

4.4.1 ファラデー効果とカー効果の測定

1.8.1節に述べたように、ファラデー効果は透過光に対する磁気光学効果、磁気光学カー効果は反射光に対する磁気光学効果である。両者は、透過か反射かが違うだけで、直線偏光を入射したとき、透過光または反射光（一般には楕円偏光になっている）の主軸の回転角と楕円率角を測定する点はいずれもおなじである。

a. 回転角のみの評価法

(1) クロスニコル法

最も簡単に磁気光学効果の回転角を評価する方法はクロスニコル法と呼ばれる方法である。すなわち、図1(a)に示すように偏光子と検光子を直交させておき、この

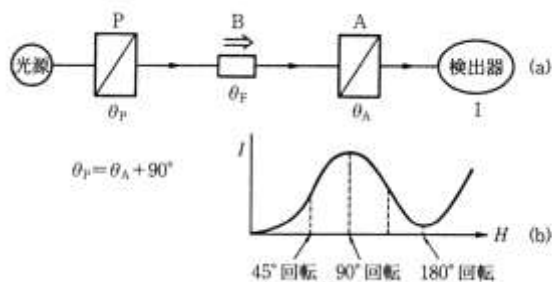


図1 クロスニコル法

間に試料をおき、光の進行方向に磁化する。光検出器に現れる出力 I は、ファラデー回転を θ_F として、

$$I = I_0 \cos^2(\theta_P + \theta_F - \theta_A) \quad (1)$$

と表される。ここに θ_P , θ_A はそれぞれ偏光子と検光子の透過方向の角度を表している。直交条件では、 $\theta_P - \theta_A = \pi/2$ となるので、この式は

$$I = I_0 \sin^2 \theta_F = (I_0/2)(1 - \cos 2\theta_F) \quad (2)$$

となる。 θ_F が磁界 H に比例するとき、 I を H に対してプロットすると図1(b)のようになる。 θ_F が 180° の整数倍のとき I は 0 になるはずであるが、実際には、楕円偏光性のために図のように右上がりの曲線となる。この方法は手軽であるが、回転角を精度よく評価する目的には適していない。このため以下に述べるようなさまざまな変調法が考案されている。

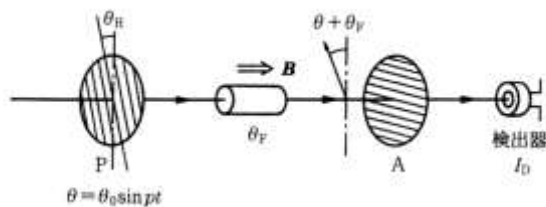


図2 振動偏光子法

(2) 振動偏光子法

図2のように偏光子と検光子を直交させておき、偏光子を図のように

$$\theta = \theta_0 \sin pt \quad (3)$$

で表される小さな角度 θ_0 の振幅で角周波数 p で振動させると、信号出力 I_D は、

$$\begin{aligned}
I_D &\propto I_0 \sin^2(\theta + \theta_F) = (I_0/2)\{1 - \cos 2(\theta + \theta_F)\} \\
&= I_0 \{1 - J_0(2\theta_0) \cos 2\theta_F\} / 2 \\
&\quad - I_0 J_2(2\theta_0) \cos 2\theta_F \cdot \cos 2pt \\
&\quad - I_0 J_1(2\theta_0) \sin 2\theta_F \cdot \sin pt
\end{aligned} \tag{4}$$

となる．ここに， $J_n(x)$ は n 次のベッセル関数である． θ_F が小さければ，角周波数 p の成分が光強度 I_0 および θ_F に比例し，角周波数 $2p$ の成分はほぼ光強度 I_0 に比例するので，この比をとれば θ_F を測定できる．

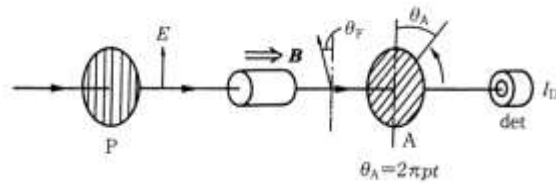


図3 回転検光子法

(3) 回転検光子法

図3に示すように，検光子が角周波数 p で回転するならば， $\theta_A = pt$ と書けるので，検出器出力 I_D は，

$$\begin{aligned}
I_D &= I_0 \cos^2(\theta_F - \theta_A) \\
&= (I_0/2)\{1 + \cos 2(\theta_F - pt)\}
\end{aligned} \tag{5}$$

