arXiv:2603.03477v1 [physics.optics] 3 Mar 2026

在Ni(001)和Ni(111)薄膜中研究磁光克尔效应的磁化强度三次方贡献

Robin Silber[1,2,*,†], Maik Gaerner[3,†], Kamil Postava[1], Jaroslav Hamrle[4,5], Timo Kuschel[3,6]

[1] *Department of Materials Engineering and Recycling, Faculty of Materials Science and Technology, VSB-Technical University of Ostrava, Ostrava 70800, Czech Republic* [2] *Nanotechnology Centre, Centre for Energy and Environmental Technologies,VSB-Technical University of Ostrava, Ostrava 70800, Czech Republic* [3] *Faculty of Physics, Bielefeld University, Universitätsstraße 25, 33615 Bielefeld, Germany* [4] *Faculty of Mathematics and Physics, Charles University, Ke Karlovu 5, 12116 Prague, Czech Republic* [5] *Faculty of Nuclear Sciences and Physical Engineering, Czech Technical University, Trojanova 13, 12000 Prague, Czech Republic* [6] *Institute of Physics, Johannes Gutenberg University Mainz, Staudingerweg 7, 55128 Mainz, Germany*[*](日期：2026年3月5日)

人们早已知道，磁输运和磁光现象中存在磁化强度的高阶效应。这些效应不仅对研究很重要，也直接关系到实际应用。各向异性磁阻、各向异性磁热电势、二次磁光克尔效应（QMOKE）、沃伊特效应以及X射线线性磁二色性（和双折射），都是磁化强度的二阶效应。最近，我们报道了首次对Ni(111)薄膜中磁化强度三次磁光克尔效应（CMOKE）进行的系统性观测。本文通过推导磁化强度三阶磁光张量（记为 $\boldsymbol{H}$），并从理论和实验上比较不同晶体取向下CMOKE的强度，介绍CMOKE的详细理论。对于具有立方对称性的晶体，张量 $\boldsymbol{H}$ 由两个独立参数 H_{123} 和 H_{125}描述。结合线性磁光张量 $\boldsymbol{K}$ 和二次磁光张量 $\boldsymbol{G}$，介电张量便可描述至磁化强度的三阶。我们通过解析方式给出（001）和（111）取向立方晶体结构中磁光克尔效应（MOKE）的方程，其中包含二次磁光克尔效应和CMOKE本身的贡献。我们将这些方程与两个样品的实验测量结果进行比较，这两个样品分别含有（001）和（111）取向的面心立方镍层。实验数据采用所谓的八方向法测得。该方法旨在分离线性和二次磁光克尔效应的贡献，并观测它们对晶格方向各自的各向异性依赖，但也适用于CMOKE的贡献。此外，我们使用Yeh的4×4 传输矩阵算法，根据介电张量对实验测量结果进行模拟，并以唯象方式描述至 $\boldsymbol{M}$的三阶。这使我们能够获得两种晶体取向下Ni层的磁光参数值。我们发现，由磁光张量 $\boldsymbol{H}$（表示为 $\Delta H = H_{123} - 3H_{125}$）产生的磁光克尔效应各向异性，在（111）取向立方晶体结构中显著得多；在这种结构中，纵向和横向磁化方向下的MOKE均表现出面内三重角度依赖性。对于（001）取向立方晶体结构， ΔH 应表现为纵向和横向磁化方向下MOKE的四重角度依赖性，但其振幅预计小于（111）取向立方晶体结构中的情况，这或许可以解释为何迄今尚未在（001）取向立方晶体结构中通过实验确认CMOKE。

I. 引言

磁光克尔效应（磁光克尔效应）是磁性材料研究中最成熟的工具之一[1–4]。它可用于探测铁磁、亚铁磁和反铁磁材料的磁化强度[5–12]，应用包括磁各向异性测量[13,14]，、矢量磁光克尔效应测量[8,15,16]，、磁光克尔效应光谱[5,17–22] 或克尔显微术[23–26]。随着超短脉冲激光器的发展，磁光克尔效应也被应用于时间分辨泵浦-探测技术[25,27–29]。借助这种技术，可以实现低至飞秒级的时间分辨率来观测磁化动力学。磁光克尔效应近期一项前沿应用是测量自旋轨道力矩（SOT）有效场[30–33]，并观测磁化动力学和磁通过由皮秒电脉冲产生的自旋轨道力矩实现自旋电子太赫兹发射器中的磁化强度翻转[34]。后者的应用将自旋电子学与太赫兹研究联系起来，而这两个领域都是过去十年研究的重点。

在上述许多情况下，只假设磁光克尔效应与磁化强度之间呈线性依赖关系 $\boldsymbol{M}$。尽管广大研究群体通常都很清楚磁光克尔效应高阶效应的存在，但它们却很少在模型中加以考虑。过去，对系统—性的二次磁光克尔效应（二次磁光克尔效应）研究，即与 $\boldsymbol{M}^2$ 成正比的研究，已有发表[35–38]，主要涉及线性磁光克尔效应分离方法（线性磁光克尔效应）和二次磁光克尔效应[14,39–42]，用于研究赫斯勒化合物的方法，采用二次磁光克尔效应[22,43–51]，增强矢量磁测量[8,9,28,52]，二次磁光克尔效应光谱技术[20,21,53,54] 及其他方法[55,56]。磁性

反射过程中的线性双折射和二向色性（分别为 MLB 和 MLB）[57] 是正常入射角（入射角）下出现的二次磁光克尔效应的一个实例，此时偏振本征模由与 $\boldsymbol{M}$平行和垂直的线偏振组成。需要注意的是，如果 MLB 和 MLD 源于磁化强度 $\nabla \boldsymbol{M}$的梯度¨，则这种潜在效应被称为 Sch[58–60] äfer-Hubert 效应 $\boldsymbol{M}$ 。通常，二次磁光克尔效应是磁光克尔效应测量中相当不受欢迎的贡献，往往会被滤除，因为磁光克尔效应与 $\boldsymbol{M}$ 之间的线性关系简化了实验分析。然而，确实存在一些应用，会利用二次磁光克尔效应本身的性质，以及磁化强度二阶项对应的其他磁光效应。其中一个例子是基于二次磁光克尔效应的磁光显微镜[24,25]„ 或上述对自旋轨道力矩有效场和时间分辨磁化动力学的测量[32], ，以及对光学自旋轨道力矩的观测[61], ；在这些应用中，面内分量的信息由二次磁光克尔效应信号承载。

此外，针对反铁磁（AFM）材料的二次磁光克尔效应测量已经得以实现[11,12], ，因为大多数反铁磁体缺乏净磁化强度，无法使用线性磁光克尔效应测量。既然通过自旋轨道力矩控制反铁磁自旋取向已得到证实[62,63]„ 对快速且易于获取的反铁磁奈尔矢量表征方法的需求将日益增长´。因此，系统研究高阶磁光克尔效应的动机显而易见；这既可能通过采用高阶模型而非磁光克尔效应对 $\boldsymbol{M}$的简单线性依赖，增强磁光克尔效应的能力，也可能借助高阶磁光克尔效应所提供、而线性磁光克尔效应本身无法实现的新用途。

除二次磁光克尔效应外，三次磁光克尔效应（CMOKE）是磁光克尔效应中关于 $\boldsymbol{M}$的三阶贡献，具有广阔的应用前景，但迄今为止，在磁光克尔效应数据处理中尚未考虑这一贡献。在此前的工作中[64], ，我们展示了(111)取向立方晶体结构的三次磁光克尔效应角度依赖关系，并讨论了(111)取向镍薄膜中的结构畴孪晶如何影响三次磁光克尔效应贡献的振幅。在我们看来，三次磁光克尔效应对整体磁光克尔效应信号的贡献十分重要，因为*(i)* 与线性磁光克尔效应不同，它具有非零的角度依赖性，并叠加在线性磁光克尔效应（LMOKE）的贡献上。因此，如果未将其纳入考量并妥善处理，就可能影响对纵向磁光克尔效应数据的评估。请注意，LMOKE（关于 $\boldsymbol{M}$为奇）和 CMOKE（关于 $\boldsymbol{M}$为奇）不像LMOKE（关于 $\boldsymbol{M}$为奇）和二次磁光克尔效应（关于 $\boldsymbol{M}$为偶）那样容易分离。*(ii)* 它可用于定制诸如三次磁光克尔效应显微镜等应用，以关联磁畴与结构畴孪晶；也可基于三次磁光克尔效应角度依赖性振幅检测，通过时间分辨磁光克尔效应研究孪晶的时间演变。*(iii)*对于(111)取向的立方样品，三次磁光克尔效应在法向入射角下具有非零值，而纵向磁光克尔效应则没有[64,65]。

这可用于在法向入射角下进行矢量磁光克尔效应测量，以获取关于 $\boldsymbol{M}$面内分量的信息，而极向磁光克尔效应（PMOKE）则可提供关于 $\boldsymbol{M}$面外分量的信息。尽管后者的应用中已经采用二次磁光克尔效应[28,32,52,61], ，但三次磁光克尔效应相较于二次磁光克尔效应的优势在于，它关于磁化强度为奇，因此也能提供平面内磁化方向的信息。此外，在特定材料和波长下，三次磁光克尔效应可能比二次磁光克尔效应贡献更显著。因此，我们认为有必要进一步系统地深入研究三次磁光克尔效应。

本文给出*(i)* 针对 $\boldsymbol{M}$ 一般样品面内取向角下，适用于(001)取向立方晶体结构和(111)取向立方晶体结构的、描述至三阶的介电张量表达式 α；*(ii)* 针对(001)取向和(111)取向立方晶体结构、扩展至三阶的八方向法关系式 $\boldsymbol{M}$ *(iii)* 采用八方向法对MgO(001)//Ni/Pt样品进行的实验测量（文中称为样品Ni(001)），以及采用八方向法对MgO(111)//Ni/Si/SiO_x 样品进行的实验测量（文中称为样品Ni(111)）。*(iv)* 实验数据通过两种模型进行描述：第II节提出的解析模型II 以及Yeh的 4×4 传递矩阵形式[66], ，该形式描述光在由通常具有光学各向异性的层构成的多层结构中的传播。后一种模型可用于求得磁光参数，这些参数描述了介电张量随 $\boldsymbol{M}$变化至三阶的情况。两个样品的结果将在第III节进行比较和深入讨论。

II. 线性、二次和三次磁光克尔效应理论

A. 磁化晶体介电常数简介

对于 s和 p 偏振的入射光，复克尔角 $\Phi_{s/p}$ 描述为[67,68]

$$\Phi_s = \theta_s + i\epsilon_s \approx \frac{\tan\theta_s + i\tan\epsilon_s}{1 - i\tan\theta_s\tan\epsilon_s} = -\frac{r_{ps}}{r_{ss}}, \tag{1a}$$

$$\Phi_p = \theta_p + i\epsilon_p \approx \frac{\tan\theta_p + i\tan\epsilon_p}{1 - i\tan\theta_p\tan\epsilon_p} = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} \quad . \tag{1b}$$

这里， $\theta_{s/p}$ 和$\epsilon_{s/p}$ 分别表示克尔旋转和克尔椭圆率。由于这些克尔角通常非常小（$< 1°$），因此在式（4 中采用小角度近似1）。

式（r_{ss}、r_{ps}、r_{sp}、r_{pp} 中的反射系数1）实际上取决于介电张量 ε。我们可以用良好的近似，将复克尔角与薄铁磁层的介电常数联系起来，如下所示：[69]

$$\Phi_s = -\frac{r_{ps}}{r_{ss}} = A_s\left(\varepsilon_{yx} - \frac{\varepsilon_{yz}\varepsilon_{zx}}{\varepsilon_d}\right) + B_s\varepsilon_{zx}, \tag{2a}$$

$$\Phi_p = \frac{r_{sp}}{r_{pp}} = -A_p\left(\varepsilon_{xy} - \frac{\varepsilon_{zy}\varepsilon_{xz}}{\varepsilon_d}\right) + B_p\varepsilon_{xz}, \tag{2b}$$

其中，$A_{s/p}$ 和 $B_{s/p}$ 为光学权重因子，它们包含磁性层厚度的影响、层堆中其他层的影响，以及对入射角的依赖性。$A_{s/p}$ 是入射角的偶函数，在法向入射角下仍然存在；而$B_{s/p}$ 是入射角的奇函数，在法向入射角下为零。因此，介电张量随磁化强度的变化是磁光克尔效应[67,68]的唯象起源。我们可以用泰勒级数 $\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}^{(0)} + \boldsymbol{\varepsilon}^{(1)} + \boldsymbol{\varepsilon}^{(2)} + \boldsymbol{\varepsilon}^{(3)} + ...$描述磁化铁磁介质的介电张量，其中上标表示 $\boldsymbol{M}$的阶数。为了成功解释本研究中的所有实验观测，我们将介电张量展开至磁化强度的三阶，得到：

$$\varepsilon_{ij} = \varepsilon_{ij}^{(0)} + \underbrace{K_{ijk}M_k}_{\varepsilon_{ij}^{(1)}} + \underbrace{G_{ijkl}M_kM_l}_{\varepsilon_{ij}^{(2)}} + \underbrace{H_{ijklm}M_kM_lM_m}_{\varepsilon_{ij}^{(3)}} \tag{3}$$

其中，M_k、M_l 和 M_m 是归一化磁化强度的分量

$$\boldsymbol{M} = \begin{bmatrix} M_1 \\ M_2 \\ M_3 \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_x \\ M_y \\ M_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} M_T \\ M_L \\ M_P \end{bmatrix}. \tag{4}$$

此处，下标 x、y、z与我们的$\hat{}x$、$\hat{}y$、$\hat{}z$ 坐标系中的方向相对应，而下标T、L、P分别表示三种基本磁光构型，即横向、纵向和极向[67]（见附录A及其中的图A.1）。元素 $\varepsilon_{ij}^{(0)}$ 表示未磁化介质未经扰动的介电张量，而 K_{ijk} 和 G_{ijkl} 则是所谓的三阶和四阶线性和二次磁光张量 $\boldsymbol{K}$ 和 $\boldsymbol{G}$，它们产生 $\varepsilon^{(1)}$ 以及 $\varepsilon^{(2)}$ 分别对总介电常数的贡献[35]。对于具有反演对称性的立方晶体结构，这些张量的元素可简化为[35]

$$\varepsilon_{ij}^{(0)} = \delta_{ij}\varepsilon_d, \tag{5a}$$

$$K_{ijk} = \epsilon_{ijk}K, \tag{5b}$$

$$G_{iiii} = G_{11}, \tag{5c}$$

$$G_{iijj} = G_{12}, \qquad i \neq j, \tag{5d}$$

$$G_{1212} = G_{1313} = G_{2323} = G_{44}, \tag{5e}$$

其中，δ_{ij} 和ϵ_{ijk} 分别为克罗内克δ和列维-奇维塔符号。因此，对于立方晶体结构，$\varepsilon_{ij}^{(0)}$ 由一个标量 ε_d描述。线性磁光张量 $\boldsymbol{K}$ 是各向同性的（即旋转不变），由一个独立参数 K描述。对于二次磁光张量 $\boldsymbol{G}$，立方晶体结构的情形下有两个独立参数，分别为$G_s = (G_{11} - G_{12})$和 $2G_{44}$。由于 G_{11} 和 G_{12} 仅与 $\boldsymbol{M}$的 M_i^2分量同时出现，因此实验只能确定它们的差值 $G_{11}-G_{12}$。若要区分这些唯象参数，就需要改变磁化矢量的长度。参数 $\Delta G = G_s - 2G_{44}$ 表示该$\boldsymbol{G}$张量[8,44]的各向异性强度。下标11、12和44是根据 $\boldsymbol{G}$ 张量在Voigt记号中的各元素位置选取的简写。

