

磁気光学効果の基礎と最近の研究の展開

東京農工大学工学系大学院 佐藤勝昭

1. はじめに

磁気光学効果は、固体中の電子の状態、特に、スピン軌道相互作用を介して軌道角運動量に強くかかわっているため、さまざまな磁性体の物性研究の道具として有用である。この小文では、磁気光学の基礎を簡単に解説し、それを踏まえ磁気光学効果が磁性体研究にどのように応用されるかについて、人工格子・多層構造磁性体を例に説明する。さらに、磁気光学の最近の展開について、トピックスを紹介する。

2. 磁気光学の基礎¹

2.1 磁気光学効果の起源の古典電子論的説明

磁気光学効果は、誘電率の非対角成分 ϵ_{xy} から生じる。荷電粒子に対する古典的な運動方程式を考えることにより、 ϵ_{xx} 、および、 ϵ_{xy} として、

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

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

を得る。ここに、 $\omega_c = eB/m^*$ はサイクロトロン角周波数、 $\omega_p = \sqrt{ne^2/m^*\epsilon_0}$ は自由電子のプラズマ周波数である。

半導体のマグネトプラズマ共鳴(magneto-plasma resonance)などについては、このような考え方で実験を説明できることがわかっているが、強磁性体の磁気光学効果は果たしてこのような古典電子論では 5×10^4 テスラもの大きな内部磁界を仮定しなければ説明できない。古典的な電子の運動方程式によって強磁性体の磁気光学効果を説明することはできないことがわかった。この問題を解決に導いたのは次に述べる量子論であった。

2.2 磁気光学効果の量子論的起源

動的誘電率は外部電界の印加に対する分極の時間応答を求めるものであるから、時間を含む摂動計算によって求めることができる。この問題の正確な取扱いは久保の式(Kubo's formula)に基づいて行われる。詳細は参考書に譲り、エネルギーがとびとびの準位で与えられるような局在電子系について結果だけを示しておく、誘電率の対角成分、および、非対角成分は、

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

$$\epsilon_{xy}(\omega) = (i N_0 e^2 / 2 m \epsilon_0) \sum_{n < m} \frac{\rho_n \omega_{mn} \{(f_+)_{mn} - (f_-)_{mn}\}}{\omega \{(\omega + i/\tau)^2 - \omega_{mn}^2\}}$$

のようにローレンツ型(Lorentzian)の分散曲線で表される。ここに $(f_x)_{mn}$ 、 $(f_+)_{mn}$ 、 $(f_-)_{mn}$ は、それぞれ基底状態 $|n\rangle$ と励起状態 $|m\rangle$ との間の直線偏光、右円偏光および左円偏光に対する電気双極子遷移の振動子強度であって、

$$\begin{aligned} (f_x)_{mn} &= 2(m\omega_{mn}/\hbar e^2) |(P_x)_{mn}|^2 \\ (f_{\pm})_{mn} &= (m\omega_{mn}/\hbar e^2) |(P_{\pm})_{mn}|^2 \end{aligned} \quad (3)$$

で与えられる. ここに, P_{mn} は電気双極子遷移行列である. また,

$$\rho_n = \exp(-P_n/kT) / \sum \exp(-P_n/kT) \quad (4)$$

は, 基底状態 $|n\rangle$ の分布を与える.

式(2)は, 形の上では古典論から導かれた式(1)とよく似た式になっているが, ω_c のような explicit な形では磁界の効果は現れていない. 磁化は基底状態内の交換分裂を通じて式(4)の分布関数に影響を与えると同時に, 選択則を通じて振動子強度の差 $(f_+)_{mn} - (f_-)_{mn}$ に影響を与え, 磁気光学効果をもたらす. 式(24)の第1式から, 誘電率の対角成分の実数部は分散型, 虚数部は吸収型のスペクトルを示すことが分かる. 一方, 非対角成分について, (24)の第2式を見ると, 対角成分とは逆に実数部が吸収型, 虚数部が分散型になっている.

誘電率に非対角成分が現れ, これによって光学活性が生じるためには

(a) $|n\rangle \rightarrow |m\rangle$ の遷移(振動数 ω_{mn}) において, 右円偏光に対する振動子強度 $(f_+)_{mn}$ と, 左円偏光に対する振動子強度 $(f_-)_{mn}$ とが異なる. (b) 右円偏光による遷移の分散の中心の振動数 ω_+ と左円偏光による遷移の分散の中心の振動数 ω_- が異なる. (c) 分布関数 ρ_m が状態によって異なる. のいずれかの機構が寄与していればよいことが分かる.

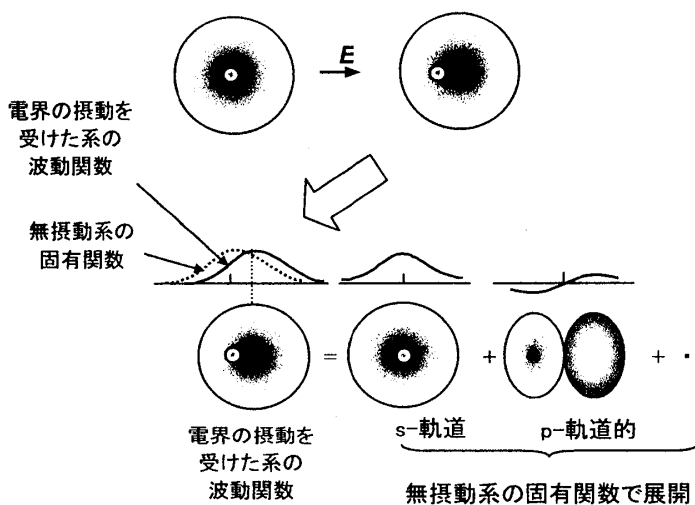


図1 電気分極の摂動論による解釈

2.3 誘電率の量子論的解釈

誘電率が式(2)のように, 電子状態間の光学遷移を用いて表されることの物理的な意味を考えてみよう. 誘電率は物質の分極のしやすさを表す量である. さきに述べたように, 分極というのは電磁波の電界による摂動を受けて電荷の分布が無摂動のときの分布からずれる様子を表している. これを図1に示す. いかなる関数も正規直交関数系でフーリエ級数展開できることはよく知られている. したがって, 電界の摂動を受けて変化した新たな電子波動関数は, 無摂動系の固有関数(基底状態および励起状態は正規直交完全系であることはいうまでもない)を使ってフーリエ級数展開できる. ここで, どのような励起状態をどの程度混ぜるかを表しているのが振動子強度 f とエネルギー分母 $(\omega - \omega_{j0})^{-1}$ であると解釈できる.

