

光と磁気を取り巻く最近の進展と将来展望

佐藤 勝 昭

Recent Development and Perspective of Magneto-Optics

Katsuaki SATO

This paper provides a review on recent trends and future perspectives concerning magneto-optics. The first half will be dedicated to fundamental studies and the second half to introductory remarks on applied researches.

Key words: Faraday effect, magneto-optical Kerr effect, nonlinear magneto-optics, near-field magneto-optical Kerr effect, X-ray magneto-circular dichroism

磁気光学効果は1845年のファラデーの発見に始まり、その後、フォークト効果、磁気光学カー効果など19世紀中におもな効果は出そろい、現象論によって説明された。磁気光学効果が量子力学によって説明されたのは、20世紀も半ばになってからである。金属磁性体の磁気光学効果のスペクトルは、現在では第1原理のバンド計算によってほぼ定量的に説明されるようになった。磁気光学効果は、磁区イメージング、スピントロニクスにおけるスピン注入の検証、超伝導体への磁束の侵入の観測など基礎科学を支える技術としても定着している。磁気光学イメージングについては石橋氏の解説を参照されたい。

磁気光学効果の対象物質は、従来は強磁性体に限られていたが、非線形磁気光学効果の登場により反強磁性体にまで広がった。一方、近接場磁気光学効果の登場は、磁気光学イメージングにおける空間分解能を飛躍的に向上させた。また、フェムト秒レーザーとポンプ・プローブ法の適用によって、時間分解能が大幅に向上した。これにより、超短時間の磁気ダイナミクスの研究が進展した。この過程で、40 fs という短パルス円偏光レーザー光による非熱の高速磁化反転が見いだされた。放射光を利用したX線磁気円二色性(XMCD)によって、原子を特定して磁気モーメントを観測することも可能になった。さらに、自由電子レーザーの出現により、反強磁性結合した磁気モーメントのダイナミクスも明らかになってきた。

応用的には、20世紀の末に、光磁気ディスクおよび光通信用アイソレーターが登場した。光磁気ディスクは、その後のハードディスクおよびフラッシュメモリの進展によって撤退を余儀なくさせられたが、培われた技術は Tb/in^2 を超える超高密度ハードディスクの熱アシスト記録方式として再び注目されている(松本氏の解説を参照)。光通信時代を迎え、アイソレーターは現在も活躍しており、光集積回路への導入が進められている(水本氏の解説を参照)。また、磁気光学空間光変調器が飛躍的に進歩し、ホログラフィックメモリへの適用が進められている(井上氏の解説を参照)。

この報告では、磁気光学の基礎を簡単に述べ、非線形磁気光学効果、近接場磁気光学効果、極短時間光誘起磁化ダイナミクス、放射光利用磁気光学効果などについて紹介する。

1. 磁気光学の基礎¹⁾

1.1 円偏光の伝搬と磁気光学効果

ファラデー効果は、ファラデー配置をとったときの物質の磁化に基づく旋光性(直線偏光の傾きが回転する効果)と、円二色性(直線偏光が楕円偏光になる効果)の総称である。ファラデー効果は、磁化をもつ物質の左右円偏光に対する応答の違いがあるとき生じる。

図1(a)に示すように、直線偏光は右回り円偏光(以下

(独)科学技術振興機構 さきがけ次世代デバイス研究総括(〒102-0076 東京都千代田区五番町7 K's 五番町) E-mail: katsuaki.sato@nifty.com

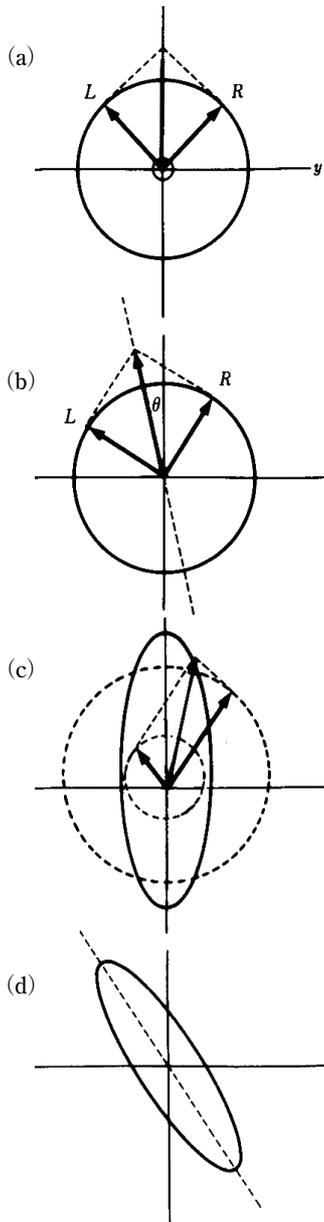


図1 円偏光の伝搬と磁気光学効果. (a) 直線偏光は右円偏光と左円偏光とに分解できる. (b) 左右円偏光の位相差があると旋光性をもつ. (c) 左右円偏光の振幅差があると楕円性をもつ (円二色性ともいう). (d) 一般には主軸の傾いた楕円偏光となる.

では右円偏光と記す)と左回り円偏光(左円偏光)に分解できる. この光が長さ l の媒質を透過する際に, 左右円偏光の速度が異なっていれば, 透過した後の光の左右円偏光の位相には図1 (b) に示すようなずれが生じるので, 両者を合成した軌跡は入射光の偏光方向から傾いた直線偏光となっている. その傾き θ_F は

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

となる. ここに θ_R は右円偏光の位相, θ_L は左円偏光の位相, $\Delta\theta$ は位相差である.

一方, 媒質を透過する際に, 左右円偏光が受ける吸光度に違いがあると, 媒質を通り抜けてきた左右円偏光には振幅の差が生じるので, その結果, 図1 (c) のように合成した電界ベクトルの軌跡は楕円偏光となる. このようなわけで, 直線偏光が楕円偏光になる効果を円二色性とよぶのである. 楕円率角 η_F は, 楕円の短軸と長軸との振幅の比の逆正接

$$\eta_F = \tan^{-1} \frac{|\hat{E}_R| - |\hat{E}_L|}{|\hat{E}_R| + |\hat{E}_L|} \quad (2)$$

で与えられる. $|\hat{E}_R|, |\hat{E}_L|$ は, それぞれ右円偏光と左円偏光の振幅の絶対値である. 楕円率角は通常非常に小さいので, ラジアン表示でこれを楕円率とすることが多い. ここで, あとの式の取り扱いを簡単にするために, 次式のように複素旋光角 Φ_F を定義する.

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

こうすると, 式(1)と(2)をまとめて,

$$\Phi_F \approx i \frac{\hat{E}_R - \hat{E}_L}{\hat{E}_R + \hat{E}_L} \quad (4)$$

と書くことができる. ここに \hat{E}_R および \hat{E}_L は, それぞれ右円偏光, 左円偏光の複素振幅を表している.

