

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教授(電子情報工学専攻) 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述べ、それを踏まえ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 光の伝搬と磁気光学効果

2.1.1 ファラデー効果

ファラデー効果は物質の磁化に基づく旋光性と円二色性の総称である。このような効果は、物質の左右円偏光に対する応答の違いがあるときに起きる。旋光性は物質中での左右円偏光の速度が異なることによって起きる。直線偏光は右円偏光と左円偏光に分解できる。この光が長さ l の物質を透過した後、左右円偏光の位相が異なっておれば両者を合成した軌跡は、入射光の偏光方向から傾いた直線偏光となり、その傾き θ_F は、

$$\theta_F = -(\theta_R - \theta_L)/2 = -\Delta\theta/2 \quad (1)$$

となる。ここに θ_R は右円偏光の位相、 θ_L は左円偏光の位相である。

一方、円二色性は左右円偏光に対する振幅の差から生じる。その結果、合成ベクトルの軌跡は楕円偏光となる。楕円率 η_F は、

$$\eta_F = \tan^{-1} \{ (E_R - E_L) / (E_R + E_L) \} \quad (2)$$

で与えられる。 E_R は右円偏光の振幅、 E_L は左円偏光の振幅である。

旋光性をもたらす位相の差は、右円偏光に対する屈折率 n_+ と右円偏光に対する屈折率 n_- に差があれば生じる。

$$\theta_F = -\Delta\theta/2 = -\omega(n_+ - n_-)l/2c = -\pi\Delta n l/\lambda \quad (3)$$

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

$$\eta_F = \frac{\exp(-\omega\kappa_+l/c) - \exp(-\omega\kappa_-l/c)}{\exp(-\omega\kappa_+l/c) + \exp(-\omega\kappa_-l/c)} \quad (4)$$
$$\approx -\pi\Delta\kappa l/\lambda$$

となる。次式のように複素旋光角 Φ_F を定義すると式の取り扱いが簡便になることがある。

$$\Phi_F = \theta_F + i\eta_F = -\pi(\Delta n + i\Delta\kappa)l/\lambda = -\pi\Delta N l/\lambda \quad (5)$$

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

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

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

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

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

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

いま、光の電界、磁界ベクトルとして $\exp\{-i\omega(t - Nx/c)\}$ の形の時間・空間依存性を仮定すると、複素屈折率 $N(n + ik)$ の固有値として、次の2つのものを得る。

$$N^{\pm 2} = \epsilon_{xx} \pm i\epsilon_{xy} \quad (8)$$

これらの2つの固有値 N_{\pm} 、 N に対応する電磁波の固有解は、それぞれ、右円偏光、左円偏光であることが導かれる。

もし、 $\epsilon_{xy} = 0$ であれば、 $N_+ = N_-$ となり、左右円偏光に対する媒質の応答の仕方が等しいこととなり光学活性は生じない。従って、 ϵ_{xy} が光学活性をもたらすものであることが理解されよう。式(5)より、複素旋光角 Φ_F は右円偏光と左円偏光に対する複素屈折率の差 ΔN によって記述できるので、これらの量を物質固有の量である ϵ_{xy} によって表すことができる。 ϵ の実数部を ϵ' 、虚数部を ϵ'' と表すとすれば、式(9)から

$$\Delta N = N_+ - N_- = (\epsilon_{xx} + i\epsilon_{xy})^{1/2} - (\epsilon_{xx} - i\epsilon_{xy})^{1/2} \cong i\epsilon_{xy}/\epsilon_{xx}^{1/2} \quad (9)$$

を得る。これを式(6)に代入して

$$\Phi_F = -\pi\Delta N l/\lambda = -(i\pi l/\lambda)\epsilon_{xy}/\epsilon_{xx}^{1/2} \quad (10)$$