このように考えると実際に遷移の起きる共鳴周波数より低い周波数の光に対しても, 分極が生じその結果として比誘電率が 1 ではない値をとる理由が理解できる. すなわち, 励起周波数より低い周波数の光の摂動によって, 励起状態の波動関数が部分的に基底状態に取り込まれて, 電子の空間分布が変化し分極が起きると解釈さ

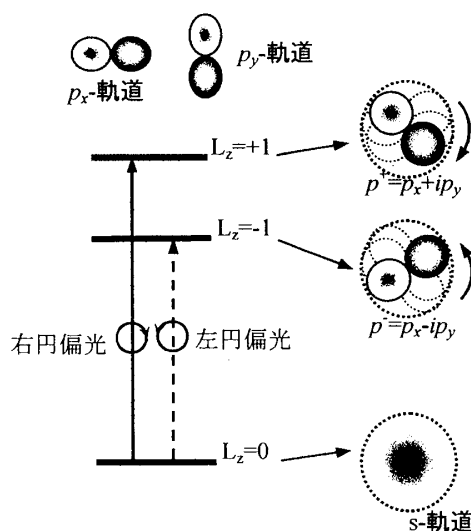


図2 電子の軌道各運動量と円偏光の選択則

れるのである。このプロセスは、仮想的(virtual)であって、エネルギーの消費を伴わない。

非対角成分についての式(24)の第2式をみると、全体に i がかかっている所以对角成分とは逆に実数部が吸収型、虚数部が分散型になっている。このことは N^2 の固有値が $N^2 = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy}$ となり、非対角成分に i がかかっていることに対応している。

量子力学の教えるところによれば、右回り、あるいは、左回りの円偏光による電気双極子遷移が起きるためには、軌道角運動量子数 L の量子化軸成分(今の場合、光の進行方向の成分) L_z が基底状態と励起状態とで1だけ異ならなければならない。一方、固体中に置かれた遷移元素の d 電子の基底状態は軌道の角運動量をもたないことが知られているので、基底状態の軌道角運動量 L は0と見なすことができる。 $L=0$ というのは、あたかも、 s 電子のように球対称であると考えておいてよい。これに対して、励起状態の L はさまざまな値をとり得る。いま、磁化の向きが z 方向にあるとすると、基底状態の L_z は0なので円偏光で許容遷移が起きるためには、図2の電子準位図に示すように励起状態の L_z は ± 1 でなければならない。

$L_z = \pm 1$ という状態は p 電子的な角度分布をもつ状態と考えればよい。いま、 $L_z = +1$ なる固有値に対応する p 電子状態は、 $p_+ = p_x + ip_y$ であり、 $L_z = -1$ を固有値にもつのは $p_- = p_x - ip_y$ であるが、これらの状態はそれぞれ電子が z 軸を中心に右回り、および左回りに回転している状態と考えられる。したがって、円偏光によって電子の回転運動を励起しているのであると理解してよい。式(2)は、円偏光によって、角運動量をもった回転する電子状態が基底状態に部分的に混じってくることによって、誘電率の非対角項が現れることを示している。

これまでの議論では、磁性体の磁化の効果は explicit には現れていない。図3(a)に示すように、磁界(または磁化)のないとき、 $L_z = +1$ と $L_z = -1$ の状態は縮退している。磁界が存在すると、図3(b)に示すようにゼーマン効果(または交換分裂)によって \uparrow スピンの状態のエネルギーと \downarrow スピンの状態のエネルギーとの間に分裂が起きるが、それだけでは、軌道状態の縮退は解けない。 p 電子を例にとると、スピンの異なる p_+ 状態と p_- 状態とのエネルギー分裂は起きるが、磁気光学効果に必要な右回りの回転運動をする軌道(p_+)と左回りの回転運動をする軌道(p_-)とのエネルギー分裂は起きない。ここでスピン軌道相互作用が存在すると、図3(c)のようにスピンの向きと軌道角運動量とが結びつき、全角運動量 $\mathbf{J} = \mathbf{L} + \mathbf{S}$ が状態を表すよい量子数となる。 p 電子についていえば、 $J = 3/2$ に対応するのが $p_{+1/2}$ 軌道、および、 $p_{-1/2}$ 軌道であり、 $J = 1/2$ に対応するのが $p_{-1/2}$ 軌道および $p_{+1/2}$ 軌道である。

もし基底状態の分裂が熱エネルギー kT に比べて十分に大きければ、基底状態は \uparrow スピン電子だけとなるので、右円偏光による $J_z = +1/2 \rightarrow J_z = +3/2$ の遷移と左円偏光による $J_z = +1/2 \rightarrow J_z = -1/2$ の遷移のみが現れ、その遷移エネルギーの違いから磁気光学効果が起きる。 \downarrow スピンからの遷移は \uparrow スピンからの遷移とは逆のスペクトル応答が期待される。このため基底状態の \uparrow スピン状態の数 n_1 と、 \downarrow スピン状態の数 n_2 の分布を考慮せねばならない。もし、基底状態において n_1 と n_2 が同数であれば、遷移が起きても軌道状態の変化は打ち消してしまう。

上のような理由で、磁気光学効果を表す ϵ_{xy} の表式には、スピン偏極率 $\langle \sigma \rangle = (n_1 - n_2) / (n_1 + n_2)$ がかかってくる。常磁性体では、 $\langle \sigma \rangle$ はブリュアン関数 $B_J(B/T)$ で表される。 B/T の十分に小さいとき、この関数は B/T に比例するが、極低温または強磁界の極限では一定の値に収束する。

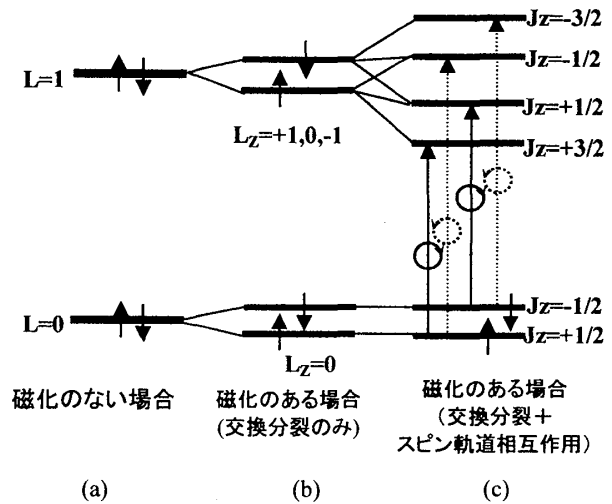


図3 磁気光学効果におけるスピン軌道相互作用の重要性を示す図

一方、強磁性体では交換相互作用によって、一方のスピン状態の数が多数となっているので、磁化がある限り基底状態の↑スピンと↓スピンの数に差があり↑スピンからの遷移が優勢となる。遷移エネルギーの分裂の大きさは、ゼーマン効果によるものではなく、励起状態の $J_2 = +3/2$ と $-1/2$ のエネルギー差を与えるスピン軌道相互作用によるものなので、磁化または外部磁界に依存しない。