と表されるので，角周波数 $2p$ の成分の位相のズレを位相検出形のロックインアンプによって測定すれば， θ_F が求められる．フーリエ変換によって位相を求めることもできる．

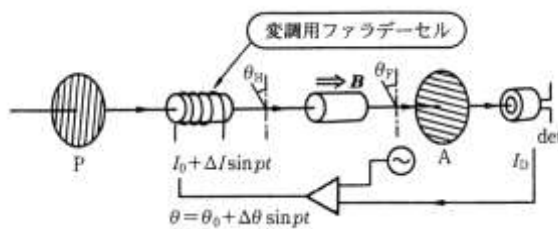


図4 ファラデーセル法

(4) ファラデーセル法

図4に示すように，ファラデーセルを用い直線偏光に

$$\theta = \theta_0 + \Delta\theta \sin pt$$

だけの回転を与える．ここに， θ_0 は直流成分， $\Delta\theta$ は角周波数 p の交流成分の振幅である．

このとき検出器出力 I_D は，

$$\begin{aligned}
I_D &= I_0 \sin^2(\theta_0 - \theta_F + \Delta\theta \sin pt) \\
&= (I_0/2)\{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F + \Delta\theta \sin pt)\} \\
&= (I_0/2)\{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F) \cos(2\Delta\theta \sin pt) + \sin 2(\theta_0 - \theta_F) \sin(2\Delta\theta \sin pt)\} \quad (6) \\
&\approx (I_0/2)\{1 - \cos 2(\theta_0 - \theta_F) J_0(2\Delta\theta)\} \\
&\quad + I_0 \sin 2(\theta_0 - \theta_F) J_1(2\Delta\theta) \sin pt \\
&\quad - I_0 \cos 2(\theta_0 - \theta_F) J_2(2\Delta\theta) \cos 2pt
\end{aligned}$$

となって、 p 成分の強度は $\sin(\theta_0 - \theta_F)$ に比例する。もし、この信号を0にするように $(\theta_0 = \theta_F)$ となるように) ファラデーセルに流す電流の直流成分にフィードバックすると、この直流成分は回転角に比例する。この方法は、零点法なので精度の高い測定ができるという利点をもつが、コイルに流す直流電流による発熱によって、変調振幅がドリフトすること、試料に加える磁界をファラデーセルが感ずること、ヴェルデ定数の波長依存性のため、スペクトルの測定がむずかしいことなどの欠点もある。

b. 楕円率の評価法

(a)に記した方法で楕円率を評価するためには、4分の一波長板 ($\lambda/4$ 板と略称) を用いて楕円率角を回転に変換して測定する。以下にはその原理について述べる。図5に示すように楕円率角 η (rad)の楕円偏光が入射したとすると、その電気ベクトルは $\vec{E} = E_0(\cos\eta\vec{i} + i\sin\eta\vec{j})$ で表される。

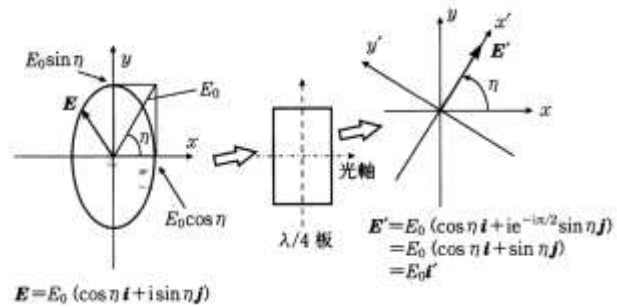


図5 4分の1波長板を用いた楕円率の測定

(\vec{i}, \vec{j} はそれぞれ x, y 方向の単位ベクトル) x 方向に光軸をもつ $\lambda/4$ 板を通すと、 y 方向の位相は 90° 遅れるので、出射光の電界は

$$\vec{E}' = E_0(\cos\eta\vec{i} + i\exp(-i\pi/2)\sin\eta\vec{j}) = E_0(\cos\eta\vec{i} + \sin\eta\vec{j}) \quad (7)$$

