磁化に斜めに伝搬する光の旋光性 — 理論式と線複屈折の大きい磁性コロイドによる検証 —

Polarization Rotation for Light Propagating Obliquely to the Direction of Magnetization: Theoretical Expression and Experimental Study in Magnetic Colloid with Large Linear Birefringence

藤田真男・似内映之・沼田卓久

和歌山大学システム工学部, 和歌山市栄谷 930 (〒640-8510)

Masao Fujita, Eiji Nitnai and Takuhisa Numata

Faculty of Systems Engineering, Wakayama University, 930 Sakaedani, Wakayama 640-8510

Magneto-optical polarization rotation was studied in materials magnetized in an arbitrary orientation with respect to the light beam propagation direction. The Jones matrix of these media was derived, as was a theoretical expression representing the polarization rotation for the linear polarization incident with an arbitrary azimuth. This theoretical expression was confirmed through an experimental study by using a magnetic colloid which shows a large linear birefringence along with a magnetic circular birefringence. The expression shows that, when the linear birefringence and dichroism are not small enough in relation to the circular birefringence, the polarization rotation is obviously not proportional to the magnetization component parallel to the light beam. Even when the linear birefringence and dichroism are small, the proportionality decreases as the light beam path becomes longer. For the incident linear polarization of the axis parallel or perpendicular to the plane defined by the magnetization and the light beam, this problem is less remarkable.

Key words: magneto-optical polarization rotation, magneto-optical characterization, Faraday effect, Cotton-Mouton effect, magnetic linear birefringence, magnetic linear dichroism, circular birefringence, magnetic colloid

1. はじめに

ファラデー効果は磁化と光進行方向が平行（ファラデー配置）の場合の磁気光学効果であり，入射直線偏光の偏光面は磁化に比例して回転（旋光）する．しかし，磁界印加などにより磁化が回転して光軸と磁化方向とが角度をなすとき，得られる磁気光学効果は平行入射のファラデー効果とは異なる挙動を示し，旋光角は磁化 $\mathbf{M}$ の光進行方向成分 M_z に厳密には比例しなくなる．旋光角 θ が M_z に比例すると仮定して，材料の M_z の変化のようすが磁気光学効果を用いて一般的に測定されている^{1)~2)}．しかし，その材料において磁化が光進行方向に垂直（フォークト配置）の場合の磁気光学効果（コットン・ムートン効果）が

大きい場合には， θ と M_z の比例関係はますます成り立たなくなる．したがって，磁化に対して斜めに進行する光の旋光については特別に検討する必要がある．

ファラデー効果のみならず，いくつかの他の光学効果を同時に加味した研究がなされている．オルソフェライトにおける磁気光学効果が，ファラデー効果と斜方晶結晶構造に起因する複屈折を考慮して求められている³⁾．ガーネットを磁気光学センサとして用いるときの出力の線形性が，ファラデー効果と立方晶結晶におけるコットン・ムートン効果の現れ方を考慮して検討されている⁴⁾．また，光波導波路でのモード変換において複合的な磁気光学効果が取り扱われている⁵⁾．

本研究は，空間の任意の方向に磁化した等方媒質に直線偏光が入射したときの透過光に見られる旋光角の理論式を求め，磁化の光進行方向成分 M_z との関係を検討するものである．媒質が結晶構造に起因する光学異方性をもつときには議論が困難となるため，等方媒質が磁化したときの光学異方性のみを取り上げるものである．

本研究では求められた理論式の検証実験に磁性コロイド溶液を用いた．磁性コロイド溶液中の磁性微粒子は磁界印加により鎖状のクラスタを形成し⁶⁾，その長軸方向を光学軸とする一軸異方性が生じる．したがって，磁界を光進行方向に垂直に印加したときには，クラスタの形状に起因する線複屈折と線二色性がみられ，これはクラスタの磁化に

Fig. 1 Magneto-optical polarization rotation θ_{MO} for light propagated obliquely to the magnetization $\mathbf{M}$.