3. 磁気光学スペクトルの物性研究への応用—人工格子・多層構造磁性体の研究²—

磁気光学スペクトルを物性研究に適用した一例として人工格子・多層構造膜の研究を紹介しておこう。多層膜や人工格子の構造の寸法が、いろいろの特性長 L^* にどの程度近いかによって、さまざまな異なった物性を示す。 L^* としては、媒体中の光の波長 λ/n , 界面の乱れ ds , 電子のドブロイ波長 λ_D , 原子のサイズ a などが考えられる。

3.1. Fe/Cu, Fe/Au 多層膜の磁気光学効果

繰り返し周期が5 nm から50 nm 程度の人工多層膜を「組成変調人工多層膜」と称している。はじめに問題提起をしたのは、片山らであった³。 $Fe(x \text{ \AA})$ と $Cu(x \text{ \AA})$ からなる組成変調多層構造膜を作製し磁気光学効果を測定したところ、図4(a)に示すようなカー回転スペクトルを得た。すなわち、Fe/Cu 多層膜の磁気カースペクトルには、磁気光学効果の起源であるFe のスペクトルには見られないような明瞭なピークが見られ、そのピーク値はFe のカー回転よりも増大していた。ピーク位置は図4(b)の反射スペクトルに見られる反射率の立ち上がりの波長 (Cu の吸収端) に対応している。この効果は、当初、ミクロスコピックな効果、すなわち、Cu の3d バンドがFe によるスピン偏極を受けて生じた効果ではないかと考えられたが、その後筆者らにより誘電率の対角成分が変化することによる実効的な磁気光学効果の増強として、マクロな取り扱い(仮想光学定数法)によって説明された⁴。一般の角度から入射した光に対する解は行列法によって扱うことができる⁵。繰り返し周期が、媒体中における光の波長である λ/n という特性長に近いことが、光学的な取り扱いを可能にしている。しかし、このような純粋に光学的な手法によって問題を解くことができるのは、層間の界面での混じり(合金化)や、非磁性体の磁気偏極などが無視できる場合に限られることを注意しておこう。

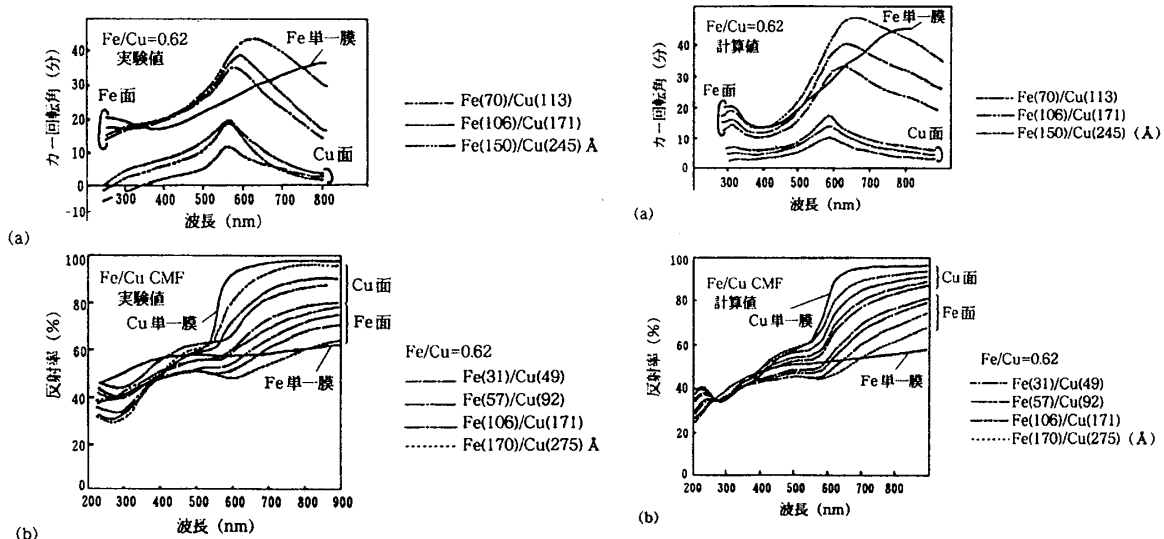


図4 Fe/Cu 組成変調多層構造膜の磁気光学スペクトルと反射スペクトル

図5 仮想光学定数法で計算した磁気光学および反射スペクトル

図5 には、仮想光学定数法によって計算した(a)カー回転、および、(b)反射率のスペクトルを示す。それぞれ、図4 に示した実験データをよく再現している。この計算においては、Fe に

ついて報告された誘電率の非対角成分および, Fe, Cu の光学定数を用いただけで, 一切フィッティング・パラメータを用いていない. 光学的シミュレーションの結果は, 実験データをよく再現しており, 層間の混じりの効果, 界面での磁気偏極の効果や後述べる量子閉じこめの効果がほとんど起きていないことを示している.

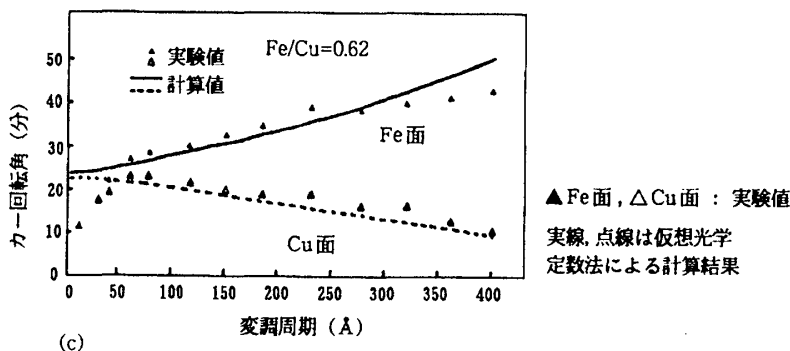


図6 Fe/Cu の層厚比を0.62 に固定した多層膜における磁気カー一回転角の変調周期依存性 (点は実験値、線は計算値)

図6 には, Fe/Cu の層厚比を0.62 に固定した多層膜における磁気カー一回転角の変調周期依存性を示してある. ▲と△は, それぞれ, Fe 面側およびCu 面側から測定した磁気カー一回転角のピーク値の実験値を表している. 一方, 実線と点線は, それぞれ, Fe 面とCu 面の回転角のシミュレーション結果を示す. これをみると, 実験値と計算値は6-40 nm の範囲でよく一致していることが分かる. 変調周期が5 nm より小さくなると, 実験値と計算値のずれが大きくなる. すなわち, 5 nm付近に新たな特性長があることがわかる. この厚みの領域になると, 通常の作製法では, 界面の凹凸や界面付近の相互拡散が無視できない. 従ってこの厚み以下の多層膜の作製には特別の注意を払わなければならないことがわかる.