となるが、これは、 x 軸から η (rad)傾いた直線偏光を表している。従って、入射楕円偏光の長軸の方向に $\lambda/4$ 板の光軸をあわせれば、(a)に述べたいずれかの回転角を測定する方法で楕円率角を測定できる。 $\lambda/4$ 板は、通常結晶の屈折率の異方性を用いているので、原則として波長ごとに変える必要であるが、最近では、屈折率の分散を利用したアクロマティックな (波長に依存しない) $\lambda/4$ 板も市販されている。

広い波長範囲で楕円率を測定するには、バビネソレイユ板とよばれる光学素子がある。これはくさび形の複屈折素子を2個使って、光路長をネジマイクロメータで調整すること

によって、位相差の調整ができるようになっていたので、波長にあわせて、順次マイクロメータを調整すれば、広い波長範囲を追跡できる。

しかし、楕円率を評価するのに最も適しているのは下記の方法である。

c. 光学遅延変調法：回転角，楕円率角の同時測定^{4,5)}

図6のように偏光子のすぐ後にピエゾ光学変調器（商品名PEM＝光弾性変調器）をおき、光学遅延（リターデーション）を変調する。偏光子の偏光角はPEMの光学軸と45°になるように、また、検光子の角度は光学軸と平行になるようにセットする。変調器による光学遅延 δ が

$$\delta = \delta_0 \sin pt$$

となるならば、光検出器の出力 I_D は

$$\begin{aligned} I_D &= (I_0/2) \{1 + 2\eta_K \sin(\delta_0 \sin pt) - \sin 2\theta_K \cos(\delta_0 \sin pt)\} \\ &\approx (I_0/2) \{1 - 2\theta_K J_0(\delta_0)\} + I_0 \cdot 2\eta_K J_1(\delta_0) \sin pt - I_0 \cdot 2\theta_K J_2(\delta_0) \cos 2pt \end{aligned} \quad (8)$$

となり、 p 成分が楕円率に、 $2p$ 成分が回転角に比例する。変調器による複屈折の変調振幅を Δn とすると、 $\delta_0 = 2\pi \Delta n \ell / \lambda$ であるから、もし Δn が一定であれば、 δ_0 は波長依存性を持ち、従って、上式の $J_1(\delta_0)$ 、 $J_2(\delta_0)$ は波長依存性を持ってしまう。しかし、PEMでは、複屈折の変調振幅 Δn を外部から電圧制御できるので、 $0.2\mu\text{m}$ から $2\mu\text{m}$ の広範囲にわたって、リターデーションの変調振幅 δ_0 を一定に保つことができる。

この方法は、1つのセッティングによって回転角と楕円率の両者のスペクトルを広い波長範囲で測定できるので便利な方法である。

d. ファラデー効果と電磁石

ファラデー効果を測定するには、磁界と光の進行方向が平行になるよう配置する。これをファラデー配置という。磁束密度が数十mT以下の弱い磁界であれば空心ソレノイドを用いることができるが、100 mT~2 Tの磁界を必要とする場合、磁極を貫通する孔をもった鉄心の電磁石を用いる。さらに強い磁界(1~10 T)が必要なときには超伝導電磁石を用いる。数十 Tの強磁界についてはパルス電磁石が用いられる。