いま, 屈折率 n と消光係数 κ をひとまとめとして複素屈折率 $\hat{N} = n + i\kappa$ を導入する. 右円偏光および左円偏光に対する複素屈折率をそれぞれ \hat{N}_+, \hat{N}_- とすると, 式(4)は次式のように書き換えられる.

$$\begin{aligned} \Phi_F &= i \frac{\exp(i\omega\hat{N}_+l/c) - \exp(i\omega\hat{N}_-l/c)}{\exp(i\omega\hat{N}_+l/c) + \exp(i\omega\hat{N}_-l/c)} \\ &\approx -\frac{\omega(\hat{N}_+ - \hat{N}_-)l}{2c} = -\frac{\pi\Delta\hat{N}l}{\lambda} \end{aligned} \quad (5)$$

ここに $\Delta\hat{N} = \hat{N}_+ - \hat{N}_-$ である. このことから, 物質中での光の複素屈折率が左右円偏光に対して異なっていれば, 旋光性や磁気円二色性が生じることがわかる.

1.2 磁気光学効果と誘電率テンソル

左右円偏光に対する位相および振幅の変化は, 媒質の誘電率をテンソルとして扱い, 磁化に比例する非対角成分の存在を仮定し, マクスウェルの方程式を解くことによって, 説明することができる.

$$\text{rot rot} E(\omega) + \frac{\bar{\epsilon}(\omega)}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(\omega) = 0 \quad (6)$$

ここに $\bar{\epsilon}(\omega)$ は媒体の誘電率テンソルで, z 方向に磁化された等方性物質については下記の形に書ける.

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

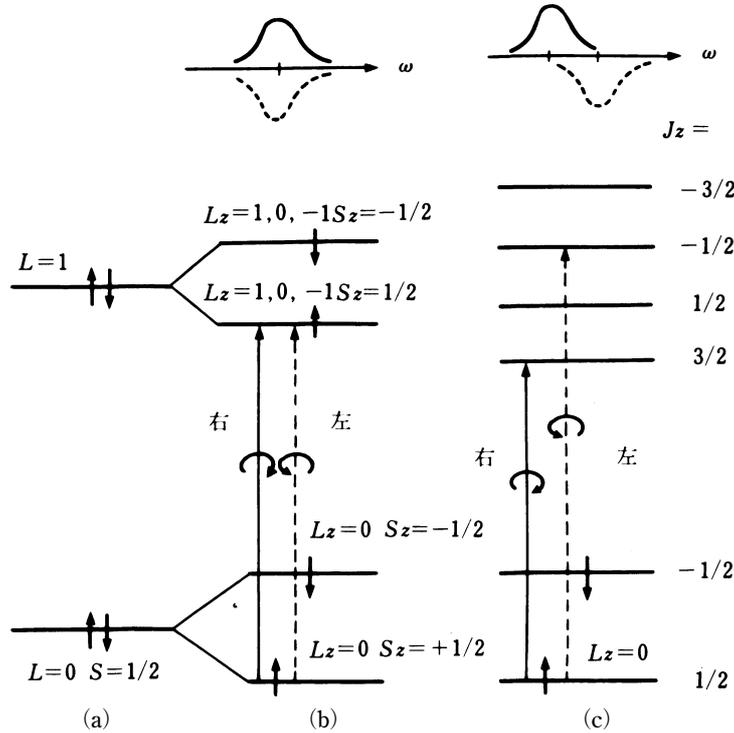


図2 交換分裂とスピン軌道相互作用を考慮した電子状態と円偏光選択性. (a) 分裂なし, (b) 交換分裂あり, (c) スピン軌道相互作用あり.

対角成分は、磁化 \mathbf{M} について展開したとき偶数次のみが残り、非対角成分は磁化 \mathbf{M} について奇数次のみが寄与する。 z 方向に進む光についての複素屈折率 \hat{N} の固有値は

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

のように表される。正負の符号は、それぞれ右回りおよび左回りの円偏光に対応している。もし誘電率テンソルの非対角成分がなければ、式 (3) は左右円偏光に対して同じ光学定数を与え、したがって磁気光学効果は起きない。

ファラデー回転角を実数部とし、ファラデー楕円率を虚数部とする複素ファラデー回転 Φ_F は、誘電率テンソルの要素を用いて

$$\Phi_F = -\frac{\pi\Delta N\ell}{\lambda} = -\frac{i\pi\ell}{\lambda} \cdot \frac{\epsilon_{xy}}{\sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad (9)$$

のように書くことができる。一方、極カー効果については、次式のように書き表される。

$$\Phi_K \approx \frac{\epsilon_{xy}}{(1-\epsilon_{xx})\sqrt{\epsilon_{xx}}} \quad (10)$$

式 (9), (10) からわかるように、磁気光学効果は媒体の誘電率の非対角成分だけでなく、対角成分にも関係していることがわかる。したがって、多層化などによって実効的に誘電率を変えることができれば、磁気光学効果を大きく変化させることができる。特に、極カー効果の式 (10) の分母に $1-\epsilon_{xx}$ を含むことから、プラズマ共鳴によるカー

効果の増強が説明される。

1.3 磁気光学効果の電子論

磁気光学効果をもたらす誘電率テンソルの非対角成分は、量子力学によれば式 (11) のように物質の電子構造に結びつけられる。

$$\epsilon_{xy} = -\frac{iNe^2}{2m\epsilon_0} \sum_{n<m} (\rho_n - \rho_m) \frac{\omega_{nm}\{(f_+)_{nm} - (f_-)_{nm}\}}{\omega\{\omega_{nm}^2 - (\omega + i\gamma)\}} \quad (11)$$

ここに、 $(f_+)_{nm}$ および $(f_-)_{nm}$ は、それぞれ右回り円偏光および左回り円偏光に対する状態 $|n\rangle$ と状態 $|m\rangle$ の間の電気双極子遷移の振動子強度を表している。また ω_{nm} は両状態のエネルギー差である。

いま、図2 (a) のような単純なエネルギー準位図を考える。磁化の存在のもとでは、交換分裂によって図2 (b) のように基底状態、励起状態のスピン分裂が生じるが、電気分極の起源として電気双極子を考える限り、これだけでは磁気光学効果に結びつかない。スピン軌道相互作用が存在すると、図2 (c) に示すようにスピンの分裂が軌道の分裂に結びつき、左右円偏光に対する遷移の差が生じる。このような場合の誘電率の非対角成分の実数部 ϵ'_{xy} と虚数部 ϵ''_{xy} のスペクトルは、図3 に示すような形状を示す。

このときの誘電率テンソルの非対角成分の虚数部のピーク値は、

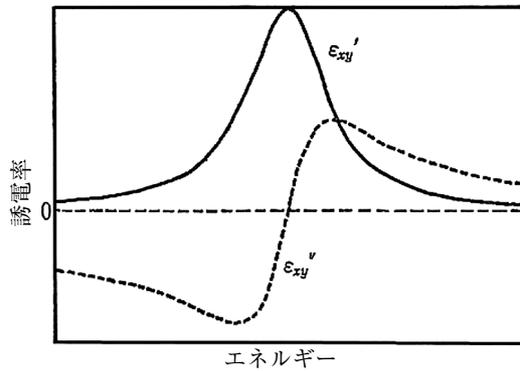


図3 二遷移型磁気光学スペクトル.

$$\varepsilon'_{xy}|_{\text{peak}} = \frac{Ne^2 f \Delta}{4m\varepsilon_0 \omega \gamma^2} \quad (12)$$