最后，H_{ijklm} 是磁光张量 $\boldsymbol{H}$ 的五阶分量，它们关于磁化强度呈三次关系。该 $\boldsymbol{H}$ 张量的推导步骤见附录B。三阶磁光张量 $\boldsymbol{H}$ 具有两个独立参数，分别为 H_{123} 和 H_{125}。缩写下标 123 和 125 稍后将作解释。张量 $\boldsymbol{H}$ 由此构造为

$$H_{ijkk} = \epsilon_{ijk}H_{123}, \tag{6a}$$

$$H_{ijkll} = \epsilon_{ijk}H_{125}, \tag{6b}$$

$$H_{ijklm} = 0, \qquad k \neq l \neq m. \tag{6c}$$

我们进一步定义一个各向异性参数 $\Delta H = H_{123} - 3H_{125}$，用于描述磁光张量的各向异性$\boldsymbol{H}$。我们的研究结果与Pethukov等人的结果一致[70]。磁化强度的三阶介电常数 $\varepsilon_{ij}^{(3)}$ 随后构造为以下各项的缩并$H_{ijklm}M_kM_lM_m$，并以Voigt记号表示[64] 如下

$$\begin{bmatrix}\varepsilon_{23}^{(3)}\\ \varepsilon_{31}^{(3)}\\ \varepsilon_{12}^{(3)}\\ \varepsilon_{32}^{(3)}\\ \varepsilon_{13}^{(3)}\\ \varepsilon_{21}^{(3)}\end{bmatrix} = \begin{bmatrix} H_{123} & 0 & 0 & 0 & 0 & 3H_{125} & 0 & 3H_{125} & 0 & 0\\ 0 & H_{123} & 0 & 3H_{125} & 0 & 0 & 0 & 0 & 3H_{125} & 0\\ 0 & 0 & H_{123} & 0 & 3H_{125} & 0 & 3H_{125} & 0 & 0 & 0\\ -H_{123} & 0 & 0 & 0 & 0 & -3H_{125} & 0 & -3H_{125} & 0 & 0\\ 0 & -H_{123} & 0 & -3H_{125} & 0 & 0 & 0 & 0 & -3H_{125} & 0\\ 0 & 0 & -H_{123} & 0 & -3H_{125} & 0 & -3H_{125} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix} \begin{bmatrix} M_1^3\\ M_2^3\\ M_3^3\\ M_2M_3^2\\ M_3M_1^2\\ M_1M_2^2\\ M_3M_2^2\\ M_1M_3^2\\ M_2M_1^2\\ M_1M_2M_3 \end{bmatrix}. \tag{7}$$

这里， H_{123} 和 H_{125} 的下标12表示介电张量中的第一个非对角位置 ε_{12}。此外，下标3 和 5 分别对应于式（ $\boldsymbol{M}$ ）中Voigt记号的7向量中的相应位置。因此，介电张量第一个非对角元素的三阶贡献为 $\varepsilon_{12}^{(3)} = H_{123}M_3^3 + 3H_{125}M_3M_1^2 + \ldots$。由于只有两个独立参数， H 张量中所有其他非零项均等于 H_{123} 和 $3H_{125}$。

最后需要指出，上文讨论的所有磁光张量均针对(001)取向的立方晶体结构的参考取向定义（参见附录A，其中定义了该参考取向）。因此，磁光张量的旋转变换定义为

$$G'_{ijkl} = a_{in}a_{jo}a_{kp}a_{lq}G_{nopq}, \tag{8a}$$
$$H'_{ijklm} = a_{in}a_{jo}a_{kp}a_{lq}a_{mr}H_{nopqr}. \tag{8b}$$

其中， a_{xy} 是正交旋转矩阵 $\boldsymbol{a}$的各元素。变换前，张量 $\boldsymbol{G}$ 和 $\boldsymbol{H}$ 的元素分别为 G_{nopq} 和 H_{nopqr} ；变换后，张量 $\boldsymbol{G'}$ 和 $\boldsymbol{H'}$ 的元素分别为 G'_{ijkl} 和H'_{ijklm} 。请注意，对于立方晶体结构， $\boldsymbol{\varepsilon}^{(0)}$ 和 $\boldsymbol{K}$ 具有各向同性，因此在此类旋转变换下保持不变。

B. (001)取向立方晶体结构的磁光克尔效应解析方程

本节推导(001)取向立方晶体结构的克尔角解析表达式。首先，我们将完整描述介电张量的非对角元，直至 $\boldsymbol{M}$中的三阶项，如方程（3）所示。为纳入样品面内取向的影响，按照方程（，绕z轴旋转一般角度 α （见附录A2 中的方程A），并依据方程（8a）和（8b）对张量 $\boldsymbol{G}$ 和 $\boldsymbol{H}$ 进行旋转。由此可求得(001)取向立方晶体结构的介电张量非对角元：

$$\begin{aligned}\varepsilon_{xy/yx}^{(001)} = &\pm K && M_P\\ &\left[2G_{44} + \frac{\Delta G}{2}(1-\cos(4\alpha))\right] && M_LM_T\\ &+\frac{\Delta G}{4}\sin(4\alpha) && (M_T^2 - M_L^2)\\ &\pm H_{123} && M_P^3\\ &\pm 3H_{125} && M_PM_T^2\\ &\pm 3H_{125} && M_PM_L^2,\end{aligned} \tag{9}$$

$$\begin{aligned}\varepsilon_{zx/xz}^{(001)} = &\pm K && M_L\\ &+2G_{44} && M_PM_T\\ &\pm\frac{\Delta H\sin(4\alpha)}{4} && M_T^3\\ &\pm\frac{\Delta H\cos(4\alpha) + 3H_{123} + 3H_{125}}{4} && M_L^3\\ &\pm 3H_{125} && M_LM_P^2\\ &\mp\frac{3\Delta H\sin(4\alpha)}{4} && M_TM_L^2\\ &\mp\frac{3\Delta H\cos(4\alpha) - 3H_{123} - 3H_{125}}{4} && M_LM_T^2,\end{aligned} \tag{10}$$

and

$$\begin{aligned}\varepsilon_{yz/zy}^{(001)} = &\pm K && M_T\\ &+2G_{44} && M_LM_P\\ &\pm\frac{\Delta H\cos(4\alpha) + 3H_{123} + 3H_{125}}{4} && M_T^3\\ &\mp\frac{\Delta H\sin(4\alpha)}{4} && M_L^3\\ &\mp\frac{3\Delta H\cos(4\alpha) - 3H_{123} - 3H_{125}}{4} && M_TM_L^2\\ &\pm 3H_{125} && M_TM_P^2\\ &\pm\frac{3\Delta H\sin(4\alpha)}{4} && M_LM_T^2.\end{aligned} \tag{11}$$

将这些介电常数元素代入公式（2）即可得到克尔角对以下因素的依赖关系： (*i*) 磁光参数、 (*ii*) 面内磁化分量以及 (*iii*)

样品取向 α，适用于具有立方晶体结构的（001）取向薄膜。我们推导出

$$\begin{aligned}\Phi^{(001)}_{s/p\,[M_P=0]} = \\ \pm A_{s/p}\Bigg[&\left(2G_{44}-\frac{K^2}{\varepsilon_d}+\frac{\Delta G}{2}(1-\cos(4\alpha))\right)M_L M_T \\ &+\left(\frac{\Delta G}{4}\sin(4\alpha)\right)(M_T^2-M_L^2)\Bigg] \\ \pm B_{s/p}\Bigg[&KM_L+\frac{\Delta H\cos(4\alpha)+3H_{123}+3H_{125}}{4}M_L^3 \\ &-\frac{3\Delta H\cos(4\alpha)-3H_{123}-3H_{125}}{4}M_L M_T^2 \\ &+\frac{\Delta H\sin(4\alpha)}{4}\left(M_T^3-3M_L^2M_T\right)\Bigg].\end{aligned} \tag{12}$$

由于本研究仅考察面内磁化强度，因此我们令 $M_P = 0$，以推导适用于(001)取向立方晶体结构的最终方程。不过请注意，如果存在 M_P 贡献，则只会影响磁光克尔效应信号的偏置，因为方程（9-11）不包含任何与 M_P 角度依赖性相关的 α贡献。因此，样品旋转不会引入额外的各向异性。

$$\begin{aligned}\varepsilon^{(111)}_{xy/yx} = \\ &\pm K && M_P \\ &+\frac{\sqrt{2}}{3}\Delta G\cos(3\alpha) && M_L M_P \\ &-\frac{\sqrt{2}}{3}\Delta G\sin(3\alpha) && M_P M_T \\ &+\left(2G_{44}+\frac{1}{3}\Delta G\right) && M_L M_T \\ &\mp\frac{1}{3\sqrt{2}}\Delta H\cos(3\alpha) && M_T^3 \\ &\pm\frac{1}{3\sqrt{2}}\Delta H\sin(3\alpha) && M_L^3 \\ &\pm\frac{1}{3}(H_{123}+6H_{125}) && M_P^3 \\ &\pm H_{123} && M_P M_T^2 \\ &\pm\frac{1}{\sqrt{2}}\Delta H\cos(3\alpha) && M_T M_L^2 \\ &\pm H_{123} && M_P M_L^2 \\ &\mp\frac{1}{\sqrt{2}}\Delta H\sin(3\alpha) && M_L M_T^2\end{aligned} \tag{14}$$

C. (111)取向立方晶体结构的磁光克尔效应解析方程

为给出适用于(111)取向立方晶体结构的相应解析方程，必须将各向异性磁光张量 $\boldsymbol{G}$ 和 $\boldsymbol{H}$变换为其(111)取向形式。我们定义变换

$$\boldsymbol{a}^{(001)\to(111)} = \begin{bmatrix} -\frac{\sqrt{6}}{3} & \frac{\sqrt{6}}{6} & \frac{\sqrt{6}}{6} \\ 0 & -\frac{\sqrt{2}}{2} & \frac{\sqrt{2}}{2} \\ \frac{\sqrt{3}}{3} & \frac{\sqrt{3}}{3} & \frac{\sqrt{3}}{3} \end{bmatrix} \tag{13}$$

通过方程（8a）和（8b），可得到参考取向下(111)取向立方晶体结构的 $\boldsymbol{G}$ 和 $\boldsymbol{H}$张量。最后，我们绕^z轴旋转一般角度 α，以描述样品绕其表面法线的旋转。更多详情请参见附录A，旋转矩阵绕^A2 中给出了绕^z轴的旋转矩阵定义。

(111)取向立方晶体结构的介电张量的非对角元，在 $\boldsymbol{M}$ 中描述至三阶，且对于一般样品取向 α，为

$$\begin{aligned}\varepsilon^{(111)}_{zx/xz} = \\ &\pm K && M_L \\ &+\frac{1}{3}(2G_s+2G_{44}) && M_P M_T \\ &-\frac{2}{3\sqrt{2}}\Delta G\sin(3\alpha) && M_L M_T \\ &-\frac{1}{3\sqrt{2}}\Delta G\cos(3\alpha) && (M_T^2-M_L^2) \\ &\pm\frac{1}{2}(H_{123}+3H_{125}) && M_L^3 \\ &\pm H_{123} && M_L M_P^2 \\ &\mp\frac{\sqrt{2}}{2}\Delta H\sin(3\alpha) && M_P M_T^2 \\ &\pm\frac{\sqrt{2}}{2}\Delta H\sin(3\alpha) && M_P M_L^2 \\ &\pm\frac{1}{2}(H_{123}+3H_{125}) && M_L M_T^2 \\ &\pm\sqrt{2}\Delta H\cos(3\alpha) && M_T M_L M_P\end{aligned} \tag{15}$$

and

$$\begin{aligned}\varepsilon^{(111)}_{yz/zy} = & \pm K & M_T \\ & +\frac{1}{3}(2G_s+2G_{44}) & M_L M_P \\ & +\frac{2}{3\sqrt{2}}\Delta G\cos(3\alpha) & M_L M_T \\ & -\frac{1}{3\sqrt{2}}\Delta G\sin(3\alpha) & (M_T^2-M_L^2) \\ & \pm\frac{1}{2}(H_{123}+3H_{125}) & M_T^3 \\ & \mp\frac{\sqrt{2}}{2}\Delta H\cos(3\alpha) & M_P M_T^2 \\ & \pm\frac{1}{2}(H_{123}+3H_{125}) & M_T M_L^2 \\ & \pm\frac{\sqrt{2}}{2}\Delta H\cos(3\alpha) & M_P M_L^2 \\ & \pm H_{123} & M_T M_P^2 \\ & \mp\sqrt{2}\Delta H\sin(3\alpha) & M_T M_L M_P .\end{aligned} \tag{16}$$

由于类型为 $\varepsilon_{yz/zy}\varepsilon_{zx/xz}/\varepsilon_d$ 的交叉项出现在式（2）中，对于(111)取向立方晶体结构而言，其性质比(001)-情况下更为复杂

对于取向立方晶体结构，我们在此也评估其形状。

$$\begin{aligned}\varepsilon^{(111)}_{yz/zy}\varepsilon^{(111)}_{zx/xz} = & K^2 & M_L M_T \\ & \mp\frac{1}{3\sqrt{2}}K\Delta G\cos(3\alpha) & M_T^3 \\ & \pm\frac{1}{3\sqrt{2}}K\Delta G\sin(3\alpha) & M_L^3 \\ & \pm\frac{1}{3}(2KG_s+K2G_{44}) & M_P M_T^2 \\ & \pm\frac{1}{\sqrt{2}}K\Delta G\cos(3\alpha) & M_T M_L^2 \\ & \pm\frac{1}{3}(2KG_s+K2G_{44}) & M_P M_L^2 \\ & \mp\frac{1}{\sqrt{2}}K\Delta G\sin(3\alpha) & M_L M_T^2 .\end{aligned} \tag{17}$$

请注意，该交叉项中忽略了四阶及更高阶贡献。将这些元素代入方程（2），即可得到克尔效应对磁光参数、面内磁化分量和样品取向的依赖关系的解析表达式α，适用于具有立方晶体结构的（111）取向薄膜。我们推导出

$$\begin{aligned}\Phi^{(111)}_{s/p,[M_P=0]} = & \\ & A_{s/p}\left[\pm\left(2G_{44}+\frac{\Delta G}{3}-\frac{K^2}{\varepsilon_d}\right)M_L M_T-\frac{1}{3\sqrt{2}}\left(\Delta H+\frac{K\Delta G}{\varepsilon_d}\right)\sin(3\alpha)\left(M_L^3-3M_L M_T^2\right)\right. \\ & \left.+\frac{1}{3\sqrt{2}}\left(\Delta H+\frac{K\Delta G}{\varepsilon_d}\right)\cos(3\alpha)\left(M_T^3-3M_T M_L^2\right)\right] \\ & +B_{s/p}\left[\pm K M_L-\frac{2\Delta G}{3\sqrt{2}}\sin(3\alpha)M_L M_T-\frac{\Delta G}{3\sqrt{2}}\cos(3\alpha)(M_T^2-M_L^2)\pm\frac{H_{123}+3H_{125}}{2}\left(M_L^3+M_L M_T^2\right)\right].\end{aligned} \tag{18}$$

同样，我们将方程限制为仅考虑面内磁化，并令 $M_P = 0$。然而，利用上文给出的所有方程，可以轻松地将方程（18）扩展至所有磁化分量。若纳入 M_P 分量，除偏移量外，还会产生新的各向异性，且从磁化强度的二阶项开始出现，即 $\pm A_{s/p}[-(\sqrt{2}/3)\Delta G\cos(3\alpha)M_L M_P+(\sqrt{2}/3)\Delta G\sin(3\alpha)M_T M_P]$。请注意，这与方程（12）中的（001）取向情况相反，后者不会产生此类角度依赖关系。

D. 八方向法测量

所谓的八方向法[39]是一种测量算法，旨在分离线性磁光克尔效应和二次磁光克尔效应的贡献，并确定它们的角度依赖关系；但如本文所示，该方法也可用于研究三次磁光克尔效应。在每种样品取向下 α，磁光克尔效应信号 $\Phi^{(\mu)}$ 均针对八个面内磁化方向进行测量 $\mu = \{0°, 45°, 90°, \ldots, 270°, 315°\}$。对这些信号进行适当的线性组合，可以消除实验磁光克尔效应背景。我们使用这些信号的四种不同线性组合，以分离出四种实验磁光克尔效应贡

献。分离出的第一种贡献是

$$\Phi_{M_L,M_L^3} = \frac{\Phi_{s/p}^{\mu=90^\circ} - \Phi_{s/p}^{\mu=270^\circ}}{2} \tag{19}$$

