

МОСКОВСКИЙ ГОСУДАРСТВЕННЫЙ УНИВЕРСИТЕТ  
имени М.В. ЛОМОНОСОВА

---

ФИЗИЧЕСКИЙ ФАКУЛЬТЕТ

На правах рукописи

КОЛМЫЧЕК ИРИНА АЛЕКСЕЕВНА

ЛИНЕЙНЫЕ И НЕЛИНЕЙНЫЕ ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ  
В НАНОСТРУКТУРАХ И ТОНКИХ МАГНИТНЫХ  
ПЛЕНКАХ

Специальность 1.3.6. Оптика

Диссертация на соискание учёной степени  
доктора физико-математических наук

Научный консультант  
доктор физико-математических наук  
Мурзина Татьяна Владимировна

МОСКВА - 2022

---

## Оглавление

---

<b>Введение</b>	<b>7</b>
<b>Глава 1. Обзор литературы и описание экспериментальных методов</b>	<b>18</b>
§ 1.1 Общее феноменологическое описание генерации второй гармоники в средах с квадратичной нелинейностью . . . . .	18
1.1.1 Свойства тензора квадратичной восприимчивости . . . . .	21
1.1.2 Релеевское и гиперрелеевское рассеяние света . . . . .	24
§ 1.2 Оптические и нелинейно-оптические эффекты в металлических наноструктурах . . . . .	26
1.2.1 Локальный поверхностный плазмонный резонанс . . . . .	26
1.2.2 Решеточный (дифракционный) плазмонный резонанс . . . . .	31
1.2.3 Поверхностный плазмон-поляритон . . . . .	31
1.2.4 Плазмонные наноперфорированные структуры . . . . .	35
1.2.5 Генерация гармоник в плазмонных структурах . . . . .	37
§ 1.3 Оптика и нелинейная оптика хиральных структур . . . . .	38
§ 1.4 Гиперболические метаматериалы . . . . .	47
§ 1.5 Магнитоиндуцированные эффекты . . . . .	50
1.5.1 Линейные магнитооптические эффекты . . . . .	50
1.5.2 Генерация магнитоиндуцированной ВГ . . . . .	52
1.5.3 Магнитооптика наноструктурированных нерезонансных сред . . . . .	55
1.5.4 Магнитооптика наноструктурированных плазмонных материалов . . . . .	59
1.5.5 Генерация ВГ в магнитных плазмонных наноструктурах . . . . .	62
§ 1.6 Описание использовавшихся экспериментальных установок и методов . . . . .	63
1.6.1 Линейные оптические и магнитооптические эффекты . . . . .	63
1.6.2 Экспериментальная установка для изучения нелинейно-оптических эффектов на основе АИГ:Nd <sup>3+</sup> лазера . . . . .	64

1.6.3 Экспериментальная установка для изучения нелинейно-оптических эффектов на основе Ti:Sapphire лазера . . . . .	66
1.6.4 Нелинейно-оптические методики . . . . .	67

## **Глава 2. Генерация магнитоиндуцированной второй гармоники в тонких магнитных пленках** **74**

§ 2.1 Симметрия тензоров нелинейной восприимчивости второго порядка для тонких магнитных пленок . . . . .	75
§ 2.2 Магнитоиндуцированная анизотропия пленок кобальт/золото на поверхности кремния . . . . .	76
2.2.1 Изготовление и характеристика образцов . . . . .	76
2.2.2 Генерация второй гармоники . . . . .	77
2.2.3 Обсуждение результатов . . . . .	79
§ 2.3 Генерация магнитоиндуцированной второй гармоники в многослойных пленках состава ферромагнетик/диэлектрик/ферромагнетик. Исследование квадратичного по намагниченности вклада в генерацию второй гармоники . . .	82
2.3.1 Симметрия тензора магнитоиндуцированной квадратичной восприимчивости с учетом квадратичных по намагниченности вкладов . . . . .	82
2.3.2 Исследование тестовой структуры. Гистерезис интенсивности второй гармоники в пленке кобальта толщиной 60 нм .	85
2.3.3 Генерация магнитоиндуцированной второй гармоники в трехслойных структурах CoFe/Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> /CoFe . . . . .	87
§ 2.4 Мультиязычные пленки на основе кобальта и тяжелых металлов	96
2.4.1 Пленки Co/Pt и Co/Ta с латеральной анизотропией магнитных свойств . . . . .	98
2.4.2 Латерально изотропные бислойные пленки кобальт/немагнитный материал . . . . .	104
2.4.3 Трехслойные пленки Ta/Co/Ta, Pt/Co/Pt и Ta/Co/Pt . . .	107

## **Глава 3. Генерация второй гармоники в ферромагнитных наноструктурированных пленках** **111**

§ 3.1 Структуры с вихревым распределением намагниченности . . . .	111
3.1.1 Изучаемые образцы . . . . .	111
3.1.2 Линейный магнитооптический эффект Керра . . . . .	112

3.1.3	Генерация второй гармоники. Экспериментальные результаты . . . . .	114
3.1.4	Микромагнитное моделирование . . . . .	117
3.1.5	Феноменологическое описание генерации ВГ в структурах с вихревой намагниченностью . . . . .	119
§ 3.2	Наноперфорированные пленки пермаллоя . . . . .	125
3.2.1	Исследуемые структуры . . . . .	125
3.2.2	Результаты исследования линейного магнитооптического эффекта Керра . . . . .	126
3.2.3	Генерация магнитоиндуцированной ВГ . . . . .	126
3.2.4	Расчет распределения намагниченности . . . . .	129
3.2.5	Обсуждение результатов . . . . .	130

## **Глава 4. Резонансные эффекты в оптическом отклике наноструктур**

135

§ 4.1	Оптический отклик неупорядоченных массивов металлических наночастиц в форме цилиндров и полумесяцев при возбуждении локальных поверхностных плазмонов . . . . .	135
4.1.1	Массивы наночастиц в форме полумесяцев . . . . .	135
4.1.2	Массивы никелевых наностержней . . . . .	142
§ 4.2	Решеточный (дифракционный) поверхностный плазмон . . . . .	151
4.2.1	Исследуемые структуры . . . . .	151
4.2.2	Оптические свойства . . . . .	152
4.2.3	Магнитооптический отклик . . . . .	157
4.2.4	Генерация ВГ . . . . .	158
§ 4.3	Бегущий плазмон-поляритон . . . . .	162
4.3.1	Гетероструктуры опал/Со . . . . .	162
4.3.2	Гетероструктуры опал/Со/Аg . . . . .	172
§ 4.4	Магнито-дипольный плазмонный резонанс . . . . .	179
4.4.1	Исследуемые структуры . . . . .	179
4.4.2	Линейные оптические свойства . . . . .	180
4.4.3	Расчеты оптического отклика . . . . .	181
4.4.4	Генерация ВГ . . . . .	182
4.4.5	Обсуждение результатов . . . . .	184

<b>Глава 5. Эффекты анизотропии циркулярного дихроизма в отклике второй гармоники 2D массивов хиральных наноструктур</b>	<b>189</b>
§ 5.1 Массивы золотых наночастиц в форме запятых на стеклянной подложке . . . . .	189
5.1.1 Исследуемые структуры . . . . .	189
5.1.2 Линейный оптический отклик . . . . .	190
5.1.3 Генерация ВГ . . . . .	190
5.1.4 Обсуждение результатов . . . . .	193
§ 5.2 Эффекты локализации электромагнитного поля в планарных массивах наноструктур в форме буквы “G” . . . . .	195
5.2.1 Исследуемые структуры . . . . .	195
5.2.2 Однопериодные массивы “G”-образных наноструктур . . .	197
5.2.3 Двухпериодные массивы “G”-образных наноструктур . . .	203
§ 5.3 Массивы хиральных nanoотверстий в серебряной пленке . . . . .	209
5.3.1 Исследуемые структуры . . . . .	209
5.3.2 Линейный оптический отклик . . . . .	210
5.3.3 Генерация ВГ . . . . .	211
5.3.4 Обсуждение результатов . . . . .	214
§ 5.4 Массивы магнитных “U”-образных наноэлементов . . . . .	218
5.4.1 Исследуемые структуры . . . . .	218
5.4.2 Линейный оптический отклик . . . . .	219
5.4.3 Генерация ВГ . . . . .	219
5.4.4 Обсуждение результатов . . . . .	223
<b>Глава 6. Оптика и нелинейная оптика гиперболических метаматериалов</b>	<b>227</b>
§ 6.1 Изучаемые структуры . . . . .	228
§ 6.2 Оптические свойства ГММ . . . . .	229
6.2.1 Расчет . . . . .	229
6.2.2 Экспериментальные исследования оптического отклика ГММ . . . . .	233
§ 6.3 Магнитооптический отклик ГММ . . . . .	236
6.3.1 Структура “ГММ+сплошная пленка никеля” . . . . .	237

6.3.2 Структура “Массив бисегментированных наностержней Au/Ni” . . . . .	240
6.3.3 Обсуждение . . . . .	243
§ 6.4 Нелинейно-оптические эффекты в ГММ . . . . .	244
6.4.1 ГММ на основе массива золотых наностержней . . . . .	245
6.4.2 ГММ на основе серебряных наностержней . . . . .	249
§ 6.5 Выводы по Главе 6 . . . . .	253
<b>Заключение</b>	<b>255</b>
<b>Литература</b>	<b>267</b>

---

## Введение

---

Диссертационная работа посвящена экспериментальному исследованию оптических и нелинейно-оптических эффектов в наноструктурах различного дизайна и тонких пленках на основе ферромагнитных и благородных металлов.

### Актуальность темы диссертации.

Оптика металлических наноструктур и поверхностного магнетизма в последние десятилетия является актуальным и быстроразвивающимся научным направлением. Во-первых, интерес к наноматериалам обусловлен возможностями их применения при создании миниатюрных функциональных устройств для задач нанофотоники, сенсорики, оптического переключения и управления параметрами света, такими как интенсивность, поляризация, спектральный состав и пр. Во-вторых, в последнее время наблюдается существенный прогресс в технологиях изготовления наноструктур. С помощью методов литографии (электронно-лучевой, ионно-лучевой, коллоидной и пр.) возможно прецизионное изготовление массивов наноструктур различной формы, композиционного состава и расположения на подложке. В-третьих, доступные сейчас численные методы, программные пакеты и вычислительные мощности позволяют, решая уравнения Максвелла с граничными условиями, получать распределения локального поля в субволновых структурах, взаимодействующих с оптическим излучением, и рассчитывать параметры рассеянного света в дальней зоне, сопоставляя с результатами экспериментов. С помощью компьютерных методов можно решать обратную задачу - подбирать дизайн, размеры и материал структуры для получения желаемого наблюдаемого эффекта при ее взаимодействии с оптическим излучением, например, вращения плоскости поляризации, частотно-селективного усиления или поглощения света, модификации формы волнового фронта, генерации оптических гармоник и т.п.

Метаматериалы являются рационально сконструированными искусственными материалами, позволяющими проектировать их физические свойства в соответствии с решаемыми физическими задачами, часто вы-

ходя за пределы, достижимые для “естественных” материалов [1]. Метаматериалы, обладающие необычными *оптическими* свойствами, называют “оптическими метаматериалами”, однако, поскольку вся диссертационная работа посвящена оптике, то далее будем называть их просто метаматериалами. Двумерные аналоги метаматериалов (субволновой толщины) называются метаповерхностями, а их элементы – мета-атомами. Метаповерхности более компактны, они обладают меньшим поглощением [2]. Разработка и оптимизация дизайна метаповерхностей, создание на их базе функциональных элементов для контролируемой модификации оптического отклика является одной из ключевых задач современной нанофотоники. Важнейшую роль играют метаповерхности, демонстрирующие возбуждение плазмонных резонансов [3]. Амплитудные и фазовые соотношения падающего и рассеянного света в резонансной структуре могут приводить к различным эффектам, например, к усилению локальных полей вблизи поверхности наночастиц или модификации волнового фронта в дальней зоне - в таком случае метаповерхность может работать как сверхтонкая линза или преломлять плоский волновой фронт под углом, не подчиняющимся закону Снеллиуса для границы двух диэлектриков [4, 5]. Интеграция ферромагнетиков в функциональные метаповерхности открывает дополнительные возможности для управления параметрами света путем приложения статического магнитного поля. Таким образом, изучение магнитооптики резонансных наноструктур является актуальным направлением исследований.

Особый интерес представляют т.н. хиральные метаповерхности, среди элементов симметрии которых отсутствуют плоскости симметрии. Отличительным свойством таких структур являются высокие значения оптической активности. Специфическая локализация электромагнитного поля в наноэлементах (толщиной порядка десятков нанометров) приводит к огромным величинам угла поворота плоскости поляризации, недостижимых для природных хиральных слоев той же толщины [6].

Гиперболические метаматериалы (ГММ), обладающие одноосной анизотропией, также демонстрируют уникальные оптические свойства, такие как отрицательная рефракция, преобразование эванесцентных полей в распространяющиеся волны, эффекты быстрого и медленного света при взаимодействии с ГММ сверхкоротких лазерных импульсов [7, 8]. Сильная оптическая анизотропия в сочетании с резонансными свойствами обуслав-

ливают привлекательность ГММ для создания на их основе конвертеров поляризации, в том числе управляемых магнитным полем, если в структуре содержится ферромагнетик.

В настоящее время есть возможности создавать и рассчитывать новые функциональные ферромагнитные наноструктуры, обладающие модифицированными или принципиально новыми магнитными и магнитооптическими свойствами, наличие которых невозможно для объемных материалов. Формирование магнитных структур с параметрами, контролируемыми на нанометровых масштабах, дает возможность реализации эффектов низкоразмерного магнетизма, обменного взаимодействия слоев, гигантского магнитосопротивления, которые могут найти применение в перспективных устройствах спинтроники и магнитных системах хранения информации с высокой плотностью записи [9, 10].