3.2. 磁性超薄膜の磁気光学効果⁶

1990 年代に至って, 原子層オーダーで制御されたエピタキシャル薄膜作製技術が飛躍的に進歩した. この結果, 層厚を電子のドブロイ波長という特性長程度に制御することが可能になってきた. 鈴木らはMBE 法でMgO 基板上にエピタキシャル成長したAu(100)薄膜の上にFe 超薄膜を作製し, その上に保護層としてAu の薄いキャップ層をかぶせた三層膜における新しい光学遷移を見いだした⁷. その後, Au(100)面にエピタキシャル成長したくさび状のFe 超薄膜にAuの薄いキャップ層をかぶせた膜における磁気光学スペクトルが測定された. このような系の磁気光学効果は, 下地層(Au)の誘電率テンソルの対角成分を ϵ_{xx}^s , Fe 層の誘電率テンソルの非対角成分を ϵ_{xy} として, d が十分小さいとき

$$\theta_K + i\eta_K = \frac{2d\omega}{c} \frac{i\epsilon_{xy}}{1 - \epsilon_{xx}^s} \quad (5)$$

で表される. 下地のAu のプラズマ共鳴の周波数でこの式の分母が小さくなるため, 磁気光学スペクトルに構造が現れる. さらに3.5~4.5eV にかけて, バルクのFe には観測されないようなピークが現れ, 層厚が大きくなるに従って高エネルギー側にシフトする. 4eV 付近におけるFe 1層あたりのカー楕円率は, Fe の層厚の増加とともに大きく振動する. 新たに見られた構造は, Au との接合を作ったことによって, Fe の空いた多数スピンバンドの電子が, Au のバンドギャップ内には入り込めなくなって, Fe 層内に定在波を作って閉じこめを受けることによって生じた量子井戸準位によるものと解釈されている.

一方, Au やCu などの非磁性金属層を2 つの強磁性層で挟んだ交換結合膜において, 層間の交換結合の層厚依存性がGMR の振動として観測されるが, これに似た振動現象が磁気光学効果にも観測されている. 層間交換相互作用の非磁性層厚依存振動現象は, 非磁性層の電子の磁性層界面での反射と干渉を考慮して解析される.

3.3. Fe/Au 人工規則合金

層厚が原子サイズの特徴長に近づいたときどのような現象が起きるのであろうか. Fe と Au は非固溶の状態図をもち合金を作らない. しかし, MBE 法で作製した Fe(1ML) と Au(1ML) からなる人工格子は, Fe と Au の単純な積層ではなく, 天然には存在しない $L1_0$ 型の規則合金構造になることが見いだされている⁸. また, Fe, Au それぞれ数原子層ずつ積層した Fe(xML)/Au(xML)人工格子においても界面には, $x=1$ の人工格子が形成されると考えられる.

筆者らは Fe(xML)/Au(xML)人工格子において図7 に示されるような磁気光学スペクトルを観測した⁹. x が 10 より大きいところでは, Au のプラズマ端による増強効果が 2.5eV 付近にはっきりと観測されるが, その他には顕著な構造を示さない. ところが, x が 8, 6 では, 4eV 付近に明瞭な構造が現れ, x の減少とともに低エネルギー側にシフトしていく様子をはっきりと観測される. バンド計算に基づいて求めた磁気光学スペクトルは, 4eV 付近に磁気光学構造を予言し, 実験結果をほぼ説明することができた¹⁰. どの電子状態がどの光学遷移に対して寄与するかを見ることにより, 4eV 付近のスペクトル構造は, Au の \downarrow スピンの 5d バンドから, Fe の 3d 軌道と Au の励起状態の 5f 軌道が混成した \downarrow スピンのバンドへの遷移が主として寄与していることが明らかになった.

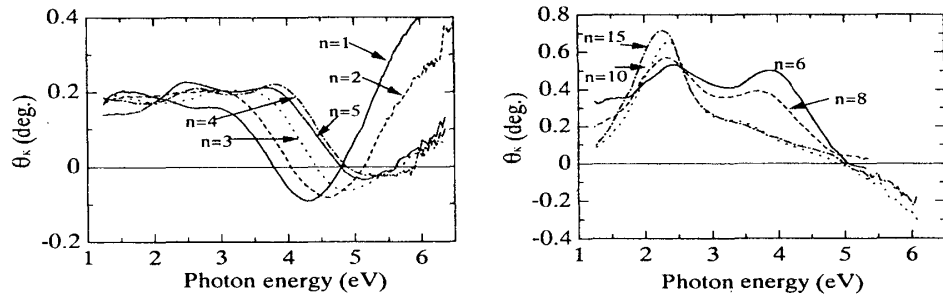


図7 Fe(xML)/Au(xML)人工格子における磁気光学スペクトルの x 依存性

3.4. Pt, Pd と遷移金属の人工格子

4d 遷移金属 Pd, 5d 遷移金属 Pt は貴金属の中でも白金族と呼ばれ, 強磁性になる直前の非強磁性体であるとして知られている. 白金族と鉄族の合金には, 規則相と不規則相が存在する. $L1_0$ 型の規則合金は正方晶で大きな保磁力をもつことが知られ, 永久磁石材料の一種として研究された. 保磁力は, $Pt_{78}Fe_{22}$ では 1.57 kOe, $Pt_{77}Co_{23}$ では 2.60 kOe と報告されている¹¹. 白金族と鉄族の合金は短波長で大きな磁気光学効果を示すため, 光磁気媒体として期待された. しかし, 合金薄膜は面内磁気異方性を示すため, 光磁気媒体としては用いられない. Carcia らは, Pt/Co, Pd/Co の人工格子薄膜を作製し, これが膜面に垂直な磁気異方性をもち, 短波長光磁気記録媒体として用いられることを明らかにした¹².