と表され、振動子強度 f が高く、スピン軌道相互作用 Δ が大きいとき、磁気光学効果が大きな値をとることがわかる。

2. 非線形磁気光学効果²⁾

これまで述べた磁気光学効果は、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高調波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。主として高調波のうち第二高調波発生 (SHG) についての研究が進められている。

波動方程式は、表面に非線形分極 $P^{(2)}(2\omega)$ が存在してこれがソース項として働くと考えて、式 (6) を拡張して、次式のように表すことができる。

$$\text{rot rot } E(2\omega) + \frac{\bar{\varepsilon}}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} E(2\omega) = -\frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P^{(2)}(2\omega) \quad (13)$$

ここに $P^{(2)}(2\omega)$ は入射光の電場 $E(\omega)$ 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

$$P_i^{(2)}(2\omega) = \chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega) E_j^{(1)}(\omega) \cdot E_k^{(1)}(\omega) \quad (14)$$

のように表される。 $E_j^{(1)}, E_k^{(1)}$ は一次光の電界の j, k 成分、 $\chi_{ijk}^{(2)}(2\omega; \omega, \omega)$ は二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、三階のテンソルはゼロとなるため、 $P^{(2)}(2\omega)$ は存在しないので SHG は起きない。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³⁾。つまり、非線形分極は界面にのみ形成される。

いま、図4の配置を考える。P偏光の一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から傾いてS成分をもつが、磁化の向きを変えると偏光方向は

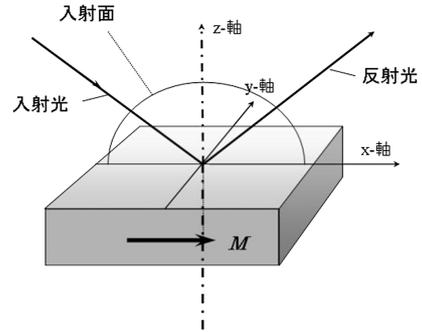


図4 縦カー配置.

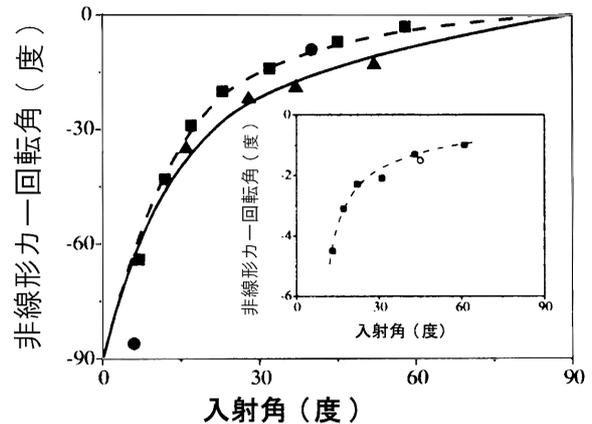


図5 S偏光入力の際のFeの非線形磁気カー一回転角の入射角依存性。▲: Fe/Cr, ●: Fe/Au, ■: キャップなしFe表面。挿入図はP偏光入力の際の非線形カー一回転角。

P面について対称に向きを変える。S偏光入射の場合も、同様に射出光にはP偏光成分が生じ、磁化反転によりS面に対称に向きを変える。この効果を非線形磁気カー効果 (NOMOKE) という。

複素非線形カー一回転角 $\Psi_K^{(2)}$ を非線形感受率テンソル $\chi^{(2)}$ の成分を使って表すと、

$$\tan \Psi_K^{(2)} = i \left(\frac{\chi^{(2)\text{odd}}}{\chi^{(2)\text{even}}} + \text{高次項} \right) \quad (15)$$

のように表すことができる⁴⁾。ここに $\chi^{(2)\text{even}}$ および $\chi^{(2)\text{odd}}$ は、 $\chi^{(2)\pm} = \chi^{(2)\text{even}} \pm i\chi^{(2)\text{odd}}$ と表したときの実数部と虚数部で、 $\chi^{(2)\text{even}}$ は磁化 \mathbf{M} について偶、後者は \mathbf{M} について奇である。 \mathbf{M} の一次までを考えると、 $\chi^{(2)\text{odd}}$ のみが磁化による影響を受ける。

図5に示すように、非線形カー一回転は入射角を小さくするとともに増大し、90°近くにも達することが報告されている⁵⁾。Feの線形の縦磁気カー一回転はせいぜい0.1°程度であるから、非線形磁気カー一回転角は桁違いに大きい。

線形の場合の磁気カー効果は、式 (10) のように分極率テンソルの非対角成分 $\chi_{xy} = \varepsilon_{xy}$ と対角成分 $\chi_{xx} = 1 - \varepsilon_{xx}$ の

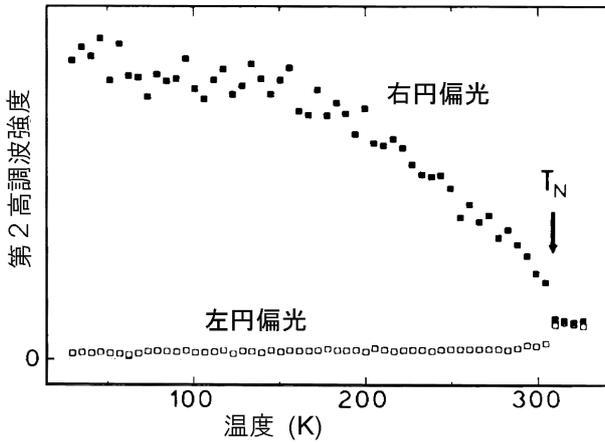


図6 反強磁性体 Cr_2O_3 の第二高調波強度の温度依存性。
 ■：右円偏光，□：左円偏光。

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。これに対し非線形カー回転は、式(15)に示したように $\chi^{(2)\text{odd}}/\chi^{(2)\text{even}}$ という比で与えられ、この項は同程度のテンソル要素同士の比であるため、回転角が大きいと考えられる。もうひとつは、線形のカー回転の式には $1/\sqrt{\epsilon_{xx}}$ の因子がかかることによって $\Psi_K^{(1)}$ を小さくしているのに対し、非線形カー回転の式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(13)のソース項である界面の非線形分極 $P^{(2)}(2\omega)$ から生じていることに原因していると考えられている。

先に述べたように、この効果は中心対称をもつバルクでは弱く、対称性の破れる表面界面で強く現れるので、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、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⁶⁾。

線形磁気光学効果は、反強磁性体では逆方向の磁化成分による磁気光学効果が打ち消しあうため観測されないのに対し、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。図6は、Fiebigらが報告する反強磁性体 Cr_2O_3 のSHG強度の温度依存性である⁷⁾。ネール温度 (T_N) 以下ではSHG強度は左右円偏光に対し異なるが、 T_N 以上では一致する。反強磁性ベクトルの異なる磁区では、左右の応答は逆転する。

反強磁性体の非線形磁気光学スペクトルは、Tanabeらにより磁気点群を考慮した理論によって説明された⁸⁾。

3. 近接場における磁気光学効果

3.1 近接場とは⁹⁾

従来の光学においては、電磁波の伝搬を考えるにあたり、波長より大きなスケールでの物質の光学応答を均質なものとみなし、誘電率という平均的な量を使うので、物質の部分系と光のミクロな電磁相互作用を取り扱わない。物質の光学応答は光の波長のスケールで平均化されたものであり、空間的スケールは波長程度の領域にとどまる。このため、干渉効果をどのように利用しても、波長の数分の1程度以下の空間に収束することができない。これを光波の「回折限界」とよぶ。