が得られる。これを実数部、虚数部に分解して、 θ_F, η_F は、

$$\theta_F = -(\pi l/\lambda)(\kappa\epsilon_{xy}' - n\epsilon_{xy}'')/(n^2 + \kappa^2) \quad (11)$$

$$\eta_F = -(\pi l/\lambda)(n\epsilon_{xy}' + \kappa\epsilon_{xy}'')/(n^2 + \kappa^2)$$

のように、 ϵ_{xy} の実数部と虚数部の1次結合で表される。(ここに、 $\epsilon_{xx} = n + ik$ を用いた。)

通常、ファラデー効果は透明物質で測定されるので、 $\kappa=0$ とすると、式(11)は簡単になって、

$$\theta_F = -(\pi \ell / n \lambda) \varepsilon_{xy}'' , \quad \eta_F = -(\pi \ell / n \lambda) \varepsilon_{xy}' \quad (12)$$

となり、ファラデー回転が ε_{xy} の虚数部に、ファラデー楕円率(磁気円二色性)が ε_{xy} の実数部に対応する。

2.1.2 磁気カー効果

a. 極カー効果

反射の磁気光学効果は、磁気カー効果と呼ばれる。磁化の向きが反射面に垂直で、光が面に垂直に入射する場合を極カー効果と呼ぶ。マクスウェルの方程式を境界条件のもとに解くという手続きをすることによって、次式に示すように複素カー回転 $\Phi_K (= \theta_K + i\eta_K)$ と ε_{xy} の関係式を導くことができる。

$$\Phi_K = \theta_K + i\eta_K = \frac{\varepsilon_{xy}}{(1 - \varepsilon_{xx})\sqrt{\varepsilon_{xx}}} \quad (13)$$

この式から、カー効果が誘電率の非対角成分 ε_{xy} に依存するばかりでなく、分母に由来する対角成分 ε_{xx} にも依存することがわかる。

b. 縦カー効果

磁化の向きが反射面内にあつて、かつ光の入射面に平行な場合を縦カー効果と称す。いま、入射光がp偏光で、入射面と反射面との交わる線をz軸とする。磁化はz軸に平行であるとす。法線の方向をxとする。入射角 φ_0 とし、界面を透過した光の屈折角 φ_2 とすると、複素カー回転角 Φ_K は r_{sp}/r_{pp} によって表される。ここに、 r_{sp} は入射p偏光成分に対し、反射s偏光成分が現れる比率を表し、 r_{pp} は、入射p偏光に対しp偏光が反射される比率を表す。誘電テンソルを用いて、

$$r_{pp} = \frac{\sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_0 - \cos \varphi_2}{\sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_0 + \cos \varphi_2} \quad (14)$$

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

によって与えられる。

c. 横カー効果

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

$$r_{pp} = \frac{\varepsilon_{xx} \cos \varphi_0 - \left(\cos \varphi_2 + \frac{\varepsilon_{xy}}{\varepsilon_{xx}} \sin \varphi_2 \right)}{\varepsilon_{xx} \cos \varphi_0 + \left(\cos \varphi_2 + \frac{\varepsilon_{xy}}{\varepsilon_{xx}} \sin \varphi_2 \right)} \quad (15)$$

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

2.1.3 コットンムートン効果

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

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

いま、 z 軸を磁化 M の方向にとる。光の進行方向が x 軸正の方向であるとしてマクスウェルの方程式を解くと、永年方程式は

$$\{\varepsilon_{xx}(\varepsilon_{xx} - N^2) + \varepsilon_{xy}^2\}(\varepsilon_{zz} - N^2) = 0 \quad (16)$$

となり、次の2つの固有値 N_1, N_2 を持つことがわかる。

$$N_1^2 = \varepsilon_{xx} + \varepsilon_{xy}^2 / \varepsilon_{xx} \quad (17)$$

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

N_1 に対応する固有関数は

$$\mathbf{E}_1 = A \exp\{-i\omega(t - N_1 x/c)\} (\varepsilon_{xy} \mathbf{i} - \varepsilon_{xx} \mathbf{j}) \quad (18)$$