よるコットン＝ムートン効果と同じように扱える。しかし、前者は後者に比較してその効果は極めて大きい⁷⁾。また、磁界を光進行方向に平行に印加したときは、クラスタの磁化によるファラデー効果がみられる。これら2つのことにより、本検証実験には磁性コロイドを用いた。

2. 磁化に斜め進行する光の旋光

等方性媒質が磁化したとき、媒質の誘電率はその磁化方向を z 軸とする直交座標系において

$$\tilde{\epsilon}(0) = \begin{pmatrix} \epsilon_{\perp} & \epsilon' & 0 \\ -\epsilon' & \epsilon_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{\parallel} \end{pmatrix} \quad (1)$$

と表すことができる。光進行方向 $\mathbf{k}$ が z 軸と角度 ϕ をなすときを考え、新たに $\mathbf{k}$ 方向を Z 軸とする座標系をとると、このときの誘電率の表現は y 軸回りの角度 ϕ の座標回転行列 R_{ϕ} を用いて

$$\begin{aligned} \tilde{\epsilon}(\phi) &= R_{\phi} \tilde{\epsilon}(0) R_{\phi}^{-1} \\ &= \begin{pmatrix} \epsilon_{\perp} \cos^2 \phi + \epsilon_{\parallel} \sin^2 \phi & \epsilon' \cos \phi & \frac{\epsilon_{\perp} - \epsilon_{\parallel}}{2} \sin 2\phi \\ -\epsilon' \cos \phi & \epsilon_{\perp} & -\epsilon' \sin \phi \\ \frac{\epsilon_{\perp} - \epsilon_{\parallel}}{2} \sin 2\phi & \epsilon' \sin \phi & \epsilon_{\perp} \sin^2 \phi + \epsilon_{\parallel} \cos^2 \phi \end{pmatrix} \end{aligned} \quad (2)$$

となる。このとき Z 方向に伝搬する光波の伝搬方程式より次式の固有偏光 $\mathbf{E}_{\pm}$ とその屈折率 $N_{\pm}$ が得られる。

$$N_{\pm}^2 = \frac{\epsilon_{\parallel} \{ (\epsilon_{\parallel} + \epsilon_{\perp}) + (\epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}) \cos^2 \phi \} + \epsilon'^2 \sin^2 \phi \pm i 2 \epsilon_{\parallel} \epsilon' \cos \phi \sqrt{1 + \rho_{\phi}^2}}{2 (\epsilon_{\parallel} \cos^2 \phi + \epsilon_{\perp} \sin^2 \phi)} \quad (3)$$

$$\mathbf{E}_{\pm} = \begin{pmatrix} E_X \\ E_Y \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 \\ -\rho_{\phi} \pm i \sqrt{1 - \rho_{\phi}^2} \end{pmatrix}. \quad (4)$$

ここに $\rho_{\phi} = \rho \tan \phi \sin \phi$ において、 ρ は

$$\rho = \frac{\epsilon_{\perp} (\epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}) - \epsilon'^2}{2 \epsilon_{\parallel} \epsilon'} \quad (5)$$

で定義した複素量の材料パラメータである。またこの ρ は

$$\rho = i \frac{(N_+ - N_-)_{\phi=90^\circ}}{(N_+ - N_-)_{\phi=0^\circ}} \quad (5')$$

であり、すなわち、フォークト配置とファラデー配置における複屈折（複素量）の比を意味している。

この媒質への入射偏光 $\mathbf{E}_{\text{in}} = (E_{\text{IX}}, E_{\text{IY}})^T$ は

$$\mathbf{E}_{\text{in}} = A_+ \mathbf{E}_+ + A_- \mathbf{E}_- \quad (6)$$

$$A_{\pm} = \frac{(\pm \rho_{\phi} + i \sqrt{1 - \rho_{\phi}^2}) E_{\text{IX}} \pm E_{\text{IY}}}{i 2 \sqrt{1 - \rho_{\phi}^2}}$$