これに対して、近接場光はあらゆる相互作用に伴う物質近傍での光の場を含んでおり、空間的なサイズは、着目している物質の空間的な広がり、プローブと物質との距離のみに依存し、観測波長に依存しないので、通常の光学のような空間的細かさの制限(回折限界)はない。ただし、原子スケールに近づくと、電子の波動関数の広がりを観測することとなって、光の場と物質とを切り離すことができなくなる。

波長よりはるかに微小な物質の近傍には、空間周波数の高い電磁場分布があるが、この場はエバネセント場とよばれ、物質から遠ざかると指数関数的に減少してしまう。したがって、2つの微小物体を光波長よりもはるかに短い距離に置くと、それぞれの物体の近傍にある2つの近接場によって物体間に相互作用(エバネセントカップリング)が生じる。一方の物体が光源であり、他方が検出器であれば、物体間での電磁エネルギーの移動が起きる。これは、物体間での光励起のトンネル現象とみることができる。

3.2 近接場の発生と検出

図7に示す全反射光学系において、屈折率 n の大きな媒体2から n の小さな媒体1へと光が入射した場合、入射角が臨界角 θ_c よりも大きいときに媒体1側において界面から垂直方向に指数関数的に急激に減衰する伝搬しない波(エバネセント波)が存在する。この光の場を近接場という。この場の中に物体を置くと、散乱された光は伝搬する波に変換され、観測できるようになる。全反射面にAg薄膜をコーティングすることによって、表面プラズモンとの結合によるエバネセント波の増強が行われるので、波長以下の微小な試料の顕微鏡観察によく利用されている。

3.3 近接場顕微鏡

光ファイバーを用い、その先端にテーパーをつけ微小開口を作ると、エバネセント光ができる。これを模式的に表したのが図8である。エバネセント光の近接場の中に観測したい対象を置くと、光は散乱され、伝搬する波となって

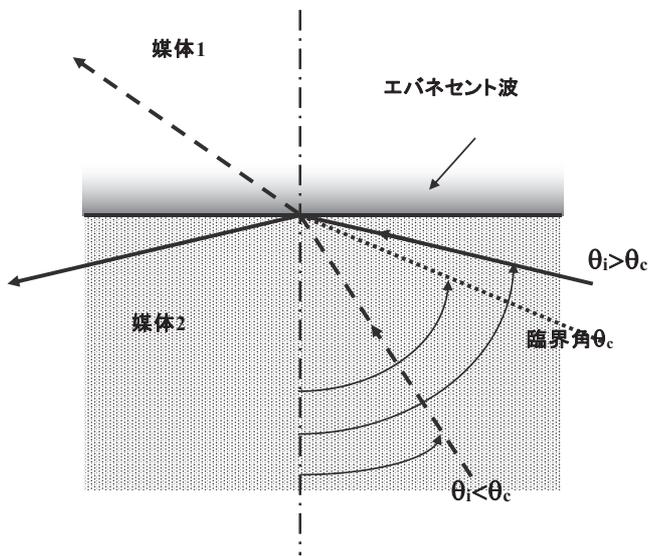


図7 全反射光学系におけるエバネセント波。

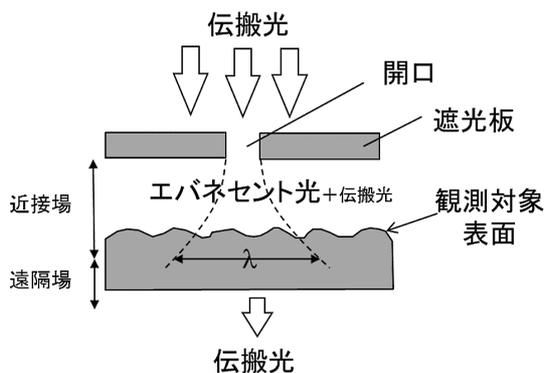


図8 微小開口を用いたエバネセント波の発生。

放射する。この光を検出することによって、光の回折限界を超える微小物体を観測することができる。プローブの位置をSTMなどと同様のマイクロアクチュエーターにより制御することにより画像化する。これが図9 (a)の照射モードの走査型近接場顕微鏡 (SNOM) である。偏光を入射し、磁性体で磁気光学効果を受けるので、検光子を通して観測すれば回折限界以下の領域の磁気光学効果が測定できる。テーパー付きファイバーを全反射光学系と組み合わせ、散乱光検出に用いることもできる。これが図9 (b)の集光モード SNOM である。

Betzig らは、1991 年、光ファイバーをテーパー状に細めたプローブから出る近接場光を用いて回折限界を超えた光磁気記録ができること、および、このプローブを用いて磁気光学効果による読み出しができることを明らかにし、将来の高密度記録方式として近接場光がにわかに注目を浴びることになった¹⁰⁾。同時に Betzig は超微細加工した金属細線リングの偏光像を観察することに成功し¹¹⁾、磁気光

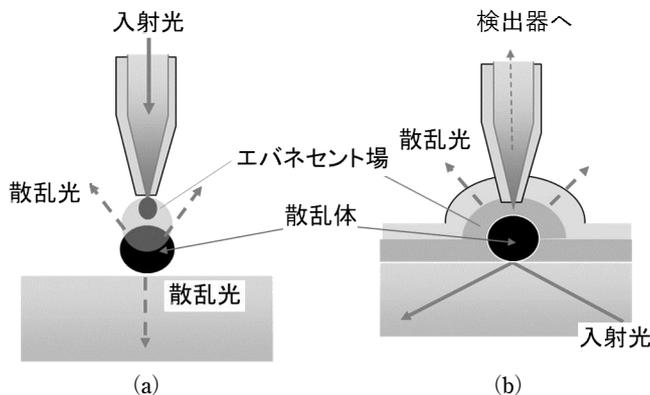


図9 テーパー付き光ファイバーによる近接場顕微鏡。(a) 照射モード、(b) 集光モード。

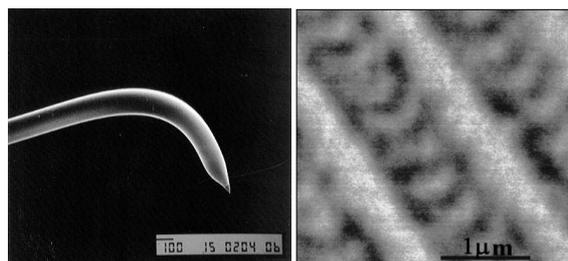


図10 ベントファイバークローブ (左) と、これを用いて観測した光磁気記録パターンのSNOM像 (右)。

学顕微鏡として利用できることを明らかにした。

Betzig 以後も SNOM を微小領域の磁性の観測に用いる試みはいくつかの機関で行われたが、光ファイバーに偏光を通すことの難しさから、あまり報告例がなかった。筆者らは、図10のようなベント型光ファイバークローブを原子間力顕微鏡 (AFM) の探針として用いる照射モードの近接場磁気光学顕微鏡 (MO-SNOM) 技術を開発し、光磁気記録された記録マークを 100 nm の分解能で観察することに成功した¹²⁾。斎木らは、照射・集光モードを使った SNOM によって YIG の磁区の磁気光学像を観察している¹³⁾。