С фундаментальной точки зрения, исследование механизмов взаимодействия оптического излучения с металлическими объектами субволнового размера также является важной и актуальной задачей. Хорошо известно, что при этом могут возникать эффекты, ненаблюдаемые в материалах большего размера, - это и возбуждение локальных поверхностных плазмонов, и аномальное пропускание массивов нанодоверстий, и специфическая локализация поля в структуре [3, 11]. В нерезонансных магнитных наноструктурах и тонких магнитных пленках реализуются различные виды неоднородного распределения намагниченности. Большой интерес представляет изучение роли таких состояний в формировании оптического и магнитооптического отклика структур, что важно, в том числе, для разработки вышеуказанных функциональных устройств нанофотоники.

При взаимодействии мощного лазерного излучения с нано- и микроструктурами могут возникать различные нелинейно-оптические эффекты, такие как генерация второй и третьей гармоник и самовоздействие света [12, 13]. В силу специфики генерации второй гармоники (ВГ), резонансные и магнитные свойства в квадратичном оптическом отклике, как правило, проявляются значительно сильнее, чем в линейном.

Значительный интерес к созданию и исследованию наноструктур и тонких пленок требует также и развития соответствующих высокочувствительных и неинвазивных методов их контроля и диагностики. В этом плане использование нелинейно-оптических методов занимает особое положение

благодаря селективной локализации источников ВГ на поверхностях и интерфейсах, связанной с симметричным запретом на генерацию ВГ в объеме центрально симметричных сред в электродипольном приближении [12, 13]. Метод генерации магнитоиндуцированной ВГ отличается высокой чувствительностью к магнитным свойствам сред и распределению намагниченности [14, 15]. Наконец, нелинейная поляризация, являющаяся источником генерации гармоник, определяется оптическим локальным полем в резонансных структурах. Поэтому характеристики волны ВГ (интенсивность, поляризация, фаза) отражают свойства локального поля [16]. В выборе методики исследования металлических наноструктур играет роль и тот факт, что плазмонные возбуждения локализованы вблизи поверхности, как и источники генерации квадратичного оптического отклика.

Таким образом, исследования, представленные в диссертационной работе, актуальны как с фундаментальной точки зрения (изучение механизмов взаимодействия излучения с веществом), так и с прикладной (возможные применения наноструктур в устройствах нанофотоники), а также с точки зрения разработки методов визуализации и диагностики резонансных, симметричных, структурных и магнитных свойств наноструктур, поверхностей и интерфейсов.

### Цель и задачи исследования

Цель диссертационной работы состояла в исследовании линейных и нелинейных оптических эффектов в тонких магнитных пленках и наноструктурах на основе ферромагнитных и благородных металлов, анализе механизмов взаимодействия оптического излучения с наноматериалами и метаповерхностями.

В работе были поставлены и решены следующие задачи:

- Развить методы нелинейной оптики для диагностики различных состояний намагниченности на интерфейсах магнитных пленок и в ферромагнитных наноструктурах.
- Исследовать особенности резонансного линейного и нелинейного оптического и магнитооптического отклика металлических наноструктур различного дизайна.
- Проанализировать роль симметрии формы отдельных мета-атомов,

их массивов, а также геометрии взаимодействия с лазерным излучением в формировании циркулярного дихроизма ВГ в хиральных планарных и квазидвумерных метаповерхностях.

- Изучить оптические эффекты в гиперболических метаматериалах, связанные со специфической дисперсией в ГММ, продемонстрировать возможности применения таких структур в задачах нанофотоники.

### **Объект и предмет исследования**

Объектами исследования являются наноструктуры на основе благородных и ферромагнитных металлов и магнитные пленки субволновой толщины. Предметом исследования является взаимодействие указанных структур с лазерным излучением, анализ оптических свойств изучаемых наноматериалов, возможности использования обнаруженных эффектов для задач нанофотоники, управления параметрами света и диагностики состояния поверхностей и интерфейсов.

### **Методология исследования**

Приведенные исследования посвящены оптике и нелинейной оптике субволновых структур. К решению научных задач в диссертационной работе применялся комплексный подход, заключающийся в сочетании характеристики структур различными методами микроскопии, спектроскопии их линейного оптического отклика и исследовании характеристик генерации ВГ (спектроскопии интенсивности и фазы ВГ, анизотропии, поляризации и пр.). Основной акцент в диссертации сделан на *нелинейно-оптические эффекты* в наноструктурах и тонких магнитных пленках в силу их особенной чувствительности к свойствам исследуемых объектов. При необходимости эксперименты сопровождалась расчетами различных оптических эффектов, распределения намагниченности в исследуемых наноэлементах и/или симметричным анализом тензора квадратичной восприимчивости изучаемых материалов.

### **Научная новизна**

- Впервые экспериментально обнаружена магнитоиндуцированная анизотропия квадратичного нелинейно-оптического отклика в структурно-изотропных пленках ферромагнитного металла.

- Разработан метод визуализации нетривиальных состояний намагниченности на границах раздела ферромагнетика с тяжелыми немагнитными металлами, основанный на генерации магнитоиндуцированной ВГ.
- Предложен нелинейно-оптический метод детектирования макроскопического тороидного момента намагниченности в наноструктурах.
- Впервые экспериментально показано, что азимутальная анизотропия интенсивности ВГ в металлических наноструктурах определяется распределением в них локального оптического поля.
- Предложен дизайн гетероструктур на основе искусственного опала и пленки ферромагнитного металла, обладающих свойствами плазмонного кристалла, фотонного кристалла и гиротропией. Обнаружено, что при возбуждении поверхностного плазмон-поляритона в такой структуре возможно одновременное усиление пропускания и магнитооптического отклика.
- Впервые показано, что возбуждение решеточного резонанса в массивах плазмонных наночастиц в магнитном диэлектрике приводит к усилению поперечного магнитооптического эффекта в геометрии Фохта.
- Обнаружено усиление интенсивности и изменение фазы ВГ при возбуждении магнитодипольного резонанса в массивах трехслойных Au/MgF<sub>2</sub>/Au нанодисков.
- Впервые показано, что асимметрия и анизотропия формы хиральных металлических наночастиц и винтообразных нанотверстий в металлической пленке определяют эффекты циркулярного дихроизма отклика на частоте второй гармоники всей метаповерхности.
- Экспериментально обнаружен эффект магнитоиндуцированного циркулярного дихроизма при генерации ВГ в метаповерхностях, состоящих из ферромагнитных “U”-образных наноэлементов и обладающих зеркальной симметрией.
- Впервые экспериментально продемонстрировано аномальное двулучепреломление, а также усиление магнитооптического и нелинейно-

оптического отклика гиперболических метаматериалов в спектральной окрестности особых дисперсионных точек.

### **Практическая и научная значимость**

Обнаруженные эффекты усиления оптического, магнитооптического и нелинейно-оптического отклика плазмонных, хиральных наноструктур и гиперболических метаматериалов могут найти применение при разработке функциональных элементов для управления параметрами света (поляризацией, интенсивностью, спектральным составом и т.д.), а также для создания оптических сенсоров и переключателей. Научная и практическая ценность работы состоит также в возможности применения развитых нелинейно-оптических методов, основанных на эффектах генерации ВГ, для комплексной диагностики структурных, морфологических, оптических и магнитных свойств наноматериалов. Показана применимость метода генерации магнитоиндуцированной ВГ для исследования нетривиальных состояний намагниченности на скрытых границах раздела магнитных пленок и в магнитных наноструктурах.

### **Положения, выносимые на защиту:**

1. При генерации второй гармоники в ферромагнитных наноструктурах наблюдаются вклады, обусловленные вихревым распределением и макроскопическим тороидным моментом намагниченности, а также градиентами намагниченности на интерфейсах.
2. Возбуждение локальных поверхностных плазмонов, решеточных плазмонных резонансов и бегущих плазмон-поляритонов в металлических наноструктурах приводит к усилению эффективности генерации второй гармоники, магнитооптического и магнитного нелинейно-оптического отклика.
3. В композитных гиперболических метаматериалах реализуется усиление магнитооптических эффектов в спектральной окрестности области, где действительная часть эффективной компоненты диэлектрической проницаемости близка к нулю.
4. В гиперболических метаматериалах наблюдается гигантское двулучепреломление, а также усиление эффективности генерации и скачок

фазы второй гармоники при переходе от эллиптического к гиперболическому закону дисперсии.

5. Намагниченность пленки изотропного ферромагнитного металла приводит к возникновению анизотропии его квадратичного нелинейно-оптического отклика.
6. Метаповерхности на основе немагнитных хиральных наноструктур демонстрируют эффект циркулярного дихроизма в отклике второй гармоники, обусловленный локализацией электромагнитного поля в наноэлементах. Величина и знак эффекта определяются как формой элементов и их расположением в массиве, так и азимутальной ориентацией структуры относительно плоскости поляризации регистрируемого сигнала ВГ.

### Апробация работы

Результаты, представленные в диссертационной работе, неоднократно обсуждались на российских и международных конференциях, основные из которых следующие:

1. Международная конференция “Moscow International Symposium on Magnetism” (Москва, Россия, 2014 г.)
2. Международная конференция “Frontiers in Optics: Laser science XXIV” (Тусон, США, 2014 г.)
3. Международный симпозиум “Наноп физика и наноэлектроника” (Нижний Новгород, Россия, 2015 г., 2016 г., 2017 г., 2018 г., 2020 г.)
4. “24th International Laser Physic Workshop (LPHYS'15)” (Шанхай, Китай, 2015 г.)
5. “25th International Laser Physic Workshop (LPHYS'16)” (Ереван, Армения, 2016 г.)
6. Международная конференция “METANANO-2017” (Владивосток, Россия, 2017 г.)
7. Международная конференция “METANANO-2018” (Сочи, Россия, 2018 г.)

8. Международная конференция “Frontiers in Optics: Laser science XXIX” (Вашингтон, США, 2019 г.);
9. “13th International Congress on Artificial Materials for Novel Wave Phenomena” (Рим, Италия, 2019 г. )
10. Международная конференция “Metamaterials, Photonic crystals and Plasmonics (META-2019)” (Лиссабон, Португалия, 2019 г.)

### **Публикации**

Основные результаты диссертации изложены в **45** печатных работах, в том числе в **38** статьях в рецензируемых научных журналах, удовлетворяющих Положению о присуждении учёных степеней в МГУ имени М.В. Ломоносова, и **7** статьях в других рецензируемых научных изданиях. Список работ автора приведен в конце диссертации перед списком литературы.

### **Личный вклад автора**

Все изложенные в диссертационной работе оригинальные результаты получены автором лично либо при ее определяющем участии в “Лаборатории нелинейной оптики наноструктур и фотонных кристаллов” физического факультета Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова. В опубликованных статьях основополагающий вклад принадлежит соискателю.

### **Обоснованность и достоверность результатов**

Результаты, представленные в диссертации, получены на основе многократно повторенных экспериментов, проведенных на современном научном оборудовании с использованием актуальных методов обработки опытных данных. Необходимые расчеты проведены на адекватно выбранных физических моделях анализируемых процессов, а также не противоречат данным других научных групп. Результаты исследований неоднократно обсуждены на семинарах и доложены на специализированных конференциях по проблемам, связанным с тематикой работы. Большая часть материалов диссертации опубликована в ведущих международных и российских научных журналах. Это позволяет считать представленные результаты обоснованными и достоверными, а также полностью отвечающими современному

мировому уровню исследований.

### Структура и краткое содержание диссертации

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения и списка литературы. Объем работы составляет **293** страницы, включая **104** рисунка и **4** таблицы. Список литературы содержит **298** наименований.

Во введении дается общая характеристика содержания диссертационной работы, обоснована актуальность темы, сформулированы задачи работы, защищаемые положения, научная новизна и практическая ценность.

В первой главе приведен краткий обзор основных аспектов нелинейно-оптических эффектов. Представлено описание возбуждения локальных, решеточных и распространяющихся поверхностных плазмонов в металлических наноструктурах, рассмотрены особенности оптического и нелинейно-оптического отклика метаматериалов и метаповерхностей различного дизайна. Уделено внимание магнитооптическим и нелинейным магнитооптическим эффектам в магнитных наноструктурах и тонких пленках. В конце первой главы приведены описания экспериментальных установок и использованных методик измерений.

Вторая глава посвящена изучению магнитных свойств тонких пленок ферромагнетиков. Методом нелинейного магнитооптического эффекта Керра исследовано три типа эффектов: магнитоиндуцированная анизотропия ВГ в пленках кобальта, обменное взаимодействие пленок CoFe с немагнитной прослойкой, возникновение нетривиальных состояний намагниченности на интерфейсах кобальта с тяжелыми металлами. Приведено феноменологическое описание наблюдаемых явлений.

Третья глава посвящена исследованию ферромагнитных наноструктур в которых реализуется неоднородное распределение намагниченности. Рассмотрено два типа структур: массивы кобальтовых треугольников и 2D-наноперфорированная пленка пермаллоя. В структурах первого типа путем приложения и выключения статического магнитного поля наблюдаются одинаково направленные вихри намагниченности. Предложен метод визуализации макроскопического тороидного момента с помощью детектирования квадратичного оптического отклика. В наноперфорированной магнитной пленке методами магнитооптики определена ориентация осей легкого намагничивания, измерена анизотропия величины линейного и нели-

нейного эффекта Керра в насыщающем магнитном поле.

В четвертой главе приведены результаты исследования плазмонных структур различного дизайна. Проведена спектроскопия оптического, магнитооптического и нелинейно-оптического отклика при возбуждении локальных поверхностных плазмонов, решеточных резонансов и бегущих плазмон-поляритонов. Приведены также экспериментальные данные исследования структур, где реализуется возбуждение магнитодипольного резонанса. Предложена феноменологическая трактовка наблюдаемых эффектов.

Пятая глава основана на результатах исследования оптических и нелинейно-оптических эффектов в хиральных двумерных (массивы золотых наноэлементов в форме запятых и в форме буквы “G”) и квазидвумерных (массивы винтообразных наноотверстий различной симметрии в серебряной пленке) наноструктур. Проанализирована роль формы мета-атома и их расположения в массиве в формировании квадратичного оптического отклика. Представлены также результаты исследований генерации ВГ в зеркально-симметричных пермаллоевых “U”-образных наноструктурах, где наблюдаются магнитоиндуцированные эффекты хиральности в нелинейно-оптическом отклике.

