がほぼ一定値をとることは, 層厚が整数・非整数にかかわらず面内の対称性が試料内部で比較的きちんと保たれていることを表している. 一方, パラメーター C の値は $x = 2$ 以下でゼロであるが, これは, $x > 2$ でもっていた面内磁気異方性が, この層厚以下で面に垂直に変化したことと関係していると考えられる.

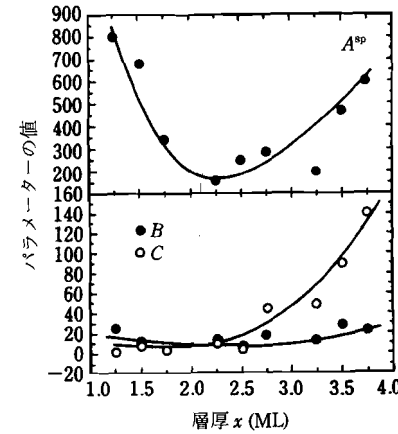


図6.18 フィッティングパラメーターの層厚依存性.

6.4 おわりに

第6章では, 非線形磁気光学効果のうち, 磁気誘起第2高調波発生(MSHG)および非線形磁気カー効果(NOMOKE)について, その基礎, 実験方法, 実例を紹介し, この方法が, 磁性体の表面や界面における磁性, さらには反強磁性の観測のために有効であることを述べた. 次に, Satoらの行ったエピタキシャル Fe/Au 人工格子のMSHGおよびNOMOKEの試料方位依存性の実験結果について紹介し, 明瞭な4回対称の方位角依存パターンおよび磁化の反転によるパターンの回転が, 対称性に基づく電気感受率テンソルの解析によって得られることを明らかにした.

このように, 非線形磁気光学効果は磁性体の研究に非常に多くの情報を与えることがわかった. さらに非線形分光測定を行うことによって, 表面, 界面におけるミクロな電子状態にも迫ることができると予想される. また, 測定にはフェムト秒のパルスレーザーを用いるので, ポンププローブ法などの結合により, スピンドYNAMIKSの観測にも有効である. 今後一層の発展が期待される.

参考文献

- 1) 佐藤勝昭, 日本応用磁気学会誌, **21**, 879 (1997).
- 2) Y. R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, John Wiley & Sons (1984).
- 3) 小川智哉, 結晶物理工学, 裳華房 (1976).
- 4) U. Pustogowa, W. Hübner and K. H. Bennemann, *Phys. Rev.*, **B49**, 10031 (1994).
- 5) W. Hübner, *Nonlinear Optics of Metals* (ed. K. H. Bennemann), Chap.5, p.268, Oxford University