即为结合了纵向磁光克尔效应$\sim M_L$和纵向立方磁光克尔效应（纵向克尔磁光克尔效应）$\sim M_L^3$ 贡献的磁光克尔效应信号。第二项贡献为

$$\Phi_{M_L M_T} = \frac{\Phi^{\mu=45^\circ} + \Phi^{\mu=225^\circ} - \Phi^{\mu=135^\circ} - \Phi^{\mu=315^\circ}}{2} \tag{20}$$

即为二次磁光克尔效应$\sim M_L M_T$ 贡献。第三项贡献为

$$\Phi_{M_T^2-M_L^2} = \frac{\Phi^{\mu=0^\circ} + \Phi^{\mu=180^\circ} - \Phi^{\mu=90^\circ} - \Phi^{\mu=270^\circ}}{2} \tag{21}$$

即为二次磁光克尔效应$\sim (M_T^2 - M_L^2)$贡献。最后，第四项贡献为

$$\Phi_{M_T^3} = \frac{\Phi^{\mu=0^\circ} - \Phi^{\mu=180^\circ}}{2} \tag{22}$$

即为横向立方磁光克尔效应（横向克尔磁光克尔效应）$\sim M_T^3$贡献。

将式（ $\Phi^{(\mu)}$ 12）中的表达式以及式（19-22）代入后，我们可以给出针对（001）取向立方晶体结构、由八方向法分离出的各项贡献的解析表达式。在表I中，我们展示了按偏移量和角度依赖性分离的各项贡献。由此可见，在法向入射角下，只有与光学权重因子$A_{s/p}$ 成正比的二次磁光克尔效应贡献会保留下来。具体而言，$\Phi_{M_L M_T}$ 贡献具有非零偏移量以及 cos(4α) 的四重角度依赖性，而 $\Phi_{M_T^2-M_L^2}$ 仅包含 sin(4α) 的角度依赖性。$\Phi_{M_L M_T}$ 和$\Phi_{M_T^2-M_L^2}$ 的角度依赖振幅相同。在斜入射角下，与光学因子 $B_{s/p}$ 相关的贡献也会出现，即纵向磁光克尔效应+纵向克尔光学二次效应贡献$\Phi_{M_L,\ M_L^3}$具有非零偏移量以及 cos(4α) 的角度依赖性；横向克尔磁光克尔效应贡献 $\Phi_{M_T^3}$ 则仅具有 sin(4α) 的角度依赖性。Φ_{M_L}、$_{M_L^3}$ 和 $\Phi_{M_T^3}$ 的角度依赖振幅同样相等。最后请注意，对于（001）取向的立方晶体结构，改变入射光的偏振方向时，八方向法分离出的所有贡献都会改变符号。

对于(111)取向立方晶体结构的情况，我们可以使用式(18)和式(19-22)描述八方向法测量中的各项贡献。与(001)取向立方晶体结构相比，主要区别在于现在具有三重角度依赖关系：八方向法分离出的各项贡献具有不同的光学权重因子依赖性 $A_{s/p}$ 和 $B_{s/p}$，如表II所示。QMOKE贡献 $\Phi_{M_L M_T}$ 对应的sin(3α)以及QMOKE贡献 $\Phi_{M_T^2-M_L^2}$ 对应的cos(3α)的三重角依赖仅在斜入射角下出现，因为它们与 $B_{s/p}$成正比。这两种角度依赖的振幅再次相同。对于LMOKE+LCMOKE和TCMOKE贡献，在法向入射角下我们已观察到LMOKE+LCMOKE Φ_{M_L,M_L^3} 对应的sin(3α)以及TCMOKE $\Phi_{M_T^3}$ 对应的cos(3α)角度依赖，因为它们与 $A_{s/p}$成正比。同样，这两种角度依赖的振幅相同。有趣的是，现在角度依赖的振幅符号不随入射光偏振的改变而变化。LMOKE+LCMOKEΦ_{M_L,M_L^3} 的偏移量以及QMOKE $\Phi_{M_L M_T}$ 的偏移量对光学权重因子的依赖性，与(001)取向立方结构的情况相同。入射光偏振改变时符号也同样会改变。不同之处仅在于偏移量的数值：与(001)取向立方晶体结构的情况相比，磁光参数 H_{123}、H_{125} 和 ΔG的贡献比例有所不同。

需要注意的是，八方向法无法将纵向克尔光学二次效应贡献 $\sim M_L^3$ 与纵向磁光克尔效应$\sim M_L$ 贡献区分开来，因此这两种贡献在我们的实验数据中是叠加的。然而，对于(001)取向立方晶体结构，纵向克尔光学二次效应贡献完全决定了Φ_{M_L}、$_{M_L^3}$ 贡献角度依赖性的振幅；对于(111)取向立方晶体结构，它则主导了Φ_{M_L}、$_{M_L^3}$贡献角度依赖性的振幅。后一结论已由我们此前CMOKE论文最后部分进行的数值模拟得到证实[64]。因此，通过结合八方向法与对所获得的Φ_{M_L}、$_{M_L^3}$ 贡献角度依赖性的分析，可以将纵向克尔光学二次效应分离出来。此外，公式（12）和公式（18）中还存在与 $M_T^2 M_L$和 $M_T M_L^2$成正比的贡献。然而，根据方程（19–22），在通过八方向法分离出的所有磁光克尔效应信号中，这些贡献都会被滤除。最后，从公式（12）和公式（18）来看，$\Phi_{M_L M_T}$ 的二次磁光克尔效应角度依赖性似乎应具有$\Phi_{M_T^2-M_L^2}$二次磁光克尔效应角度依赖性的两倍振幅。但需要注意的是，在按照公式（20）所述沿 45° 方向进行磁化对齐测量时，归一化磁化分量 M_L 和 M_T的乘积 $M_L M_T$ 实际上会产生一个因子 $\sin(\pi/4)\cdot\cos(\pi/4) = 1/\sqrt{(2)}\cdot 1/\sqrt{(2)} = 1/2$。因此，这里的 $\Phi_{M_L M_T}$ 和$\Phi_{M_T^2-M_L^2}$ 角度依赖关系的振幅最终是相同的。

贡献	偏移量	角度依赖性
纵向磁光克尔效应+纵向克尔磁光克尔效应 $\Phi_{M_L M_L^3}$	$\pm B_{s/p}\left[K+\frac{3}{4}(H_{123}+H_{125})\right]$	$\pm B_{s/p}\frac{1}{4}\Delta H\cos(4\alpha)$
横向克尔磁光克尔效应 $\Phi_{M_T^3}$	–	$\pm B_{s/p}\frac{1}{4}\Delta H\sin(4\alpha)$
二次磁光克尔效应 $\Phi_{M_L M_T}$	$\pm A_{s/p}\left(2G_{44}+\frac{1}{2}\Delta G-K^2/\varepsilon_d\right)$	$\mp A_{s/p}\frac{1}{2}\Delta G\cos(4\alpha)$
二次磁光克尔效应 $\Phi_{M_T^2-M_L^2}$	–	$\pm A_{s/p}\frac{1}{2}\Delta G\sin(4\alpha)$

表 I. 由八方向法分离的贡献（即根据式（12）和式（19-22））对磁光参数和样品取向角 α 的依赖性，适用于(001)取向立方晶体结构。

贡献	偏移量	角度依赖性
纵向磁光克尔效应+纵向克尔磁光克尔效应 $\Phi_{M_L,\ M_L^3}$	$\pm B_{s/p}\left[K+\frac{1}{2}-(H_{123}+3H_{125})\right]$	$-A_{s/p}\frac{\sqrt{2}}{6}(\Delta H+K\Delta G/\varepsilon_d)$正弦（$3\alpha$）
横向克尔磁光克尔效应 $\Phi_{M_T^3}$	–	$A_{s/p}\frac{\sqrt{2}}{6}(\Delta H+K\Delta G/\varepsilon_d)$余弦（$3\alpha$）
二次磁光克尔效应 $\Phi_{M_L M_T}$	$\pm A_{s/p}\left(2G_{44}+\frac{1}{3}\Delta G-K^2/\varepsilon_d\right)$	$-B_{s/p}\frac{\sqrt{2}}{3}\Delta G$正弦（$3\alpha$）
二次磁光克尔效应 $\Phi_{M_T^2-M_L^2}$	–	$-B_{s/p}\frac{\sqrt{2}}{3}\Delta G$余弦（$3\alpha$）

表 II. 通过八方向法分离的贡献（即根据式（18）和式（19 -22））对磁光参数和样品取向角的依赖关系 α 适用于(111)取向立方晶体结构。请注意，角度依赖贡献的符号取决于(111)取向立方晶体结构的面内参考取向 $\alpha = 0°$。相对于我们的参考取向（附录A中所述），相移 60° 或 180° 将使符号反转。

III. 实验观测与数值模型拟合

A. 样品描述与实验背景

本节介绍使用八方向法对两个样品进行的实验测量，即样品 Ni(111)：MgO(111)// Ni(22.5 纳米)/ 硅(2.2 纳米)/ 一氧化硅$_x$(0.9 纳米)，以及样品 Ni(001)：MgO(001)// Ni(18.8 纳米)/ 铂(2.2 纳米)。关于样品 Ni(111)的结构表征，参见文献[64]。关于样品 Ni(001)的结构表征，见附录C。简而言之，通过X射线衍射（XRD），包括镜面 $\Theta-2\Theta$ 扫描和非镜面欧拉摇摆台测量，可以证明两个样品中的Ni层均实现了良好的外延生长，并且Ni(111)层和Ni(001)层分别具有(111)和(001)取向。由于Ni倾向于形成面心立方晶体，因此(111)取向立方晶体结构的镍在MgO(111)上可能具有两种面内生长取向。事实上，Ni(111)样品中存在轻微的孪晶效应，但占主导地位的相位约占非镜面欧拉摇篮 X 射线扫描总强度的 95%[64]。

对两个样品进行的八方向法测量使用一套装置完成，该装置可在 0° 或 45° 入射角下测量磁光克尔效应响应，并可沿磁场的全部八个面内方向进行测量，如方程（19-22）所示。该装置可提供最高 235 mT 的磁场强度，足以使两个样品在全部八个面内方向上达到饱和。为获取实验分离出的各项贡献的角度依赖关系，该装置支持样品面内旋转。样品可通过可旋转、可倾斜的样品支架台进行精确对准。本研究所有测量中，八方向法测量均采用 3° 样品旋转步进。光源采用光纤耦合激光光源，激光二极管的波长分别为：635 纳米 ≈ 1.95 电子伏特和 406 纳米 ≈ 3.05 电子伏特。有关磁光克尔效应实验装置的更多信息，请参阅文献[71,72]。

将八方向法的实验结果与解析表达式进行比较，见

表 I 和表 II，据此评估每个分离贡献的振幅和偏移。为了能够从磁光参数出发有效描述并模拟实验数据，使用了基于 Yeh 的 4×4传输矩阵形式体系[66] 的内部开发 Python 代码。该模型基于单色平面波在多层结构中的相干传播，采用偏振本征模和麦克斯韦边界条件。模型的输入参数为层堆中每一层的 (i) 厚度（由 X 射线反射率（XRR）获得——见附录 C 及参考文献[64]）和 (ii) 介电常数（由椭偏测量获得——见附录 D 及参考文献[64]）。此外，(iii) 入射角和 (iv) 入射光的波长可直接由实验得知。样品的反射系数（从而克尔角）可针对任意 (v) 磁化方向和 (vi) 样品取向 α 进行计算（二者同样由实验得知），而 (vii) 磁光参数 K、G_s、 $2G_{44}$ 和 ΔH 则设为模型的自由参数。这使我们能够在经典电磁波光学的范围内数值再现八方向法的测量结果。随后，通过将该模型拟合至实验数据得到磁光参数。

克尔旋转 [毫度]				
	406 纳米		635 纳米	
	偏移量	三重振幅	偏移量	三重振幅
M_L, M_L^3	-29.65±0.02	0.47±0.02	-9.45±0.01	1.17±0.01
M_T^3	3.13±0.03	-0.43±0.04	0.86±0.02	-1.16±0.02
$M_L M_T$	-3.73±0.03	0.10±0.05	-1.22±0.02	-0.71±0.03
$M_T^2 - M_L^2$	0.32±0.03	0.02±0.04	0.14±0.02	-0.77±0.02
克尔椭圆率 [毫度]				
	406 纳米		635 纳米	
	偏移量	三重振幅	偏移量	三重振幅
M_L, M_L^3	4.24±0.01	1.44±0.02	17.71±0.01	0.95±0.01
M_T^3	0.48±0.01	-1.44±0.02	-1.49±0.02	-0.94±0.03
$M_L M_T$	-1.87±0.02	-1.03±0.02	3.73±0.02	0.23±0.03
$M_T^2 - M_L^2$	0.16±0.02	-1.16±0.03	-0.26±0.02	0.12±0.03

表 III. 如图 1 所示，通过八方向法在样品 Ni(111) 上实验测得的贡献的偏移量和三重对称振幅。

然而，在拟合过程中，我们无法独立确定所有磁光参数的数值。首先，对于（001）和（111）取向的立方晶体结构，LMOKE+LCMOKE 的偏移量由磁光参数 K、H_{123} 和 $3H_{125}$ 决定，因此我们无法独立评估它们对这一偏移量的贡献。其次，尽管可以根据 QMOKE $\Phi_{M_L M_T}$ 和 QMOKE $\Phi_{M_T^2-M_L^2}$角度依赖关系的振幅确定 ΔG 的数值，但对于（111）取向的立方晶体结构，由于我们并不确切知道 K的数值，因此无法准确评估 $K\Delta G/\varepsilon_d$ 对 LCMOKE 和 TCMOKE 角度依赖关系振幅的贡献。对于（001）取向的立方晶体结构，可以根据 LCMOKE 和 TCMOKE 的角度依赖关系确定 ΔH 的数值，但由于 $\Delta H = H_{123} - 3H_{125}$，我们无法单独确定 H_{123} 和 $3H_{125}$的具体数值。详见表 I 和表 II。尽管上述推理基于由公式（2）推导出的解析表达式，而数值模型并未使用这些表达式，但我们在数值模型中观察到了 K、H_{123} 和 $3H_{125}$ 之间的完全相关性。因此，为解决这一问题，在拟合程序中，我们采取了在描述实验数据时尽量减小三次磁光克尔效应的各向同性贡献（即磁光张量 $\boldsymbol{H}$的贡献）的策略。具体做法是固定 $3H_{125} = 0$，从而固定 $\Delta H = H_{123}$。

最后需要指出，尽管从定性的角度来看，对于（111）取向的立方晶体结构，似乎完全不需要磁光张量 $\boldsymbol{H}$ 的贡献（可见，LMOKE+LCMOKE 的偏移量仅由 K决定，而 LCMOKE 和 TCMOKE 的角度依赖关系则可仅由决定 $K\Delta G/\varepsilon_d$），但从定量角度来看，要描述样品 Ni(111) 的实验数据， $\boldsymbol{H}$ 的贡献不可或缺。若没有 $\boldsymbol{H}$，K 的数值由 LMOKE+LCMOKE 的偏移量给出，而 ΔG 的数值则由 QMOKE 的角度依赖关系给出。因此，$K\Delta G/\varepsilon_d$ 对 LCMOKE 和 TCMOKE 角度依赖关系的贡献相当微弱，无法单独描述实验数据，正如我们在先前的圆磁光克尔效应论文中所证明的那样[64]。

B. 样品 Ni(111) 的八方向法测量

图 1 中展示了样品 Ni(111) 的八方向法测量实验结果。通过八方向法分离出的克尔旋转和克尔椭圆率的各项贡献分别绘制于波长为 406 纳米时的图 1(a) 和 1(b) 中，而在波长为 635 纳米时分别绘制于图 1(c) 和 1(d) 中。所有这些测量均采用 p偏振入射光，并在入射角为 45° 时进行。图 1(a)-(d) 中的各项贡献均根据公式 (19-22) 测得。有关这些贡献的解析表达式，参见表 II。

显然，图中的大多数实验结果1 都与解析模型的预测非常吻合，只有两处例外。(i) 单重贡献存在于通过八方向法分离出的所有贡献中，但在纵向磁光克尔效应+纵向克尔磁光克尔效应和