(a) Pt/Co 人工格子

中村ら¹³および橋本ら¹⁴は, Pt/Co 多層膜が対応する合金の単一膜とよく似た磁気光学スペクトルをもつことを報告し, 界面付近で Pt と Co のミクシングが起きていることを示唆した. Pt/Co, Pt/Fe の詳細な磁気光学スペクトルを

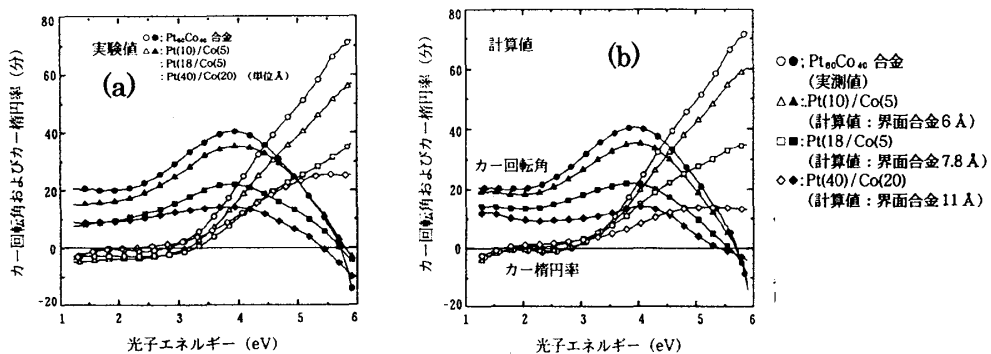


図8 Pt/Co人工格子の(a)磁気光学スペクトルの実験値と(b)仮想光学定数法によるシミュレーション結果

ルの研究はZeperら¹⁵および筆者ら¹⁶によってなされた。

図8(a)は層厚がPt(10 Å)/Co(5 Å), Pt(18)/Co(5), Pt(40)/Co(20)の磁気光学スペクトルをPt₆₀Co₄₀合金と比較して示してある。この形状は、Pt(10)/Co(5)人工格子について、Coの ϵ_{xx} , ϵ_{xy} とPtの ϵ_{xx} とを用い、急峻な界面を仮定した場合には、形状、大きさともに実験結果を再現できない。界面にPt₆₀Co₄₀合金層が存在すると仮定し、合金層の厚みをパラメータとしてPt(10)/Co(5)人工格子のスペクトルを仮想光学定数法で計算した。フィッティングから、合金化していないPt層0.82 Å, Co層0.38 Å, 合金層6 Å程度という数値が導き出された。同様にして、Pt(18)/Co(5)では、Pt5.5 Å, Co0.26 Å, 合金層7.8 Åという値が得られた。図8(b)は、各試料につき最もよくフィットした場合のシミュレーション結果を示してある¹⁷。X線回折のフィッティングから見た場合、6-8 Åという合金層の厚みは大きすぎると思える。

ここでは、合金層があるとして説明したが、Ptの磁気偏極効果を考える必要がある。Schützらは、円偏光放射光を用い、Pt-Co系合金のPtの吸収端に明瞭なX線吸収端のMCD(磁気円二色性)があることを見だし¹⁸、Ptがスピン偏極を受けておりその符号はCoと逆方向であることを明らかにした。また、Feにわずかに固溶した5d遷移金属もスピン偏極をもつことが明らかにされ¹⁹、近接効果による5d遷移金属のスピン偏極の問題が急速にクローズアップされた。Ebert, Akaiらは相対論バンド計算によってPt-Fe合金のPtがスピン偏極を受けることを明らかにし²⁰、伝導率テンソルの対角および非対角要素のスペクトルを計算した。またPt/Fe人工格子における偏極は合金の60%程度であることを導きPtのX線MCDを説明した。

(b) Pd/Co 人工格子

Pd/Co人工格子について中村らは、Pd/Co多層膜の磁気光学スペクトルをPdとCoが混じりあわない単純な多層膜であるとして解析したが、実験をよく説明できなかった²¹。筆者のグループでは、Pd/Coの人工格子とPdCo合金について、磁気光学効果を測定し²²、Pt/Coの場合と同様の仮想光学定数法による解析を行ったが、合金の厚さとしてどのようなものを仮定しても、実験で得たスペクトル(実線)に見られるような3eV付近の様子を再現できなかった。異なった組成のPd-Co系合金のスペクトルの差スペクトルから「磁気偏極したPd」の磁気光学スペクトルを推定し、Pd/Co界面に“magnetic Pd”が存在するとしてシミュレーションを行った結果、実験で得られたスペクトル構造が比較的よく再現されていることがわかった。

“magnetic Pd”の磁気光学効果を強磁界下の磁気光学スペクトルを用いて測定することは今後の課題である。

4. 磁気光学研究の最近の展開

測定技術の進歩によって、近接場における磁気光学効果、非線形磁気光学効果、内殻磁気光学効果などが実際に観測されるようになって、微小領域磁性の情報が得られるようになってきた。ここでは、これらの新しい展開を概説する。

4.1 近接場磁気光学顕微鏡

磁気光学効果を用いると、磁区の観察ができるが、通常のレンズ光学系を用いて識別できる最小距離 d は、回折限界で決まる値 $d=0.6\lambda/NA$ より小さくすることができない。回折限界以下の微小な磁区の磁気光学イメージを得る方法として、近接場光学顕微鏡(near field optical microscope)を紹介する。

近接場とは何であろうか。全反射光学系において境界面を境にして入射光側と反対側には面に垂直方向に指数関数的に減衰する電磁界が存在する。このような光の場を近接場またはエバネセント場とよぶ。近接場が観測されるのは、全反射系に限ったことではない。伝搬する光の場の中に波長より小さな微小物体(直径 d の球とする)を置くと、この物体中には電気双極子が誘起されるが、この双極子が作る振動電界のうち、小球の直径程度のごく近傍にある電磁界は伝搬せず、距離とともに単調に減衰する。この光の場も近接場である。近接場の中に微小な散乱体を置くと、ふたたび伝搬

光となるので微小な散乱体を観測することが可能になる。このような近接場を用いて、微小な物体を観測しようというアイデアはかなり以前から提案されていたが、技術的困難さのため長い間実現しなかった。実用的なSNOMの原型となったのは、1984年のPohlらの論文であった²³。SNOMによる最初のイメージングは1985年になされ、20nmという高分解能が得られた²⁴。その後、細く引き伸ばされたマイクロピペットを用いたSNOMが開発され²⁵、ピペットのテーパを改良し液体を満たすことによって空間分解能が向上し、実用レベルのSNOMが実現した²⁶。最近では、マイクロピペットの代わりに細く絞った光ファイバを用いるのが主流である。