e. 磁気光学カー効果の光学素子の配置について

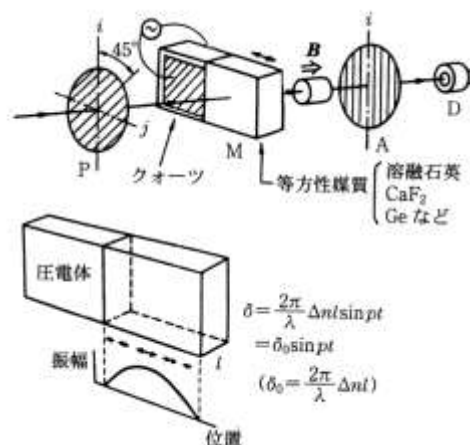


図6 光学遅延変調法

(1) 極カー効果

極カー効果は垂直入射の反射についての磁気光学効果である。この測定のための最も簡便な方法は、図

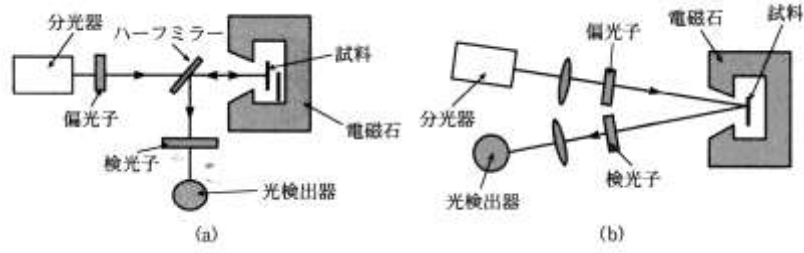


図 7 極カー効果測定配置図

7(a)に示すように

ハーフミラーを用いる方法である。この方法は、入射光と反射光が同一軸上にあるので、磁極にあける孔は小さくてすむという利点をもつ。しかし、ハーフミラーを使って光を曲げるため、使用波長領域に制限があること、斜め反射されてくる光の偏光性が乱れるため、限られた波長領域でしか用いることができないなどの欠点がある。Crの蒸着ミラーを用いた場合、回転角の誤差を5%以内に抑えるには、波長範囲を400-800 nmに限らなければならない。He-Neレーザの波長では、ハーフミラー使用することによる誤差は1%以下である。

広い波長範囲にわたってカー効果を正確に測定するには、偏光子—変調器—試料—検光子の間の光路には、レンズ、ミラーなどの光学素子は一切挿入しないようにしなければならない。しかし、これを守ろうとすると、どうしても図7(b)に示すように、斜め入射の配置をとる必要がある。このことによる誤差は、斜め入射の場合の極カー効果を表す式、

$$\tan \Phi_K = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} = \frac{\varepsilon_{xy} \cos \varphi_0}{\sqrt{\varepsilon_{xx}} (\cos \varphi_0 + \sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_2) (\cos \varphi_2 - \sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_0)} \quad (9)$$

$$= \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}} \left(1 + \sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_2 / \cos \varphi_0\right) \left(1 - \sqrt{\varepsilon_{xx}} \cos \varphi_0 / \cos \varphi_2\right) \cos \varphi_2}$$

がどの程度垂直入射の式に近いかで評価できる。例として、磁性体の屈折率を2.5とすると、入射角 φ_0 を $6^\circ, 8^\circ, 10^\circ, 12^\circ$ と変えたとき $\cos \varphi_0$ は0.9945, 0.9902, 0.9848, 0.9781, $\cos \varphi_2=0.9991, 0.9984, 0.9976, 0.9965$ となり、 $\cos \varphi_2 / \cos \varphi_0$ はそれぞれ、1.005, 1.008, 1.013, 1.019となりこれを $1+\Delta$ と置くと、上式は

$$\tan \Phi_K \approx \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}} (1 - \varepsilon_{xx} + 2\sqrt{\varepsilon_{xx}} \Delta) \cos \varphi_2} \approx \frac{\varepsilon_{xy}}{\sqrt{\varepsilon_{xx}} (1 - \varepsilon_{xx}) (1 + 2\sqrt{\varepsilon_{xx}} \Delta / (1 - \varepsilon_{xx})) \cos \varphi_2}$$

と書くことができる。誘電率を10としたとき、入射角 φ_0 を $6^\circ, 8^\circ, 10^\circ, 12^\circ$ に対し計算すると、それぞれ0.59%, 0.39%, 0.67%, 0.97%の誤差で垂直入射とみなせることがわかる。実用上入射角 10° 程度ならば1%以下の誤差で垂直入射とみなすことができる。

(2) 縦カー効果

図8には、縦カー効果の測定のための斜め入射磁気光学スペクトル測定用の配置が示されている。縦カー効果は、磁性体が面内磁化を持つ場合に適しているので多くの磁性体薄膜の表面の磁化評価法としてよく用いられる。特に、高真空の成膜装置においてin situで磁化を観察する手段として用いられる。これをSMOKE (surface magneto-optical Kerr effect)と称する。