Шестая глава посвящена экспериментальному изучению гиперболических метаматериалов на основе массивов металлических наностержней в диэлектрической матрице. Представлены результаты расчетов и экспериментов для гигантского двулучепреломления и усиления генерации ВГ в спектральной окрестности близкого к нулю эффективного показателя преломления. Предложено два дизайна композитных гиперболических метаматериалов, содержащих никель, в которых наблюдается усиление магнитооптического отклика в особых дисперсионных точках.

В заключительной части диссертационной работы сформулированы основные выводы по результатам работы и приведен список опубликованных статей и цитируемой литературы.

---

# ГЛАВА 1

## Обзор литературы и описание экспериментальных методик

---

### § 1.1. Общее феноменологическое описание генерации второй гармоники в средах с квадратичной нелинейностью

Пусть в нелинейной среде распространяется плоская монохроматическая электромагнитная волна с амплитудой напряженности электрического поля  $E_0$ , волновым вектором  $\mathbf{k}$  и частотой  $\omega$ :

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{2} (\mathbf{E}_0 \exp(-i\omega t + i\mathbf{k}\mathbf{r}) + K.C.), \quad (1.1)$$

Тогда, в общем случае, компонента поляризации вещества, характеризующая отклик среды на внешнее электромагнитное поле, может быть представлена в виде ряда по степеням напряженности электрического поля  $\mathbf{E}$  [12, 13, 17]:

$$P_i = \sum_j \chi_{ij}^{(1)} E_j + \sum_{jk} \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \sum_{jkl} \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots \quad (1.2)$$

Это разложение справедливо для однородной изотропной среды без учета пространственной дисперсии и описывает локальный отклик системы на внешнее электромагнитное поле в электродипольном приближении. Первое слагаемое в (1.2) описывает линейный отклик  $\mathbf{P}^L$ , все остальные слагаемые - нелинейный отклик  $\mathbf{P}^{NL}$ .

В уравнения Максвелла для напряженности электрического и магнитного поля в среде с диэлектрической проницаемостью  $\epsilon$  и магнитной проницаемостью  $\mu$ , в таком случае, входит нелинейная поляризация:

$$\begin{aligned} rot\mathbf{H} &= \frac{1}{c} \frac{\partial(\epsilon\mathbf{E})}{\partial t} + \frac{1}{c} \frac{\partial\mathbf{P}^{NL}}{\partial t} \\ rot\mathbf{E} &= -\frac{1}{c} \frac{\partial(\mu\mathbf{H})}{\partial t} \\ div(\epsilon\mathbf{E}) &= -4\pi div\mathbf{P}^{NL} \\ div\mathbf{H} &= 0 \end{aligned} \quad (1.3)$$

Из этой системы можно вывести волновое уравнение:

$$\operatorname{rot}\operatorname{rot}\mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}^L}{\partial t^2} + \frac{4\pi}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{NL}}{\partial t^2} = 0 \quad (1.4)$$

Это дифференциальное уравнение второго порядка в частных производных, решить которое можно по теории возмущений.

Впервые решение этого уравнения было получено в работе [18] для поля второй гармоники (ВГ) от плоскопараллельной нелинейной пластины, удовлетворяющее граничным условиям на поверхности границы раздела вакуум/нелинейная среда. Было показано, что отклик на частоте второй гармоники состоит из свободной волны в диэлектрике, которая является решением однородного уравнения, вынужденной волны в диэлектрике, являющейся решением неоднородного уравнения, и отраженной волны в вакууме.

Феноменологическая связь спектральных компонент квадратичной поляризации вещества и напряженности электрического поля имеет вид [17]:

$$\mathbf{P}_{2\omega}^{(2)} = \hat{\chi}^{(2)} : \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega \quad (1.5)$$

где  $\hat{\chi}^{(2)}$  - тензор 3-го ранга, называемый тензором квадратичной восприимчивости. Выражение (1.5) соответствует первой (электродипольной) составляющей нелинейной поляризации, которая определяется только амплитудой электрического поля накачки. Интенсивность ВГ пропорциональна квадрату модуля электрического поля на частоте ВГ  $\mathbf{E}_{2\omega}$ , индуцированного, согласно (1.4), нелинейной поляризацией  $\mathbf{P}_{2\omega}^{(2)}$ :

$$I_{2\omega} \propto |\mathbf{E}_{2\omega}|^2 \propto |\mathbf{P}_{2\omega}^{(2)}|^2 \propto |\mathbf{E}_\omega|^4. \quad (1.6)$$

Другими словами, наличие ненулевого второго слагаемого в выражении (1.2) приводит к появлению компонент поляризации среды, осциллирующих на частоте  $2\omega$ , что, в свою очередь, приводит к переизлучению света на удвоенной частоте, т.е. генерации второй гармоники. Аналогичным образом происходит генерация третьей и более высоких гармоник.

Генерация ВГ была впервые экспериментально продемонстрирована в опыте П. Франкена в 1961 году в кристалле кварца с использованием рубинового лазера в качестве источника излучения накачки. С тех пор

нелинейная оптика активно развивается и в нелинейных кристаллах реализуется эффективность преобразования в сигнал ВГ в десятки процентов. До начала 2010-х годов зелёные лазерные указки представляли собой твердотельный лазер с невидимой человеческому глазу накачкой инфракрасным лазером и последующим нелинейным кристаллом для удвоения частоты. Приведем характерные значения нелинейных оптических восприимчивостей среды. Например, для кристалла KDP, широко применяемого в нелинейной оптике, эффективное значение квадратичной восприимчивости  $\chi^{(2)} = 3 \cdot 10^{-9} \text{ см}^{3/2}/\text{эрг}^{1/2}$  [19]. Что касается восприимчивости третьего порядка, для кристалла кварца она составляет  $10^{-14} \text{ см}^3/\text{эрг}$ , а для  $\text{CS}_2$   $\chi^{(3)} = 10^{-12} \text{ см}^3/\text{эрг}$ .

В общем случае наличие последнего слагаемого в (1.4) приводит к тому, что при излучении накачки на частотах  $\omega_m$  и  $\omega_n$  нелинейный отклик будет содержать Фурье-компоненты с комбинационными частотами  $\omega_n \pm \omega_m$ , в том числе, с кратными частотами  $2\omega_n$ ,  $3\omega_n$  и с нулевой частотой  $\omega_n - \omega_n = 0$ .

В ряде случаев нельзя ограничиваться рассмотрением локального отклика нелинейной среды; тогда поляризация в точке  $\mathbf{r}$  зависит от значений внешнего поля в некоторой окрестности этой точки. Простейший способ учета нелокальности - это представление поляризации в виде мультипольного разложения, параметром которого является отношение борковского радиуса (как характерного масштаба неоднородности среды) к длине волны излучения накачки:  $\frac{a_0}{\lambda} \sim 10^{-3}$ . Мультипольное разложение учитывает пространственную неоднородность оптических параметров среды, т.е. неоднородность  $\hat{\chi}^{(2)}$  как функции  $\mathbf{r}$ . Для квадратичной поляризации нелокальность может быть феноменологически учтена введением вклада, содержащего тензор (четвертого ранга) квадратичной квадрупольной восприимчивости.

$$\mathbf{P}^{(2)}(2\omega) = \hat{\chi}^{(2)D} : \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega + \hat{\chi}^{(2)Q} : \mathbf{E}_\omega \nabla \mathbf{E}_\omega \dots \quad (1.7)$$

где  $\hat{\chi}^{(2)D}$  и  $\hat{\chi}^{(2)Q}$  - тензоры электродипольной и электроквадрупольной квадратичной восприимчивости. В большинстве случаев в силу малости параметра мультипольного разложения в рассмотрении квадратичных нелинейно-оптических эффектов можно ограничиться электродипольным вкладом.

В генерации ВГ важную роль играет условие фазового синхронизма, которое связывает волновые вектора накачки и ВГ [20, 21]:

$$\mathbf{k}_{2\omega} = 2\mathbf{k}_\omega. \quad (1.8)$$

Фактически, выражение (1.8) является аналогом закона сохранения импульса. Максимальная эффективность генерации ВГ наблюдается при соблюдении условия фазового синхронизма, поэтому разработка методов его достижения позволили создать пригодные для применения преобразователи частоты и обеспечили быстрое развитие прикладной нелинейной оптики. Поскольку все оптические среды обладают дисперсией, то точное выполнение равенства показателей преломления  $n(\omega) = n(2\omega)$ , непосредственно вытекающего из выражения (1.8), как правило, невозможно. Стандартным способом обеспечения фазового синхронизма является компенсация материальной дисперсии за счёт двулучепреломления в анизотропных кристаллах, при этом волна накачки и ВГ имеют различную поляризацию, т.е.  $n_o(\omega) = n_e(2\omega)$  или  $n_e(\omega) = n_o(2\omega)$ . Кроме того, выполнение равенства (1.8) возможно в средах с сильной нестандартной частотной дисперсией, например, в фотонных кристаллах на краях фотонной запрещенной зоны [22, 23].

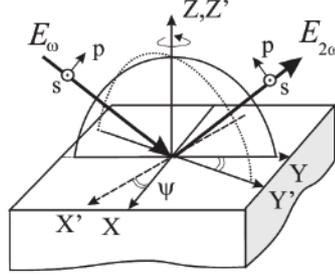
### 1.1.1. Свойства тензора квадратичной восприимчивости

Будучи тензором третьего ранга,  $\hat{\chi}^{(2)}$  содержит 27 элементов, однако, не все элементы тензора являются независимыми вследствие наличия у среды определенных свойств симметрии. Во-первых, очевидно, что все компоненты тензора квадратичной восприимчивости  $\chi_{ijk}^{(2)}$  симметричны относительно перестановки двух последних нижних индексов. Во-вторых, в силу принципа Неймана, группа симметрии тензора квадратичной восприимчивости должна включать в себя все элементы симметрии структуры.

Компоненты тензора преобразуются как соответствующие произведения проекций векторов, т.е. координат, а именно:

$$x'_i = T_{ij}x_j, \quad (1.9)$$

где  $\hat{T}$  - тензор преобразования. Тогда для компонент квадратичной восприимчивости:



**Рис. 1.1.** Иллюстрация к анализу азимутальной анизотропии ВГ. Здесь  $X'Y'Z'$  - лабораторная система координат, а  $XYZ$  - система координат, связанная с образцом.

$$\chi_{ijk}^{(2)'} = T_{il}T_{jm}T_{kn}\chi_{lmn}^{(2)}. \quad (1.10)$$

Из инвариантности преобразования (1.10) следует, что:

$$\chi_{ijk}^{(2)'} = \delta_{il}\delta_{jm}\delta_{kn}\chi_{lmn}^{(2)}, \quad (1.11)$$

где  $\delta_{ij}$  - символ Кронекера. Тогда для каждой из 27 компонент тензора квадратичной восприимчивости получаем:

$$(T_{il}T_{jm}T_{kn} - \delta_{il}\delta_{jm}\delta_{kn})\chi_{lmn}^{(2)} = 0. \quad (1.12)$$

Выражение (1.12) определяет, какие из компонент  $\hat{\chi}^{(2)}$  отличны от нуля в среде с конкретной симметрией. Например, для операции инверсии  $T_{ij} = -\delta_{ij}$ , следовательно, в среде, одним из элементов симметрии которой является инверсия,  $\chi_{ijk}^{(2)} = -\chi_{ijk}^{(2)}$ . Таким образом, что в centrosymmetric средах все компоненты  $\hat{\chi}^{(2)}$  (как и всех восприимчивостей четного порядка) в электродипольном приближении равны нулю [17].

На поверхности любого вещества центральная симметрия нарушается, поэтому генерация второй гармоники (ВГ) возникает при отражении от поверхности даже у centrosymmetric материалов [18]. Это свойство приводит к тому, что генерация ВГ является уникальной неразрушающей методикой, чувствительной к свойствам поверхности, интерфейсов и наноструктур. В этом случае не идет речь о фазовом синхронизме, квантовый выход ВГ мал (около  $10^{-13}$  в случае гладкой поверхности серебра), однако вполне может быть зарегистрирован в эксперименте с лазерной накачкой и несет в себе большой объем информации.

Тензорная природа квадратичной восприимчивости приводит к анизотропии квадратичного нелинейно-оптического отклика поверхности, для

ее исследования структуру вращают относительно нормали. При этом ненулевые компоненты  $\hat{\chi}^{(2)}$  становятся функциями азимутального угла поворота  $\psi$ . Рассмотрим лабораторную систему координат  $X'Y'Z'$  и систему координат, связанную с образцом  $XYZ$ , изображенные на рис. 1.1. Тогда тензор преобразования координат - это матрица поворота вокруг оси  $OZ$  (она совпадает с  $OZ'$ ) на угол  $\psi$ :

$$\hat{T} = \begin{pmatrix} \cos\psi & -\sin\psi & 0 \\ \sin\psi & \cos\psi & 0 \\ 0 & 0 & 1 \end{pmatrix}. \quad (1.13)$$

В результате эффективная компонента тензора квадратичной восприимчивости, описывающая процесс генерации ВГ в конкретной геометрии эксперимента с определенной комбинацией поляризаций зондирующего излучения и ВГ, становится конечной суммой вида:

$$\chi_{ijk}^{(2)'}(\psi) = \sum_n (C_0 + C_n \cos(n\psi) + S_n \sin(n\psi)), \quad (1.14)$$

где  $n = 1, 2, 3$  в электродипольном и  $n = 1, 2, 3, 4$  в электроквадрупольном приближении, а коэффициенты  $C_n$  и  $S_n$  - линейные комбинации компонент  $\chi_{ijk}^{(2)}$  в системе координат, связанной с образцом. При этом регистрируется интенсивность квадратичного оптического отклика  $I_{2\omega}(\psi) \propto |\chi_{ijk}^{(2)'}(\psi)|^2$  при вращении структуры относительно оси  $OZ$ . Анализируя азимутальную анизотропию интенсивности генерации ВГ, можно судить о симметрии самой исследуемой поверхности. Например, в работе [24] представлены азимутальные зависимости  $I_{2\omega}(\psi)$  для поверхностей кремния (111) и (100). При  $p$ -поляризованном лазерном излучении и регистрации  $p$ -поляризованной ВГ в первом случае наблюдается три максимума на азимутальный оборот, а во втором - четыре, что соответствует симметрии исследуемых поверхностей.