細く絞ったファイバ光学系の先端に設けられた波長より小さな開口を第1の散乱体と考え、ここから漏れ出している近接場中に置かれた微小な構造を第2の散乱体と見てこの散乱光を検出する。このファイバプローブの開口部を物質の表面上で走査することにより、光の回折限界以下の画像化をおこなうのが、走査型近接場光学顕微鏡SNOM(scanning near-field optical microscope)である。この場合は、ファイバプローブが光源側なので照射モードのSNOMと呼ばれる。逆に、第1の散乱体として物質の微細構造を考え、第2の散乱体としてファイバプローブ先端の開口を考える場合を検出モードのSNOMという。

SNOMを利用して微小な磁気構造を観察する研究は1992年のBetzigらによる報告²⁷以来、盛んに行われるようになり、その後、プローブの改良²⁸、制御方法^{29, 30}、解析法³¹、アーティファクト³²などに関する研究が多く報告されるようになった。

しかしながら、ファイバプローブを用いて高いコントラストをもつ磁気光学偏光像を得ることは非常に難しい。一般にファイバを通る偏光は光弾性のため曲げによる応力や機械的な振動による複屈折を生じ偏光度が低下する。これが低コントラストの原因である。筆者らは、図9に示すように光ファイバの先端部を補足引き伸ばし彎曲させたベントタイプのプローブをカンチレバーの針として用いるAFMモードのSNOMをベースとして、光弾性変調器(PEM)を用いた偏光変調法³³により検出感度の向上を図った近接場磁気光学顕微鏡を開発した³⁴。さらに、ストークスパラメータを用いて光ファイバプローブの偏光性をチェックした結果、偏光度が1に近い良質のプローブは、たとえ複屈折による光学的遅延があったとしても、光学的に補償可能であり、きれいな偏光画像を得ることができることを見出した³⁵。

図10は、Pt/Co多層膜を用いた光磁気ディスクに記録された矢羽根型記録マーク(幅1 μm 、長さ6 μm)のAFMトポグラフィ像(左)およびMO-SNOM像(右)である。AFMトポグラフィ像には、右下部に案内溝(グループ)のイメージが見えるのみであるが、MO-SNOM像には、案内溝のない部分に記録磁区形状が明瞭に見られている。この実験に使用したプローブ先端の開口径は80 nmである。プローブ先端と試料表面の距離は20-30 nmであった。溝のある部分では、磁区像に黒い線状の像が重畳しているが、これは案内溝のゴーストで、プローブが凹凸をなぞっていく際の過渡現象が信号に現れているものと解釈されている。近接プローブ装置特有のアーティファクトといわれる。また、長さ0.2 μm の記録マークのMO-SNOM像を分解能約130 nmで明瞭に観測することに成功した³⁶。

4.2 非線形磁気光学効果—磁気誘起第2高調波発生(MSHG)を中心に—³⁷

これまで述べた磁気光学効果はすべて線形の効果、つまり、入射光と同じ波長の出射光についての磁気光学的応答を扱ってきた。これに対して磁性体に誘起された非線形分極によつ

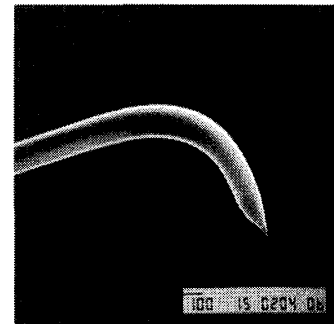


図9 ベントタイプのファイバ・プローブ先端部のSEM像

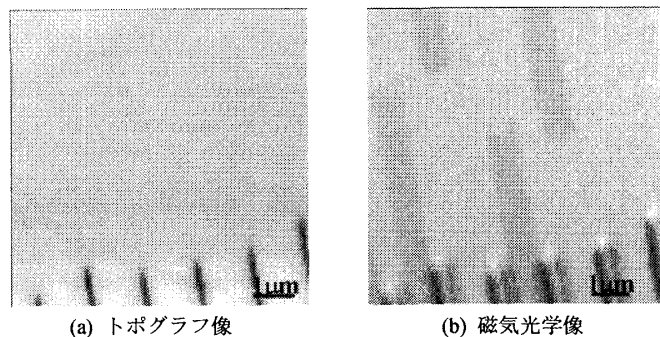


図10 MO-SNOMで観測したPt/Co光磁気ディスクに記録された矢羽根型記録マーク

て発生した第2高調波(SH)の出射光についての磁気光学応答が非線形磁気光学効果である。電気双極子近似の範囲では、2次の非線形分極の成分 $P_i^{(2)}$ は、

$$P_i^{(2)}(2\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) E_j^{(1)}(\omega) \cdot E_k^{(1)}(\omega) \quad (28)$$

のように表される。 $E_j^{(1)}$, $E_k^{(1)}$ は1次光の電界の j , k 成分, $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ は2次の非線形感受率テンソルである。また、この式において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演算の約束に従う。よく知られているようにFe, Coなど中心対称性をもつ物質においては、3階のテンソルは0となるため、第2高調波発生(SHG)が起きない。しかし、表面・界面においては、中心対称性が破れているのでSHGを観測することができる³⁸。

また、物質が磁化をもつと対称性が変化し選択則が変化するので、磁化に依存する磁気誘起SHG(MSHG)が見られる。P(S)偏光の1次光を入射したとき、出射SH光の偏光方向は、入射光の偏光方向P(S)から傾いた方向を向いており、磁化の向きを変えると、偏光方向はP(S)面について対称に向きを変える。この効果のことを非線形磁気カー効果(NOMOKE)という。従って、この効果は磁性/非磁性人工格子の表面・界面の磁性の評価にも用いることができる。この効果は、線形磁気光学効果にはない新しい観測手段としての多くの情報を提供するので、磁性人工格子の研究に欠くことのできない技術になりつつある³⁹。例えば、Feの線形の縦磁気カー回転はせいぜい0.1°程度であるのに対し、非線形カー回転は入射角を小さくしたとき、80°にも達することが報告されている⁴⁰。

また、反強磁性の Cr_2O_3 においてSH光のスペクトルが左右円偏光に対して異なる選択則をもち、隣接する反強磁性磁区においては、この選択則が逆転するという報告がなされており⁴¹、理論解析が行われた。

図11は筆者が用いている非線形磁気光学効果の測定装置である。光源としてはモードロック・チタンサファイア・レーザの810 nmの光を用いている。このレーザからは100–150 fsのパルス光が80MHz程度の繰り返しで出力されており、偏光子P、レンズ、フィルタ F_1 を通して試料面上に照射される。フィルタ F_1 は光学素子で発生するSH光をカットする