となる。一方、 N_2 に対応する固有関数は

$$\mathbf{E}_2 = B \exp\{-i\omega(t - N_2 x/c)\} \mathbf{k} \quad (19)$$

によって与えられる。 ε_{xy} が0であれば E_1 は y 方向に振動する直線偏光であるが、 $\varepsilon_{xy} \neq 0$ のとき E_1 は xy 面内に振動面を持つことになる。この結果、この波の波面の伝搬方向は x 軸方向であるがエネルギーの伝搬方向は x 軸から $\tan^{-1}(\varepsilon_{xy}/\varepsilon_{xx})$ だけ傾いたものとなる。この光線は異常光線である。一方 E_2 は x 方向に伝わり、伝搬方向(z 方向)に振動する正常光線である。

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

$$\delta = \omega(N_1 - N_2)\ell / c = \omega(\varepsilon_{xx}^{1/2} - \varepsilon_{zz}^{1/2})\ell / c \equiv (\omega\ell / 2c)(\varepsilon_{xx}^{(2)} - \varepsilon_{zz}^{(2)})M^2 / (\varepsilon_{xx}(0))^{1/2} \quad (20)$$

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

2.2 磁気光学効果の物理

2.2.1 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。ところで、誘電率と導電率の間には、

$$\epsilon_{ij} = \delta_{ij} + i\sigma_{ij}/(\omega\epsilon_0) [SI\text{単位}] \quad (21)$$
 の関係式が成立するので、磁気光学効果は導電率の非対角成分 σ_{xy} から生じるといってもよい。 σ_{xy} は電界の x 成分と電流の y 成分を結び付けるテンソル要素である。

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

$$\sigma_{xx}(\omega) = (ne^2/m^*) \cdot i(\omega + i/\tau) / \{(\omega + i/\tau)^2 - \omega_c^2\} \quad (22)$$

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

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

この式を誘電率に書き換えると

$$\epsilon_{xx}(\omega) = 1 - \omega_p^2 / \{(\omega + i/\tau)^2 - \omega_c^2\} \quad (23)$$

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

となる。ここに、 $\omega_p (= \sqrt{ne^2/m^*\epsilon_0})$ 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。

2.2.2 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、

$$\epsilon_{xx}(\omega) = 1 - (N_0 e^2 / m \epsilon_0) \sum_{n < m} \frac{\rho_n (f_x)_{mn}}{(\omega + i/\tau)^2 - \omega_{mn}^2} \quad (24)$$

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

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、

$$(f_x)_{mn} = 2(m\omega_{mn}/\hbar e^2) |(P_x)_{mn}|^2 \quad (25)$$

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

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、

$$\rho_n = \exp(-P_n/kT) / \sum \exp(-P_n/kT) \quad (26)$$

は、基底状態 $|n\rangle$ の分布を与える。

式(24)は、形の上では古典論から導かれた式(23)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(26)の分布関数に影響を与えたとともに、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

- (1) $|n\rangle \rightarrow |m\rangle$ 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。
 - (2) 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。
 - (3) 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。

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—

高密度磁気記録は垂直磁気時代に突入した。このための記録媒体材料としては、長らくCoCrPtなど垂直磁気異方性を有するCoCr系合金を中心に研究されてきたが、最近になって、より広範な材料を対象にして探索が行われている。特に、1990年代はじめに主として光磁気記録媒体という観点から研究されたCo/Pd人工格子などの3d遷移金属/貴金属多層膜が、ふたたび脚光を浴びている。筆者は、磁気光学効果の観点から、さまざまな遷移金属/貴金属人工格子を研究してきた。このうち、Fe、Coなど3d遷移金属とAu、Ag、Cuは合金を作らない系であるから、界面は比較的急峻である。これに対して、3d遷移金属とPt、Pdとの多層膜の場合は合金を作るので、界面は緩やかなものとなる。また、PdやPtは強磁性になる直前の常磁性金属といわれ、強磁性金属に隣接して置かれると、大きな磁気偏極が誘起されると知られている。従って、同じ貴金属でもAu、AgとPd、Ptとでは大きな違いが見られ、異なったアプローチが必要である。