3.4 熱アシスト磁気記録用の近接場光源

1 Tb/in² を超える高密度磁気記録においては、磁化の熱ゆらぎによる減磁が記録密度の限界を決めるといわれる。この問題を克服するため磁気異方性の大きな垂直磁気材料を用いると、磁気ヘッドからの磁界のみでは磁化反転が困難になる。そこで、近接場光による加熱で保磁力を下げた磁気記録をする熱援用記録 (HAMR) が研究されている。

近接場発生方法として、金属で光学素子を覆い、その金属に波長よりかなり小さな開口を設ける方法により微小光スポットが得られる。微細孔は金属を FIB 加工することによって得られる¹⁴⁾。この方法により得られる光のスポットでは、エネルギー密度を大きくできないという問題点があ

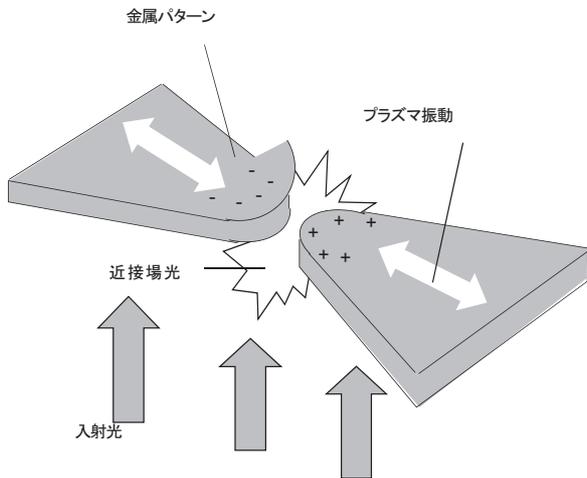


図 11 ボウタイアンテナ.

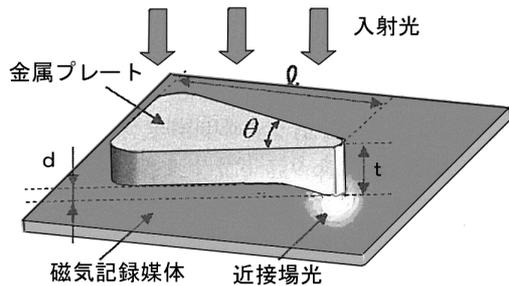


図 12 ナノビークアンテナ.

る。これを解決し、強いエネルギーの微小な光スポットを得る方法が、プラズモンによるエンハンスメントである。Ebbesenらは、微小開口の周りに同心円状に配置した金属リングによりプラズモンエンハンスメントで入射光より強い光が透過することを示した¹⁵⁾。半導体レーザー自体に金属マスクをつけ、微細開口を開ける試みも行われている¹⁶⁾。

近接場光のエネルギー密度を増強するもうひとつの方法が、Groberらによって提唱されたボウタイ(蝶ネクタイ)型アンテナによる電磁場の集中である¹⁷⁾。Groberらは、マイクロ波周波数に対し図11に示すようなボウタイアンテナの中心部に電界の集中が起きることを検証し、光の周波数に対しても使用できると提案した。松本らは、電磁界計算を行い、ボウタイアンテナのギャップ程度の領域に光強度が集中していることを明らかにしている¹⁸⁾。この発展形として、図12に示すようなナノビークアンテナが提案されている¹⁹⁾。これは、ボウタイの半分を使い、先端をくちばし状にとがらせたものである。

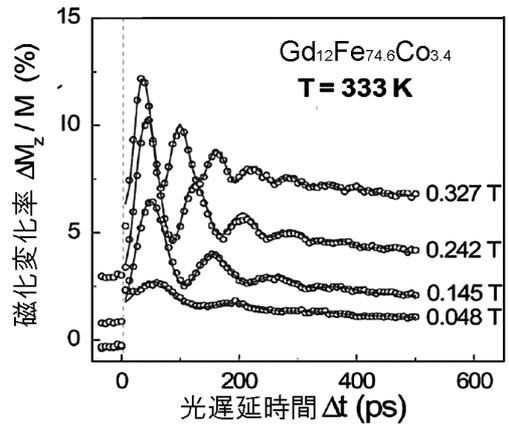


図 13 GdFeCo 薄膜におけるフェムト秒パルス照射後の磁化の z 成分の時間変化.

4. 光と磁気の極短時間ダイナミクス

4.1 ポンプ・プローブ法による超高速磁化ダイナミクス測定

磁化の超高速時間応答計測には、「ポンプ・プローブ法」が用いられる。高強度超短パルス光照射によって、磁化あるいは磁気異方性を超短時間の間に変化させ、磁性体中に歳差運動を励起する。歳差運動のダイナミクスは、ファラデー効果を用いてフェムト秒時間分解能で測定する。光源には、モードロックチタンサファイヤレーザーと再生光学増幅器を用いる。レーザー光は、歳差運動の励起に用いる高強度ポンプ・パルス光と、続く磁化応答計測に用いる強度比約 1/100 のプローブ・パルス光に分ける。ポンプ光を照射してからプローブ光により磁化状態を測定するまでの遅延時間を徐々に変え、測定を繰り返すことにより極短時間磁化応答の実時間計測が可能となる。

ポンプ光スポットサイズに比べスポットサイズの小さなプローブ光を用いることによって、一様に励起された領域の観察を行う。ファラデー回転角は、試料を通過したプローブ光に対し差動ダイオード検出法を用いて測定する。

一例として、図13に Stanciu らが報告するアモルファス GdFeCo 薄膜の光励起後の磁化の面直成分の時間変化を示す²⁰⁾。試料には、外部磁界 H_{ext} を膜面法線より 60° の方向に印加しておく。ポンプ光照射(幅 100 fs)による急速加熱により、はじめに磁化の減少に伴う形状磁気異方性 H_a の変化が生じ、次いで磁気異方性 H_s の変化が起き、結果として有効磁界 $H_{\text{eff}} = H_{\text{ext}} + H_a + H_s$ の変化が起きる。この磁界により磁化は、はじめの面直方向から準平衡状態の傾きへと急峻に変化することで歳差運動が励起される。ファラデー効果は磁化に垂直な成分を観察しているため、歳差運動している磁化の面直成分が観測されている。

塚本らは、図14に示すように、磁化補償点付近の組成

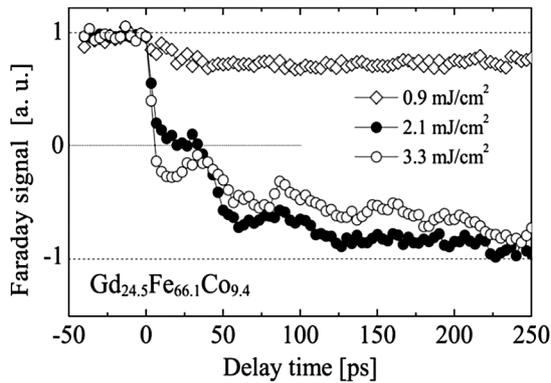


図14 Gd_{24.5}Fe_{66.1}Co_{9.4}における磁化ダイナミクスの励起レーザーパワー依存性.