と分解できるため、媒質中を距離 ℓ だけ進行した光波

$\mathbf{E}_{\text{out}} = (E_{\text{OX}}, E_{\text{OY}})^T$ は k_0 を真空中の光波の波数として

$$\mathbf{E}_{\text{out}} = A_+ \mathbf{E}_+ \exp(i N_+ k_0 \ell) + A_- \mathbf{E}_- \exp(i N_- k_0 \ell) \quad (7)$$

となる。これらより、 $\mathbf{E}_{\text{out}} = J_{\text{MO}} \mathbf{E}_{\text{in}}$ と表すことにより、この媒質のジョーンズ行列として

$$J_{\text{MO}} = \frac{1}{\sin \gamma} \begin{pmatrix} \sin(\beta \ell + \gamma) & \sin \beta \ell \\ -\sin \beta \ell & -\sin(\beta \ell - \gamma) \end{pmatrix} \quad (8)$$

が得られる。ここで

$$\beta = \frac{1}{2} (N_+ - N_-) k_0, \quad \tan \gamma = \sqrt{1 - \rho_{\phi}^2} / \rho_{\phi} \quad (9)$$

とおいている。式 (8) のジョーンズ行列は $\epsilon_{\parallel}$, $\epsilon_{\perp}$, ϵ' の大小関係にもとづく近似を用いずに導かれたものである。

一般に $|(\epsilon_{\parallel} - \epsilon_{\perp}) / \epsilon_{\perp}| \ll 1$, $|\epsilon' / \epsilon_{\perp}| \ll 1$ であるので

$$\beta \equiv \beta_F \cos \phi \sqrt{1 - \rho_{\phi}^2}, \quad \beta_F \equiv i \frac{\epsilon'}{2 \sqrt{\epsilon_{\perp}}} k_0 \quad (10)$$

となる。この β_F は複素ファラデー回転係数であり、その実部がファラデー回転係数、虚部がファラデー楕円率係数である。また、 β および γ は式表現の簡単化のために導入したものである。

ジョーンズ行列が式 (8) で表される媒質中では、Fig. 1 に示されるように方位角 θ_P の入射直線偏光は距離 ℓ の伝搬により楕円偏光となる。その長軸方位角は光波

$$\mathbf{E}' = R_{\theta} \begin{pmatrix} 0 & 0 \\ 0 & 1 \end{pmatrix} R_{\theta}^{-1} J_{\text{MO}} \begin{pmatrix} \cos \theta_P \\ \sin \theta_P \end{pmatrix} \quad (11)$$

の光強度の極小を与える θ として求められ、その結果、

$$\theta_{\text{MO}}(\phi, \theta_P, \rho, \beta) = -\frac{1}{2} \tan^{-1} \left(\frac{\text{Re} \left[\left\{ (1 + |\rho_{\phi}|^2) \cdot |S|^2 - |1 - \rho_{\phi}^2| \cdot |C|^2 \right\} \sin 2\theta_P + 2 \sqrt{1 - \rho_{\phi}^2} \bar{S} C \cos 2\theta_P + 2 \rho_{\phi} |S|^2 \right]}{\text{Re} \left[\left\{ (1 - |\rho_{\phi}|^2) \cdot |S|^2 - |1 - \rho_{\phi}^2| \cdot |C|^2 \right\} \cos 2\theta_P - 2 \sqrt{1 - \rho_{\phi}^2} \bar{S} C (\sin 2\theta_P + \bar{\rho}_{\phi}) \right]} \right) + \theta_P \quad (12)$$

が旋光角として導かれる。ここに

$$S = \sin \beta \ell, \quad C = \cos \beta \ell \quad (13)$$

である。これにより磁化に対して斜め方向に進行する光の旋光角が求められた。

3. 理論式の検証実験

式 (12) で与えられた旋光角の理論式を磁性コロイド溶液を用いて検証する。旋光角 θ_{MO} を測定するための偏光変調と消光法を用いた測定装置の構成を Fig. 2 に示す。磁

界印加には一対のドーナツ型フェライト磁石を使用し、150 Oe の磁界を印加した。光源には He-Ne レーザ（波長 633 nm）を用いた。

実験で用いた磁性コロイド（タイホー工業製 W-40）は Fe_3O_4 微粒子を水に分散したものであり、飽和磁化は 380 ± 30 G である。これを純水で希釈し濃度を調節した。試料はスライドガラスとカバーガラスとではさまれた $5 \times 5 \times 1 \text{ mm}^3$ の大きさとし、Table 1 で示す 2 つの試料とした。