また、多層膜や人工格子の構造の寸法が、いろいろの特性長(characteristic length) L^* にどの程度近いかによって、さ

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。

この節では、はじめに非固溶系である遷移金属Fe、Coと貴金属Au、Cuの人工構造において、どのような磁気光学効果が生じるかを特性長との関連で述べ、その後、Fe、Coと白金族貴金属Pt、Pdの人工構造について、同様のアプローチを紹介する。

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。1980年代の後半になり、スパッタ技術の進歩により、良質の磁性体/非磁性体の組成変調多層構造膜が作製されるようになりその磁気光学効果が論じられるようになった。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、Fig.1(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多層膜の磁気カー回転スペクトルには、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Fig.1(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く。

Fig.2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、Fig.1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で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。

Fig.3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。これを見ると、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、通常で作製法では、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。

3.3. 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。

1992年鈴木らは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、さらに精密化した実験が行われた。Fig.4は、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のFe層厚依存性を示している。キャップ層は酸化を防ぐためのもので、非常に薄いため磁気光学効果にあまり影響をもたない。

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

$$\theta_K + i\eta_K = \frac{2d\omega}{c} \frac{i\epsilon_{xy}}{1 - \epsilon_{xx}^S} \quad (26)$$

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Fe1層あたりのカー楕円率は、Fig.5のように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、Fig.6に示すように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。Fig.7はその1例である。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。超薄膜の作製による磁気光学効果の増強効果は理論的に見積もられており増大因子 α は

$$\alpha = \frac{W^{(3)}}{W^{(2)}} \sqrt{\frac{W^{(3)}}{\Gamma}} \frac{1}{N} \quad (27)$$

によって表される。 $W^{(3)}$ および $W^{(2)}$ は3次元のバンド幅および2次元のサブバンド幅、 Γ はエネルギーの不確定性、 N は磁性層の層数である。 $W^{(3)}=23\text{eV}$ 、 $W^{(2)}=17\text{eV}$ 、 $\Gamma=0.3\text{eV}$ 、 $N=3$ を代入することによって、 $\alpha=4$ という見積もりが得られるが、この値は観測値2とオーダー的に一致する。

3.4. Fe/Au 人工規則合金

層厚が原子サイズの特長に近づいたときどのような現象が起きるであろうか。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L₁₀ 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Fig.8 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が見られる。バンド計算に基づいて求めた磁気光学スペクトルは、Fig.9 に示すように4eV 付近の構造を予言し、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↓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↓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。Fig.8 より求めた|ε_{xy}|のスペクトルのピーク位置を、層厚に対してプロットしたものがFig.10 に黒丸で示されている。x の大きなところでは、先に述べたAu/Fe/Au に見られるピーク(点線)とよく似た挙動を示し、量子サイズ効果の寄与が大きいことがわかる。一方、x の小さいところでは両者にずれが見られる。上に述べたように、x=1 の場合、Fe/Au 人工格子は、天然には存在しないL₁₀ 型のFeAu 人工規則合金になるが、そのとき電子状態は、量子閉じこめというよりは新たなバンド状態に移行すると見られる。従って、x=2~5 付近では人工周期のバンド系と量子閉じこめ系の間状態が実現していると考えられよう

3.5. 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。L₁₀ 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、Pt₇₈Fe₂₂ では1.57 kOe、Pt₇₇Co₂₃ 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の研究は Zeper¹⁵および筆者ら¹⁶によってなされた。以下には、筆者らの仕事を紹介しておく。