Для поверхности изотропной среды отличны от нуля следующие компоненты квадратичной восприимчивости [25]:

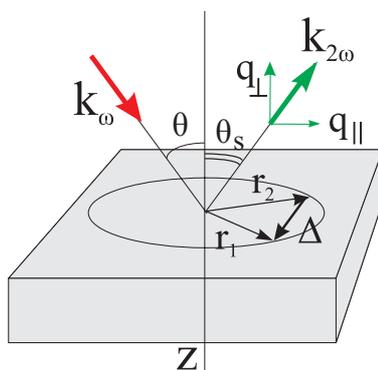
$$\chi_{zzz}, \chi_{zxx} = \chi_{zyy}, \chi_{xxz} = \chi_{xzx} = \chi_{yyz} = \chi_{yzy}. \quad (1.15)$$

При этом генерация изотропной  $s$ -поляризованной второй гармоники запрещена (так называемый,  $s$ -запрет). Он справедлив для однородных структур любого класса симметрии.

### 1.1.2. Релеевское и гиперрелеевское рассеяние света

Релеевским называется упругое рассеяние света на неоднородностях поверхности и объема среды, характерный размер которых много меньше длины волны,  $r \ll \lambda$ . В таком случае эффект описывается в дипольном приближении, ансамбль “переизлучателей” света рассматривается как набор диполей. Релеевское рассеяние света наблюдается на флуктуациях плотности и температуры в жидкостях и газах, что приводит к пространственной неоднородности диэлектрической проницаемости среды, а также, на флуктуациях ориентаций молекул в анизотропных средах и концентрации примесей. Другим источником диффузного рассеяния света является наличие геометрических неоднородностей, например, шероховатостей поверхности, что приводит к изменению направления отражения света на границе раздела сред.

Гиперрелеевское рассеяние света (ГРР) - рассеяние волны на частоте второй гармоники на субволновых неоднородностях среды, а также, на флуктуациях квадратичной восприимчивости  $\hat{\chi}^{(2)}$  как в объеме, так и на поверхности материала. При этом наблюдается генерация диффузной и деполяризованной ВГ - нарушается  $s$ -запрет. Флуктуации  $\hat{\chi}^{(2)}$  обуславливают неоднородное пространственное распределение нелинейной поляризации в объеме среды, что приводит к некогерентному рассеянию ВГ [26, 27]. Таким образом, ГРР является эффективным методом изучения статистических, структурных и нелинейно-оптических свойств объектов с неоднородными оптическими параметрами.



**Рис. 1.2.** Схематическое изображение расположения волновых векторов излучения накачки и отраженной ВГ для описания ГРР.

Рассмотрим тонкую пространственно-неоднородную пленку. Пусть  $\theta$  - угол падения (1.2). Излучение рассеянной ВГ в единичный телесный угол

в направлении, которое задается единичным вектором  $\xi = (\sin \theta_s, \cos \theta_s)$  ( $\theta_s$  - полярный угол рассеяния, отсчитываемый от нормали), запишется в виде суммы зеркальной и диффузной компонент [28]:

$$\begin{aligned} I_{2\omega}(\xi) &= I_s(\xi - \xi_s) + I_d(\xi), \\ I_s &\propto \langle \mathbf{P}(\mathbf{r}) \rangle \langle \mathbf{P}^*(\mathbf{r}) \rangle \delta(\xi - \xi_s), \\ I_d &\propto \int \langle \tilde{P}(\Delta) \tilde{P}^*(0) \rangle e^{-i(2\mathbf{k}_\omega - \mathbf{k}_{2\omega})\Delta} d\Delta = \\ &= \int \langle \tilde{P}_i(\Delta) \tilde{P}_j^*(0) \rangle e^{-i(2\mathbf{k}_\parallel - \mathbf{q}_\parallel)\Delta} d\Delta, \end{aligned} \quad (1.16)$$

где  $\xi_s = (\sin \theta_0, \cos \theta_0)$  – единичный вектор в зеркальном направлении,  $\mathbf{k}_\omega$  и  $\mathbf{k}_{2\omega}$  - волновые вектора накачки и ВГ, соответственно,  $\mathbf{k}_\parallel$  и  $\mathbf{q}_\parallel$  - проекции волновых векторов накачки и ВГ на плоскость пленки,  $|\mathbf{k}_\parallel - \mathbf{q}_\parallel| = \frac{2\pi}{\lambda_{2\omega}}(\sin \theta_s - \sin \theta)$ ,  $\Delta = \mathbf{r}_1 - \mathbf{r}_2$  - расстояние между нелинейными источниками в плоскости образца, усреднение, обозначенное угловыми скобками, проводится по ансамблю реализаций величины поляризации  $\mathbf{P}(\Delta)$  в области взаимодействия лазерного излучения со средой. Таким образом, зеркальная (регулярная) компонента сигнала ВГ определяется средним значением поляризации среды и существует только при условии  $\langle \mathbf{P}(\mathbf{r}) \rangle \neq 0$ , а диффузная компонента определяется корреляцией флуктуаций нелинейной поляризации.

В основе описания ГРР в твердотельных структурах лежит предположение, что корреляция нелинейных излучателей в изотропной и статистически однородной среде описывается функцией Гаусса:

$$\langle \tilde{P}_i(\Delta) \tilde{P}_j^*(0) \rangle = e^{-\Delta^2/L_{corr}^2} \quad (1.17)$$

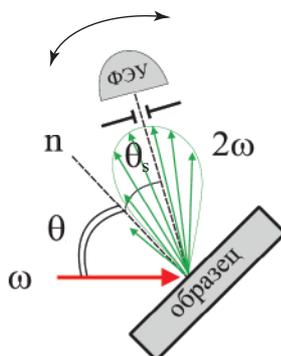
где  $L_{corr}$  - корреляционная длина.

В работе [29] изучена природа ГРР в неоднородных ленгмюровских пленках, содержащих двумерные nanoостровки гадолия. Пленки представляли собой монослои  $Gd^{3+}$ , разделенные слоями диэлектрика (стеариновой кислоты). Полученные индикатрисы, т.е. зависимости интенсивности ВГ от угла рассеяния (см. схему на рис. 1.3), были аппроксимированы функцией вида:

$$I_{2\omega}(\theta_s) \sim e^{-\left(\frac{2\omega}{c}\right)^2 (\sin \theta_s - \sin \theta)^2 L_{corr}^2}. \quad (1.18)$$

Из выражения (1.18) можно вычислить корреляционную длину, которая является характерным размером пространственной области, в пределах которой нелинейные источники излучают когерентно. В случае неоднородных

структур этот параметр может быть связан с характерным размером кристаллита.



*Рис. 1.3.* Схема измерения индикатрисы рассеяния ВГ при исследовании ГРР.

## § 1.2. Оптические и нелинейно-оптические эффекты в металлических наноструктурах

Структурирование среды на наномасштабах может приводить к появлению дополнительных резонансных свойств, плазмонных в случае металлов в видимом диапазоне спектра, резонансов Ми в диэлектрических и композитных структурах, мод шепчущей галереи для аксиально-симметричных структур и пр. Остановимся подробнее на резонансных свойствах металлических наноструктур.

### 1.2.1. Локальный поверхностный плазмонный резонанс

Локальные поверхностные плазмоны (ЛПП), т.е. индуцированные светом коллективные колебания электронов проводимости вблизи поверхности металла, могут возбуждаться в изолированных или неупорядоченных металлических наночастицах различной формы под действием оптического излучения. Размеры частиц должны быть достаточно большими по сравнению с межатомным расстоянием, чтобы в них имелся свободный электронный газ в зоне проводимости, но много меньше длины волны света видимого диапазона (тогда можно рассматривать упрощенную задачу, считая, что частица находится в пространственно однородном электрическом поле).

Математическую модель взаимодействия света с металлической наночастицей одним из первых предложил Дж. Ми в 1908 г. [30]. Рассмотр-

рим однородный шар радиуса  $a$  с диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_{met}$ , находящийся в однородной изотропной непоглощающей среде с диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_{env}$ , при приложении однородного электрического поля с амплитудой напряженности  $\mathbf{E}_\omega^0$ . При решении уравнение Лапласа с соответствующими граничными условиями, было выяснено, что внешнее поле поляризует шар, наводя дипольный момент [31]:

$$\mathbf{p} = 4\pi\epsilon_{env}a^3 \frac{\epsilon_{met} - \epsilon_{env}}{\epsilon_{met} + 2\epsilon_{env}} \mathbf{E}_\omega^0. \quad (1.19)$$

Выражение (1.19) соответствует формуле Клаузиуса-Моссотти. Для металла всегда существует спектральный диапазон (диапазон частот, ниже плазменной), в котором действительная часть  $\epsilon_{met}(\omega) < 0$ , то есть объемные электромагнитные волны в этом диапазоне частот не могут распространяться в металле. При такой частоте, что  $Re[\epsilon_{met}(\omega_{res})] = -2\epsilon_{env}$  (т.н. условие Фрелиха), происходит резонансное возрастание дипольного момента  $\mathbf{p}$ , а соответствующая  $\omega_{res}$  называется частотой локального поверхностного плазмона проводящей наночастицы. Для металлического шара, помещенного в вакуум и с диэлектрической проницаемостью, описываемой формулой Друде, условие Фрелиха выполняется на частоте  $\omega_{res} = \omega_p/\sqrt{3}$  ( $\omega_p$  - плазменная частота металла).

Заметим, что даже при резонансной частоте  $\mathbf{p}$  в выражении (1.19) не обращается в бесконечность, поскольку есть ненулевая мнимая часть  $Im[\epsilon_{met}]$ .

Напряженность электрического поля вблизи поверхности шара определяется выражением:

$$\mathbf{E}_\omega^{local} = \frac{3\epsilon_{env}}{\epsilon_{met} + 2\epsilon_{env}} \mathbf{E}_\omega^0. \quad (1.20)$$

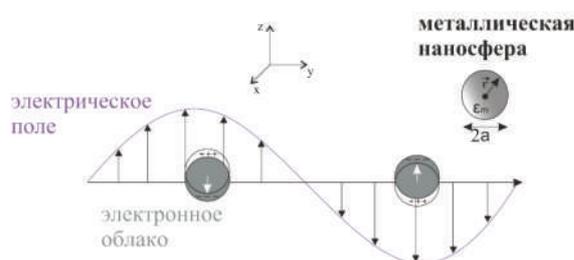
Для плазмонных частиц обычно вводится понятие фактора локального поля  $L_\omega$  (ФЛП) как коэффициента пропорциональности между амплитудой напряженности электрического поля вблизи поверхности частицы и амплитудой напряженности электрического поля падающей волны:

$$\mathbf{E}_\omega^{local} = L_\omega \mathbf{E}_\omega^0, \quad (1.21)$$

Возрастание локального поля  $\mathbf{E}_\omega^{local}$  при возбуждении плазмонов соответствует резонансу ФЛП.

Резонанс дипольного момента приводит к усилению поля как на поверхности частицы, так и во внешней среде. Усиление поля при возбуждении плазмонного резонанса используется в большинстве известных способов применения металлических частиц в оптических устройствах и датчиках.

Пусть теперь внешнее электрическое поле - это поле электромагнитной волны, осциллирующее во времени  $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}_\omega^0 e^{-i\omega t}$ . Тогда оно наводит в частице осциллирующий дипольный момент  $\mathbf{P}(t) = \mathbf{p} e^{-i\omega t}$  (рис. 1.4), излучение которого приводит к рассеянию волны и может быть представлено как излучение точечного диполя [31].

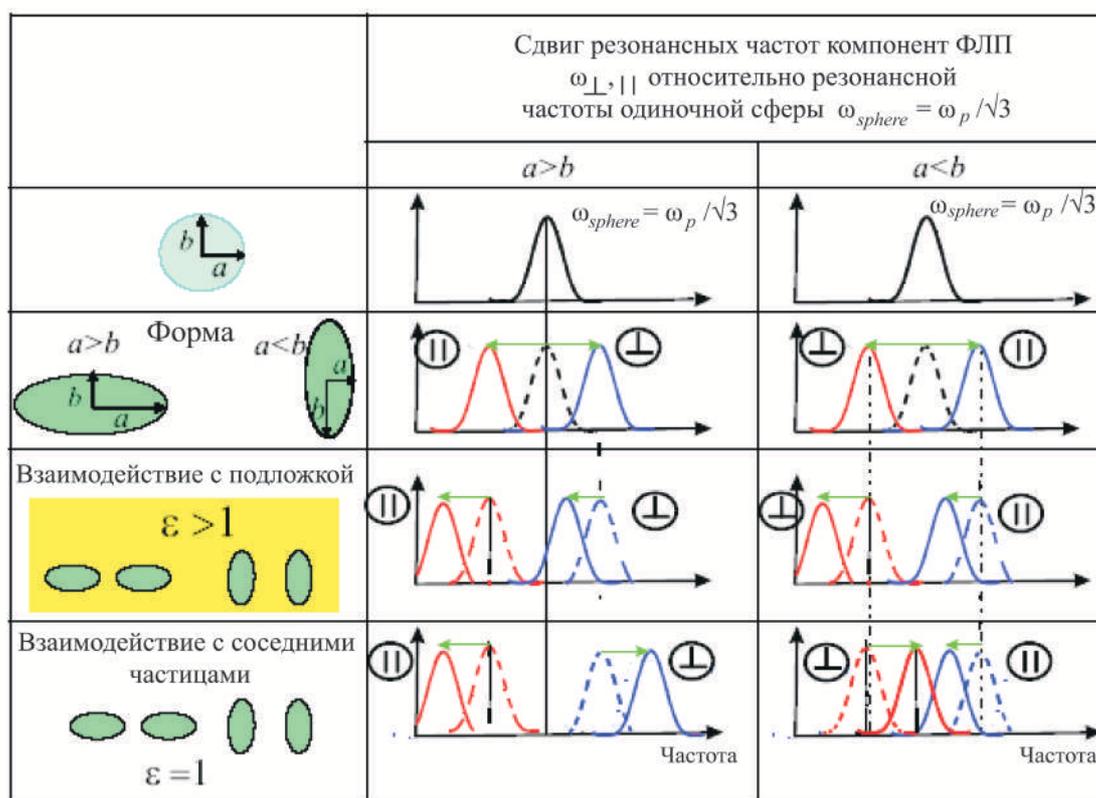


**Рис. 1.4.** Схема наведения осциллирующего электрического дипольного момента в металлической частице в поле электромагнитной волны.