3. 1 磁性コロイドの材料定数の同定

旋光角の理論値の計算のためには実験に用いる磁性コロイド試料の材料定数 ρ を求めておく必要がある。スーパーパラ磁性の微粒子からなる磁性コロイドは本実験で印加する磁界程度では小さなファラデー効果しか示さず、したがって $|\varepsilon_{\perp}(\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp})| \gg |\varepsilon'|^2$ である。さらに、 $\varepsilon_{\perp} \equiv \varepsilon_{\parallel}$ であるので ρ は

$$\rho \equiv \frac{\varepsilon_{\parallel} - \varepsilon_{\perp}}{2\varepsilon'} \quad (14)$$

と近似できる。一方、フォークト配置における固有偏光間の屈折率差 ΔN と、このときの固有偏光間の位相差 δ および振幅比 α とは

$$\Delta N (= \sqrt{\varepsilon_{\parallel}} - \sqrt{\varepsilon_{\perp}}) = \frac{\delta - i \ln \alpha}{k_0 \ell} \quad (15)$$

なる関係がある。ファラデー旋光角とファラデー楕円率、すなわち、円複屈折と円二色性は光の波長に依存して変化するが⁸⁾、本実験で用いた磁性コロイド試料の円二色性は測定困難なほど小さく、したがって、 $\beta_F \ell$ はファラデー回転角そのものと見なせることにより

$$\theta_F (= \beta_F \ell) = i \frac{\varepsilon'}{2\sqrt{\varepsilon_{\perp}}} k_0 \ell \quad (16)$$

となる。これらにより式 (14) の ρ は

$$\rho \equiv \frac{\ln \alpha}{2\theta_F} + i \frac{\delta}{2\theta_F} \quad (17)$$

となり、磁性コロイドの材料定数 ρ は、ファラデー旋光角 θ_F と、フォークト配置での線複屈折による位相差 δ と線二色性による振幅比 α とを測定することにより定めることができる。

Table 1 に実験に用いた 2 種類の濃度の磁性コロイド試

Fig. 2 Schematic diagram of the measurement of polarization rotation. A magnetic field H is applied at an angle ϕ to the optical path. The polarization rotation due to the magneto-optical effect of the magnetic colloid is cancelled out by optical feed-back under polarization modulation.

料の磁気光学定数を示す。表中のフォークト配置での線複屈折による位相差 δ と線二色性による振幅比 α とは、フォークト配置で測定した方位角 θ_P の入射直線偏光に対する旋光角 ϕ_1 と、Fig. 2 に破線で示されている $\lambda/4$ 板を挿入して測定したときの測定値 ϕ_2 とが

$$\left(\frac{\tan 2\phi_1}{\tan 2\phi_2} \right) = \frac{\alpha \sin 2\theta_P}{\cos^2 \theta_P - \alpha^2 \sin^2 \theta_P} \left(\frac{\cos \delta}{\sin \delta} \right) \quad (18)$$

で表されることより求めた。上式を δ と α について解くことにより

$$\delta = \tan^{-1} \left(\frac{\tan 2\phi_2}{\tan 2\phi_1} \right) \quad (19)$$

$$\alpha = \frac{\sqrt{1 + \tan^2 2\phi_1 + \tan^2 2\phi_2} - 1}{\tan \theta_P \sqrt{\tan^2 2\phi_1 + \tan^2 2\phi_2}}$$

が得られ、これらと式 (17) を用いて ρ が定まる。

3. 2 磁性コロイドにおける旋光測定

磁界印加方位 ϕ を変化させて試料 1 について測定した旋光角の変化を Fig. 3 に黒丸で示す。図には式 (12) による理論曲線を太線で示している。入射直線偏光方位角 θ_P は

Table 1 Magneto-optical parameters of the magnetic colloid samples used.