Fig. 11(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_{yy} 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0.82Å、Co 層0.38Å、合金層6Å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、Pt5.5Å、Co0.26Å、合金層7.8Åという値が得られた。Fig.11(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、6-8Å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、それぞれ、Fig.12(a)、および、(b)に示すようなスペクトルを得た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、Fig.13(a)に示すように、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 付近の肩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をFig.12(b)に示す。実験で得られた3eV 付近と4.5eV 付近に肩を示す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。

(c) FePt/Pt 人工格子

FePt はL₁₀ 構造の強磁性合金である。筆者らはFePt(xÅ)/Pt(50Å)人工格子におけるPt の役割を磁気光学効果に基づいて検討した²⁴。磁気光学スペクトルは、Fig.13 のように層厚とともにスペクトルが大きく変化した。すなわち、FePt層厚の大きなx=200Å、100Å、75Å については低エネルギーのスペクトルに明瞭なピークが観測されたが、層厚の小さなx=35Å、20Å については、ほとんどフラットなスペクトルを示すにすぎなかった。このスペクトルの変化を光学的なシミュレーションでは説明することができなかった。筆者らはPt が磁氣的に偏極していると仮定し、異なる組成のFe-Pt 合金のΣ_{xy} スペクトルの差をとることによって、Fig.14 に示すような仮想的な“磁性Pt”のΣ_{xy} スペクトルを導き出した。このスペクトルを用いてFePt と“磁性Pt”が反強磁性結合した場合と強磁性結合した場合について光学的シミュレーションを行った。Fig.15(a)(b)に示すように、臨界層厚50Å 以下ではFePt と“磁性Pt”は強磁性結合しており、臨界層厚を超えると

反強磁性結合すると考えると説明できることがわかった。

3.6 この項のまとめ

鉄族遷移金属と貴金属の多層膜・人工格子の磁気的性質を磁気光学効果という観点から概説した。Fe とAu のように平衡状態では固溶しない系においては、変調周期が、光の波長程度であると光学的な干渉効果を考える必要があること、界面の構造的乱れの寸法程度になると、理想的な急峻な界面を仮定した取り扱いができなくなること、電子のドブロイ波長程度になると、量子閉じ込め効果が重要になること、さらに原子の程度の寸法になると、新たなバンド構造が現れ、新しい物質として考える必要があることなどが明らかになった。また、白金族と遷移金属の人工格子では、相互拡散によって界面に形成される合金層を考える必要があること、合金されずに残った白金族元素は近接効果により、かなりの磁気偏極を受けていると考えられることが明らかになった。

今後、遷移金属/貴金属多層膜を垂直磁気媒体として用いる場合にも、以上のような点を考慮した取り扱いが重要になると考えられる。

4. 磁気光学研究の最近の展開

4.1 近接場磁気光学顕微鏡

第5回講座において、磁気光学効果を用いて磁区観察ができることを紹介した。しかし、通常のレンズ光学系を用いて識別できる最小距離 d は、第4回講座で述べたように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。第4回講座では、回折限界を超える磁気光学再生のための方法として磁気超解像(MSR)というマスクを使う方法を述べたが、ここでは、近接場を使って超解像を得る方法について紹介する。

近接場とは何であろうか。はじめにFig.6.1のような全反射光学系を考えよう。媒質1の屈折率が媒質2の屈折率より小さいとき、媒質2から入射した光のうち臨界角より大きな入射角をもつものは、媒質1へ伝播することができず、全反射する。このとき、媒質1側には、境界面から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だない。Fig.6.2に示すように伝播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播せず、距離とともに単調に減衰する。この光の場は、近接場である。