Все вышеизложенное применимо также к дифракции света на любом числе сфер при условии, что все они имеют одинаковый диаметр, одинаковый состав, распределены хаотически и находятся друг от друга на больших расстояниях по сравнению с длиной волны. При таких условиях световые пучки, рассеянные сферами, не являются когерентными, а полная рассеянная энергия равна произведению энергии, рассеянной одной сферой, на число сфер.

Плазмонный механизм усиления ФЛП был предложен в работах [11], [32]. Экспериментально плазмонный резонанс можно наблюдать, измеряя спектр поглощения или пропускания пленки плазмонных наноструктур. В спектре поглощения наблюдается максимум, частота которого совпадает с частотой плазмона, а ширина определяется такими факторами как затухание плазмонных колебаний, взаимодействие наночастиц, разброс радиусов различных наночастиц, межмодовое плазмон-плазмонное взаимодействие.

Интерес к изучению ЛПП резко возрос после открытия в 1978 году гигантского усиления комбинационного рассеяния света молекулами, расположенными вблизи шероховатой поверхности металла или в коллоидных



**Рис. 1.5.** Факторы, влияющие на сдвиг плазмонных мод в эллипсоидах [33]: форма частиц, их взаимодействие с подложкой и коллективные эффекты.

растворах металлических наночастиц. Вскоре было показано, что одним из основных механизмов этих эффектов является усиление локального электромагнитного поля при возбуждении ЛПП.

Существуют ряд факторов, влияющих на величину и спектральное положение плазмонных мод металлических наночастиц и соответствующих ФЛП (рис. 1.5). Во-первых, снятие вырождения и частотное расщепление собственных плазмонных мод металлической частицы при отклонении ее формы от сферической. Поле внутри изолированного однородного эллипсоида с полуосями  $a, b$  ( $a, b \ll c/\omega$ ) выглядит следующим образом [33]:

$$E_i = L_{\omega, i} E_{\omega, i}^0 = \frac{1}{\epsilon_2 + (\epsilon_{met} - \epsilon_1) N_i} E_{\omega, i}^0, \quad (1.22)$$

$$i = x, y, z,$$

где  $N_i$  - факторы деполяризации,  $0 \leq N_i \leq 1$ , причем  $N_x + N_y + N_z = 1$ ;  $\epsilon_{met}$ ,  $\epsilon_1$ ,  $\epsilon_2$  - диэлектрические проницаемости эллипсоида, подложки и окружающей среды, соответственно. По условию резонанса ФЛП,  $Re(L_{\omega, i})^{-1} = 0$ , вычисляют резонансные частоты. В эллипсоиде возможно возбуждение двух ЛПП, которые соответствуют колебаниям электронов проводимости

вдоль и поперек оси вращения. Будем далее их называть продольным и поперечным ЛПП, соответственно. Факторы деполяризации  $N_x = N_y = \frac{1}{2}(1 - N_z) \equiv N_{\parallel}$  ( $OZ$  - ось вращения эллипсоида), причем, если  $a < b$ , то  $N_z \equiv N_{\perp} = \frac{1-e^2}{e^3}(\ln \frac{1+e}{1-e} - e)$ , а если  $a > b$ , то  $N_z = \frac{1+e^2}{e^3}(e - \arctg e)$ , где эксцентриситет  $e = |1 - \frac{a^2}{b^2}|^{1/2}$  (рис. 1.5). Для одиночной сферы  $N_x = N_y = N_z = 1/3$ , тогда приходим к формуле (1.20). Для эллипсоида с полуосями  $a > b$  факторы деполяризации  $N_{\perp} > 1/3$ ,  $N_{\parallel} < 1/3$ , тогда продольная резонансная частота смещается влево, в поперечная - вправо по оси частот относительно резонансной частоты одиночной сферы (рис. 1.5). В случае  $a < b$  получаем  $N_{\perp} < 1/3$ ,  $N_{\parallel} > 1/3$ , тогда продольная резонансная частота смещается в высокочастотную область, в поперечная - в низкочастотную. Для цилиндра, ось которого расположена вдоль оси  $OZ$ ,  $N_z = 0$ ,  $N_x = N_y = 1/2$ , а для пластины  $N_x = N_y = 0$ ,  $N_z = 1$ .

Вторым фактором, определяющим плазмонный спектр индивидуальной частицы, является диэлектрическая проницаемость окружающей среды. Увеличение диэлектрической проницаемости приводит к длинноволновому сдвигу плазмонного резонанса, как следует из условия Фрелиха. Именно поэтому металлические частицы являются подходящими объектами для оптического считывания изменений показателя преломления, перспективного для задач сенсорики.

В-третьих, плазмонный спектр ансамбля металлических частиц в значительной степени определяется дипольным взаимодействием между частицами, а, следовательно, их поверхностной плотностью в пленке. В частности, для массива эллипсоидов, чьи оси вращения ориентированы параллельно друг другу, спектральные положения продольного и поперечного резонансов сближаются вследствие коллективных эффектов (последняя строка, последний столбец на рис. 1.5).

В многочастичных системах за счёт коллективных эффектов возможно существование мод, для которых происходит усиление только ближнего поля. Данные моды не проявляются в спектрах пропускания и поэтому получили название “тёмных” мод [34]. Интерес к “темным” модам обусловлен тем, что они являются неизлучающими (эванесцентными), при этом локализация электромагнитного поля в наноструктуре в случае резонансного возбуждения “темных” мод значительно выше по сравнению с излучательными, что перспективно для различных практических применений.

### 1.2.2. Решеточный (дифракционный) плазмонный резонанс

Решеточный (дифракционный) плазмонный резонанс (РПР) (англ. - Surface Lattice Plasmon Resonance) наблюдается в двумерных массивах металлических наночастиц [35, 36, 37]. Под действием внешнего линейно-поляризованного электромагнитного поля световой волны в наночастицах золота наводятся диполи, сонаправленные с напряженностью электрического поля. Интерференция полей диполей определяет спектральное положение минимума пропускания. При этом резонанс наблюдается тогда, когда поля, рассеянные соседними частицами, синфазны [38]. Проведенные исследования показали, что усиление оптического отклика в таком случае намного превосходит усиление отклика изолированной частицы [39].

Длина волны, при которой возбуждается решеточный резонанс  $p$ -поляризованным излучением накачки, определяется выражением:

$$m\lambda = n_{eff}d, \quad (1.23)$$

где  $d$  - период массива, а  $n_{eff}$  - его эффективная диэлектрическая проницаемость,  $m \in Z$  - порядок дифракции. Когда  $d$  намного превосходит размер частиц  $R$ , то объемная доля металла мала и слабо влияет на величину  $n_{eff}$ . При этом наблюдается практически линейная зависимость спектрального положения резонанса от периода массива [37, 40]. При увеличении соотношения  $R/d$  наблюдается более сложная зависимость  $n_{eff}(d)$  и  $\lambda(d)$ .

Другими словами, при больших значениях периода структуры можно рассматривать металлические частицы как независимые точечные диполи, а при малых значениях  $d$ , по сравнению с  $R$ , каждая частица находится в эффективном локальном поле, созданном внешней волной и другими частицами, что модифицирует структуру рассеянной волны, наблюдаемую в дальней зоне [37].

### 1.2.3. Поверхностный плазмон-поляритон

Поверхностные плазмон-поляритоны (ППП) - электромагнитные волны, распространяющиеся вдоль границы раздела металл-диэлектрик. Причиной их возникновения также являются коллективные колебания электронов проводимости, возбуждаемые световой волной и имеющие резонансный характер [41].

Пусть свет с волновым вектором  $\mathbf{k}_0$ , ориентированным в плоскости  $XOZ$ , падает на границу металла и диэлектрика (рис. 1.6 (а)). Решая уравнения Максвелла с граничными условиями, как это сделано, например, в книге [31], можно показать, что ППП будет распространяться вдоль оси  $OX$  с комплексным параметром распространения (волновым вектором)  $\vec{\beta}$ :

$$\beta = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_{met}\epsilon_d}{\epsilon_{met} + \epsilon_d}}, \quad (1.24)$$

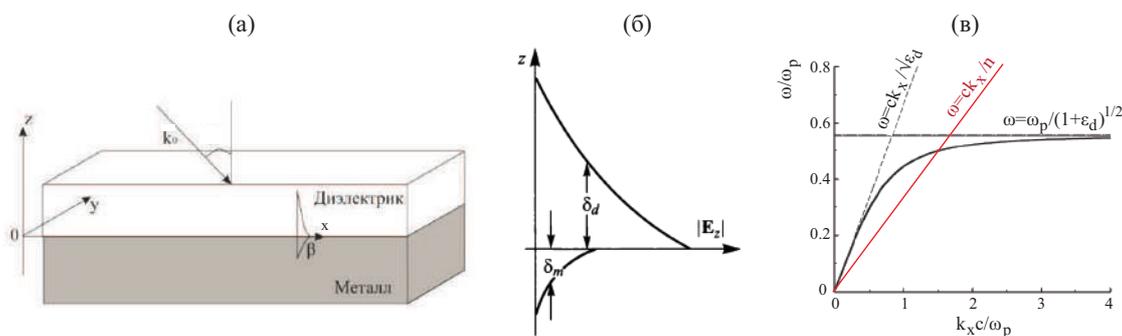
где  $k_0 = \omega/c$  - длина волнового вектора в вакууме,  $\epsilon_{met}$  и  $\epsilon_d$  - диэлектрические проницаемости металла и диэлектрика, соответственно. Выражение (1.24) справедливо как для действительных, так и для комплексных значений  $\epsilon_{met}$ , то есть, как для поглощающих, так и для непоглощающих проводников.

Следует еще раз подчеркнуть, что локализация электромагнитной волны у интерфейса требует одновременного выполнения равенств  $Re[\epsilon_{met}] < 0$  и  $\epsilon_d > 0$ . Характер распространения ППП сильно зависит от топологии приповерхностных слоев. Модуль  $z$ -компоненты электрического поля ППП экспоненциально спадает по обе стороны от границы раздела, как показано на рис. 1.6 (б). Характерные величины глубины проникновения ППП в металл -  $\delta_m \sim 10 - 30$  нм, а в диэлектрике  $\delta_d$  может варьироваться от сотен нанометров до нескольких микрон. Длина распространения ППП, определяемая мнимой частью  $\beta$ , например, на границе серебро/воздух при  $\lambda = 450$  нм составляет 16 мкм, а при  $\lambda = 1500 - 1100$  мкм [31].

Поскольку поле ППП экспоненциально затухает по обе стороны от интерфейса, то традиционными оптическими методами в дальней зоне их можно зарегистрировать только после того, как произойдет обратная трансформация ППП в световую волну, однако есть и различные методы микроскопии для изучения подобных резонансных возбуждений [41].

Особенности в спектрах пропускания и отражения, обусловленные возбуждением ППП, обычно имеют асимметричную форму, характерную для резонансов Фано [42]. Дело в том, что, проходя через структуру, свет может возбудить ППП или нерезонансно преодолеть ее, не возбуждая ППП. Таким образом, детектируется суперпозиция нерезонансного и резонансного вкладов.

Важно, что существуют только  $p$ -поляризованные ППП. В случае

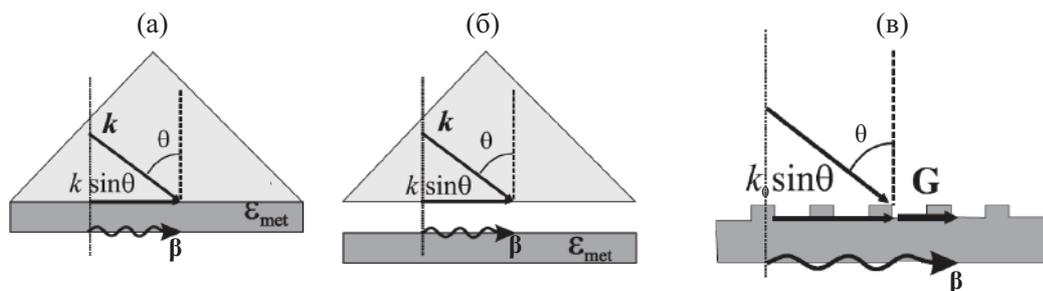


**Рис. 1.6.** (а) Схема возбуждения ППП; (б) затухание электрического поля ППП вглубь металла и диэлектрика; (в) дисперсионная кривая ППП (черная сплошная жирная линия), рассчитанная согласно (1.24), для интерфейса серебра (для серебра плазменная частота  $\omega_p = 12 \cdot 10^{15}$  Гц) и кварца с  $\epsilon_d = 2.25$  [41]. Наклонной пунктирной линией показана дисперсия световой волны в кварце. Красной линией изображена дисперсия световой волны в стеклянной призме с показателем преломления  $n$ .

$s$ -поляризованной волны, для которой вектор напряженности электрического поля осциллирует в плоскости поверхности, электроны проводимости могут распространяться беспрепятственно, тогда как для возникновения их колебаний необходимо наличие возвращающей силы - например, кулоновского притяжения между неподвижными ионами решетки и электронами при их движении вдоль нормали к интерфейсу.

Дисперсионная кривая для ППП, распространяющегося вдоль границы серебро/кварц, представлена сплошной черной линией на рис. 1.6 (в) [41]. Предполагается, что металл является непоглощающим, а его диэлектрическая проницаемость описывается формулой Друде. Пунктирной черной линией изображена дисперсионная кривая для света, распространяющегося в кварце. Как видно из рисунка, волновой вектор ППП всегда больше волнового вектора электромагнитной волны в прилегающем слое диэлектрика, поэтому свет, падающий на гладкую поверхность металла, не может напрямую возбудить ППП.