Sample #	Concentration	Faraday rotation θ_F	Voigt effect		Material parameter ρ
			Retardation δ	Amplitude ratio α	
1	0.06 wt%	0.08°	4.8°	1.034	12+30i
2	0.09 wt%	0.10°	9.6°	1.057	16+48i

0°, 45°, 90° の3通りとした。15° < | ϕ | < 50° の範囲では実験装置の構造上測定できていない。この試料はファラデー旋光角 θ_F が 0.08° のものである。 $\theta_P = 0^\circ, 90^\circ$ のときには印加磁界が光軸方向から傾くにつれ(すなわち、磁化とクラスタ長軸方向とが光軸と角度をなすにつれ)旋光角は 0.08° から単調減少し、その変化はおおよそ $\cos \phi$ の形をしている。一方、 $\theta_P = 45^\circ$ のときには、 $\phi \neq 0$ では線複屈折と線二色性の寄与が大きくあらわれ、フォークト配置での旋光角 (1.0°) に向けて増加している。

理論曲線と測定結果との比較においては、理論曲線は $\phi = 0$ の軸に対称であるが、測定結果は $\theta_P = 0^\circ, 90^\circ$ のとき対称になっておらず、これが両者の最も大きな相違点である。この原因を、磁界が正確に XZ 面内で回転しておらず、頂角が $\pi - 2\Delta$ である円錐の側面に沿って回転してしまっているためであると考えた。これは磁石の回転軸と光軸とが、また、この回転軸と磁界とがそれぞれに正確に直交していないことを反映するものである。

Fig. 4 に示すように $\phi = 0$ と -90° のときに、 $\mathbf{H}$ がこの円錐面に含まれるように合わされている。このため、 $\phi = 90^\circ$ では印加磁界方向は XZ 面から 2Δ だけずれることになる。また、この磁界の回転に従い、一定方位の入射直線偏光 (X 軸に平行な偏光) が磁化 $\mathbf{M}$ の XY 面への射影となす角 θ'_P は ϕ に依存して変化する。 $\theta'_P(\phi, \Delta)$ は $\Delta \ll 1$ として

$$\theta'_P(\phi, \Delta) \equiv -\frac{\Delta(1 - \cos \phi + \sin \phi)}{\sin \phi} \quad (20)$$

なる関係が得られ、これで理論式 (12) の θ_P を置き換えることにより、入射直線偏光方位のずれを考慮して理論式を修正した。

$\Delta = 0.2^\circ$ としたときの理論曲線が Fig. 3 に細線で示されている。これらの理論曲線は実測値とよい一致をしている。

Fig. 4 Conical plane with the vertical angle of $\pi - 2\Delta$. The magnetic field $\mathbf{H}$ is considered to be on this plane when the field rotates in our experiment. $\mathbf{H}$ is also in the XZ-plane at $\phi = 0^\circ$ and -90° . Without misalignment, the field rotates in the XZ-plane as shown by the thin half-circle.

Fig. 3 Dependence of the polarization rotation θ_{M0} on the azimuth ϕ of the magnetic field applied. The orientations of the incident linear polarization θ_P are $0^\circ, 45^\circ$, and 90° . The dots denote experimental observations and the thick curves denote theoretical ones derived by using Eq. (12). The result of replacing θ_P in Eq. (12) with Eq. (20) is denoted by thin curves. In (b), the thin curve is completely superimposed on the thick one.

る。試料 2 においても $\Delta = 0.2^\circ$ のずれを考慮することにより理論曲線と実測値がよい一致をみた。 $\Delta = 0.2^\circ$ のずれは本実験に用いた装置では十分にとりうる値であり、このようなわずかなずれが旋光角に大きく影響していることになる。以上のことから本研究で導出した磁化に対して斜め進行する光の旋光角の理論式が妥当であることを確認できた。

(a) $\rho = 12 + 30i$, $\theta_F = 0.08^\circ$

(b) $\rho = 0.1 + 10i$, $\theta_F = 0.08^\circ$

(c) $\rho = 0.1 + 10i$, $\theta_F = 0.40^\circ$

Fig. 5 Calculated curves of polarization rotation as a function of the inclination ϕ of magnetization. The dependences on the azimuth θ_P of the incident polarization are observed. Three materials are assumed: (a) $\rho = 12 + 30i$, $\theta_F = 0.08^\circ$ (Sample 1), (b) $\rho = 0.1 + 10i$, $\theta_F = 0.08^\circ$, (c) $\rho = 0.1 + 10i$, $\theta_F = 0.40^\circ$.