近接場の中に微小な散乱体を置くと、ふたたび伝播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。

近接場顕微鏡においては、プローブと物体との距離をどのように保つかが問題になる。最もよく使われるのがFig.6.3(a)に示すように剪断力を用いた方法で、プローブを水晶振動子などによって試料面と平行な方向に振動させておき、プローブを試料に近づけると表面とのわずかな接触によって横方向に剪断力を受け振動数に変化が生じるので、この変化を高さ調整用圧電アクチュエータにフィードバックすることによって、試料プローブ間距離を一定に保ち浮上させる。もう一つの方法はFig.6.3(b)に示すような光ファイバを折り曲げ原子間力顕微鏡(AFM)のカンチレバーとして使い、ファイバの背につけた鏡面状の平坦部を反射鏡として光でこの法で高さ制御する方法である。この場合にはファイバをバイモルフなどの振動子で試料面に対して垂直に振動させ、試料との接近で共振曲線のスロープが変化することを利用して、アクチュエータにフィードバックする。筆者の用いたSNOMではベントタイプのプローブを用い、AFMモードにより制御している。いずれのモードにおいても、アクチュエータにフィードバックすることによってプローブの上下移動を行っているので、この信号を利用すればトポグラフィ像を同時に測定できる。

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、Fig.6.4の構成図に示すように光弾性変調器(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。

Fig.6.5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。解像度は0.1 μm 程度である。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、Fig.6.6は、長さ0.2 μm の記録マークのMO-SNOM像である。ラインスキャンより求められた分解能は約130 nmである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－

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って発生した第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、

$$P_i^{(2)}(2\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) E_j^{(1)}(\omega) \cdot E_k^{(1)}(\omega) \quad (6.1)$$

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、中心対称が破れているのでSHGを観測することができる³⁷。

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。また、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³⁸。

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³⁹。また、反強磁性のCr₂O₃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されており⁴⁰、理論解析が行われた。Fig.6.7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F₁を通して試料面上に照射される。フィルタF₁は光学素子で発生するSH光をカットするためのものである。光は40μm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。

Fig.6.8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)]×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、Fig.6.8(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⁴¹。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光強度を測定したものがFig.6.9に示されている。この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。MSHGを用いて磁区のイメージングを行うことができる⁴²。Fig.6.10は非線形磁気光学顕微鏡の構成図である。光源は、モードロック・チタンサファイア・レーザ、Pは偏光子、F₁は光学系で発生するSH光をカットするもの、L₂は対物レンズ、F₂は1次光カットフィルタ、Aは検光子である。MSHG像はCCDカメラにより撮像される。Fig.6.11は、9 nm厚のCoNi薄膜の(a)線形および(b)非線形の磁区パターンである。磁区形状は、線形と非線形型とは異なっており、非線形画像の方が高いSN比を示している。

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.
- 10 山口正剛, 日下部鉄也, 浅野撰郎: 日本応用磁気学会誌**22** (1998) 1401.
- 11 近角聡信: 強磁性体の物理(下), (裳華房, 1984) p. 379.
- 12 P. F. Carcia: J. Appl. Phys. **63** (1988) 1426.
- 13 K. Nakamura, S. Tsunashima, S. Iwata and S. Uchiyama: IEEE Trans. Magn. **MAG-25** (1989) 3758