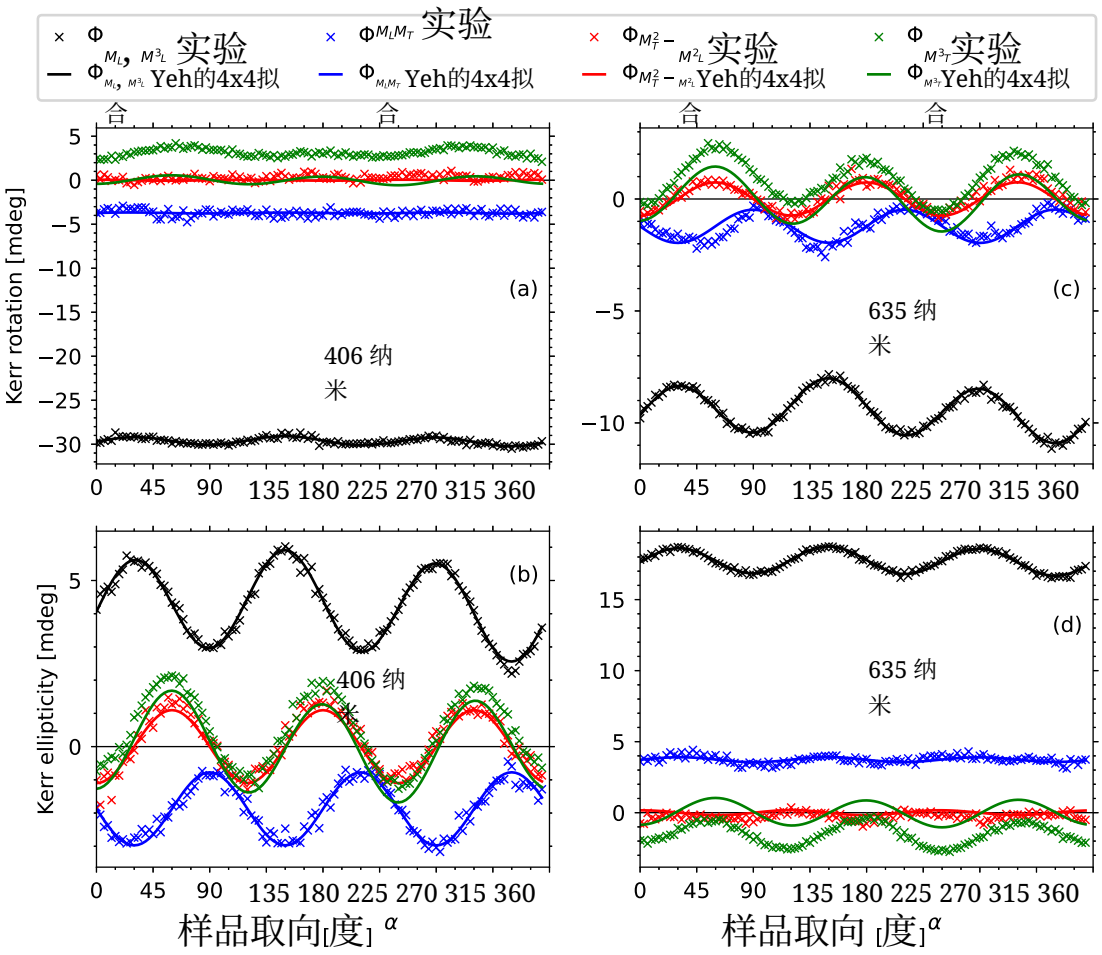


图 1. 使用 p偏振光、在入射角为 $45°$时，通过八方向法测量样品 Ni(111)。图中展示了 (a) 波长为 406 纳米时的克尔旋转和 (b) 克尔椭圆率，以及 (c) 波长为 635 纳米时的克尔旋转和 (d) 克尔椭圆率随面内样品取向 α 的变化。实验数据点以“x”标记绘出，实线则表示基于 Yeh 的 4×4 传递矩阵形式体系的数值模型对实验数据的拟合。

磁光参数	406 纳米	635 纳米
K	-0.0402±0.0005 -(0.1161±0.0005)i	-0.2490±0.0008 +(0.0114±0.0008)i
G_s	0.0041±0.0006 -(0.0017±0.0006)i	-0.0092±0.0010 -(0.0054±0.0010)i
$2G_{44}$	-0.0052±0.0003 -(0.0000(4)±0.0003)i	0.0044±0.0005 +(0.0087±0.0005)i
ΔG	0.0093±0.0009 -(0.0017±0.0009)i	-0.0136±0.0015 -(0.0141±0.0015)i
ΔH	0.0023±0.0003 +(0.0046±0.0003)i	0.0100±0.0004 +(0.0018±0.0004)i
偏切参数		
ε_S	0.0114±0.0096 -(0.0203±0.0096)i	0.0162±0.0093 -(0.0439±0.0093)i
α_1	-46°±23°	-46°±11 °

表 IV. 通过将 Yeh 的传输矩阵数值模型 4×4 拟合到实验数据而得到的样品 Ni(111) 的 Ni层磁光参数值，如图 1所示。列出 $\Delta G = G_s - 2G_{44}$ 的值以便与 ΔH进行比较。 ε_S 和 α_1 的值与 VISMOKE 相关，详见附录 E。

TCMOKE 贡献不由公式（18）描述，因此未在表II中显示。这一单重贡献源于邻晶表面与磁光学之间的相互作用，因此被命名为邻晶界面敏感磁光克尔效应（VISMOKE）[69]。需要注意的是，尽管解析公式中未显示该项，数值模型确实考虑了这一 VISMOKE 贡献，具体讨论见下文和附录E。（ii）实验数据中存在的 TCMOKE $\sim M_T^3$ 贡献无法由解析模型预测，数值模型同样无法对其进行描述。到目前为止，我们已排除实验装置中外磁场存在轻微失准这一可能的偏移量来源[64]，但仍需进一步研究才能确定该贡献的来源。

为评估每个贡献的振幅和偏移量，我们首先使用一个简单的方程描述数据

$$\Phi_x(\alpha) = A_3 \sin(3(\alpha - \alpha_3)) + A_1 \sin(\alpha - \alpha_1) + C. \quad (23)$$

这里，$x = \{(M_L, M_L^3)\ M_T^3、\ M_L M_T、\ (M_T^2 - M_L^2)\}$，偏移量由 C描述，三重角依赖的振幅由 A_3 描述，而相移 α_3 描述了样品在装置中的可能失准（经发现可忽略），并且/或者通过提供 $90°$ 相移来描述具有 cos(3α)依赖关系的贡献。单重角度依赖性的振幅 A_1 及相移 α_1 源于 VISMOKE，不在本文的研究重点之内。相移 α_1与通过 XRD 检测到的表面邻晶方向之间的相关性，已在我们先前的工作[64]中讨论过。表 III 给出了偏移量和振幅。需要注意的是，对于图 1 所示的四种情况（406 纳米 / 635 纳米、克尔旋转 / 克尔椭圆率），LCMOKE 的绝对振幅与 TCMOKE 的绝对振幅几乎相同，这与理论预测一致。其符号也符合表 II 所示的预测。QMOKE$\sim M_L M_T$和 QMOKE$\sim (M_T^2 - M_L^2)$ 贡献的振幅和符号也与表 II 的预测高度一致，但图 1(a) 和 (d) 的情况除外；在这两种情况下，这些角度依赖关系的振幅接近于零，因此信噪比较低，导致拟合效果较差，振幅绝对值也存在细微差异。

图 1 中的实线表示将 Yeh 的4×4 传递矩阵模型拟合到实验数据所得的结果。将磁光参数 K、G_s、$2G_{44}$和 ΔH，以及邻晶表面的参数 ε_S 和 α_1 （见附录 E）设为自由参数。拟合所得的数值列于表 IV。可以看出，从绝对值来看，磁光张量 $\boldsymbol{H}$ 的各向异性强度（由 ΔH 表示）约为磁光张量 $\boldsymbol{G}$ 的各向异性强度（由ΔG表示）的一半。然而，从表 III 可以看出，三次磁光克尔效应角度依赖关系的振幅略强于二次磁光克尔效应角度依赖性的振幅。原因在于 ΔG 由 B_p 加权，而 ΔH由 A_p加权，同时 $A_{s/p}$ 往往强于 $B_{s/p}$。考虑 LinMOKE 近似下的纵向磁光克尔效应$=\pm B_{s/p} K M_L$ 和极向磁光克尔效应$=A_{s/p} K M_P$，而极向磁光克尔效应通常强于纵向磁光克尔效应[67]，，这是因为其通常更强的 $A_{s/p}$ 参数相较于 $B_{s/p}$。

在图 2 中，我们展示了法向入射角下样品 Ni(111) 的八方向法测量结果。尽管在样品角度依赖关系的第一个 $120°$ 范围内噪声水平较高，但仍可清楚看到，三次磁光克尔效应中表现出的三重角度依赖性，即 LMOKE+LCMOKE $\Phi_{M_L、M_L^3}$ 以及 TCMOKE $\Phi_{M_T^3}$，依然存在，因为它们取决于 A_p；该量关于入射角为偶函数，并且在正入射时非零。另一方面，QMOKE$\Phi_{M_L M_T}$ 和 QMOKE $\Phi_{M_T^2 - M_L^2}$ 的三重角度依赖性已经消失，因为它们取决于 B_p；该量关于入射角为奇函数，因此在正入射时为零。

图 2 中的实线表示使用 Yeh 的 4×4 传递矩阵形式计算得到的结果，而所有参数均采用表 IV 中的数值固定，即图 2 中的实线是基于对入射角为 $45°$ （图 1）时测量获得的实验数据进行数值模型拟合后，对法向入射角下八方向法测量结果的预测。可以看出，模型预测与实验结果吻合良好。唯一的例外是 QMOKE 的克尔旋转偏移量 $\Phi_{M_L M_T}$，模型值与实验值略有不同。数值模型略微高估了 LMOKE+LCMOKE $\Phi_{M_L、M_L^3}$ 以及 TCMOKE $\Phi_{M_T^3}$ 角度依赖关系的振幅。实验数据中 LMOKE+LCMOKE $\Phi_{M_L贡献的极小偏移 M_L^3}$ 在一定程度上可以由实验中的入射角并非完全为法向入射来解释。TCMOKE $\Phi_{M_T^3}$ 贡献的偏移已在图 1 中出现，目前其来源尚不清楚。

C. Ni(001)样品的八方向法测量

在图 3 中，我们给出了 Ni(001) 样品八方向法测量的实验结果，测量使用 p偏振入射光，入射角为 $45°$。对于 406 纳米波长，经八方向法分离的对克尔旋转和克尔椭圆率的各项贡献分别绘制于图 3(a) 和图 3(b)。对于 635 纳米波长，对克尔旋转和克尔椭圆率的贡献分别绘制于图 3(c) 和图 3(d)。由式 (12) 和式 (19-22) 给出的各项贡献的解析表达式汇总于表 I。

二次磁光克尔效应 $\sim M_L M_T$ 和二次磁光克尔效应 $\sim (M_T^2 - M_L^2)$ 各向异性在（001）取向的立方晶体结构中表现为四重角度依赖关系，这一点已广为人知，并得到文献中多项研究的证实[21, 39, 41, 43, 44, 48–50]。加入磁化强度三阶贡献后，式（12）进一步预言，三次磁光克尔效应也具有四重角度依赖关系，可在.....中观

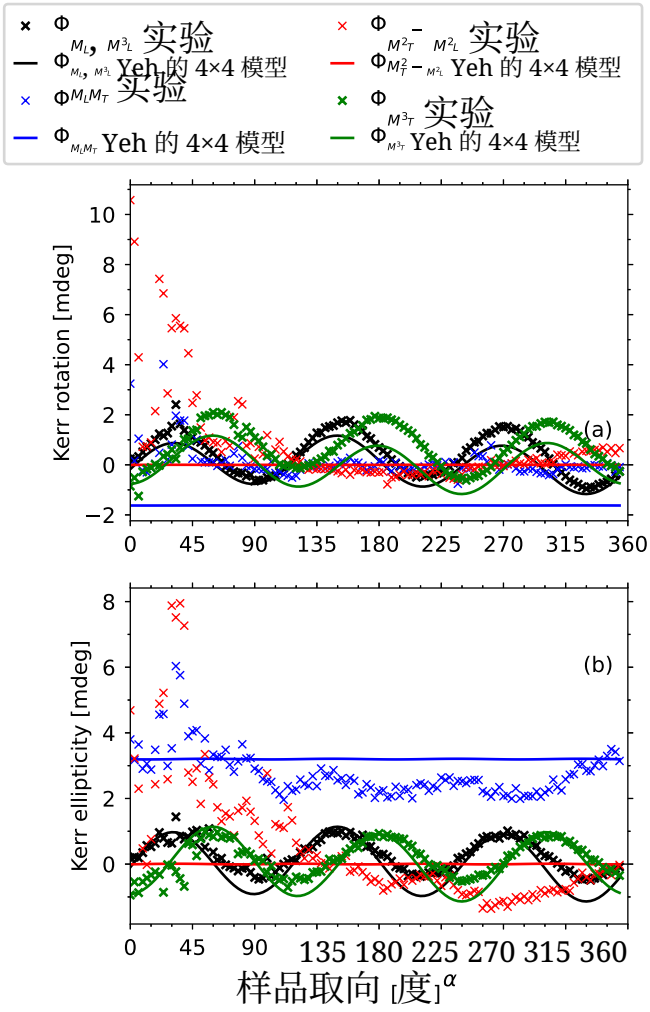


图2。采用八方向法测量在法向入射角和波长为 635纳米条件下的 Ni(111)样品。实线表示 Yeh 的 4×4 传输矩阵数值模型的预测结果，该模型使用了表 IV 中的磁光参数。

测量中观测到纵向克尔磁光克尔效应 $\sim M_L^3$ 和横向克尔磁光克尔效应 $\sim M_T^3$。图 3中，这种角度依赖关系仅在实验测量的横向克尔磁光克尔效应贡献中可观测到，而纵向磁光克尔效应+纵向克尔磁光克尔效应贡献中则观测不到四重角度依赖关系。这与式（12）的描述相矛盾。纵向磁光克尔效应+纵向克尔磁光克尔效应和横向克尔磁光克尔效应的一重对称性源于 VISMOKE，如上文及附录E所述。

在表 V 中，我们给出了偏移量和振幅 A_4 ，以及图 3 中每个磁光克尔效应贡献的四重角度依赖关系。相关数值通过对简单模型进行拟合

$$\Phi_x(\alpha) = A_4\sin(4(\alpha-\alpha_4)) + A_1\sin(\alpha-\alpha_1) + C \quad (24)$$

对通过八方向法在实验上分离出的每一项磁光克尔效应贡献，其中 $x = \{(M_L, M_L^3)\ M_T^3, M_L M_T, (M_T^2 - M_L^2)\}$。

克尔旋转 [毫度]				
	406 纳米		635 纳米	
	偏移量	四重振幅	偏移量	四重振幅
M_L, M_L^3	-20.00±0.02	0.08±0.03 (0.38)	-5.12±0.01	-0.02±0.02 (0.05)
M_T^3	1.16±0.02	1.08±0.03 (0.38)	0.13±0.01	0.30±0.01 (0.05)
$M_L M_T$	-2.08±0.04	-4.26±0.06	-0.85±0.02	1.35±0.03
$M_T^2 - M_L^2$	0.30±0.04	4.68±0.06	0.15±0.01	-1.28±0.02

克尔椭圆率 [毫度]				
	406 纳米		635 纳米	
	偏移量	四重振幅	偏移量	四重振幅
$M_L,\ M_L^3$	17.30±0.01	-0.10±0.02 (-0.07)	16.82±0.01	0.07±0.02 (-0.16)
M_T^3	-1.66±0.02	-0.95±0.03 (-0.07)	-0.13±0.02	-0.86±0.02 (-0.16)
$M_L M_T$	-0.02±0.02	1.53±0.03	1.91±0.03	5.36±0.04
$M_T^2 - M_L^2$	-0.13±0.02	-1.68±0.03	-0.23±0.03	-5.65±0.04