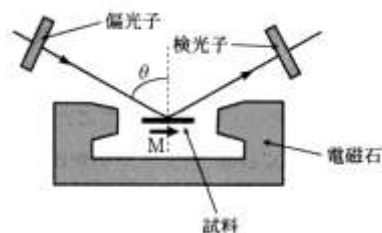


図8 縦カー効果測定系

また、磁気ヘッドなどの磁化の状態を観測するための顕微鏡にも縦カー効果が用いられている。

f. スペクトルの測定

図9に、磁気光学スペクトル測定系の模式図を示す。システムは、光源、分光器、偏光子、電磁石、クライオスタット、検光子、検出器から構成される。

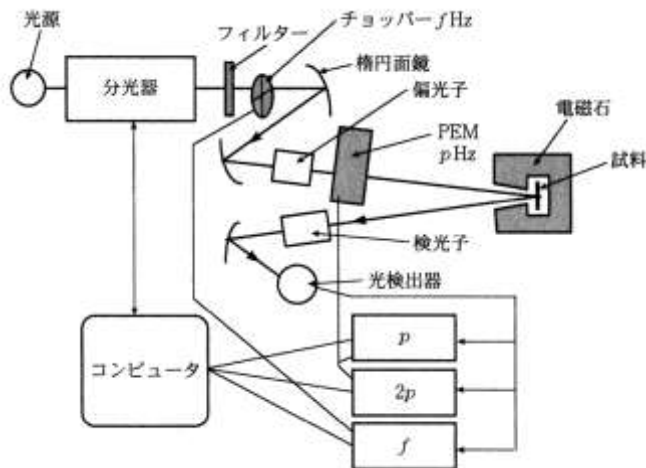


図9 磁気光学スペクトルの測定系模式図

光源としては、可視～赤外領域 (400-2000nm) にはハロゲンランプ、近紫外～可視～近赤外 (200-1000nm) には、

キセノンランプを用いることができる。ハロゲンランプはスペクトル分布が平坦で、かつ、時間的に変動が少ないので分光測定に適しているが、短波長の強度が弱いのが欠点である。キセノンランプは、波長200nmくらいの短波長でも十分な強度がとれるが、赤外部には輝線があるので、細かい測定をする場合、注意が必要である。キセノンランプには紫外光を出さないような窓材が使われているオゾンレスというタイプと広帯域用として売られている熔融石英窓を使ったものがあるので、注意が必要である。200 nmより短波長の測定には重水素ランプが使用される。このランプは大変強度が弱いが、可視光の出力がほとんどないので、キセノンと違って、次に述べるような迷光の心配はない。

分光器は、測定する目的が高分解能を必要とする特殊な場合 (たとえば、不純物として添加された希土類や遷移元素における多重項間の遷移の磁気光学効果) を除いて、分解能

よりも明るさに重点を置いて選ぶ必要がある。焦点距離25cm程度で、fナンバーが3～4のものが望ましい。また、キセノンランプを光源として紫外領域の測定を行う場合、シングルモノクロメータでは迷光の可視光が強いため、誤った測定結果をもたらす心配がある。バンドパスフィルタを注意深く選択するか、ダブルモノクロメータを使用することをお勧めする。また、回折格子のブレイズ波長より短波長側では、回折能率が急落しているので測定に注意が必要である。紫外光の光源に長時間曝されると回折格子、ミラーなどが劣化するので注意が必要である。

集光に用いる光学系は、測定波長範囲が狭いとき（たとえば、可視光領域400-800nm）はレンズで十分である。しかし、近紫外から近赤外におよぶ広い波長範囲（たとえば、200-1000nm）では色収差が大きく、焦点位置のずれは1cm以上に達する。このような場合には楕円面鏡を用いるとよい。楕円面鏡は色収差がなく、像のゆがみも少ないという利点をもつが、高価であることが欠点である。また、きちんと調整しないと十分な性能を発揮しない。また、表面コーティング（通常ふっ化マグネシウム）の厚みを正確に制御しないと、反射率が悪くなることもある。

偏光子の選択は、磁気光学効果の測定においては重要である。ポラロイド板などの二色性偏光子は、安価であること、狭い場所に挿入できることなどの利点があるが、消光比がせいぜい1/100程度なので、精密な測定には不向きである。また、使用できる波長範囲は異方性吸収帯の存在域に限られるためかなり狭い。

高い消光比を得るには、方位の異なるプリズム型の2つの複屈折結晶を貼り合わせた偏光子を用いる。最も、古くから知られているのはニコルプリズムと呼ばれるものであるが、現在はあまり使われない。近紫外～可視～赤外領域(300-2000nm)で最もよく用いられるのは、方解石のグラントムソンプリズムである。この偏光子は、単像（一方の偏光のみ透過）で、視野角も比較的大きいので使いやすい。しかし、均質で大きな方解石の入手が困難なため、口径の大きなものは高価である。