をもつ Gd_{24.5}Fe_{66.1}Co_{9.4} 膜において、励起パワーを上げることによって 2 ps という超短時間で磁化が反転し、歳差運動をすることを発見した²¹⁾。これは、急速加熱で磁化補償点を超え、角運動量補償点に近づくとダンピングが強まって、急峻にスイッチすることによると解釈されている。

4.2 熱に依らない光誘起高速磁化反転の観測

ファラデー効果は、磁化の存在によって左右円偏光に対する光学応答に位相差が生じることによって起きるが、逆に円偏光を加えることによって、物質に実効的な磁界を誘起することができる。これを「逆ファラデー効果」という。

ファラデー回転を与える式 (9) において、 ΔN を \mathbf{M} で展開すると、近似的に

$$\Phi_F = -\frac{2\pi\ell}{\lambda} \frac{\alpha_F \mathbf{M}}{\epsilon_0} \quad (16)$$

と書ける。ここに α_F は磁気光学感受率である。逆ファラデー効果は α_F を用いて

$$H(0) = \frac{\epsilon_0}{\mu_0} \alpha_F [E(\omega) \times E^*(\omega)] \quad (17)$$

と表される。ここで $E(\omega)$ 、 $E^*(\omega)$ は、それぞれ入射光の電界およびその複素共役である。式 (17) は、円偏光による励起と外部磁場印加が等価であり、左右円偏光によりそれぞれ逆向きの磁化を誘起することを示す。ファラデー効果と逆ファラデー効果は同じ磁気光学感受率 α_F によって決定されるのであるから、ファラデー効果の大きな物質を使えば、光による高速磁化反転が期待される。本効果は、光吸収過程を必要とせず、光による磁化への効果が非熱的に生じるという特徴がある²²⁾。

図 15 は、時間幅 40 fs の円偏光レーザー・パルス光を高速に走査し (約 50 mm/s)、個々のパルス光が試料表面上で異なる位置を照射するようにして同様の実験を行ったときの磁区像である。図に示すように、右円偏光 σ^+ を照射した場合、下向き磁区の領域では磁化反転を生じるが、上

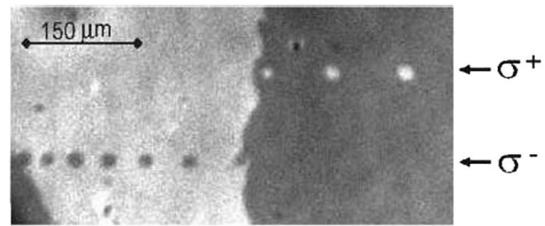


図15 シングルショット円偏光パルス光 (2.9 mJ/cm²) を高速走査 (50 mm/s) したときの磁区像.

向き磁区の領域には影響せず、一方、左円偏光 σ^- の際には逆の関係が観察される。単一レーザー・パルス光が試料と作用している 40 fs の時間に光子の角運動量情報は磁性材料に伝達され、円偏光のヘリシティに対応した光誘起磁化反転が生じることが示された。

5. 放射光を用いた磁気光学効果

5.1 X線磁気円二色性 (XMCD)

シンクロトロン放射光を用いた分光研究の特徴は、内殻に関連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左右円偏光で測定し、その差をとると、磁気円二色性 (XMCD と略称) がみられる。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ブとして用いることができる。X 線吸収端は、内殻からフェルミ準位の上の空いた状態への遷移によって起きる。3d 遷移金属の場合は L 殻 (2p) から 3d 軌道への双極子許容遷移が、4f 希土類の場合は M 殻 (3d) から 4f 軌道への双極子許容遷移が使われる。3d 遷移金属の L₂₃ 吸収および 4f 希土類の M₅₄ 吸収は、いずれも 1500 eV 以下の軟 X 線領域に現れる。XMCD に総和則を適用することによって、スピン磁気モーメントと軌道磁気モーメントを分離することができる。

図 16 は、Fe(2ML)/Ni(6ML)/Pd 多層膜 (ML = 単原子層) における FE および Ni の L₂₃ 吸収端の円偏光 X 線吸収 (XAS) スペクトル、および左右円偏光の XAS の差分をとった XMCD スペクトルである。これより Fe と Ni のスピン磁気モーメントはそれぞれ 2.588 μ_B 、0.736 μ_B であること、軌道磁気モーメントの垂直成分はそれぞれ 0.343、0.127 であることなどが求められている²³⁾。

5.2 X線磁気円二色性顕微鏡

XMCD を用いた磁気光学顕微鏡が開発されている。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であるコンデンサー・ゾーン・プレート (CZP) 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。図 17 は透過型 X 線顕微鏡で観察

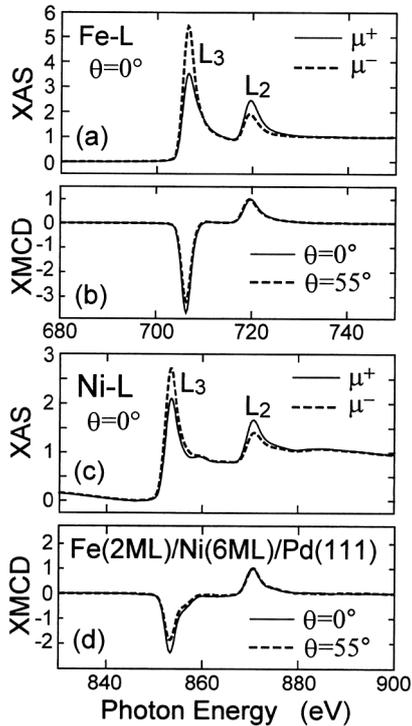


図 16 Fe (2ML) / Ni (6ML) / Pd 膜における原子特定円偏光 XAS および XMCD スペクトル。

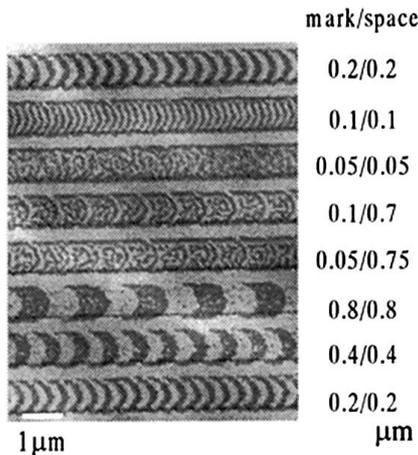


図 17 透過型 X 線顕微鏡で観察した光磁気ディスクの磁区パターン。

した光磁気ディスクの磁区パターンである。25 nm という高分解能が得られている。

5.3 X線自由電子レーザーによる磁化ダイナミクスの観測

X線自由電子レーザー (XFEL) とは、電子をほぼ光速に加速し、アンジュレーターで電子を蛇行させて放射光を発生・増幅し、X線領域の電磁波を発振するレーザーである。これを用いると、光励起後の磁化のダイナミクスを原子を特定して観測することができる。例えば、アモルファス GdFe 薄膜においては、Gd と Fe の磁気モーメントは反強磁性的に結合しているが、パルスレーザー (60 ns, $h\nu =$