Для обеспечения закона сохранения импульса (волнового вектора) были предложены специальные экспериментальные схемы (рис. 1.7) [31]. Наиболее распространенным способом возбуждения ППП являются методы Кречмана и Отто с использованием стеклянных призм (с показателем преломления  $n$ ). В схеме Кречмана тонкая металлическая пленка наносится на основание призмы. В схеме Отто между призмой и поверхностью металла существует субволновой зазор. В обоих случаях ППП



**Рис. 1.7.** Экспериментальные схемы для возбуждения ППП: (а) схема Кречмана, (б) схема Отто, (в) с помощью дифракционной решетки.

возбуждается на границе металл/воздух. В представленных схемах поле  $p$ -поляризованной волны с вектором  $\mathbf{k}$  ( $|\mathbf{k}| = \omega n/c$ ) падает на основание призмы под углом  $\theta$ , большим угла полного внутреннего отражения. Свет частично проникает в воздух, причем проекция его волнового вектора на горизонтальную плоскость в  $n$  раз больше, чем для электромагнитной волны в воздухе (дисперсионная кривая показана красной линией на рис. 1.6 (в)). При некотором угле падения достигается равенство  $\omega n \sin \theta / c = \beta$ , что соответствует условию возбуждения ППП, резонансная частота которого соответствует точке пересечения сплошной черной и красной кривых на рис. 1.6 (в).

Другой метод заключается в периодическом структурировании металлической пленки, что позволяет возбуждать ППП за счет дифракции на ней падающего света. В этом случае условие квазисинхронизма (закон сохранения импульса) имеет следующий вид (рис. 1.7 (в)) [31, 41]:

$$\beta = \mathbf{k}_x \sin \theta + m \mathbf{G}, \quad (1.25)$$

где  $\mathbf{k}_x$  - проекция волнового вектора падающей волны,  $\mathbf{G}$  - вектор обратной решетки,  $m$  - целое число. Этот подход привлекателен тем, что варьированием периода плазмонной решетки возможно подобрать положение ППП под требуемый спектральный диапазон.

В случае 2D-периодической структуры в законе сохранения импульса “участвуют” два вектора обратной решетки,  $\mathbf{G}_1$  и  $\mathbf{G}_2$  с целочисленными коэффициентами [31].

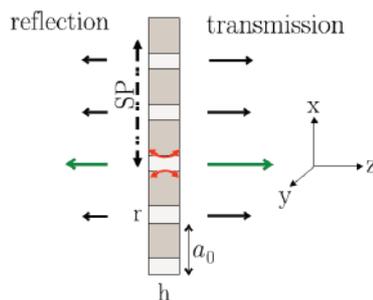
Структуры с 1D или 2D периодичностью, демонстрирующие возбуждение ППП, называются плазмонными кристаллами.

#### 1.2.4. Плазмонные наноперфорированные структуры

Существенным недостатком массивов плазмонных наночастиц с точки зрения возможных применений является значительное уменьшение пропускания света в резонансной спектральной области, которое, в свою очередь, снижает эффективность управления параметрами оптического излучения. Принципиально другой дизайн структуры - инвертированный (Бабине-сопряженный) был впервые предложен в 1998 году Т. Эббесеном [43] и представлял собой решетку цилиндрических нанотверстий диаметром 150 нм в серебряной пленке толщиной 200 нм. Было показано, что в такой структуре при возбуждении ППП наблюдается аномально большое пропускание света. Дело в том, что плазмоны приводят к увеличению эванесцентного поля вблизи поверхности пленки, а после туннельного прохождения этого усиленного поля через отверстия происходит обратное преобразование поверхностного плазмона в поле излучения.

Следует отдельно уточнить, что имеется в виду под аномальным пропусканием (в англоязычной литературе - “anomalous transmission” или “extraordinary transmission”). Оно заключается в том, что оптически толстая периодически перфорированная пленка металла с диаметром отверстий меньше длины волны пропускает достаточно большую долю падающего излучения, что противоречит классической теории, по которой электромагнитное излучение на таких длинах волн не может проходить через отверстия данного диаметра. Для одной апертуры в плоском экране при нормальном падении света величина коэффициента пропускания  $T = \frac{\int I(\theta)d\Omega}{I_0}$ , где  $I_0$  - общая интенсивность света, падающая на апертурную площадь,  $I(\theta)$  - интенсивность света, регистрируемая под углом  $\theta$  к изначальному направлению распространения света [31].

Если радиус апертуры много больше длины волны,  $r \gg \lambda$ , то задача решается с помощью принципа Гюйгенса-Френеля и его математической формулировки - теории дифракции Кирхгофа. При этом оказывается, что  $T \approx 1$ . Для субволновых отверстий приближение Кирхгофа не работает. Дело в том, что оно основано на допущении, что электромагнитное поле в отверстии аналогично тому, которое было бы при отсутствии непрозрачного экрана, но это не согласуется с граничным условием обращения в ноль тангенциальной компоненты электрического поля на экране. Для больших отверстий это не дает большой ошибки, т.к. интенсивность дифрагирую-



**Рис. 1.8.** Схема дифракции света на массиве субволновых отверстий в металлической пленке [44]

шего света мала по сравнению с прошедшим прямо. В случае субволновых отверстий это приближение несостоятельно. Бете и Бувкамп нашли точное решение задачи дифракции света на субволновом круглом отверстии радиуса  $r$  в бесконечно тонком непрозрачном и идеально проводящем экране, оказалось, что  $T \sim (r/\lambda)^4$ , что согласуется с теорией Рэля. Однако для расчетов на экране конечной толщины порядка 1-2 скин-слоев необходимо пользоваться численными методами.

В массиве упорядоченных нанотверстий в тонкой металлической пленке условие фазовой синхронизации, накладываемое решеткой, дает специфический вид спектра пропускания с пиками на длинах волн, при которых возбуждаются ППП. При таких длинах волн может выполняться условие  $T > 1$ , т.е. большее количество энергии может пройти через апертуру, чем падает на ее площадь. Объясняется это тем, что падающее на металлический экран между отверстиями излучение также проходит сквозь отверстие через возбуждение ППП (рис. 1.8). Вклад нерезонансного прохождения света через нанотверстия может приводить к тому, что пики пропускания имеют асимметричную форму, характерную для резонанса Фано [44].

После работ Т. Эббесена различными научными группами варьировались металлы [45] и форма нанотверстий (квадратные [46], H-образные [47], X-образные [48], I-образные [49] и т.д.) для достижения наиболее эффективного усиления локального поля и максимизации коэффициента пропускания. Разрабатываются также методики возможных применений наноперфорированных металлических пленок в сенсорике, основанной на чувствительности резонанса к показателю преломления окружающего диэлектрика и на селективном усилении комбинационного рассеяния.

Разработан также простой (и относительно дешевый, так как не требует использования дорогостоящих методов литографии) метод создания плазмонных структур произвольно больших размеров - напыление металла на поверхность коллоидного кристалла, состоящего из полимерных наночастиц [50, 51] или искусственного опала [52]. Полученная структура характеризуется 2D-периодическим рельефом металла с массивом отверстий, образующих гексагональную решетку с периодом, определяемым размером частиц. В такой метаповерхности наблюдается аномально высокое пропускание, обусловленное оптическим возбуждением ППП [43, 44, 45], а также, если речь идет о металлической пленке на опале, - возможность одновременной демонстрации фотоннокристаллических и плазмонных свойств [53].

### 1.2.5. Генерация гармоник в плазмонных структурах

Теперь рассмотрим нелинейно-оптический отклик металлической наночастицы. Как уже было сказано, поле внутри нее может существенно отличаться от поля накачки, в особенности в спектральной окрестности плазмонного резонанса. Если исследовать генерацию ВГ в наночастице, то в выражении (1.5) вместо амплитуды внешнего поля  $\mathbf{E}_\omega$  нужно взять амплитуду локального поля. Тогда, учитывая (1.21), получим аналог выражения (1.6) для плазмонных структур:

$$P_{2\omega} \propto \chi^{(2)} |\mathbf{E}_\omega^{local}|^2 \quad (1.26)$$

$$E_{2\omega}^{local} \propto L_{2\omega} P_{2\omega} \quad (1.27)$$

$$I_{2\omega} \propto |E_{2\omega}^{local}|^2 \propto (\chi^{(2)})^2 L_{2\omega}^2 L_\omega^4 I_\omega^2, \quad (1.28)$$

Таким образом, интенсивность ВГ пропорциональна четвертой степени фактора локального поля на частоте накачки, а также квадрату ФЛП на удвоенной частоте из-за усиления поля, излучаемого источниками ВГ. Следовательно, в случае резонанса будет наблюдаться значительное усиление интенсивности ВГ, целиком определяемое электромагнитными механизмами. Таким образом, плазмонные эффекты в квадратичном оптическом отклике могут быть существенно более выражены, чем в линейном, что, с одной стороны, дает дополнительные возможности диагностики наноструктур методами нелинейной оптики, а в другой - может быть использовано в различных задачах сенсорики.

Экспериментально усиление сигнала ВГ при “участии” локальных поверхностных плазмонов было впервые показано в работе [54] для шероховатой поверхности серебра. При этом наблюдался диффузный, практически изотропный и неполяризованный сигнал ВГ. Интенсивность второй гармоники в  $10^4$  превысила сигнал от гладкой пленки серебра. Похожие результаты были получены для шероховатой поверхности золота, где наблюдаемое усиление сигнала ВГ составило  $10^3$ .

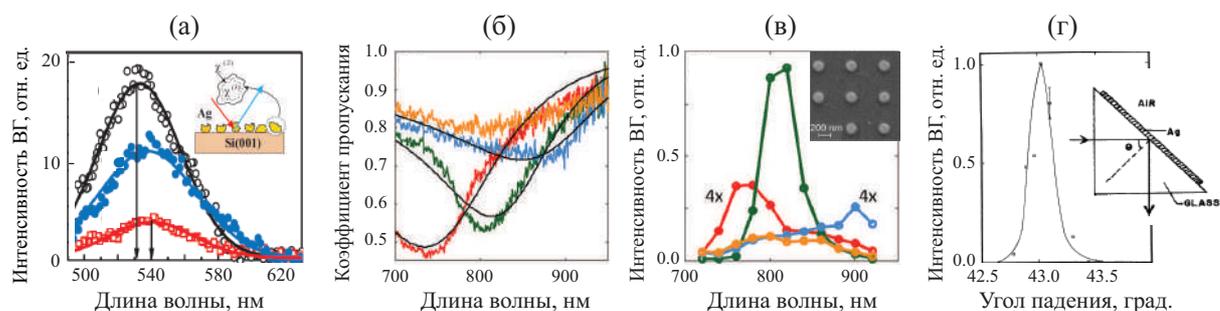
Генерация гигантской ВГ в островковых пленках серебра (размер частиц серебра  $1 \div 100$  нм) впервые экспериментально наблюдалась в работе [16]. Обнаружено усиление интенсивности ВГ в структуре на три порядка, по сравнению с интенсивностью ВГ от гладкой поверхности серебра на длине волны, соответствующей возбуждению ЛПП (рис. 1.9 (а)).

Выражение (1.28) применимо и для генерации ВГ при возбуждении плазмонных резонансов другой природы. В частности, в работе [55] был экспериментально и численно исследован квадратичный нелинейно-оптический отклик двумерных массивов металлических наночастиц цилиндрической формы на кварцевой подложке (рис. 1.9 (б)). Обнаружено возрастание интенсивности ВГ, причем спектральное положение максимума  $I_{2\omega}$  соответствует минимуму пропускания для каждого массива и сдвигается в коротковолновую область при уменьшении периода. Это указывает на то, что усиление эффективности генерации ВГ обусловлено возбуждением решеточного плазмонного резонанса (РПР).

Было также обнаружено усиление генерации ВГ при возбуждении ППП на гладкой границе серебро/воздух в схеме Кречмана [56]. Затем аналогичные эксперименты были проведены при использовании решеточного метода замыкания условия синхронизма [57, 58], в том числе, в массивах наноотверстий различной симметричной формы [59, 60].

### § 1.3. Оптика и нелинейная оптика хиральных структур

В разработке методов управления параметрами оптического излучения важное место занимает задача изучения оптического отклика хиральных сред. Трехмерные (3D) хиральные структуры, т.е. структуры, среди элементов симметрии которых отсутствуют плоскости зеркальной симметрии, хорошо известны - это, например, аминокислоты и сахара [62, 63].



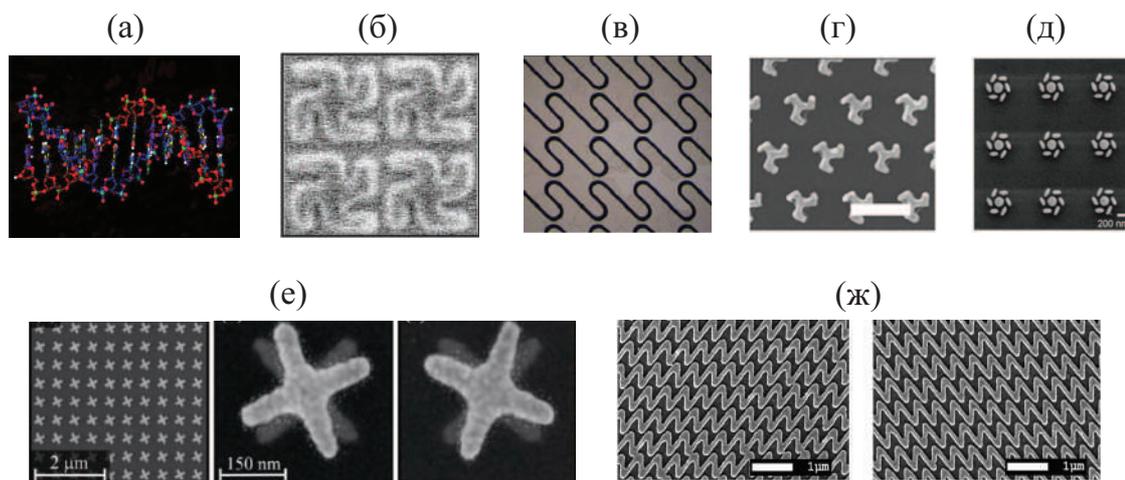
**Рис. 1.9.** (а) Спектральные зависимости интенсивности ВГ для островковых пленок серебра, напыленных на ступенчатый оксидный клин при толщинах слоя окисла 100 нм (синие точки), 70 нм (красные точки) и естественного оксида (черные точки); на вставке – схема структуры [61]. (б) и (в) – спектры пропускания и интенсивности ВГ для двумерных массивов золотых наночастиц с периодами 400 нм (красные линии), 500 нм (зеленые линии), 600 нм (голубые линии) и 700 нм (оранжевые линии) [55]. (г) Зависимость интенсивности отраженной ВГ в схеме Кречмана (на вставке) от угла падения света на поверхность серебра [56].