250nmより短波長では、方解石に含まれる不純物のために光が通らない。このため、石英やふっ化マグネシウムを用いたロシヨンプリズムが使用される。この偏光子は複像であり、常光線と異常光線の分離角がかなり小さいため、不要な偏光を取り除くためのスリットなどが必要である。

光検出器は、紫外から近赤外までの範囲で、光電子増倍管(PMT)が用いられる。分光感度特性がなるべく広いものが望ましい。親和力を下げた半導体(GaAs, GaInAsなど)を光陰極として有するPMTが特に広い波長特性をもつ。現在では1.8 μ mの赤外線まで使えるPMTが市販されている。PMTの場合、光陰極と陽極の間にかかる電圧を増減することによつ

て、感度を制御できるので、変調法の測定では、DC成分が一定になるように、フィードバックをかけて用いると、信頼性のある磁気光学信号が得られることが知られている。赤外領域に関しては、半導体のフォトダイオードが用いられるが、PMTに比べ有効なフィードバック方法がないため、光源の明るさを制御するなどの方法が採られることもある。フォトダイオードとしては、Si, Ge, InSb, CdHgTeなどが用いられている。

g. 絶対値の校正について

ファラデーセルのような零位法による測定の場合には、フィードバックして0にするのに必要な電流とファラデーセルの回転角との関係をあらかじめ校正しておく必要がある。

光学遅延変調法の場合、回転角の校正には、試料の代わりに鏡をおき、検光子を 45° 回転して通常と同様に測定し、係数などのパラメータを決定する方法⁴⁾や、検光子をわずかな角度回転したときの信号の変化をあらかじめ調べておき、それとの比較から決めるという方法が用いられる⁵⁾。また、楕円率の校正には、適当な厚みのサファイア板を使う。波長を変えた測定を行った場合、光学遅延が $\pm 90^\circ$ のときに信号が正負のピークをもつことからその包絡線関数を校正に用いることができる⁶⁾。

h. 磁気光学スペクトルから誘電率テンソルの非対角成分を求める方法

本節では、前節の測定によって磁気旋光角 θ と磁気楕円率角 η （または、磁気円二色性）が得られた場合に、誘電率テンソル（または導電率テンソル）の非対角成分のスペクトルを計算する方法について述べる。

巨視的に見た場合、磁気光学効果は誘電率テンソル（または導電率テンソル）の非対角成分に由来するが、1.8.1節の(10)式（ファラデー効果）および(12)式（カー効果）に示すように、複素旋光角 ϕ は誘電率テンソルの非対角成分 ϵ_{xy} だけでなく、対角成分 ϵ_{xx} にも依存する。

従って、誘電率テンソルによる解析のためには、何らかの方法で光学定数 n 、 κ または、誘電率の対角成分 ϵ_{xx} の実数部および虚数部のスペクトルが必要である。

光学定数 n 、 κ のスペクトルを直接求める方法としては、分光エリプソメトリという方法がある。エリプソメトリというのは、斜め入射での反射の際に、p偏光とs偏光が受ける光学的応答の違いを利用して、物質の光学定数を求める方法で、偏光解析とも呼ばれる。ある物質のp偏光に対するフレネル係数を r_p 、s偏光に対するそれを r_s とすると、 $r_p/r_s = \rho \exp i\Delta = \tan \Psi \exp i\Delta$ と書けるが、エリプソメトリ装置で直接測定できるのはこの Ψ と Δ である。入射角がわかるとこれらの値から計算によって光学定数を求めることができる。分光エリプソメトリは、この操作を波長を変えて行うものである。

市販の分光エリプソメータのカバーする領域は800nm(近赤外)~300nm(近紫外)の狭い波長範囲である。これより広い波長範囲で光学定数を求めるためによく用いられるのが反射スペクトルのクラマース・クローニヒ解析から求める方法である。この方法は、測定した反射スペクトル $R(\omega)$ に適当な外挿を行って、クラマース・クローニヒの関係式、

$$\Delta\theta(\omega) = \frac{\omega}{\pi} \oint_0^\infty \frac{\ln R(\omega')}{\omega'^2 - \omega^2} d\omega' \quad (10)$$