-
- ¹⁴ S. Hashimoto, Y. Ochiai and K. Aso: Jpn. J. Appl. Phys. **28** (1989) L1824.
- ¹⁵ W.B. Zeper, F.J.A.M. Greidanus, P.F. Carcia and C.R. Fincher: J. Appl. Phys. **65** (1989) 4971.
- ¹⁶ K. Sato, H. Hongu, H. Ikekame, J. Watanabe, K. Tsuzukiya, Y. Togami, M. Fujisawa and T. Fukazawa: Jpn. J. Appl. Phys. **31** (1992) 3603.
- ¹⁷ K.Sato: J. Magn. Soc. Jpn. **17**, Suppl. S1 (1993) 11.
- ¹⁸ G. Schütz, R. Wienke, W. Wilhelm, W.B. Zeper, H. Ebert, K. Spört: J. Appl. Phys. **67** (1990) 4456
- ¹⁹ G. Schütz, R. Wienke, W. Wilhelm, W. Wagner, P. Kienle, R. Zeller, R. Frahn: Z. Phys. B-Cond. Matt. **75** (1989) 495.
- ²⁰ H. Ebert and H. Akai: J. Appl. Phys. **67** (1990) 4798.
- ²¹ 中村, 綱島, 岩田, 内山: 日本応用磁気学会誌 **13** (1989) 389.
- ²² Y. Tosaka, H. Ikekame, K. Urago, S. Kurosawa, K. Sato and S.C. Shin: 日本応用磁気学会誌 **18** (1994) 389.
- ²³ D.W. Pohl, W. Denk and M. Lanz: Appl. Phys. Lett. **44**, (1984) 651
- ²⁴ D.W. Pohl, W. Denk and U. Dürig: Proc. SPIE **565** (1985) 56
- ²⁵ A. Harootunian, E. Betzig, M. Isaacson and A. Lewis: Appl. Phys. Lett. **49** (1988) 674.
- ²⁶ E. Bezig, J.K. Trautman, T.D. Harris, J.S. Weiner and R.L. Kostelak: Science **251** (1991), 1468.
- ²⁷ E. Betzig, J.K. Trautman, R. Wolfe, E.M. Gyorgy, P.L. Finn, M.H. Kryder and C.-H. Chang: Appl. Phys. Lett. **61** (1992) 142.
- ²⁸ T. Yatsui, M. Kourogi and M. Ohtsu: Appl. Phys. Lett **73** (1998) 2090
- ²⁹ J. W. P. Hsu, Mark Lee and B. S. Deaver: Rev. Sci. Instrum. **66** (1995) 3177
- ³⁰ B. L. Petersen, A. Bauer, G. Mayer, T. Crecelius and G. Kaindl: Appl. Phys. Lett. **73** (1998) 538
- ³¹ E. B. McDaniel, S. C. McClain and J. W. P. Hsu: Appl. Opt. **37** (1998) 84
- ³² H. Hatano, Y. Inoue and S. Kawata: Jpn. Appl. Phys. **37** (1998) L1008
- ³³ K. Sato: Jpn. J. Appl. Phys. **20** (1981) 2403-2409
- ³⁴ K.Sato, T.Ishibashi, T.Yoshida, J.Yamamoto, A.Iijima, Y.Mitsuoka, and K.Nakajima: J. Magn. Soc. Jpn. **23** (1999), Suppl. S1, 201.
- ³⁵ 吉田武一心、山本仁、飯島文子、石橋隆幸、佐藤勝昭、中島邦雄、光岡靖幸: 日本応用磁気学会誌 **23** (1999) 1960.
- ³⁶ 佐藤勝昭: 固体物理 **34** (1999) 681
- ³⁷ Y.R. Shen: The Principles of Nonlinear Optics (John Wiley & Sons, New York, 1984.
- ³⁸ Th. Rasing: "Nonlinear magneto-optical studies of ultra thin films and multilayers", *Nonlinear Optics at Metallic Interfaces, ed. K.H. Bennemann* (Oxford Univ. Press, Oxford, 1997)
- ³⁹ Th. Rasing, M. Groot Koerkamp and B. Koopmans: J. Appl. Phys. **79** (1996) 6181
- ⁴⁰ M. Fiebig, D. Fröhrich, G. Sluyterman, R.V. Pisarev: Appl. Phys. Lett. **66** (1995) 2906
- ⁴¹ K. Sato, A. Kodama, M. Miyamoto, A.V. Petukhov, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori, A. Kirilyuk and Th. Rasing: Anisotropic Magnetisation-Induced Second Harmonic in Fe/Au Superlattices; Phys. Rev. **B64** (2001) 184427-1~10.
- ⁴² V. Kirilyuk, A. Kirilyuk and Th. Rasing: J. Magn. Soc. Jpn. **22** (1999) 715