Важнейшее свойство хиральных сред – оптическая активность. Строе-ние хиральных сред обуславливает разные показатели преломления,  $n_{left}$  и  $n_{right}$ , и коэффициенты поглощения для *правой* и *левой* циркулярной поляризации излучения. Разница  $n_{left}$  и  $n_{right}$  позволяет контролировать плоскость поляризации пучка, проходящего через немагнитную хиральную трехмерную среду, а различие коэффициентов поглощения приводит к появлению эффекта циркулярного (кругового) дихроизма [62, 63, 64], определяемого по формуле:

$$CD = \frac{T^{right} - T^{left}}{T^{right} + T^{left}}, \quad (1.29)$$

где  $T^{right}$  и  $T^{left}$  – коэффициенты пропускания (по интенсивности) для света с *правой* и *левой* циркулярной поляризацией.

Два хиральных элемента, являющихся зеркальными отображениями друг друга, называются энантиомерами и демонстрируют противоположные знаки  $CD$  и направления угла поворота плоскости поляризации. Именно поэтому можно идентифицировать энантиомер по его оптическому отклику, что актуально, например, для задач биологии и медицины. В трехмерных хиральных средах величина угла поворота плоскости поляризации и циркулярного дихроизма растет с увеличением оптического пути света в материале, однако при этом, в соответствии с законом Бугера, уменьша-



**Рис. 1.10.** (а) Хиральная молекула ДНК; хиральные золотые метаповерхности: (б) гамма-дионы (размер изображения - 1 мкм) [6], (в) “fish-scale” (период - 15 мкм) [67], (г) трискелионы (указанный отрезок равен 1 мкм) [68], (д) гептамеры [69], (е) “twisted-cross” нанодимеры - вид массива и элементы двух энантиомеров [70], (ж) энантиомеры пилообразных структур [71].

ется коэффициент пропускания, что накладывает существенные ограничения на применение 3D хиральных природных материалов в нанофотонике. Например, для раствора глюкозы с концентрацией  $0.075 \text{ г/см}^3$  при длине кюветы 20 см угол поворота плоскости поляризации света в видимом диапазоне составляет всего лишь порядка  $10^\circ$ .

Линейная и нелинейная оптика объемных сред, состоящих из хиральных молекул, были подробно изучены в ряде работ, например, [65, 66].

Для планарных метаповерхностей понятие хиральности подразумевает отсутствие зеркальной симметрии в плоскости структуры, а не в трехмерном пространстве [72, 73, 74]. Две плоских хиральных поверхности, являющиеся зеркальными отображениями друг друга, называют энантиомерами. Это могут быть двумерные массивы наноструктур (мета-атомов) с элементарной ячейкой, размеры которой меньше или сопоставимы с длиной волны света. В то же время, наличие подложки, на которой расположены мета-атомы, приводит к эффективному снятию симметрии в направлении нормали к ней. В планарных метаповерхностях хиральность возникает как из-за формы единичного метаэлемента [67, 75, 76, 77], так и их асимметричного расположения в массиве [78, 79]. Примеры дизайна хиральных метаповерхностей приведены на рис. 1.10 (б-ж). Геометрическая форма, материал наноэлемента, а также поляризация падающей электромагнитной волны играют ключевую роль в формировании линейного и нелиней-

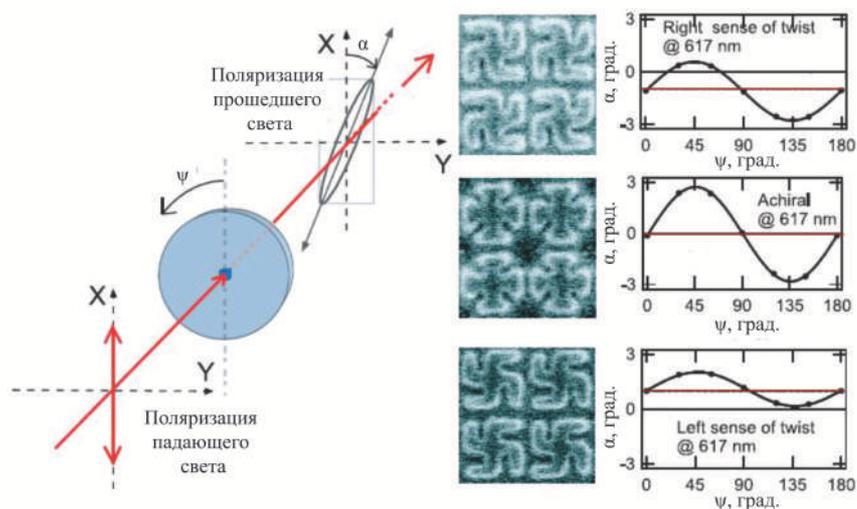
ного оптического отклика металлических наночастиц [80]. Кроме высокой оптической активности в таких структурах возможно наблюдение отрицательного показателя преломления [81, 82], резонансного поглощения в заданном спектральном диапазоне [83, 84], и других эффектов, которые могут найти применение в нанофотонике и сенсорике.

Было показано, что оптический отклик металлических планарных наноструктур обусловлен возбуждением в них локальных поверхностных плазмонов и, следовательно, концентрацией электромагнитного поля вблизи их поверхности в областях, называемых “горячие точки” (“hotspots”). В зависимости от формы наноструктуры и геометрии взаимодействия с излучением накачки “hotspots” формируются в разных частях плоских наноструктур, модифицируя их оптические свойства [85]. Определить локализацию “hotspots” можно путем расчетов распределения электрического поля в мета-атомах (например, методом конечных разностей во временной области, FDTD), либо с помощью различных методов микроскопии. Например, в работе [86] было получено изображение никелевой “G”-образной структуры в атомно-силовом микроскопе (АСМ) после облучения мощными лазерными импульсами, где видны оплавленные участки поверхности, которых не было до облучения. По видимому, это связано с омическим нагревом и последующей деформацией поверхности вследствие сильной локализации электрического поля в “hotspots”.

Линейные хирооптические эффекты в планарных хиральных наноструктурах были впервые исследованы в массивах трехслойных Ti/Au/Ti гаммадионов [72], где обнаружено вращение плоскости поляризации ( $\alpha$ , точнее, главных осей поляризационного эллипса,  $\alpha$ ) отраженного света вплоть до  $10^\circ$  при толщине наноструктур 140 нм.

В гаммадионах состава Au/MgF<sub>2</sub>/Au было обнаружено, что в спектральной окрестности плазмонного магнитодипольного резонанса циркулярный дихроизм массива наноэлементов возрастает в 10 раз, достигая 6%, что является очень сильным эффектом с учетом уникально малой толщины оптически активного мета-слоя 75 нм [87].

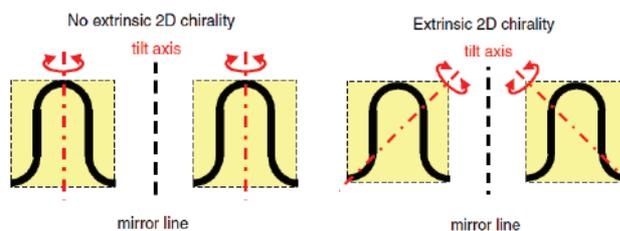
Другой способ увеличения хирооптических эффектов основан возбуждении локальных поверхностных плазмонных резонансов в наноэлементах, тогда оптический отклик структуры определяется интерференцией откликов в наноэлементах или частях наноэлементов. Усиление оптической ак-



**Рис. 1.11.** Вращение плоскости поляризации в золотых гаммадионах:  $\alpha$  – угол поворота поляризационного эллипса,  $\psi$  – азимутальный угол поворота метаповерхности относительно плоскости поляризации падающего излучения. Длина волны излучения накачки 617 нм, размер мета-атома 500 нм, его толщина – 95 нм [6].

тивности достигается за счет так называемого эффекта внутреннего гомодинирования. Это было продемонстрировано, например, для планарных массивов гептамеров (рис. 1.10 (д)), в которых величина циркулярного дихроизма достигла максимального значения в резонансе 30%, в то время как в нерезонансных условиях  $CD$  был близок к нулю [69]. Таким образом была показана определяющая роль собственных резонансов наноструктур для усиления оптической активности хиральных метаповерхностей.

Следует также отметить, что величины хирооптических эффектов существенно зависят от азимутальной ориентации анизотропной метаповерхности относительно плоскости поляризации падающего света. Это связано с тем, что разная ориентация поля накачки относительно структуры приводит к разному распределению электрического поля в мета-атомах, которое и определяет параметры оптического отклика структуры в целом. Например, на рис. 1.11 представлены азимутальные зависимости угла поворота поляризационного эллипса для двух массивов энантиомеров и нехиральной метаповерхности при нормальном падении света на структуры [6]. Чтобы выделить истинно хиральный эффект необходимо усреднить величину  $\alpha$  по азимутальному углу  $\psi$ . Среднее значение  $\langle \alpha \rangle_\psi$  (показано красной горизонтальной линией на графиках на рис. 1.11) имеет разный знак для энантиомеров и равно нулю в симметричной структуре.



**Рис. 1.12.** Иллюстрация к понятию наведенной (“extrinsic”) хиральности. Красным пунктиром обозначена линия пересечения плоскости падения и метаповерхности [88].

Эффекты оптической активности могут возникать в планарных зеркально-симметричных структурах при наклонном падении света на поверхность, в геометрии эксперимента, когда поверхность несимметрична относительно плоскости падения – это называется “наведенной хиральностью” (“extrinsic chirality”) (рис. 1.12) [88, 89]. В этом случае такие признаки хиральности как поворот плоскости поляризации и циркулярный дихроизм в отсутствие намагниченности могут возникать из-за тензорного характера материальных характеристик исследуемых поверхностей. По величине угол поворота поляризационного эллипса и циркулярный дихроизм могут быть сравнимы с аналогичными эффектами в хиральных метаповерхностях, однако среднее значение обусловленных наведенной хиральностью  $\alpha$  и  $CD$  по всем азимутальным ориентациям метаповерхности всегда равно нулю.

Мотивация использования метода генерация второй гармоники для исследования хиральных метаповерхностей обусловлена несколькими факторами. Во-первых, метод генерации ВГ является эффективным инструментом изучения свойств наноструктур. Во-вторых, нелинейно-оптический отклик хиральных метаповерхностей определяется, в том числе, распределением электромагнитного поля в структуре, т.е. усиливается при возрастании фактора локального поля в области резонансов, например, плазмонного, или за счет эффекта формы (т.н. эффект громоотвода). В-третьих, хиральные поверхности обладают дополнительными компонентами тензоров нелинейной восприимчивости вида  $\chi_{xyz}$ , которые обращаются в ноль в ахиральных средах аналогичной кристаллографической симметрии [90]. Знак этих компонент различен для энантиомеров, что приводит к наблюдению оптической активности в генерации ВГ и позволяет различать энантиомеры с использованием такого нелинейно-оптического метода.

Хиральные эффекты в квадратичном нелинейно-оптическом отклике

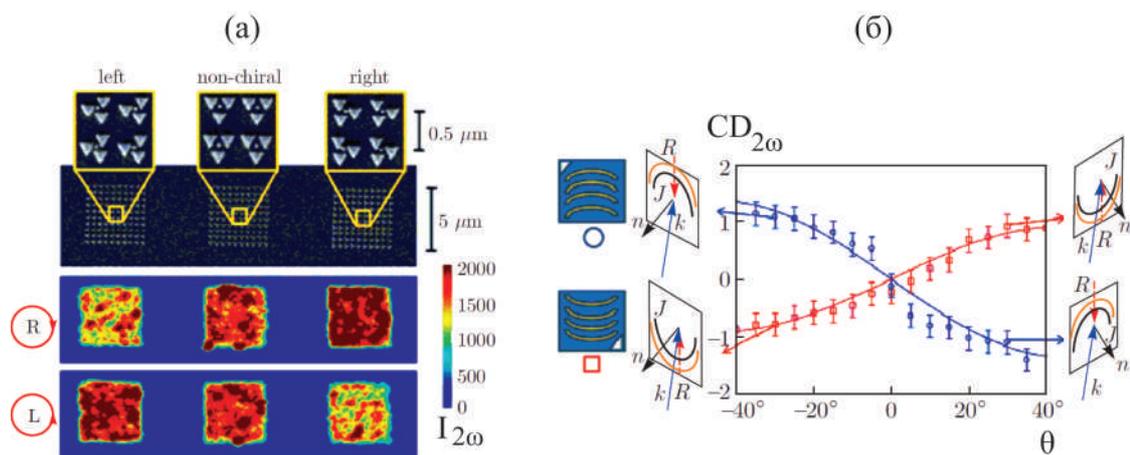
проявляются как поворот плоскости поляризации ВГ относительно плоскости поляризации накачки и/или как циркулярный дихроизм [91, 92], рассчитываемый по формуле:

$$CD_{2\omega} = \frac{I_{2\omega}^{right} - I_{2\omega}^{left}}{I_{2\omega}^{right} + I_{2\omega}^{left}}, \quad (1.30)$$

где  $I_{2\omega}^{right}$  и  $I_{2\omega}^{left}$  - интенсивности прошедшей или отраженной ВГ при *правой* и *левой* циркулярной поляризации излучения накачки. В ряде случаев целесообразно измерять циркулярный дихроизм *p*- или *s*- поляризованной ВГ, обозначаемый ниже как  $CD_{2\omega,p}$  и  $CD_{2\omega,s}$ . Тогда в формулу (1.30) следует подставить интенсивности ВГ соответствующей (*p*- или *s*-) поляризации.