を用いて反射の際の位相変化(移相量) $\Delta\theta(\omega)$ を求め、 $R(\omega)$ と $\Delta\theta(\omega)$ から $n(\omega)$, $\kappa(\omega)$ を計算する。実際に測定されるエネルギー範囲は有限であるから、それ以上のエネルギーの範囲については外挿を行う。このパラメータを適当に調節して分光エリプソメータの実験値を再現するようにしている。

$$\begin{aligned} n(\omega) &= \frac{1 - R(\omega)}{1 + R(\omega) + 2\sqrt{R(\omega)} \cos \Delta\theta(\omega)} \\ \kappa(\omega) &= \frac{2\sqrt{R(\omega)} \sin \Delta\theta(\omega)}{1 + R(\omega) + 2\sqrt{R(\omega)} \cos \Delta\theta(\omega)} \end{aligned} \quad (11)$$

このようにして求めた $n(\omega)$, $\kappa(\omega)$ を用いて、磁気旋光角 θ および楕円率角 η から ε_{xy} が次のように計算できる。ファラデー効果の場合、

$$\begin{aligned} \varepsilon'_{xy} &= -\frac{2c}{\omega l} (\kappa\theta_F + n\eta_F) \\ \varepsilon''_{xy} &= \frac{2c}{\omega l} (n\theta_F - \kappa\eta_F) \end{aligned} \quad (12)$$

極カー効果の場合、

$$\begin{aligned} \varepsilon'_{xy} &= n(1 - n^2 + 3\kappa^2)\theta_K - \kappa(1 - 3n^2 + \kappa^2)\eta_K \\ \varepsilon''_{xy} &= \kappa(1 - 3n^2 + \kappa^2)\theta_K + n(1 - n^2 + 3\kappa^2)\eta_K \end{aligned} \quad (13)$$

によって計算できる。

4.4.2 コットンムートン効果の測定

1.8.1で述べたように、コットンムートン効果は、光の進行方向と磁界（磁化）の方向が垂直である場合の磁気光学効果である。この効果は、光学遅延として現れる。

図10は、PEM(光弾性変調器)を用いた磁気複屈折の測定装置である。この測定装置

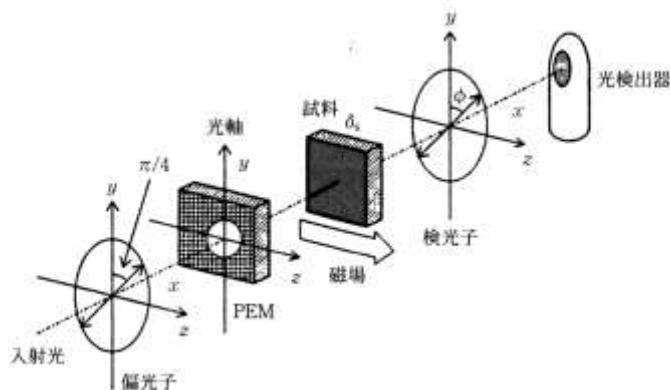


図 10 コットンムートン効果測定系

は基本的には4.4.1(c)に述べた光学遅延変調法によるファラデー効果、磁気光学カー効果の測定法と同じである。偏光子の偏光角はPEMの光学軸と45°になるように配置する。違う点は、ファラデー効果の場合、検光子の角度は光学軸と平行になるようにセットしたのに対し、コットンムートン効果の場合は光学軸と45°の方向にセットすることである。

PEMによる光学遅延 δ が

$$\delta = \delta_0 \sin pt \quad (14)$$

で表されると仮定し、試料による光学遅延を δ_s と仮定するならば、光検出器の出力 I_D は

$$\begin{aligned} I_D &= I_0 \{1 + \cos \delta_s \cos(\delta_0 \sin pt) - \sin \delta_s \sin(\delta_0 \sin pt)\} \\ &\approx I_0 + I_p \sin pt \end{aligned} \quad (15)$$

ここに直流成分 I_0 および交流成分 I_p は

$$\begin{aligned} I_0 &= 1 + J_2(\delta_0) \cos \delta_s \approx 1 + J_2(\delta_0) \\ I_p &= -J_1(\delta_0) \sin \delta_s \approx -J_1(\delta_0) \delta_s \end{aligned} \quad (16)$$

で表される。従って、 p 成分と直流成分の比をとることによって光学遅延 δ_s がえられる。