表 V. 图中所示样品 Ni(001) 的八方向测量所得四重振幅和偏移量。 3。括号中的数字为四重角度依赖振幅 $A4$ 由固定参数下的数值模型预测 ΔH （参见正文中的说明）。

图 3 中的实线给出了 Yeh 的 4×4传递矩阵数值模型对实验数据的拟合。我们设定 K， G_s 以及 $2G_{44}$ （连同偏切参数 ε_S和 α_1）为自由参数。由于纵向克尔磁光克尔效应和横向克尔磁光克尔效应的角度依赖关系在振幅上存在差异，而该模型（无论解析模型还是数值模型）都无法描述这一差异，因此我们决定将 ΔH固定为表 IV中的取值。请注意，根据表 IV中的数值所得到的预测振幅，更符合纵向克尔磁光克尔效应$\sim M_L^3$ 的实验测量结果，而非横向克尔磁光克尔效应$\sim M_T^3$ 的实验结果。需要注意的是，同种材料的磁光参数从不同样品中测得时，可能会有不同程度的差异[21]，本例中便是如此（比较表 IV和VI中的数值）。因此，将 ΔH 固定为从样品 Ni(111)测得的数值，只能粗略估算样品 Ni(001)中的三次磁光克尔效应角度依赖关系，但其数量级应当是可靠的。此外，这也使我们能够展示相同的立方磁光参数在(001)取向与(111)取向的立方晶体结构中的表现差异。结果表明，在(001)取向的立方晶体结构中，由于前因子 B_p 的作用，三次磁光克尔效应不太显著，后文将对此进行讨论。对于纵向克尔磁光克尔效应$\sim M_L^3$和横向克尔磁光克尔效应$\sim M_T^3$，四重角度依赖关系的振幅值

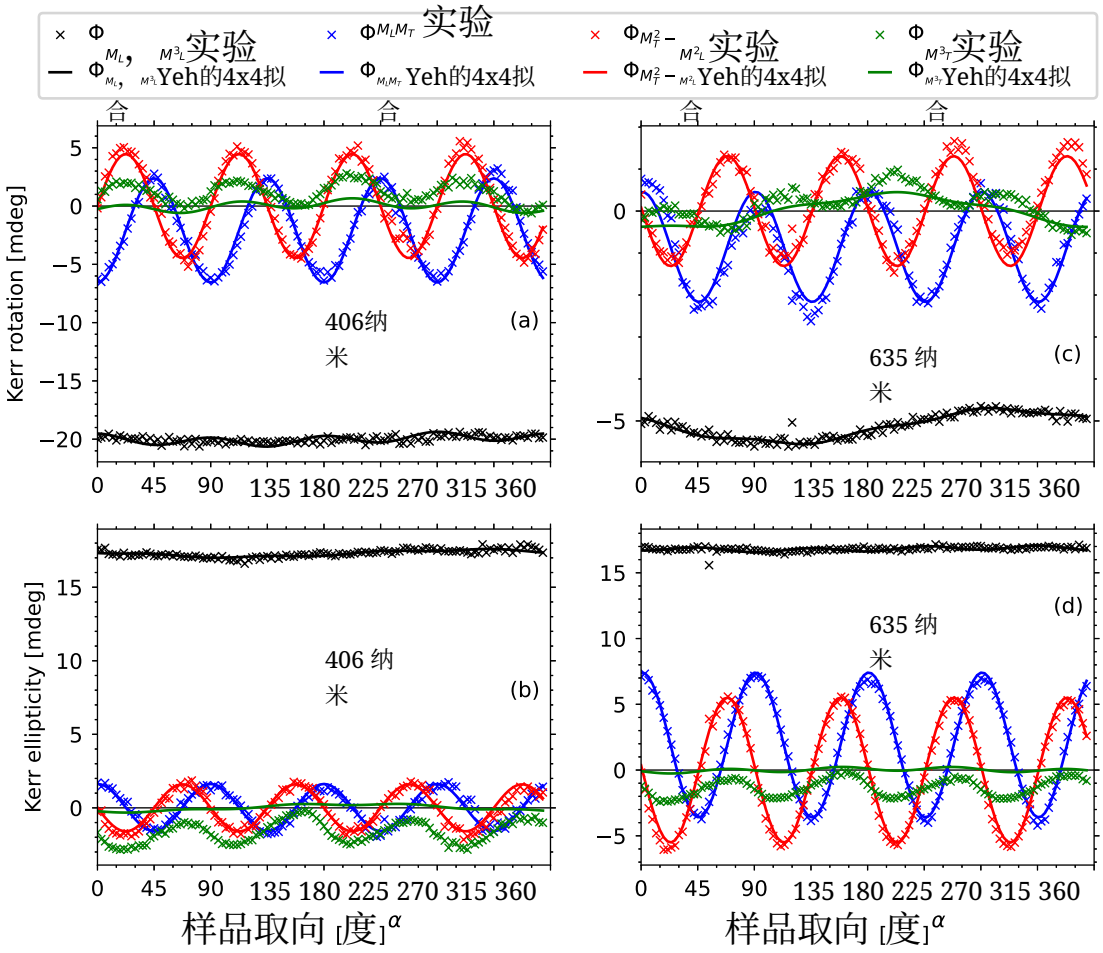


图 3. 使用 p 偏振光、入射角为 $45°$ 时，通过八方向法测量样品 Ni(001)。图中展示了在波长为 406 纳米时，(a) 克尔旋转和 (b) 克尔椭圆率随面内样品取向 α 的变化；以及在波长为 635 纳米时，(c) 克尔旋转和 (d) 克尔椭圆率随面内样品取向的变化。实验数据点以“x”标记绘出，实线则表示基于 Yeh 的 4×4 转移矩阵形式体系的数值模型对实验数据的拟合。

A_4 由数值模型在固定 ΔH 条件下预测的数值列于表 V的括号中。

IV. 讨论

A. 排除寄生角度依赖效应

如上所述，三次磁光克尔效应理论能够很好地描述样品 Ni(111) 中观测到的各向异性，但对样品 Ni(001) 的解释效果不佳，因为其横向克尔磁光克尔效应的角度依赖关系与纵向克尔光学二次效应贡献具有不同的振幅，而这无法用三次磁光克尔效应贡献来解释。因此，可以质疑是否存在其他效应，导致样品 Ni(111) 中出现这些纵向和横向克尔磁光克尔效应的角度依赖关系。

首先，面内磁晶各向异性效应可能提供与纵向克尔磁光克尔效应中所观察到的相似的角度依赖关系 $\sim M_L^3$ 以及横向克尔磁光克尔效应 $\sim M_T^3$如果对于某些样品取向，该 $\boldsymbol{M}$ 未被外磁场在纵向或横向方向上完全饱和，而对于另一种样品取向 α 则已被完全饱和。这种面内磁晶各向异性对于样品 Ni(111) 可能具有三重对称性，恰好与二次磁光克尔效应和三次磁光克尔效应贡献的对称性相同。然而需注意，若情况果真如此，则纵向克尔磁光克尔效应和横向克尔磁光克尔效应的角度依赖关系在法向入射角下应当消失，因为纵向磁光克尔效应 $\sim B_{s/p}$。如图 2 所示，纵向克尔磁光克尔效应和横向克尔磁光克尔效应的三重角度依赖关系在法向入射角下十分显著，这与三次磁光克尔效应理论相符，其中该角度依赖性与光学因子成正比 $A_{s/p}$。此外，如先前工作中所讨论的[64]，磁剩磁和矫顽力的角度依赖性呈现二重

磁光参数	406 纳米	635 纳米
K	-0.0753±0.0003 -(0.0505±0.0003)i	-0.2756±0.0008 -(0.0370±0.0008)i
G_s	0.0017±0.0001 -(0.0022±0.0001)i	-0.0069±0.0001 -(0.0079±0.0001)i
$2G_{44}$	-0.0037±0.0001 +(0.0020±0.0001)i	0.0035±0.0001 +(0.0095±0.0001)i
ΔG	0.0054±0.0002 -(0.0042±0.0002)i	-0.0104±0.0002 -(0.0174±0.0002)i
ΔH (固定)	0.0023+0.0046i	0.0100 +0.0018i
偏切参数		
ε_S	-0.0130±0.0068 +(0.0296±0.0068)i	-0.0299±0.0080 +(0.0557±0.0080)i
α_1	-22°±12°	-20°±7°

表 VI. 通过将 Yeh 的 4×4 传递矩阵数值模型拟合到实验数据（如图3所示），得到样品 Ni(001) 的 Ni 层磁光参数值。为与 $\Delta G = G_s - 2G_{44}$ 进行比较，列出了 ΔH的值，其中ΔH 固定为表IV 中的值。 ε_S 和 α_1 的值与 VISMOKE 有关，具体说明见附录E。

对称性，而非三重对称性，从而支持如下论断：磁晶各向异性并不能导致此处被解释为三次磁光克尔效应的角度依赖性。

其次，我们的方程和 Yeh 的 4×4 传递矩阵模型仅假设存在面内磁化，而将 $\boldsymbol{M}$ 的面外分量设为零。如第 II 节所述，对于 (001) 取向的立方晶体结构，考虑 M_P 时不会引入新的各向异性。对于 (111)取向立方晶体结构，则存在新的二次磁光克尔效应各向异性项 $M_L M_P$ 和$M_T M_P$（将在第 II C 节末讨论），它们对样品取向α 的依赖关系与三次磁光克尔效应贡献相同。尽管如此，如果在施加纵向外磁场时， $\boldsymbol{M}$ 的M_P 分量与M_L 分量同时存在，就会产生显著的极向磁光克尔效应$\sim M_P$ 偏移贡献。在图2所示的法向入射角测量中，我们并未观察到这种现象。此外，潜在二次磁光克尔效应各向异性项 $M_L M_P$ 和 $M_T M_P$ 的符号会随入射光偏振的改变而改变，而三次磁光克尔效应贡献则不会。附录 F 中，我们对样品 Ni(111) 在波长为 488 纳米和 670 纳米时，分别使用 s偏振光和 p偏振光进行的八方向法测量结果作了比较。请注意，纵向克尔磁光克尔效应 $\sim M_L^3$ 和横向克尔磁光克尔效应 $\sim M_T^3$ 的振幅符号不受偏振变化的影响，这与三次磁光克尔效应理论的预测一致（见表 II）。因此，这排除了所观察到的角度依赖关系源自二次磁光克尔效应 $\sim M_L M_P$和二次磁光克尔效应 $\sim M_T M_P$ 的可能性。

第三，VISMOKE 的磁化高阶贡献可能会模拟 CMOKE 的角度依赖关系。然而，这也不可能是样品 Ni(111) 中 LCMOKE $\sim M_L^3$和 TCMOKE $\sim M_T^3$ 三重角依赖的来源。正如附录 E中所讨论的，这种高阶 VISMOKE 的对称性会有所不同。此外，使用 Yeh 的 4×4传输矩阵形式体系的数值模型已经涵盖了这种贡献的影响，而不含该参数的 VISMOKE 效应数值模型——法描述样品 Ni(111) 的数据，正如我们尝试后未能成功所表明的那样。

因此，我们得出结论：图 $\sim M_L^3$ 1 所示样品 Ni(111) 的纵向克尔磁光克尔效应$\sim M_T^3$ 和横向克尔磁光克尔效应所呈现的三重角度依赖性源于三次磁光克尔效应，其由磁光参数$\Delta H + K\Delta G/\varepsilon_d$描述，其中 ΔH 发挥了主要作用[64]。在样品 Ni(001) 的测量中，纵向磁光克尔效应+纵向克尔磁光克尔效应 $\sim M_L$未观察到四重角度依赖性，其原因可能在于 M_L^3与表 $B_{s/p}$ I 和II所示的(001)取向立方晶体结构的三次磁光克尔效应角度依赖性相关的光学权重因子相比，(111)取向立方晶体结构的三次磁光克尔效应角度依赖性所对应的光学权重因子可能有所不同。

B. 不同三次磁光克尔效应贡献中光学权重因子的作用

为了更好地展示光学权重因子的这一效应，我们（基于Yeh的4×4 矩阵形式体系）对(001)取向和(111)取向立方晶体结构进行了八方向法及其对入射角依赖关系的模拟。对于这两种晶体学取向，我们使用完全相同的输入参数。磁光参数选取为 $K = 0 + 0i$、 $G_s = 0.01 + 0.01i$、 $2G_{44} = 0 + 0i$、 $H_{123} = 0.01 + 0.01i$ 和$3H_{125} = 0 + 0i$，由此得到 $\Delta G = \Delta H = 0.01 + 0.01i$。采用这些磁光参数，我们仅模拟源自 ΔG 的二次磁光克尔效应角度依赖关系，以及源自 ΔH的三次磁光克尔效应角度依赖关系，并在(111)取向立方晶体结构的三次磁光克尔效应情形下抑制贡献 $K\Delta G/\varepsilon_d$ 。结构和光学参数取自样品 Ni(111)，而本次模拟完全未考虑 VISMOKE，因此 $\varepsilon_S = 0$。模拟在635纳米的波长下、针对 p偏振光进行。这样，我们可以清楚地比较光学权重因子 A_p 和 B_p的影响，以及振幅

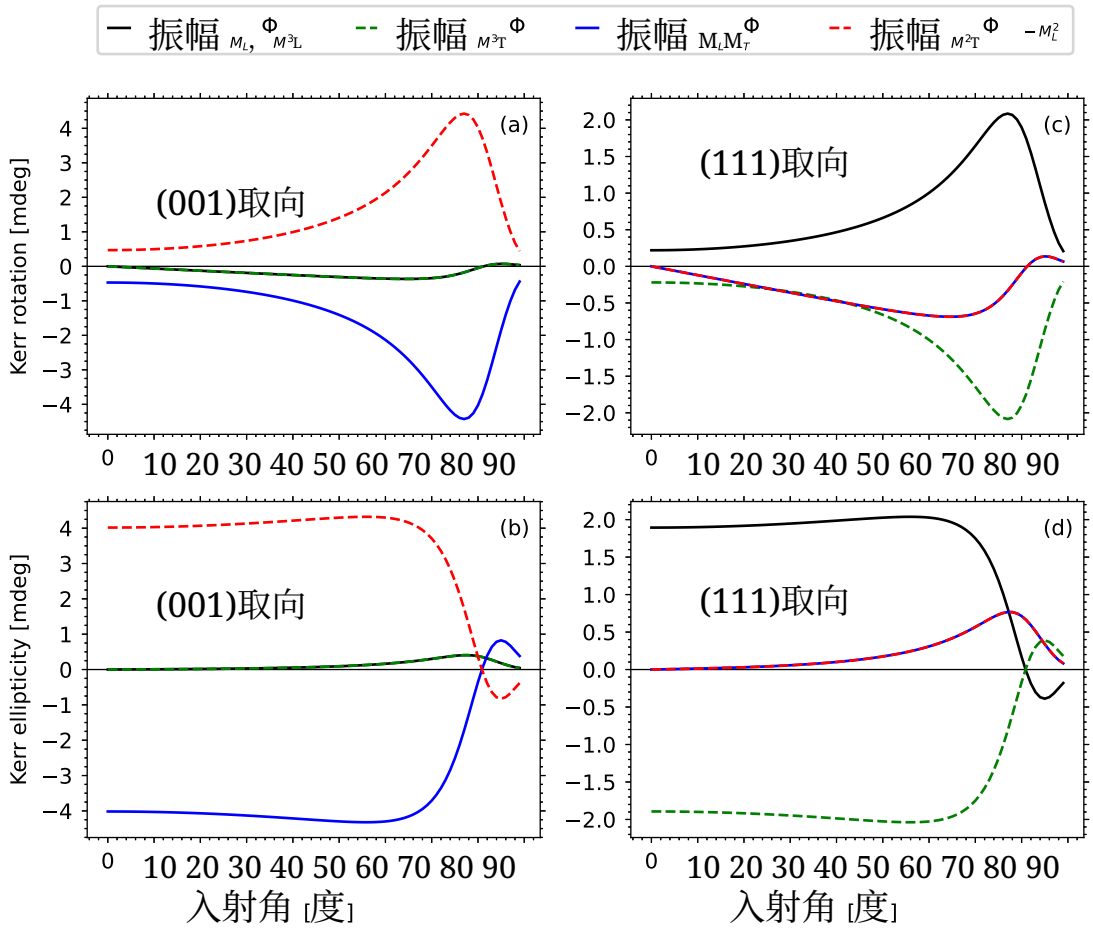


图 4. (a)、(c) 为克尔旋转，(b)、(d) 为克尔椭圆率；它们表示 (001)取向的立方晶体结构的四重角度依赖性振幅 (a)、(b)，以及 (111)取向立方晶体结构的三重角依赖振幅 (c)、(d) 随入射角的变化。数据采用基于 Yeh 的 4×4 矩阵形式的数值模型进行模拟，结构和光学参数取自样品 Ni(111)，但磁光参数设为 $K = 0 + 0i$、$\Delta G = 0.01 + 0.01i$ $G_s = 0 + 0i$ $2G_{44} = 0.01 + 0.01i$ $\Delta H = 0.01 + 0.01i$ $H_{123} = 0.01 + 0.01i$（其中和）以及（其中和 $H_{125} = 0 + 0i$）。此处的偏切结构参数为 $\varepsilon_S = 0$。模拟采用 635 纳米波长。