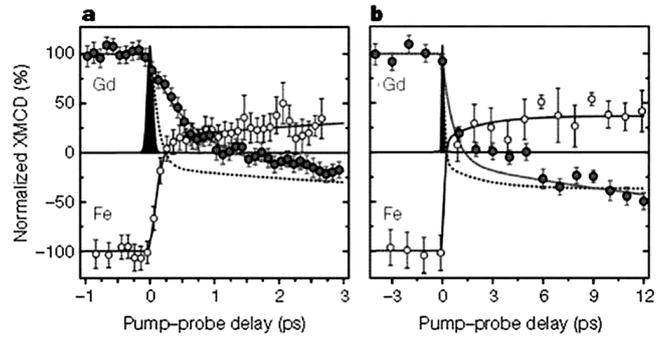


図 18 XFEL を用いて測定した GdFe における原子特定磁化ダイナミクス。

1.55 eV) による急速加熱後の磁化の時間的変化を軟 X 線自由電子レーザー (100 fs) で原子を特定して XMCD 観測したところ、図 18 に示すように Fe 原子と Gd 原子とで時間応答が異なっており、Fe の反転が時定数 100 ± 25 fs で先に起きたのち、Gd の磁化反転が時定数 430 ± 100 fs で起きる。このため、一時的には、Gd と Fe の磁気モーメントが強磁性的に結合しているということが明らかにされた²⁴⁾。

6. ナノスケールの構造がもたらす光と磁気

磁気光学効果の舞台となる物質のサイズがナノスケールになると、どのようなことが起きるであろうか。電磁波の波長よりも十分に小さいサイズの構造をもつ媒質に入射した電磁波は、平均した誘電率と透磁率を感じる。媒質が磁性体 / 貴金属の多層膜または貴金属 / 磁性体 / 貴金属サンドイッチ膜においては、それぞれの層が十分厚ければ、貴金属のバルクプラズモンのために誘電率の対角成分が負から正に変化するとき磁気光学効果がエンハンスされる効果が現れることが、1980 年代に明らかにされた²⁵⁾。その後、原子層オーダーで制御された磁性体の超薄膜を貴金属でサンドイッチした構造において新たな遷移が生じることが見いだされ²⁶⁾、精密な実験によって、この遷移が磁性体層厚に依存することが明らかになった²⁷⁾。さらに、人工格子において組成変調周期を短くしていくと、新たなバンド構造が出現し、特有の磁気光学スペクトルが観測される²⁸⁾。

一方、媒質が貴金属微粒子の分散系、例えば Au 微粒子分散 YIG 薄膜においては、Au 微粒子の表面プラズモンによる磁気光学効果のエンハンスが起きる²⁹⁾。また、Abe らは、玉ねぎ構造微粒子 (ナノオニオン) に関する電磁ポテンシャル問題を quasi-static 近似で解き、ナノオニオンを母体中に分散させた結合媒体の光学的性質と磁気光学効果を与える有効誘電率テンソルの理論式と Maxwell-Garnett 平均場近似法によって導き出した。Fe/Au ナノオニオン分

散媒体では、Au のプラズマ共鳴によって磁気光学効果の特異な分散関係が現れることを計算機シミュレーションで示した³⁰⁾。

誘電率、透磁率ともに負であるような系は「左手系」³¹⁾とよばれ、このような系に電磁波が入射した場合、異常な光の伝搬現象が期待される。自然界にはこのような系は存在しないが、人工的に電磁波の波長より小さい金属と誘電体の複合構造が周期的に配置された物質（メタマテリアル）が、マイクロ波や赤外線領域で左手系の性質を示すことが示されている。自然界には左手系物質は存在しないが、メタマテリアルの概念を用いて構成可能であることが実証されている³²⁾。当初のものはスプリットリング共振器とワイヤ共振器を用いて構成されたが、動作帯域も狭く、損失も大きなものであった。Caloz らは非共振型の左手系メタマテリアルの構成法を提案し、広帯域性・低損失性のゆえ、工学的応用への期待が高まっている³³⁾。Sanada らは、バランス型右手左手複合系伝送線路（CRLH）を用いて、応用上重要な結果を得ている³⁴⁾。

フォトニック結晶は、一次元、二次元、三次元の周期的な変調を誘電率に付与した人工物質である。光の波動に対するバンドギャップが生じるために、特定の波長範囲の光を完全に遮断する。この周期構造を何らかの形で乱すと、半導体の不純物準位に相当する局在状態が生じ、特定波長を透過するようになる。この不純物として磁性体を使うと、磁気光学効果を特定波長でエンハンスできる。これを磁性フォトニック結晶とよんでいる。井上らは、 $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ 誘電体多層膜と Bi 添加 YIG 不純物層からなる一次元フォトニック結晶を作製し、誘電体多層膜フォトニックバンドギャップの中に不純物層による透過帯が現れ、磁気光学効果がエンハンスされることを見いだした³⁵⁾。最近、磁性フォトニック結晶を強誘電体と積層することによって、電界制御で磁気光学効果を変調することに成功している³⁶⁾。

7. おわりに—光と磁気の将来展望—

現在、光と磁気のかかわる現象の舞台は、測定に使われる技術の進展により、空間的にはナノスケールで原子特定、時間的にはフェムト秒、波長領域はテラヘルツから赤外・可視・紫外・極紫外・軟X線・硬X線と広がり、対象も、バルク結晶・薄膜結晶・薄膜アモルファス・多層粒子・微粒子分散系・人工格子・フォトニック結晶・メタマテリアル…と非常に広範囲になっている。磁性現象も、新しい道具立てを用いることによって、強磁性・フェリ磁性だけでなく、反強磁性、さらには、スピン注入された非

磁性体にまで広がってきている。

今後、材料的には、マルチフェロイック材料、トポロジカル絶縁体、有機・分子材料など、これまで対象になっていなかった領域にも広がっていくものと考えられ、空間的には微細なものだけでなく、宇宙スケールにおける光磁気現象にまで拡大するのではないかと考えている。そこには、今までの物理の道具立てでは扱えない新たな物理が潜んでいるかもしれない。