4. 旋光角と磁化の光進行方向成分

磁化 $\mathbf{M}$ の光進行方向成分 M_Z ($=|\mathbf{M}|\cos\phi$) と旋光角 θ_{MO} とを比較する。さまざまな方位 (θ_P) の直線偏光を

入射させたときの旋光角の印加磁界方位 ϕ に対する変化 $\theta_{MO}(\phi, \theta_P)$ を式 (12) により求め Fig. 5 に示す。

Fig. 5(a) は試料 1 についてのものである。 $\theta_P = 0^\circ$ と 90° では Fig. 3(a),(c) の太線でも示されていたように厳密には異なるが旋光角の変化は $\cos\phi$ に極めて近い変化となる。しかし、 $\theta_P = 45^\circ$ に近づくにつれ、線複屈折と線二色性のために $\cos\phi$ の形から大きくはずれる。

Fig. 5(b) は $\rho = 0.1 + 10i$, $\theta_F = 0.08^\circ$ を想定したときのものである。これはフォークト配置での線複屈折による位相差 $\delta = 1.6^\circ$, 線二色性による振幅比 $\alpha = 1.016$ を示す材料に相当する。 $\theta_P = 0^\circ, 90^\circ$ ではもちろんのこと、全ての θ_P の値において $\theta_{MO}(\phi)$ は $\cos\phi$ の形に近いものの $\theta_P = 60^\circ$ 付近では差異が認められる。

Fig. 5(c) はこれと同じ材料で 5 倍の厚みのものを想定している。その結果は $\cos\phi$ の形状からのずれが大きくなり、同じ材料においても厚み、すなわち光路長が増すことにより旋光角 θ_{MO} はますます磁化 $\mathbf{M}$ の光進行方向成分 M_Z に比例しなくなることを示している。

5. まとめ

磁化に対して斜めに進行する光の旋光角の理論式を求めることができた。この理論式の確かさは磁性コロイド試料を用いた実験により示され、旋光角の変化を測定することにより磁化の光進行方向成分の変化を計測することの問題点を明らかにできた。線複屈折と線二色性が円複屈折に比較して十分小さくないとき、また、そうでなくても光路長が長いなどでこれら複屈折や二色性の効果が大きいときには、旋光角は磁化の光進行方向成分に比例しなくなる。入射直線偏光方位角が 0° または 90° のときには、線複屈折と線二色性の影響が少なく、旋光角の変化で磁化の光進行方向成分を近似しやすくなる。

文 献

- 1) J. -P. Krumme, P. Hansen, and J. Haberkamp: *Phys. Stat. Sol.*, **(a)**12, 483 (1972).
- 2) D. E. Horne and E. Sawatzky: *Rev. Sci. Instrum.*, **43**, 1842 (1972).
- 3) W. J. Tabor and F. S. Chen: *J. Appl. Phys.*, **40**, 2760 (1969).
- 4) Osamu Kamada and Sadao Higuchi: *IEEE Trans. Magn.*, **37**, 2013 (2001).
- 5) J. P. Castera and G. Hepmer: *IEEE Trans. Magn.*, **MAG-13**, 1583 (1977).
- 6) 武富 荒, 近角聡信: 磁性流体 — 基礎と応用 — (日刊工業新聞社, 東京, 1988).
- 7) H. W. Davies and J. P. Llewellyn: *J. Phys. D: Appl. Phys.*, **13**, 2327 (1980).
- 8) F. Donatini, D. Jamon, J. Monin, and S. Neveu: *IEEE Trans. Magn.*, **35**, 4311 (1999).

2003 年 4 月 2 日受理, 2003 年 7 月 16 日採録