在(001)取向与(111)取向立方晶体结构之间如何变化，以及在每种晶体学取向下三次磁光克尔效应振幅的数值与二次磁光克尔效应振幅的数值如何比较。

在图 4 中，我们展示了 QMOKE 和三次磁光克尔效应角度依赖关系的振幅，以及它们随入射角的变化，涵盖 (001) 和 (111) 取向的立方晶体结构。图 4(a) 和 (b) 分别展示了采用八方向法分离出的、具有 (001) 取向立方晶体结构的各项贡献的四重角度依赖振幅对应的克尔旋转和克尔椭圆率。图 4(c) 和 (d) 分别展示了采用八方向法分离出的、具有 (111) 取向立方晶体结构的各项贡献的三重角依赖振幅对应的克尔旋转和克尔椭圆率。

对于 (001) 取向的立方晶体结构，三次磁光克尔效应的角度依赖振幅 A_4 约为一

比二次磁光克尔效应小一个数量级。唯一的例外是入射角在 80°附近时的克尔椭圆率，此时由于二次磁光克尔效应振幅的数值减小（如图4(b)所示），三次磁光克尔效应与二次磁光克尔效应的角度依赖性振幅可以相当。考虑到在实际样品中 ΔH 很可能小于 ΔG （经验上，磁光参数往往随磁化阶次升高而变弱），而且即便探测二次磁光克尔效应的角度依赖性本身也并非一项简单的磁光克尔效应测量，这意味着在(001)取向的立方结构中探测三次磁光克尔效应将是一项具有挑战性的任务，并且很容易在信号噪声中丢失或被忽略。这或许可以解释为何迄今尚未在(001)取向立方晶体结构中观测到纵向磁光克尔效应+纵向克尔磁光克尔效应的四重角度依赖性。尽管已有研究在(001)取向立方晶体的测量中报道了纵向磁光克尔效应信号存在轻微的四重角度依赖性[48–50, 73, 74] 但作者并未给出明确的解

释来说明所观察到的行为，而我们可以排除三次磁光克尔效应作为此处的起源，因为所有数据均是在正入射条件下采集的。在掠入射角下进行测量，将是在(001)取向立方晶体结构中探测三次磁光克尔效应的适宜方法，而这属于未来研究的范围。

对于(111)取向立方晶体结构，情况大不相同。可以看出，三次磁光克尔效应角度依赖关系的振幅甚至比二次磁光克尔效应的振幅更加显著。对于图 4(c) 中的克尔旋转，在 20° 至 50°之间，三次磁光克尔效应和二次磁光克尔效应的振幅大小相当，但在其他角度下，三次磁光克尔效应的振幅更强。对于克尔椭圆率，在入射角约为 75°之前，三次磁光克尔效应的振幅占主导；在更大的掠入射角下，三次磁光克尔效应的振幅减小，并与二次磁光克尔效应的振幅相当。这表明，对于(111)取向立方晶体结构，三次磁光克尔效应的振幅至少与二次磁光克尔效应相当，但大多数情况下更强。例如，在图 1(d) 中，二次磁光克尔效应的角度依赖关系几乎不可见，而三次磁光克尔效应的角度依赖关系则十分显著。不过，光子波长的影响同样重要，并可能改变上述行为。因此，未来绝对有必要开展纵向克尔磁光效应光谱学研究，并将纵向克尔磁光效应光谱与二次克尔磁光效应光谱进行比较，从而确定在不同晶体取向下，三次磁光克尔效应或二次磁光克尔效应占主导的能量。最后需要指出，对于(111)取向立方晶体结构，三次磁光克尔效应相比二次磁光克尔效应具有优势，因为三次磁光克尔效应在法向入射角下具有非零的角度依赖振幅，可将其用于各种应用，正如本文引言部分所述。

C. 样品 Ni(001) 的横向克尔磁光克尔效应角度依赖关系

由于我们无法解释样品 Ni(001)中 TCMOKE 角度依赖关系的强烈幅值，因此我们倾向于认为这并非完全由三次磁光克尔效应所致。原因在于，纵向克尔磁光克尔效应 $\sim M_L^3$和横向克尔磁光克尔效应 $\sim M_T^3$的角度依赖关系幅值并不相符；而要描述样品 Ni(001)的横向克尔磁光克尔效应角度依赖关系，所需的 ΔH 值将显著高于样品 Ni(111)中测得的值。最后，需要指出的是，样品 Ni(001)的横向克尔磁光克尔效应角度依赖关系似乎并非纯正弦曲线（见图 3(a) 和 (d)）。此外，两个样品中呈现的横向克尔磁光克尔效应贡献的偏移量无法用理论解释。由于采用八方向法时，文献中通常不会给出横向方向上的磁光克尔效应测量结果，即式（22），因此我们无法将实验观察结果与其他已发表的结果进行比较。所观察到的效应可能源于生长在氧化镁(001)衬底上的 Ni(001)层与生长在氧化镁(111)衬底上的 Ni(111)层之间存在不同的应变——与生长在氧化镁(111)衬底上的 Ni(111)层相比，生长在氧化镁(001)衬底上的 Ni(001)层应变不同。因此，还需要进一步实验分析横向克尔磁光克尔效应的角度依赖性，以确定其额外起源。

五、结论

我们详细阐述了（001）和（111）取向立方晶体结构中磁化强度三次项对磁光克尔效应的贡献。我们将根据所建立方程预测的三次磁光克尔效应各向异性，与两个具有（001）和（111）取向立方晶体结构的面心立方镍样品的实验测量结果进行了比较。我们还采用 Yeh 的 4×4传递矩阵形式对实验数据进行了唯象描述。我们使用磁光参数 H_{123} 和 H_{125}描述三次磁光克尔效应的贡献，并使用磁光参数 K 描述线性磁光克尔效应，使用磁光参数 G_s 和 $2G_{44}$ 描述二次磁光克尔效应。随后使用参数 $\Delta H = H_{123} - 3H_{125}$ 描述三次磁光克尔效应的各向异性。只有某些贡献的偏移量以及样品 Ni(001) 中横向克尔磁光克尔效应角度依赖关系的振幅未能得到良好描述。除此之外，与镍样品的实验观测结果相比，该三次磁光克尔效应模型对所有各向异性、入射角依赖关系以及入射光偏振依赖关系的预测均较为准确。

通过比较(001)与(111)取向立方晶体结构的方程，并利用 ΔH 这一实验所得数值，我们得出结论：三次磁光克尔效应在(111)取向立方晶体结构中表现显著，但在(001)取向立方晶体结构中受到抑制，其中二次磁光克尔效应的角度依赖性占主导。此外，对于(001)取向立方晶体结构，三次磁光克尔效应的角度依赖性在法向入射角下消失，但二次磁光克尔效应角度依赖性仍然存在。然而，对于(111)取向立方晶体结构，情况正好相反。在此，角度依赖关系的三次磁光克尔效应振幅比二次磁光克尔效应的角度依赖关系更为显著，并且在法向入射角下也存在，而二次磁光克尔效应振幅则消失。因此，可以断定三次磁光克尔效应最近已在(111)取向样品中被观测到[64,65]，，而对(001)取向立方晶体结构中三次磁光克尔效应的明确实验观测仍有待实现。

致谢

我们谨此感谢“可持续发展材料与技术”项目（CZ02.01.01/00/22008/0004631），该项目由欧盟和捷克国家预算资助，属于扬·阿莫斯·夸美纽斯运营计划框架内的“先进

能源与环境技术材料”（CZ.02.01.01/00/23021/0008592）项目及“RE-FRESH” -(CZ.10.03.01/00/22 003/0000048）项目。另获 GACR（25-15775S）以及捷克共和国教育、青年和体育部（SP2025/090）的资助。

感谢 G. Reiss 提供实验室设备。

数据可用性

支持本研究结果的所有数据均可从 Zenodo 仓库下载[75]。

附录A：符号约定

我们采用负时间约定，即 $\boldsymbol{E}(\boldsymbol{r},t) = \boldsymbol{E}(\boldsymbol{r})e^{-i\omega t}$，介电常数的形式为 $\varepsilon = \Re(\varepsilon) + i\Im(\varepsilon)$，其中复介电常数的虚部为 $\Im(\varepsilon) > 0$。晶体结构、样品和磁化强度的旋转发生在右手$\hat{}x$、$\hat{}y$、$\hat{}z$ 坐标系中，入射光束和反射光束则在如图A.1所示的$\hat{s}$、$\hat{}p$、 k 坐标系中描述。观察样品顶面时，样品和磁化强度的正向旋转为顺时针方向（即，指向$\hat{}x$ 方向的矢量旋转至$\hat{}y$方向）。样品的反射用琼斯形式中的反射矩阵描述

$$\boldsymbol{R} = \begin{bmatrix} r_{ss} & r_{sp} \\ r_{ps} & r_{pp} \end{bmatrix}. \tag{A1}$$

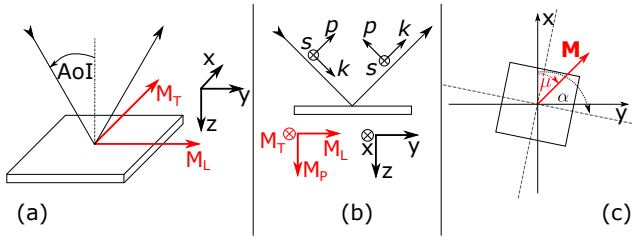
绕$\hat{}z$ 轴旋转角度 α 的笛卡尔矢量旋转表示为

$$\boldsymbol{a}^{\hat{z}} = \begin{bmatrix} \cos\alpha & -\sin\alpha & 0 \\ \sin\alpha & \cos\alpha & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}, \tag{A2}$$

分别。

对于(001)取向的立方晶体结构，参考取向（即样品取向 $\alpha = 0$）对应于 [100]方向平行于我们坐标系的$\hat{}x$ 轴，而 [001] 方向平行于我们坐标系的$\hat{}z$轴。对于(111)取向立方晶体结构，参考取向（即样品取向 $\alpha = 0$）对应于 [-211] 方向平行于我们坐标系的$\hat{}x$轴，而 [111] 方向平行于我们坐标系的$\hat{}z$轴。要在这两种参考取向之间进行转换，需使用式13 中的变换矩阵。

有关符号约定的更详细说明，请参见文献[21]。



图A.1。（a）入射面与样品表面共同定义了笛卡尔坐标系$\hat{x}$、$\hat{y}$、$\hat{z}$，其中$\hat{x}$ 垂直于入射面并平行于样品表面。（b）入射光束和反射光束的$\hat{s}$、$\hat{}p$、$\hat{}k$ 笛卡尔坐标系的定义，以及归一化磁化分量 $M_T \parallel \hat{x}$、 $M_L \parallel \hat{y}$ 和 $M_P \parallel \hat{z}$方向的定义。（c）在$\hat{x}$、$\hat{y}$、$\hat{z}$ 坐标系中，样品及其磁化强度正向面内旋转的示意图，分别由角度 α 和μ描述。该图摘自参考文献[21] ，并略作修改。

附录 B：H 张量的推导

磁光张量 $\boldsymbol{H}$ 的推导步骤参考了文献[35,67]中磁光张量 $\boldsymbol{K}$ 和 $\boldsymbol{G}$的推导。考虑到昂萨格关系$\varepsilon_{ij}(\omega, \boldsymbol{M}) = \varepsilon_{ji}(\omega, -\boldsymbol{M})$，其中 ω为电磁波的频率，我们可以写出磁光张量 $\boldsymbol{H}$各元素的以下规则。

$$H_{iiklm} = 0, \tag{B1}$$

且在置换 $k \leftrightarrow l \leftrightarrow m$ 下保持不变，并与 $i \leftrightarrow j$反对称，因此得到

$$\begin{aligned} H_{ijklm} = H_{ijkml} = H_{ijlkm} = H_{ijlmk} = H_{ijmkl} = H_{ijmlk} \\ = -H_{jiklm} = -H_{jikml} = -H_{jilkm} = -H_{jilmk} \\ = -H_{jimkl} = -H_{jimlk}. \end{aligned} \tag{B2}$$

此外，适用以下对称操作：绕二重轴 $\hat{}x$、$\hat{}y$ 和 $\hat{}z$旋转，表示为

$$\begin{aligned} C_{2x} = \begin{bmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix}, C_{2y} = \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix}, \\ \text{and} \quad C_{2z} = \begin{bmatrix} -1 & 0 & 0 \\ 0 & -1 & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{bmatrix}, \end{aligned} \tag{B3}$$

分别。此外，我们可以绕三重轴 C_3 （绕 [111] 方向）旋转，也可以绕二重轴 C_{2a} （绕 [011] 方向）旋转。

$$C_3 = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 1 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 1 & 0 \end{bmatrix}, \quad C_{2a} = \begin{bmatrix} 0 & 1 & 0 \\ 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & -1 \end{bmatrix}. \tag{B4}$$

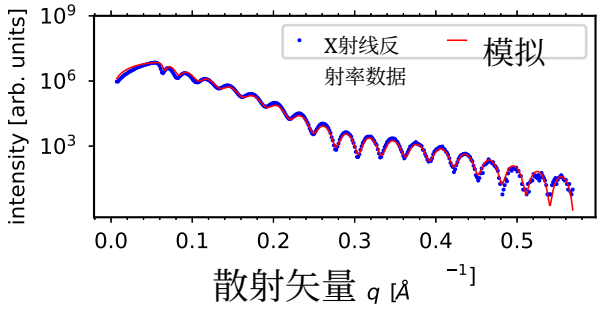


图 C.2. 样品 Ni(001) 的 X射线反射率测量与模拟：MgO(001)// Ni(18.8 纳米)/ Pt(2.2 纳米)。

上述所有对称变换作用于张量 $\boldsymbol{H}$ 并使用公式（8b），必须满足$\boldsymbol{H}=\boldsymbol{H}'$。

附录 C：样品 Ni(001) 的结构表征

为表征样品 Ni(001)，使用配备 Cu K_α 源的 Phillips X'pert Pro MPD PW3040-60 进行了 X射线反射率和 X射线衍射测量。

我们使用开源程序 GenX[76] 基于 Parratt算法[77] 来分析 X射线反射率曲线。测得的 X射线反射率曲线及其模拟结果见图 C.2。图 C.2 中 X射线反射率数据的拟合结果为：氧化镁衬底粗糙度为 0.2 纳米，Ni层厚度为 18.8 纳米，Ni层粗糙度为 0.6 纳米，铂覆盖层厚度为 2.2 纳米，铂覆盖层粗糙度为 0.6 纳米。样品 Ni(111) 的 X 射线反射率测量及结果请参见文献 [64]。

此外，图 C.3(a) 展示了样品 Ni(001) 的镜面 Θ-2Θ 扫描。约$2\Theta = 52.0°$ 处的显著峰属于 Ni(002)衍射峰，表明样品具有良好的结晶度。图 C.3(b) 展示了非镜面XRD欧拉摇篮织构图。将 2Θ 设为 $44.479°$ 并将倾角设为 $\Psi = \langle 50,\ 60\rangle$可见四个镍$\{111\}$ 峰，显示出面内统一的生长方向。样品 Ni(111) 的 X射线衍射分析请参见文献[64]。