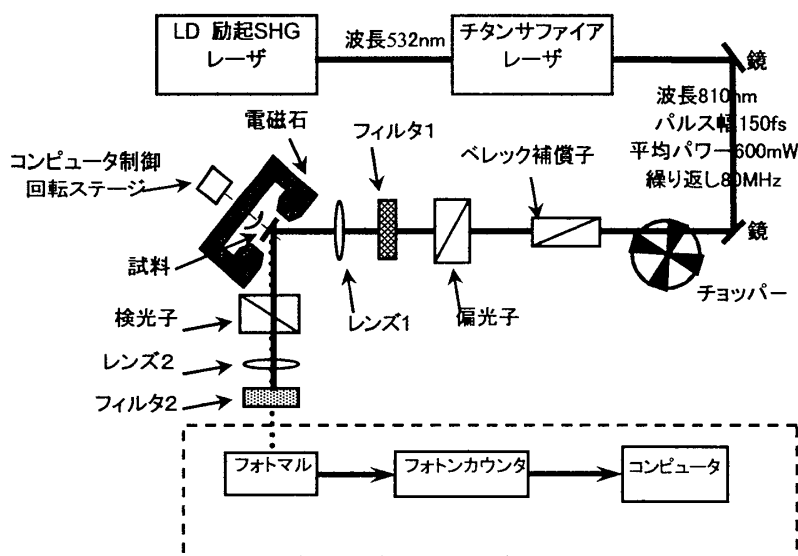


図 11 非線形磁気光学効果測定系模式図

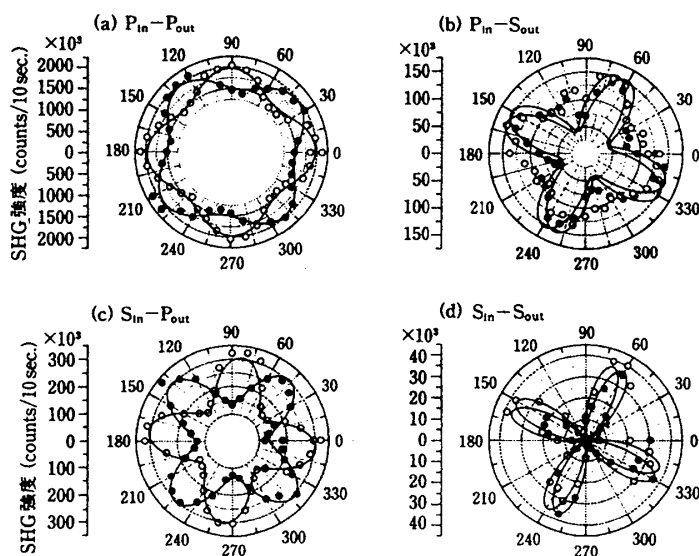


図 12 Fe(3.5ML)/Au(3.5ML)人工格子について観測された MSHG の試料方位角依存性

ためのものである。光は40 μm 径のスポットに集光され、パワー密度は1パルスあたり1 GW/cm²にも達している。この強い光の場を受けて、試料表面には2次の非線形分極が誘起される。試料から出射した光は検光子Aを通ったあとフィルタF2によりSH出力(405 nm)のみが選択され、光電子増倍管(PM)に導かれる。検出された信号は、フォトンカウンティング装置に導かれる。入射角は45°で、磁界は縦磁気光学配置となっている。

図12に、MgO(100)基板の上にエピタキシャル成長したFe/Au人工格子 ([Fe(3.75原子層)/Au(3.75原子層)] \times 30周期)にP偏光(810nm)を入射したときの出射P偏光成分の試料方位角依存性を示している。(a)は線形(810nm)の方位角依存性、(b)はSH光(405nm)の方位角依存性のパターンである。線形では、当然のことながら、等方性のパターンしか見られないのに対し、非線形のパターンには明らかな4回対称が見られ、しかも、磁化の反転によって、パターンが回転する様子が見られる⁴²。MSHGでは、表面・界面における非磁性の結晶構造に起因する項と表面・界面における磁化依存の項との干渉により方位角依存性のパターンが現れている。一方、検光子を回転しながら、2つの磁化方向についてSH光強度を測定し、角度依存性のフーリエ解析から2つの曲線のシフトを求めることにより、非線形カー回転角として23.2°という大きな値を得た。テンソル解析を行うことによって、非線形磁気光学効果は表面・界面の結晶起源のSHG項と、表面・界面からのMSHG項、および、光の電界の傾斜に基づく電気四重極子項の干渉により生じていることが導かれる。MSHGのうち方位に依存しない成分が非線形カー回転に寄与し、方位角依存性を持つ成分が、方位角依存パターンに寄与することが導かれる。

4.3 X線吸収端のMCDとX線顕微鏡

シンクロトロン放射光(SR)を用いた分光研究の特徴は、内殻に関与した光学遷移を観測できることである。強磁性体を構成する原子のX線吸収端付近の吸収スペクトルをSRで測定すると磁気円二色性(以下、XMCDと略称)が見られる。XMCDスペクトルは特定の原子の位置における局所的な磁気モーメントのプローブとして用いることができる。放射光による磁性研究については圓山⁴³によるすぐれた解説があるので詳細はそちらを参照されたい。

ここでは簡単にXMCDの物理的起源を紹介する⁴⁴。円偏光光子のエネルギーが特定の原子のL内殻準位の束縛エネルギー以上になると、2p_{1/2}(L₂), 2p_{3/2}(L₃)の電子はd対称性の終状態にのみ遷移する。電気双極子遷移の選択則により右円偏光では磁気量子数が1増加する遷移のみが許容され、左円偏光では1減少する遷移のみが許容される。

図13は3d遷移金属のL_{2,3}吸収に関与するエネルギー準位図と遷移の様子を示している。簡単のため、3dの多数スピン電子のエネルギー帯は完全に占有されており少数スピン電子のエネルギー帯は部分的に占有されているとする。(Niではこの仮定が成立している)。このときL殻から多