- Press (1998).
- 6) U. Pustogowa, T.A. Luce, W. Hübner and K. H. Bennemann, *J. Appl. Phys.*, **79**, 6177 (1996).
 - 7) Ru-Pin Pan, H. D. Wei and Y. R. Shen, *Phys. Rev.*, **B39**, 1229 (1989).
 - 8) Th. Rasing, *Nonlinear Magneto-optics for Magnetic Thin Films*, Textbook at Aalborg Summer School (1995) (unpublished). 表6.3はこの文献に従う。文献7)に掲載された同様の表には誤りがあると Rasing は指摘している。 4
 - 9) W. Hübner, *Phys. Rev.*, **B42**, 11553 (1990).
 - 10) O. A. Aktsipetrov, O. V. Braginskii and D. A. Esikov, *J. Quantum Electron.*, **20**, 259 (1990).
 - 11) J. Reif, J. C. Zink, C. M. Schneider and J. Kirschner, *Phys. Rev. Lett.*, **67**, 2878 (1991).
 - 12) G. Spierings, V. Koutsos, H.A. Wierenga, M. W. J. Prins, D. Abraham and Th. Rasing, *J. Magn. Magn. Mater.*, **121**, 109 (1993).
 - 13) 佐藤勝昭, 宮本大成, 児玉彰弘, 高梨弘毅, 藤森啓安, A. Petukhov, Th. Rasing, 固体物理, **35**, 559 (2000).
 - 14) J. Reif, C. Rau and E. Matthias, *Phys. Rev. Lett.*, **71**, 1931 (1993).
 - 15) R. Vollmer, *Nonlinear Optics of Metals* (ed. K. H. Bennemann), Chap.2, p.42, Oxford University Press (1998).
 - 16) B. Koopmans, M. Groot Koerkamp, Th. Rasing and H. van der Berg, *Phys. Rev. Lett.*, **74**, 3692 (1995).
 - 17) Th. Rasing, M. Groot Koerkamp and B. Koopmans, *J. Appl. Phys.*, **79**, 6181 (1996).
 - 18) 片山利一, 鈴木義茂, 日本応用磁気学会誌, **17**, 857 (1993).
 - 19) Th. Rasing, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **20**, Suppl. S1, 13 (1996).
 - 20) J. E. Ortega, F. J. Himpsel, G. J. Mankey and R. F. Willis, *Phys. Rev.*, **B47**, 1540 (1993).
 - 21) M. T. Johnson, S. T. Purcell, N. W. E. McGee, R. Coehoorn, J. van de Stegge and W. Hoving, *Phys. Rev. Lett.*, **68**, 2688 (1992).
 - 22) S. Krompiewski, F. Süss, B. Zeller and U. Krey, *J. Magn. Magn. Mater.*, **148**, 198 (1995).
 - 23) M. Fiebig, D. Fröhlich, G. Sluyterman and R. V. Pisarev, *Appl. Phys. Lett.*, **66**, 1016 (1995).
 - 24) Y. Tanabe, M. Fiebig and E. Hanamura, *Magneto-Optics* (ed. S. Sugano and N. Kojima), Chap. 4, p.107, Springer-Verlag (1999).
 - 25) K. Takanashi, S. Mitani, M. Sano, H. Fujimori, H. Nakajima and A. Osawa, *Appl. Phys. Lett.*, **67**, 1016 (1995).
 - 26) K. Sato, E. Takeda, M. Akita, M. Yamaguchi, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori and Y. Suzuki, *J. Appl. Phys.*, **86**, 4985 (1999).
 - 27) M. Yamaguchi, T. Kusakabe, K. Kyuno and S. Asano, *Physica B*, **270**, 17 (1999).
 - 28) K. Sato, S. Mitani, K. Takanashi, H. Fujimori, A. Kirilyuk, A. Petukhov and Th. Rasing, *J. Magn. Soc. Jpn.*, **23**, 352 (1999).
 - 29) K. Sato, A. Kodama, M. Miyamoto, K. Takanashi and Th. Rasing, *J. Appl. Phys.*, **87**, 6785 (2000).
 - 30) 中澤弘実, 三谷誠司, 高梨弘毅, 中嶋英雄, 大沢 明, 藤森啓安, 日本応用磁気学会誌, **20**, 353 (1996).
 - 31) 氷見清和, 高梨弘毅, 三谷誠司, 藤森啓安, 日本応用磁気学会誌, **22**, 585 (1998).
 - 32) 児玉彰弘, 宮本大成, 三谷誠司, 高梨弘毅, 藤森啓安, 日本応用磁気学会誌, **24**, 383 (2000).
 - 33) 佐藤勝昭, 児玉彰弘, 宮本大成, Th. Rasing, 高梨弘毅, 電気学会マグネティクス研究会資料, **MAG-00-13**, 19 (2000).
 - 34) 佐藤勝昭, 非線形磁気光学効果による人工格子界面の評価, 平成8-9年度文部省科学研究費補助金基盤研究B (課題番号08455009) 報告書(1998).

第7章

磁性多層膜の磁気光学効果

鈴木義茂・片山利一

この章では、磁性超薄膜や磁性多層膜にみられる磁気光学効果の諸現象を紹介している。初めに、磁性薄膜の膜厚が、光の波長、電子のスピン拡散長、平均自由行程、フェルミ波長、さらには、原子層厚というような特徴的長さに近づくとときに新しい物性を示すことを述べる。次に、磁性金属薄膜、磁性多層膜における磁気光学スペクトルの測定法とその解析についてエッセンスを述べた後、さまざまな特徴的長さの場合について、重要な実験結果を整理して示すとともに、その理論的な解釈を示す。特に、フェルミ波長程度の膜厚において、膜厚を変化させたときに磁気光学効果の振動現象がみられるが、これが電子の量子閉じ込め現象におけるスピン分極の振動として解釈できるという点に重点をおいて解説している。磁気光学効果を用いて、このようなメソスコピックな電子現象を観測できることは、磁気光学効果がマクロとミクロの両面をもっていることを示しており、今後の磁性人工構造膜の基礎研究、および応用技術にとって重要な指針を与えている。