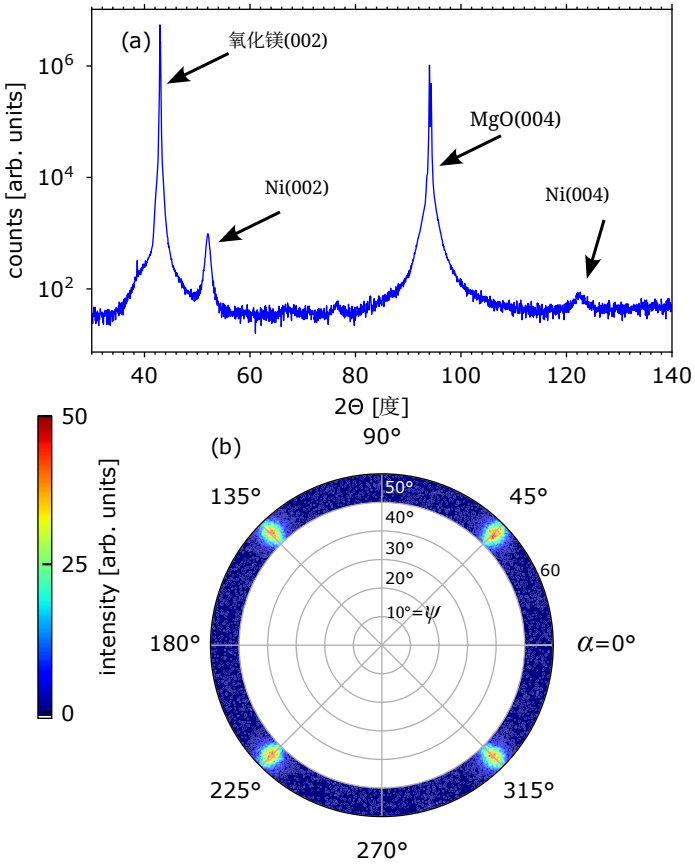


图 C.3. (a) 样品 Ni(001) 的镜面 X射线衍射扫描 Θ-2Θ。(b) $2\Theta = 44.479$ 的非镜面 X射线衍射扫描（欧拉摇篮织构图）（对应 Ni$\{111\}$ 衍射峰），以及 $\Psi = \langle 50,\ 60\rangle$。

层	406 纳米	635 纳米
MgO	3.10+0.00i	3.01+0.00i
Ni	-5.48+8.81i	-14.21+18.10i
Pt	-5.29+10.00i	-11.87+19.49i

表 VII. 样品 Ni(001) 在波长为 406 纳米和 635 纳米时的介电常数。

附录 D：椭偏测量

使用 Woolam RC2 M¨uller 矩阵光谱椭偏仪测量了两个样品。在处理测量数据时（使用 Woolam RC2 配套软件 CompleteEASE[78]），模型中两个样品所有层的厚度均固定为 XRR 提供的数值。氧化镁基底和铂覆盖层的介电常数光谱取自 CompleteEASE库[79]。Si/SiO_x 覆盖层的介电常数光谱由单独的 MgO/Si/SiO_x 样品确定。然后，虚部的

两个样品中 Ni 层的介电常数谱均采用 B 样条进行描述[80]，，而实部的补充光谱则通过克拉默斯-克罗尼希关系确定。由此得到的介电常数实部和虚部光谱 ε_d 如图 D.4 (a) 和D.4 (b) 所示。在表VII 中，我们汇总了模型中用于描述样品 Ni(001) 的各层介电常数值；在表VIII 中，我们汇总了模型中用于描述样品 Ni(111) 的各层介电常数值。

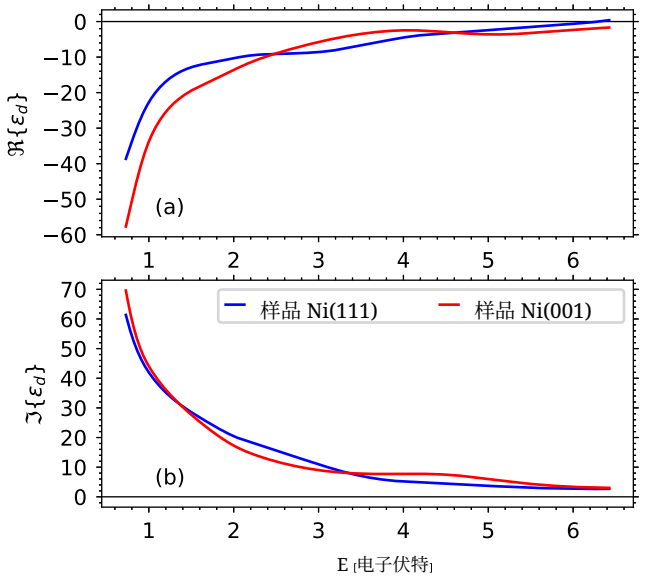


图 D.4. 样品 Ni(111) 和样品 Ni(001) 的 ε_d 介电常数谱实部 (a) 和虚部 (b)。

层	406 纳米	635 纳米
MgO	3.10+0.00i	3.01+0.00i
Ni	-8.48+10.50i	-10.59+21.12i
Si	10.91+8.55i	10.74+1.36i
SiO_x	3.04+0.00i	3.01+0.00i

表 VIII. 波长为 406 纳米和 635 纳米时，样品 Ni(111) 的介电常数值。

附录 E：邻晶界面敏感磁光克尔效应

当铁磁薄膜沉积在衬底的邻晶表面上时，VISMOKE 源于光学结构扰动与磁光扰动之间的干涉[69]。光学结构贡献可以有效地描述为

$$\boldsymbol{\varepsilon}_S = \begin{bmatrix} 0 & 0 & \varepsilon_s \cos(\alpha_1) \\ 0 & 0 & \varepsilon_s \sin(\alpha_1) \\ \varepsilon_s \cos(\alpha_1) & \varepsilon_s \sin(\alpha_1) & 0 \end{bmatrix}, \qquad \text{(E1)}$$

$\hat{}\hat{}$ 与 α_1 之间的角度 S 和 $\hat{}x$，而 S 定义为台阶表面的一个镜面（垂直于台阶边缘）与样品在附录 A中定义的参考取向下的表面平面之间的交线。因此，α_1 定义了样品处于参考取向时邻晶台阶的面内取向。铁磁层的介电常数表示为 $\boldsymbol{\varepsilon} = \boldsymbol{\varepsilon}^{(0)} + \boldsymbol{\varepsilon}_S + \boldsymbol{\varepsilon}_M$，而$\boldsymbol{\varepsilon}_M$ 是介电常数的磁光变化，详见第 II节。于是，在八方向测量的实验数据中观察到的单重角度依赖性与乘积 $\varepsilon_{yz/zy}\varepsilon_{zx/xz}$相关，该乘积将产生如下项：$\varepsilon_s \sin(\alpha_1) K \sin(\alpha) M_L$ 和 $\varepsilon_s \cos(\alpha_1) K \cos(\alpha) M_T$。$\varepsilon_s$ 与更高阶磁光参数的任意乘积也有可能出现，并由 Yeh 的 4×4 矩阵数值模型处理，而 ε_S 和 α_1 则设为自由参数。需要注意的是，这种高阶邻晶界面敏感磁光克尔效应的对称性与给定样品中的二次磁光克尔效应或三次磁光克尔效应并不相同，因此无法解释样品 Ni(111) 和样品 Ni(001) 中分别出现的三重和四重角度依赖性。

附录 F：采用 s 和 p 偏振对 Ni(111) 样品进行的八方向法测量

表II正文表明，对于（111）取向的立方晶体结构，三重角度依赖振幅在偏振变化时具有符号不变性。为了通过实验验证这一点，我们在波长 488 nm 下，使用 p 偏振和 s偏振，对样品 Ni(111) 进行了另一次八方向法测量，如图E.5 （a）和E.5（b）所示；并在波长 670 纳米下进行了测量，如图E.5（c）和E.5（d）所示。从图中可以看出，正如理论所预测的那样，入射光偏振的变化只会影响偏移量的符号。实验数据采用方程（23）的模型进行拟合。

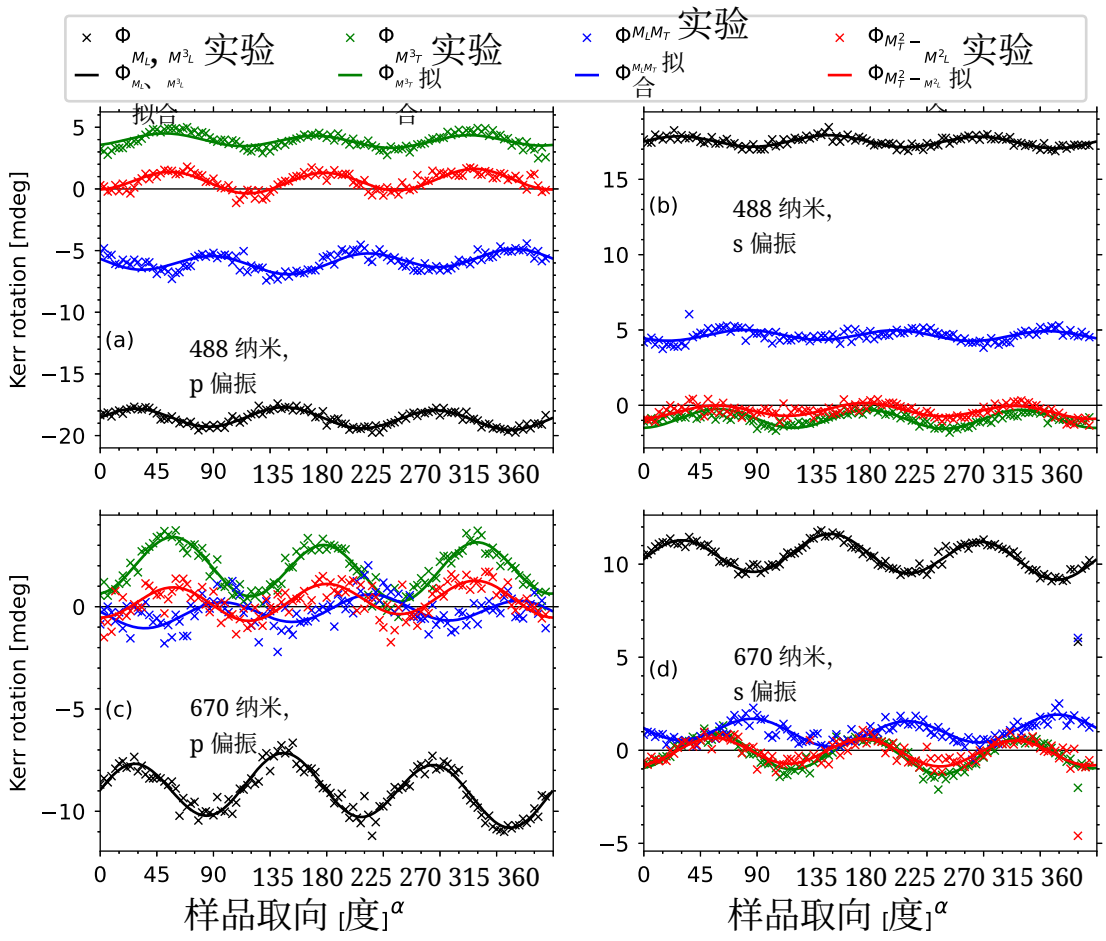


图 E.5. 样品 Ni(111) 在入射角为 $45°$ 时，波长为 488 nm 下 (a) p偏振和 (b) s偏振，以及波长为 670 纳米下 (c) p偏振和 (d) s偏振的八方向法测量克尔旋转。

* 通讯作者：robin.silber@vsb.cz；†这些作者对本研究的贡献相同。

[1] J. Kerr, 《论磁极反射引起的偏振面旋转》, 《哲学杂志》3，321（1877）。[2] E. R. Moog 和 S. D. Bader, 《铁磁单层的烟雾信号：p(1×1) Fe / Au(100)》, 《超晶格与微结构》1，543–552（1985）。[3] Z. Q. Qiu 和 S. D. Bader, 《表面磁光克尔效应》, 《Review of Scientific Instruments》71，1243–1255（2000）。[4] K. H. J. Buschow, *Handbook of Magnetic Materials*，第13卷（爱思唯尔科学出版社，Sara Burgerhartstraat 25 P.O. Box 211, 1000 AE 阿姆斯特丹，荷兰，2001年）。[5] G. S. Krinchik 和 V. A. Artemjev, 《镍、铁和钴的磁光性质》, 《应用物理学杂志》39，1276（1968）。[6] ˇS. Viˇsˇnovsk´y、M. N´yvlt、V. Prosser、R. Lopuˇsn´ık、R. Ur- ban、J. Ferr´e、G. P´enissard、D. Renard 和 R. Krish- nan, 《简单超薄磁性薄膜结构中的极向磁光效应》, 《物理评论B》52，1090（1995）。[7] J. Hamrle、J. Ferr´e、M. N´yvlt 和 ˇS. Viˇsˇnovsk´y, 《铁磁多层膜中磁光克尔效应的深度分辨》, 《物理评论B》66，224423（2002）。[8] T. Kuschel、H. Bardenhagen、H. Wilkens、R. Schubert、J. Hamrle、J. Piˇstora 和 J. Wollschl¨ager, 《利用磁光克尔效应进行矢量磁测量：包括铁磁薄膜的一阶和二阶贡献》, Journal of Physics D: Applied Physics 44，265003（2011）。[9] T. Kuschel、J. Hamrle、Piˇstora J.、K. Saito、S. Bosu、Y. Sakuraba、K. Takanashi 和 J. Wollschl¨ager, 《通过磁光克尔效应对Co50Fe50薄膜进行磁性表征》, Journal of Physics D: Applied Physics 45，495002（2012）。[10] B. Bergman、G. Ju、J. Hohlfeld、R. J. M. Van De Veerdonk、J. Y. Kim、X. Wu、D. Weller 和 B. Koopmans, 《确定 FeRh 中激光诱导磁化的生长机制》, 《物理评论B》73，1–4（2006）。[11] V. Saidl、P. Nˇemec、P. Wadley、V. Hills、R. P. Campion、V. Nov´ak、K. W. Edmonds、F. Maccherozzi、S. S. Dhesi、B. L. Gallagher、F. Troj´anek、J. Kuneˇs、J. ˇZelezn´y、P. Mal´y 和 T. Jungwirth, 《光学测定 Cu MnAs薄膜反铁磁体中的 Néel 矢量》, 《自然·光子学》11，91（2017年）。[12] P. Nˇemec、M. Fiebig、T. Kampfrath 和 A. V. Kimel, 《反铁磁光自旋电子学》, 《自然·物理学》14，229（2018）。[13] N. N´egre、M. Goiran、S. Jaren、C. Meyer、R. Barbaste、A. R. Fert 和 S. Ask´enazy, 《利用磁光克尔效应研究 $TbFe_2$ [111] 薄膜的磁各向异性》, 《磁学与磁性材料杂志》198-199，315–317（1999）。[14] R. Mattheis 和 G. Quednau, 《利用纵向磁光克尔效应和旋转磁场测定超薄磁性薄膜的各向异性场强：ROTMOKE方法》, 《磁学与磁性材料杂志》205，143–150（1999）。[15] J. M. Florczak 和 E. Dan Dahlberg, 《通过磁光克尔效应检测两个磁化分量》, 《应用物理学杂志》67，7520–7525（1990）。[16] P. Vavassori, 《用于磁光定量矢量磁测量的偏振调制技术》, 《应用物理快报》77，1605–1607（2000）。[17] P. E. Ferguson 和 R. J. Romagnoli, 《过渡稀土合金的横向克尔磁光效应与光学性质》, 《应用物理学杂志》40，1236（1969）。[18] A. N. Yaresko、L. Uba、S. Uba、A. Ya. Perlov、R. Gontarz 和 V. N. Antonov, 《钯的磁光克尔光谱》, 《物理评论B》58，7648–7653（1998）。[19] ˇS. Viˇsˇnovsk´y、R. Lopuˇsn´ık、M. N´yvlt、A. Das、R. Krishnan、M. Tessier、Z. Frait、P. Aitchison 和 J. N. Chapman, 《Fe/Au多层膜的磁光研究》, 《磁学与磁性材料杂志》198，480（1999）。[20] R. Silber、M. Tom´ıˇckov´a、J. Rodewald、J. Wollschl¨ager、J. Piˇstora、M. Veis、T. Kuschel 和 J. Hamrle, 《基于光弹性光调制的二次磁光光谱装置》, Phot. Nano. Fund. Appl. 31，60（2018）。[21] R. Silber、O. Stejskal、L. Beran、P. Cejpek、R. Antoˇs、T. Matalla-Wagner、J. Thien、O. Kuschel、J. Wollschl¨ager、M. Veis、T. Kuschel 和 J. Hamrle, 《MgO(001)衬底上Fe外延薄膜的二次磁光克尔效应光谱》, 《物理评论B》100，064403（2019）。[22] R. Silber、D. Kr´al、O. Stejskal、T. Kubota、Y. Ando、J. Piˇstora、M. Veis、J. Hamrle 和 T. Kuschel, 《Co_2 MnSi霍斯勒合金$L2_1$ 有序度对二次和线性磁光克尔效应光谱的标度关系》, 《应用物理快报》116，262401（2020）。[23] R. Sch¨afer, *Handbook of Magnetism and Advanced Magnetic Materials* 2007（约翰·威立父子有限公司，）。[24] J. McCord, 《先进磁光显微术在磁畴观测方面的进展》, Journal of Physics D: Applied Physics 48，333001（2015）。[25] T. Janda、L. N´advorn´ık、J. Kucha˘r´ık、D. Butkoviˇcov´a、E. Schmoranzerov´a、F. Troj´anek 和 P. Nˇemec, 《基于沃伊特效应的宽视场磁光显微镜》, 《Review of Scientific Instruments》89，073703（2018）。[26] D. Kim、Y. W. Oh、J. U. Kim、S. Lee、A. Baucour、J. Shin、K. J. Kim、B. G. Park 和 M. K. Seo, 《极致抗反射增强磁光克尔效应显微术》, Nature Communications 11，5937（2020）。[27] E. Beaurepaire、J.-C. Merle、A. Daunois 和 J.-Y. Bigot, 《铁磁性镍中的超快自旋动力学》, Physical Review Letters 76，4250–4253（1996）。[28] N. Tesaˇrov´a、P. Nˇemec、E. Roztokov´a、J. ˇSubrt、H. Re- ichlov´a、D. Butkoviˇcov´a、F. Troj´anek、P. Mal´y、V. Nov´ak 和 T. Jungwirth, 《通过磁光泵浦-探测法直接测量GaMnAs中的三维磁化矢量轨迹》, 《应用物理快报》100，102403（2012）。[29] H. C. Zhao、H. Xia、S. Hu、Y. Y. Lv、Z.R. Zhao、J. He、E. Liang、G. Ni、L.Y. Chen、X. P. Qui、S.M. Zhou 和 H. B. Zhao, 《非共线反铁磁体Mn3 12，5266 2021 Sn中的巨大超快调制沃伊特效应》, Nature Communications（）。[30] K Garello、I. M. Miron、C. O. Avci、F. Freimuth、Y. Mokrousov、S. Bl¨ugel、S. Auffret、O. Boulle、G. Gaudin 和 P. Gambardella, 《铁磁异质结构中自旋–轨道转矩的对称性与大小》, Nat. Nanotech. 8，587–593（2013）。[31] X. Fan、H. Celik、J. Wu、Ch. Ni、K. J. Lee、V. O. Lorenz 和 J. Q. Xiao, 《磁性双层膜中自旋–轨道转矩的界面和体贡献定量分析》, Nature Communications 5，3042（2014）。