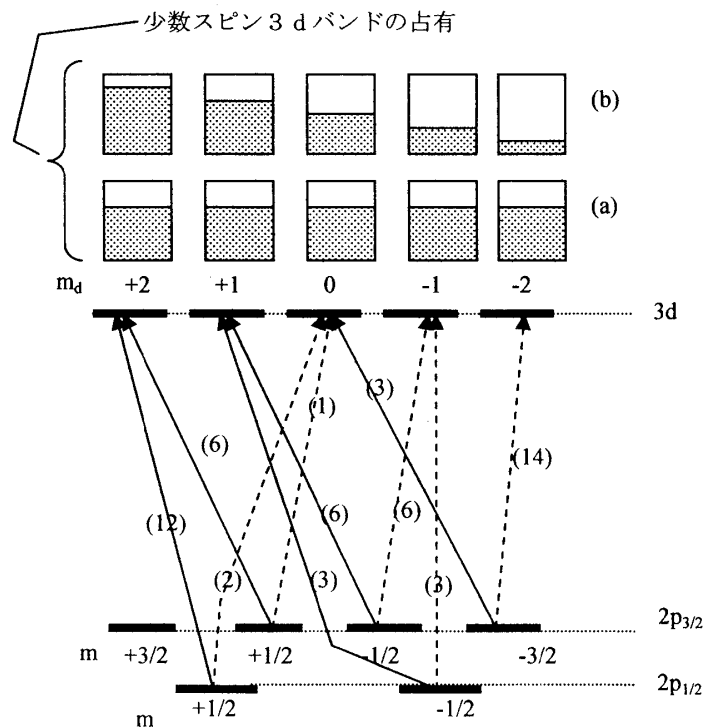


図13 d遷移金属のL_{2,3}吸収に関与するエネルギー準位図と遷移の様子 (a) どのm_d状態も同じ占有状態となる場合(軌道角運動量の消失状態) (b) m_d毎に占有の様子が異なる場合

多数スピン 3d 帯への遷移は起きず、少数スピン 3d 帯への遷移のみを考えればよいので、図には、少数スピンについてのみ図示してある。実線は右円偏光による遷移 ($\Delta l = +1$)、破線は左円偏光による遷移 ($\Delta l = -1$)を表し、カッコの中の数値は相対的な遷移確率である。図の一番上には終状態である 3d 電子帯の占有の様子を描いてある。

もし、図 13(a)のように、どの m_d 状態も同じ占有状態となるならば軌道角運動量が消失しており、スペクトルの形状は図 14(a)のよ

うに L_3 と L_2 の XMCD は対称的な形状となる。これに対して図 13(b)のように m_d ごとに占有の様子異なるならば、図 14(b)のように非対称な形となる。

XMCD を測定することによって局所的な磁化が見積もられる。右左円偏光に対する吸収係数の差 (MCD) $\Delta\mu$ は $|M(E)|^2 \cdot \langle o_z \rangle \cdot \Delta\rho$ のように非占有バンドのスピン密度分布 $\Delta\rho = \rho^+(E) - \rho^-(E)$ に比例するが、これは、ホールモーメントと定義される。これは実際の局在モーメントと大きさが同じで、符号が逆である。従って、XMCD から局所的な磁化を推測することができる。

Chen らは Ni の L_2 , L_3 吸収端の XMCD の測定を行い、 L_2 と L_3 とのスペクトル形状の非対称性を発見した⁴⁵。このスペクトル形状は図 13(b)に示された 3d 電子帯での軌道の占有のアンバランスが原因となっており、軌道角運動量が消失していないことが原因とされた⁴⁶。

第 3 世代の SR ストレージ・リングにおいては、軟 X 線領域のヘリカル・ウィグラ、アンジュレータのような非対称な挿入装置を有し偏光度が 100%におよぶ高輝度円偏光が得られるようになったので、これを用いて非常に SN 比の高い XMCD スペクトルが測定されるようになった⁴⁷。Schütz のグループでは XMCD を用いた磁気光学顕微鏡を開発した。X 線領域で X 線ビームを集光するためにフレネル帯板の一種のコンデンサ・ゾーン・プレートを用いた。これによってサブミクロンのサイズにまで集光することが可能となっている。光磁気ディスクの磁区パターンが 25nm という高分解能が得られている⁴⁸。

5. おわりに

磁気光学効果のミクロな起源と、磁気光学効果を用いた人工格子・多層膜の物性評価、さらに、磁気光学効果研究の最近の展開、特に、近接場磁気光学効果・非線形磁気光学効果について、筆者の研究成果を中心に述べた。磁気光学効果の基礎についてのさらに詳しい記述については、拙著「光と磁気(改訂版)」を参照されたい。この小文が、これから物性研究に磁気光学効果を応用しようとしておられる研究者にとって、なんらかの手がかりになれば幸いである。

謝辞

ここに紹介した筆者の研究の一部は、科学研究費補助金基盤研究(A)(2)[課題番号 07555099]および基盤研究(B)(2)[課題番号 08455009]の助成を受けた。

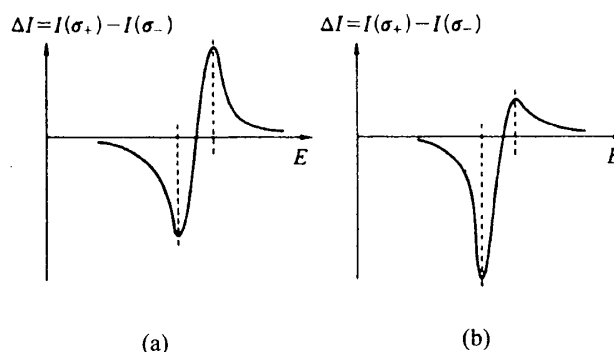


図 14 $L_{2,3}$ 吸収スペクトルの形状 (a) どの m_d 状態も同じ占有状態となる場合 (L_3 と L_2 の XMCD は対称的な形状) (b) m_d 毎に占有の様子異なる場合 (L_3 と L_2 の XMCD は非対称)

参考文献

- 1 佐藤勝昭：光と磁気(改訂版) 朝倉書店, 2001
- 2 佐藤勝昭：日本応用磁気学会第122回研究会「遷移金属・貴金属系磁気記録材料の磁気物性と磁区構造」(2002.1.18 早稲田大学) テキスト
- 3 T. Katayama, H. Awano and N. Koshizuka: *J. Phys. Soc. Jpn.* **55** (1986) 2539.
- 4 K. Sato, H. Kida and T. Katayama: *Jpn. J. Appl. Phys.* **27** (1988) L237.
- 5 J. Zak, E.R. Moog and S.D. Bader: *J. Magn. Magn. Mater.* **89** (1990) 107
- 6 鈴木義茂, 片山利一: *応用物理学会誌***63** (1994) 1261; 片山利一, 鈴木義茂: *日本応用磁気学会誌***20** (1996) 764.
- 7 Y. Suzuki, T. Katayama, S. Yoshida, K. Tanaka and K. Sato: *Phys. Rev. Lett.* **68** (1992) 3355.
- 8 K. Takanashi, S. Mitani, M. Sano, H. Fujimori, H. Nakajima and A. Osawa, *Appl. Phys. Lett.* **67** (1995) 1016.
- 9 K. Sato, E. Takeda, M. Akita, M. Yamaguchi, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori, Y. Suzuki: *J. Appl. Phys.* **86** (1999) 4985.