文 献

- 1) 佐藤勝昭：光と磁気，改訂版（朝倉書店，2001）。
- 2) 佐藤勝昭：“第6章 金属人工格子の非線形磁気光学”，新しい磁気と光の科学（講談社サイエンティフィク，2001）。
- 3) Y. R. Shen: *The Principles of Nonlinear Optics* (John Wiley & Sons, New York, 1984)。
- 4) U. Pustogowa, W. Hübner and K. H. Bennemann: “Enhancement of the magneto-optical Kerr angle in nonlinear optical response,” *Phys. Rev. B*, **49** (1994) 10031-10034。
- 5) Th. Rasing, M. Groot Koerkamp and B. Koopmans: “Giant nonlinear magneto-optical Kerr effects from Fe interfaces,” *J. Appl. Phys.*, **79** (1996) 6181-6185。
- 6) Th. Rasing: “Nonlinear magneto-optical studies of ultra-thin films and multilayers,” *Nonlinear Optics at Metallic Interfaces*, ed. K. H. Bennemann (Oxford University Press, Oxford, 1997)。
- 7) M. Fiebig, D. Fröhrich, G. Sluyterman and R. V. Pisarev: “Domain topography of antiferromagnetic Cr_2O_3 by second-harmonic generation,” *Appl. Phys. Lett.*, **66** (1995) 2906-2908。
- 8) Y. Tanabe, M. Fiebig and E. Hanamura: *Magneto-Optics*, eds. S. Sugano and N. Kojima (Springer, Berlin, 1999) Chap. 4, p. 107。
- 9) 堀 裕和, 井上哲也: ナノスケールの光学—ナノ光科学の電磁気的基礎—（オーム社，2006）。
- 10) E. Betzig, J. K. Trautman, R. Wolfe, E. M. Gyorgy, P. L. Finn, M. H. Kryder and C.-H. Chang: “Near-field magneto-optics and high density data storage,” *Appl. Phys. Lett.*, **61** (1992) 142-144。
- 11) E. Betzig, J. K. Trautman, J. S. Weiner, T. D. Harris and R. Wolfe: “Polarization contrast in near-field scanning optical microscopy,” *Appl. Opt.*, **31** (1992) 4563-4568。
- 12) 佐藤勝昭：“近接場磁気光学顕微鏡（MO-SNOM）の開発”，固体物理，**34** (1999) 681-689。
- 13) 齋木敏治, 戸田泰則：ナノスケールの光学—ナノ光科学の電磁気的基礎—（オーム社，2006） p. 128。
- 14) T. E. Schlesinger, T. Rausch, A. Itagi, J. Zhu, J. A. Bain and D. D. Stancil: “An integrated read/write head for hybrid recording,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, **41** (2002) 1821-1824。
- 15) T. W. Ebbesen, H. J. Lezec, H. F. Ghaemi, T. Thio and P. A. Wolff: “Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays,” *Nature*, **391** (1998) 667-669。
- 16) A. Partovi, D. Peale, M. Wuttig, C. A. Murray, G. Zydzik, L. Hopkins, K. Baldwin, W. S. Hobson, J. Wynn, J. Lopata, L. Dhar, R. Chichester and J. H.-J. Yeh: “High-power laser light source for near-field optics and its application to high-density optical data storage,” *Appl. Phys. Lett.*, **75** (1999) 1515-1517。
- 17) R. D. Grober, R. J. Schoelkopf and D. E. Prober: “Optical antenna: Towards a unity efficiency near-field optical probe,” *Appl. Phys. Lett.*, **70** (1997) 1354-1356。
- 18) T. Matsumoto, T. Shimano and S. Hosaka: “An efficient probe with a planar metallic pattern for high-density near field optical memory,” *Technical Digest of 6th Int. Conf. Near Field Optics and Related Techniques* (Netherlands, 2000) p. 55。

- 19) 松本拓也, 中村公夫, 西田哲也, 稗田泰之, 喜々津哲, 内藤勝之, 神田哲典: “近接場光ヘッドによるパターン磁気媒体への熱アシスト記録”, 日本磁気学会第 158 回研究会資料 (2008) pp. 1-5.
- 20) C. D. Stanciu, F. Hansteen, A. V. Kimel, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk and Th. Rasing: “Ultrafast spin dynamics across compensation points in ferrimagnetic GdFeCo: The role of angular momentum compensation,” *Phys. Rev. B*, **73** (2006) 220402(R).
- 21) A. Tsukamoto, T. Sato, S. Toriumi and A. Itoh: “Precessional switching by ultrashort pulse laser: Beyond room temperature ferromagnetic resonance limit,” *Appl. Phys.*, **109** (2011) 07D302.
- 22) V. Kimel, A. Kirilyuk, P. A. Usachev, R. V. Pisarev, A. M. Balbashov and Th. Rasing: “Ultrafast non-thermal control of magnetization by instantaneous photomagnetic pulses,” *Nature (London)*, **435** (2005) 655-657.
- 23) I. Yamamoto, T. Nakagawa, Y. Takagi and T. Yokoyama: “Spin reorientation transitions of Ni/Pd (111) films induced by Fe deposition,” *Phys. Rev. B*, **81** (2010) 214442.
- 24) I. Radu, K. Vahaplar, C. Stamm, T. Kachel, N. Pontius, H. A. Dürr, T. A. Ostler, J. Barker, R. F. L. Evans, R. W. Chantrell, A. Tsukamoto, A. Itoh, A. Kirilyuk, Th. Rasing and A. V. Kimel: “Transient ferromagnetic-like state mediating ultrafast reversal of antiferromagnetically coupled spins,” *Nature*, **472** (2011) 205-208.
- 25) K. Sato, H. Kida and T. Katayama: “Interpretation of magneto-optical and reflectivity spectra in compositionally modulated multilayered Fe/Cu films,” *Jpn. J. Appl. Phys.*, **27** (1988) L237-L239.
- 26) Y. Suzuki, T. Katayama, S. Yoshida, K. Tanaka and K. Sato: “New magneto-optical transition in ultrathin Fe (100) films,” *Phys. Rev. Lett.*, **68** (1992) 3355-3358.
- 27) 片山利一, 鈴木義茂, Wim Geerts: “磁性金属超薄膜の量子井戸準位に起因する新しい磁気光学効果”, *応用物理*, **63** (1994) 1261-1265.
- 28) K. Sato, E. Takeda, M. Akita, M. Yamaguchi, K. Takanashi, S. Mitani, H. Fujimori and Y. Suzuki: “Magneto-optical spectra of Fe/Au artificial superlattices modulated by integer and non-integer atomic layers,” *J. Appl. Phys.*, **86** (1999) 4985-4996.
- 29) S. Tomita, T. Kato, S. Iwata, S. Tsunashima, M. Fujii and S. Hayashi: “Magneto-optical Kerr effects of yttrium-iron garnet thin films incorporating gold nanoparticles,” *Phys. Rev. Lett.*, **96** (2006) 167402.
- 30) M. Abe and T. Suwa: “Magneto-optical enhancement by surface plasmon resonance in magnetic “nano-onions” with multicore-shell structures,” *J. Appl. Phys.*, **97** (2005) 10M514.
- 31) V. G. Veselago: “The electrodynamics of substances with simultaneously negative values of ϵ and μ ,” *Sov. Phys.-Usp.*, **10** (1968) 509-514.
- 32) D. R. Smith, W. J. Padilla, D. C. Vier, S. C. Nemat-Nasser and S. Schultz: “Composite medium with simultaneously negative permeability and permittivity,” *Phys. Rev. Lett.*, **84** (2000) 4184-4187.
- 33) C. Caloz and T. Itoh: “Application of the transmission line theory of left-handed (LH) materials to the realization of a microstrip LH transmission line,” *IEEE-APS Int'l Symp. Digest, Vol. 2* (2002) pp. 412-415.
- 34) A. Sanada, C. Caloz and T. Itoh: “Characteristics of the composite right/left-handed transmission lines,” *IEEE Microwave and Wireless Component Lett.*, **14** (2004) 68-70.
- 35) M. Inoue, R. Fujikawa, A. Baryshev, A. Khanikaev, P. B. Lim, H. Uchida, O. Aktsipetrov, A. Fedyanin, T. Murzina and A. Granovsky: “Magnetophotonic crystals,” *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **39** (2006) R151.
- 36) T. Goto, H. Sato, H. Takagi, A. V. Baryshev and M. Inoue: “Novel magnetophotonic crystals controlled by the electro-optic effect for non-reciprocal high-speed modulators,” *J. Appl. Phys.*, **109** (2011) 07B756.

(2012 年 8 月 8 日受理)