[32] M. Montazeri、P. Upadhyaya、M. C. Onbasil、G. Yu、K. L. Wong、M. Lang、Y. Fan、X. Li、P. K. Amiri、R. N. Schwartz、C. A. Ross 和 K. L. Wang，《金属和绝缘磁性异质结构中自旋–轨道转矩的磁光研究》，Nature Communications 6，8958（2015）。[33] C. Stamm、C. Murer、M. Berritta、J. Feng、M. Gabureac、P. M. Oppeneer 和 P. Gambardella，《Pt和W薄膜中自旋霍尔效应的磁光探测》，Physical Review Letters 119，087203（2017）。[34] K. Jhuria、J. Hohlfeld、P. Akshay、E. Martin、A. Y. Ar- riola C´ordova、X. Shi、R. Lo Conte、S. Petit-Watelot、J. C. Rojas-Sanchez、G. Malinowski、S. Mangin、A. Lemaˆıtre、M. Hehn、J. Bokor、R. B. Wilson 和 J. Gorchon，《利用皮秒电脉冲切换铁磁体的自旋轨道转矩》，Nature Electronics 3，680（2020）。[35] ˇS. Viˇsˇnovsk´y，《晶体中的磁光介电张量》，Czechoslovak Journal of Physics B 36，1424（1986）。[36] R. Carey、D. M. Newman 和 M. L. Wears，《PtMnSb薄膜中的非对称非线性磁光效应》，《应用物理学杂志》83，6739（1998）。[37] H.-Ch. Mertins、P. M. Oppeneer、J. Kuneˇs、A. Gaupp、D. Abramsohn 和 F. Sch¨afers，《X射线磁光沃伊特效应的观测》，Physical Review Letters 87，047401（2001）。[38] J. Hamrlov´a、J. Hamrle、K. Postava 和 J. Piˇstora，《立方晶体中关于磁化强度二次项的介电张量和电导率张量》，physica status solidi (b) 250，2194（2013）。[39] K. Postava、D. Hrabovsk´y、J. Piˇstora、A. R. Fert、ˇS. Viˇsˇnovsk´y 和 T. Yamaguchi，《反射中二次磁光效应的各向异性》，《应用物理学杂志》91，7293（2002）。[40] T. Mewes、H. Nembach、M. Rickart 和 B. Hillebrands，《外延FeMn/NiFe双层膜磁光克尔效应磁测量中一阶和二阶贡献的分离》，《应用物理学杂志》95，5324（2004）。[41] J. H. Liang、X. Xiao、J. X. Li、B. C. Zhu、J. Zhu、H. Bao、L. Zhou 和 Y. Z. Wu，《铁薄膜中二次磁光克尔效应的定量研究》，Optics Express 23，11357（2015）。[42] J. H. Liang、Y. L. Chen、L. Sun、C. Zhou、Y. Yang 和 Y. Z. Wu，《外延Fe/GaAs(110)薄膜中的各向异性线性和二次磁光克尔效应》，《应用物理快报》108，3–8（2016）。[43] J. Hamrle、S. Blomeier、O. Gaier、B. Hillebrands、H. Schneider、G. Jakob、B. Reuscher、A. Brodyanski、M. Kopnarski、K. Postava 和 C. Felser，《离子束诱导的Co_2FeSi霍斯勒合金中交换相互作用和自旋轨道耦合的改变》，Journal of Physics D: Applied Physics 40，1558（2007）。[44] J. Hamrle、S. Blomeier、O. Gaier、B. Hillebrands、H. Schneider、G. Jakob、K. Postava 和 C. Felser，《Co_2FeSi霍斯勒合金中巨大的二次磁光克尔效应和磁化反转》，Journal of Physics D: Applied Physics 40，1563（2007）。[45] O. Gaier、J. Hamrle、S. J. Hermsdoerfer、H. Schultheiss、B. Hillebrands、Y. Sakuraba、M. Oogane 和 Y. Ando，《$L2_1$ 有序度对Co2 103，103910 2008 MnSi霍斯勒薄膜磁性的影响》，《应用物理学杂志》（）。[46] P. K. Muduli、W. C. Rice、L. He 和 F. Tsui，《霍斯勒合金外延薄膜中磁各向异性和二次磁光效应的成分依赖性 Co_2MnGe，”《磁学与磁性材料杂志》320，L141（2008年）。[47] P. K. Muduli、W. C. Rice、L. He、B. A. Collins、Y. S. Chu 和 F. Tsui，“利用二次磁光效应研究外延 $Co_xMn_yGe_z$(111) 薄膜的磁各向异性和磁化反转”，《物理学杂志：凝聚态物质》21，296005（2009年）。[48] S. Trudel、J. Hamrle、B. Hillebrands、T. Taira 和 M. Ya- mamoto，“外延非化学计量比 Co_2 107，043912 2010 MnGe 薄膜的磁光研究”，《应用物理学杂志》（）。[49] S. Trudel、G. Wolf、J. Hamrle、B. Hillebrands、P. Klaer、M. Kallmayer、H. J. Elmers、H. Sukegawa、W. Wang 和 K. Inomata，“退火对 $Co_2FeAl_{0.5}Si_{0.5}$ 薄膜的影响：磁光与 X 射线吸收研究”，《物理评论B》83，104412（2011年）。[50] G. Wolf、J. Hamrle、S. Trudel、T. Kubota、Y. Ando 和 B. Hillebrands，“Co_2 MnSi 中的二次磁光克尔效应”，《应用物理学杂志》110，043904（2011年）。[51] I. D. Lobov、A. A. Makhnev 和 M. M. Kirillova，“霍斯勒合金 XMnSb（X = Co、Pt）的光学和磁光性质”，《物理学与金属学》113，135（2012年）。[52] X. Fan、A. R. Mellnik、W. Wang、N. Reynolds、T. Wang、H. Celik、V. O. Lorenz、D. C. Ralph 和 J. Q. Xiao，“同时利用极向和二次磁光克尔效应对自旋轨道诱导力矩进行全光矢量测量”，《应用物理快报》109，122406（2016年）。[53] B. Sep´ulveda、Y. Huttel、C. Mart´ınez Boubeta、A. Cebollada 和 G. Armelles，“连续及颗粒状超薄单晶 Fe 薄膜中的线性和二次磁光克尔效应”，《物理评论B》68，064401（2003年）。[54] J. Hamrlov´a、D. Legut、M. Veis、J. Piˇstora 和 J. Ham- rle，“描述立方晶体磁光介电张量的主谱”，《磁学与磁性材料杂志》420，143 2016（）。[55] M. Buchmeier、R. Schreiber、D. E. B¨urgler 和 C. M. Schneider，“超薄 Fe(001) 薄膜中线性和二次磁光克尔效应的厚度依赖性”，《物理评论B》79，064402（2009年）。[56] S. Valencia、A. Kleibert、A. Gaupp、J. Rusz、D. Legut、J. Bansmann、W. Gudat 和 P. M. Oppeneer，“在近法向入射构型下，3d 过渡金属 M 边处的反射二次 X 射线磁光效应”，Physical Review Letters 104，187401（2010年）。[57] G. Metzger、P. Pluvinage 和 R. Torguet，“克尔磁光效应中的线性和二次项”，《物理年鉴》13，5–12（1965年）。[58] Sch¨afer，R. 和 Hubert，A.，“一种与铁磁体表面非均匀磁化有关的新型磁光效应”，《固体物理与化学（a）》118，271（1990年）。[59] Sch¨afer，R.，“耦合磁性多层膜中的磁光畴研究”，《磁学与磁性材料杂志》148，225（1995年）。[60] V. Kambersk´y，“Sch¨afer-Hubert 磁光效应与光波方程中的经典旋光性”，《磁学与磁性材料杂志》104，311（1992年）。[61] N. Tesaˇrov´a、P. Nˇemec、E. Rozkotov´a、J. Zemen、T. Janda、D. Butkoviˇcov´a、K. Olejn´ık、V. Nov´ak、P. Mal´y 和 T. Jungwirth，“光学自旋轨道力矩的实验观测”，《自然·光子学》7，492（2013年）。[62] T. Jungwirth、X. Marti、P. Wadley 和 J. Wunder- lich，“反铁磁自旋电子学”，《自然·纳米技术》11，231（2016年）。[63] P. Wadley、B. Howells、J. ˇZelezn´y、C. Andrews、V. Hills、R. P. Campion、V. Nov´ak、K. Olejn´ık、F. Maccherozzi,

S. S. Dhesi、S. Y. Martin、T. Wagner、J. Wunderlich、F. Freimuth、Y. Mokrousov、J. Kuneˇs、J. S. Chauhan、M. J. Grzybowski、A. W. Rushforth、K. W. Edmonds、B. L. Gallagher 和 T. Jungwirth，“反铁磁体的电开关”，《科学》351，587（2016年）。[64] M. Gaerner、R. Silber、T. Peters、J. Hamrle 和 T. Kuschel，“有孪晶和无孪晶 Ni(111)薄膜中的立方磁光克尔效应”，《Physical Review Applied》22，024066（2024年）。[65] H. Pan、H. Li、J. Huang、Z. Liu、M. Fang、Y. Yuan、D. Liu、X. Hu、W. Peng、Z. Liang、X. Chang、Z. Sheng、X. Chen、L. Wang、Q. Li、P. Li、Q. Niu、Y. Gao、Q. Yang 和 D. Hou，“由贝里曲率磁化多极矩实现的磁光克尔效应正交几何”，（2025年），arXiv:2412.09857 [物理学·光学]。[66] P. Yeh，“各向异性层状介质光学：一种新的 4×4 矩阵代数”，《表面科学》96，41（1980年）。[67] ˇS. Viˇsˇnovsk´y, *Optics in Magnetic Multilayers and Nanostructures*（CRC出版社，博卡拉顿，2006）。[68] E. Hecht, *Optics, fourth edition*（艾迪生-韦斯利，旧金山，2002年）。[69] J. Hamrle、J. Ferr´e、J. P. Jamet、V. Repain、G. Baudot 和 S. Rousset，“对台阶界面敏感的磁光克尔效应：在 Co/Au(322) 中的应用”，《物理评论B》67，155411（2003年）。[70] A. V. Petukhov、Th. Rasing、T. Katayama、N. Nakajima 和 Y. Suzuki，“各向异性三阶磁光克尔效应”，《应用物理学杂志》83，6742（1998年）。[71] A. Kehlberger、K. Richter、M. C. Onbasli、G. Jakob、D. H. Kim、T. Goto、C. A. Ross、G. G¨otz、G. Reiss、T. Kuschel 和 M. Kl¨aui，“增强的磁光克尔 $CeY_2Fe_5O_{12}$ 外延薄膜的效应与磁性，”《Physical Review Applied》4，014008（2015年）。[72] N. D. M¨uglich、A. Gaul、M. Meyl、A. Ehresmann、G. G¨otz、G. Reiss 和 T. Kuschel，“多晶交换偏置系统中随时间变化的可旋转磁各向异性：对晶粒尺寸分布的依赖性”，《物理评论B》94，184407（2016年）。[73] S. Trudel、G. Wolf、H. Schultheiss、J. Hamrle 和 B. Hillebrands，“用于研究二次效应的串联磁光克尔效应磁强计”，《Journal of Physics: Conference Series》200，112010（2010）。[74] S. Trudel、G. Wolf、H. Schultheiss、J. Hamrle、B. Hillebrands、T. Kubota 和 Y. Ando，“说明：使用双光束系统探测二次磁光克尔效应”，《Review of Scientific Instruments》81，026105（2010）。[75] R. Silber、M. Gaerner、K. Postava、J. Hamrle 和 T. Kuschel，“数据集：对Ni(001)和Ni(111)薄膜中磁光克尔效应的磁化强度三次项贡献进行研究”，Zenodo（2026）。[76] M. Bj¨orck 和 G. Andersson，“GenX：一种采用差分进化算法的可扩展X射线反射率精修程序”，《Journal of Applied Crystallography》40，1174（2007年）。[77] L. G. Parratt，“通过X射线全反射研究固体表面”，《物理评论》95，359（1954）。[78] J. A Woollam Co., Inc., *CompleteEASE™ Data Analysis Manual* 2008 ( )。[79] E. D. Palik, *Handbook of Optical Constants of Solids*（Academic Press，圣迭戈，1985）。[80] B. Johs 和 J. S. Hale，“用B样条表示介电函数”，《Physica Status Solidi A》205，715（2008年）。