Экспериментально циркулярный дихроизм ВГ в планарных массивах металлических наноструктур впервые наблюдался в ансамблях золотых “L”-образных наноэлементов с характерными линейными размерами около 250 нм [93]. Вследствие особенностей изготовления оказалось, что стороны “L”-образных элементов немного отличаются по длине, что приводит к отсутствию плоскостей зеркальной симметрии у мета-атомов и массива в целом, т. е. к хиральности. Хиральные эффекты в линейном оптическом отклике пренебрежимо малы по сравнению с аналогичными эффектами в квадратичном отклике [94]. Наибольший эффект циркулярного дихроизма  $CD_{2\omega}$  в массивах “L”-образных элементов, вычисленного по формуле (1.30), составляет около 45%. Аналогичные эксперименты были проведены в массивах “T”-образных элементов (нано-димерах), у которых имеется зазор между горизонтальной и вертикальной частями димера [95]. Части димера не строго перпендикулярны, что нарушает зеркальную симметрию его структуры и существенно влияет на процесс генерации ВГ при циркулярно поляризованном излучении накачки. Величина  $CD_{2\omega}$  зависит от размера зазора между частями “T”-образных димеров, что подтверждается расчетами распределения локального электрического поля для *левой* и *правой* циркулярной поляризации зондирующего излучения.

Значительные величины циркулярного дихроизма интенсивности ВГ, на порядки превышающие линейный аналог, были обнаружены в хиральных планарных метаматериалах различного дизайна - пилообразных структурах [71], массивах золотых трискелионов, гаммадионов [68] и трех-



**Рис. 1.13.** (а) СЭМ-изображения трех золотых метаповерхностей, состоящих из левых энантиомеров (слева), нехиральных мета-атомов (в центре) и правых энантиомеров (справа) и соответствующие результаты микроскопии ВГ, полученные при зондировании структур излучением с *правой* (верхняя панель) и *левой* (нижняя панель) циркулярной поляризацией [97]; (б) зависимость  $CD_{2\omega}$  в золотых изогнутых нанопроводах от угла падения зондирующего излучения [98].

слойных нанодимеров “twisted-cross” [70] (рис. 1.10). Для всех видов структур знак циркулярного дихроизма  $CD_{2\omega}$  был различен для энантиомеров.

Для двумерных массивов “L”-образных наночастиц субволнового размера было показано, что взаимное расположение наноэлементов в массиве приводит к различию анизотропии и интенсивности квадратичного отклика структуры [96]. Эти результаты были объяснены интерференцией откликов от наноструктур в форме буквы “L”, а также специфическим распределением локального поля внутри таких наноэлементов. Таким образом, была показана возможность контроля нелинейно-оптического отклика метаповерхности путем изменения взаимного расположения наноструктур в 2D-массиве [80].

Как отмечалось выше, механизм формирования эффектов оптической активности в квадратичном отклике обусловлен специфическим распределением электромагнитного поля в планарных наноэлементах. В связи с этим интерес представляет сопоставление эффектов хиральности на микро- и макромасштабах. Такой анализ можно провести, если сравнить отклик от массива большого количества наноэлементов (в традиционных нелинейно-оптических исследованиях лазерный луч фокусируется в область диаметром порядка нескольких десятков мкм) с результатами микро-

скопии интенсивности ВГ, когда регистрируется квадратичный нелинейно-оптический отклик с области метаповерхности, сравнимой с длиной волны.

Микроскопия ВГ была проведена для массивов золотых нанотреугольников (рис. 1.13 (а)) [97]. Был рассмотрен симметричный массив (non-chiral) и два хиральных энантиомера. В зависимости от симметрии расположения нанотреугольников в массиве наблюдалось различное пространственное распределение интенсивности ВГ при *левой* и *правой* циркулярной поляризации излучения накачки (рис. 1.13 (а)). Таким образом, величина циркулярного дихроизма ВГ имеет разное латеральное распределение в структуре, а знак среднего по поверхности массива  $CD_{2\omega}$  зависит от энантиомера.

Следует также упомянуть работу о нелинейном отклике ахиральных наноструктур в геометрии наведенной хиральности (extrinsic chirality) [98]. Наблюдение оптических эффектов, связанных с наведенной хиральностью, требует ненулевого угла падения лазерного излучения. Единичный вектор вдоль оси зеркальной симметрии, волновой вектор излучения накачки и нормаль к поверхности структуры могут образовывать левую или правую тройку векторов, что определяет знак  $CD_{\omega}$  и  $CD_{2\omega}$ . Зависимость  $CD_{2\omega}$  от угла падения лазерного излучения в массивах золотых изогнутых нанопроводов представлена на рис. 1.13 (б). Показано, что значения  $CD_{2\omega}$  достигают 40% для угла падения  $40^\circ$ , имеют разные знаки и одинаковые абсолютные значения для углов падения  $\theta$  и  $-\theta$ . Изменение знака угла падения эквивалентно азимутальному вращению образца на  $180^\circ$ , поэтому усреднение  $CD_{2\omega}$  по  $\theta$  или азимутальным положениям дает  $\langle CD_{2\omega} \rangle = 0$ . Этот факт отличает эффекты, связанные с наведенной хиральностью, от наблюдаемых в массивах структур хиральной формы.

Большинство работ по оптическому и нелинейно-оптическому отклику хиральных наноструктур сопровождается численным моделированием на основе метода конечных разностей во временной области (FDTD), а также анализом перекрытия спектральных мод и описанием квадратичного отклика в рамках модели нелинейности газа свободных электронов в металлах.

## § 1.4. Гиперболические метаматериалы

Рассмотрим материал с одноосной анизотропией ( $Oz$  - ось симметрии). Общеизвестно, что в такой среде тензоры диэлектрической и магнитной проницаемости имеют вид:

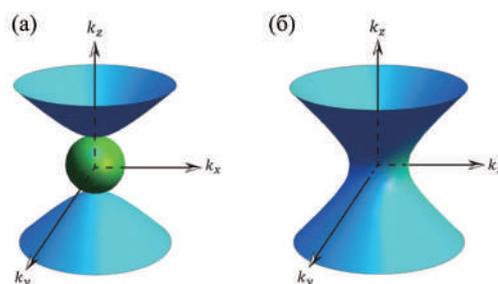
$$\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{\parallel} \end{pmatrix}, \hat{\mu} = \begin{pmatrix} \mu_{\perp} & 0 & 0 \\ 0 & \mu_{\perp} & 0 \\ 0 & 0 & \mu_{\parallel} \end{pmatrix}. \quad (1.31)$$

Гиперболическими метаматериалами (ГММ) называют такие композитные искусственные наноструктурированные материалы, обладающие одноосной оптической анизотропией, в которых поперечная и продольная составляющие тензора диэлектрической и/или магнитной проницаемостей на оптических частотах имеют противоположные знаки, то есть,  $\epsilon_{\perp}\epsilon_{\parallel} < 0$  и/или  $\mu_{\perp}\mu_{\parallel} < 0$  [7, 8, 99]. Ограничимся случаем  $\mu_{\perp} = \mu_{\parallel} \equiv 1$ . В такой среде дисперсионное соотношение имеет вид [99]:

$$(k_x^2 + k_y^2 + k_z^2 - \epsilon_{\perp}k_0^2) \left( \frac{k_x^2 + k_y^2}{\epsilon_{\parallel}} + \frac{k_z^2}{\epsilon_{\perp}} - k_0^2 \right) = 0, \quad (1.32)$$

где  $\mathbf{k}_0$  - волновой вектор падающей на ГММ волны,  $|\mathbf{k}_0| = \frac{\omega}{c}$ . Согласно общепринятой терминологии [99], в ГММ I типа (т.н. диэлектрического типа)  $\epsilon_{\perp} > 0, \epsilon_{\parallel} < 0$ , тогда первый множитель в (1.32) соответствует распространению ТЕ-волны (обыкновенной,  $s$ -поляризованной), изочастотная поверхность которой - сфера. Вторым множителем в (1.32) описывает изочастотную поверхность для ТМ-поляризованной (необыкновенной,  $p$ -поляризованной) волны, которая имеет вид двуполостного гиперболоида (рис. 1.14 (а)). В ГММ II типа (т.н. металлического типа), где  $\epsilon_{\perp} < 0, \epsilon_{\parallel} > 0$ , ТЕ-волна не может распространяться, а изочастотная поверхность ТМ-волны - однополостный гиперболоид (рис. 1.14 (б)). В природных средах невозможна реализация гиперболического режима дисперсии в оптическом диапазоне. В изотропных диэлектрических кристаллах изочастотная поверхность имеет вид сферы, в анизотропных (кварц, исландский шпат и т.д.) - эллипсоида.

В режиме гиперболической дисперсии в метаматериале могут распространяться волны с большими волновыми векторами, в англоязычной литературе называемые “high-k waves” [100, 101], что используется для по-



**Рис. 1.14.** Изочастотные поверхности: (а) в ГММ I типа, (б) в ГММ II типа. Зеленым цветом показана поверхность для ТЕ-волны, синим - для ТМ-волны [99].

лучения сверхвысокого разрешения в оптических системах на основе ГММ [102, 103] и для усиления спонтанного излучения [104, 105]. Оптика гиперболических сред сейчас находится на пике развития, что связано с широкими возможностями их применения в нанофотонике и биосенсорике [106, 107]. Помимо ярких оптических явлений, возникающих в ГММ для квазинепрерывного излучения, распространение сверхкоротких лазерных импульсов в этих средах демонстрирует необычные динамические эффекты, ставшие совсем недавно предметом интенсивных исследований. Так, в волноводах из ГММ на основе металлических наностержней в диэлектрической матрице возможно в широких пределах управлять величиной групповой скорости света, достигая как эффектов медленного света, так и его сверхсветового распространения [108, 109, 110], а индуцированное высокоинтенсивной световой накачкой изменение диэлектрической проницаемости ГММ дает возможность контролируемо изменять профиль лазерных импульсов.

Искусственные ГММ демонстрируют две выраженные особенности их оптических спектров, связанные с возникновением полюса эффективной диэлектрической проницаемости (Epsilon Near Pole, ENP), а также сменой знака действительной части эффективной диэлектрической проницаемости (Epsilon Near Zero, ENZ) [101, 111]. В спектральной окрестности этих особенностей наблюдается усиление оптических и нелинейно-оптических эффектов, о которых пойдет речь ниже.

Широко известны два возможных дизайна ГММ - пленки с чередующимися слоями металл/диэлектрик и массивы металлических наностержней в диэлектрической матрице. Структуры второго типа имеют преимущество в том, что изготавливаются относительно простыми электрохимическими методами [112, 113]. Кроме того, они, как правило, имеют меньшее поглощение. Наиболее эффективным способом получения массивов метал-

лических наностержней является темплатное электроосаждение металла в пористые плёнки анодного оксида алюминия (АОА), которые, в свою очередь, формируют с помощью электрохимического окисления (анодирования) алюминиевых пленок. Такие структуры помимо сильной анизотропии, сопровождаемой противоположными знаками компонент тензора диэлектрической проницаемости  $\epsilon_{\parallel}\epsilon_{\perp} < 0$ , демонстрируют два оптических резонанса. Первый из них соответствует возбуждению локального поверхностного плазмона в направлении, перпендикулярном наностержням, определяет появление полюса диэлектрической проницаемости ГММ  $\epsilon_{\perp}$ . Его спектральное положение зависит, преимущественно, от типа металла, в качестве которого обычно выступают золото или серебро, применяемые из-за своих низких оптических потерь. Второй резонанс, проявляющийся локальным минимумом в спектре экстинкции, соответствует коллективным продольным колебаниям электронов в наностержнях, что соответствует точке ENZ ГММ, когда  $Re\epsilon_{\parallel} \approx 0$ . Спектральное положение точки ENZ может контролироваться путем задания объемной доли металла в структуре и длины наностержней [112].

Нелинейная оптика ГММ интересна по двум причинам. Во-первых, резонансное усиление нормальной компоненты электрического поля накачки в структуре в спектральной окрестности ENZ приводит к усилению генерации гармоник и самовоздействия света в среде [114, 115, 116, 117, 118, 119]. Такие эффекты уже были экспериментально исследованы в изотропных природных ENZ материалах ( $\text{CaF}_2$ , TiN, ITO, SiC и др.). Здесь преимущество ГММ состоит в том, что в них спектральное положение ENZ может быть подобрано под решаемую научную или практическую экспериментальную задачу путем варьирования геометрии структуры. Во-вторых, сильная дисперсия ГММ, в особенности вблизи точек ENZ и ENP, позволяет путем выбора геометрии эксперимента добиться выполнения условия фазового квазисинхронизма, а, следовательно, эффективной генерации второй и третьей гармоник [120, 121, 122, 123, 124].

## § 1.5. Магнитоиндуцированные эффекты

### 1.5.1. Линейные магнитооптические эффекты

Магнитооптические (МО) эффекты заключаются в трансформации поляризационного состояния или изменении интенсивности света, происходящие в результате его взаимодействия с намагниченным веществом [40]. Рассмотрим тензор  $\hat{\epsilon}$  в случае оптически изотропного ферромагнетика [125]. Наличие намагниченности  $\mathbf{M}$  понижает его симметрию до одноосной - тензор  $\hat{\epsilon}$  в системе координат с осью  $OZ$ , направленной вдоль  $\mathbf{M}$ , имеет вид:

$$\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_1 & ig & 0 \\ -ig & \epsilon_1 & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_0 \end{pmatrix} \quad (1.33)$$

Вектор поляризации  $\mathbf{P}$  можно представить в виде:

$$\mathbf{P} = a_0\mathbf{E} + i[\mathbf{gE}] + b(\mathbf{E} - \mathbf{m}(\mathbf{mE})), \quad (1.34)$$

где  $\mathbf{m} = \mathbf{M}/M$ ,  $b = \epsilon_1 - \epsilon_0$ ,  $\epsilon_0$  - диэлектрическая проницаемость среды при  $\mathbf{M} = 0$ ,  $\mathbf{g}$  - вектор гирации. В изотропной среде  $\mathbf{g}(\mathbf{M}) = g(M)\mathbf{m}$ , обычно  $g(M) \sim M$ . При наличии поглощения в магнитной среде константы  $\epsilon_0$ ,  $g$ ,  $b$ ,  $a_0$  являются комплексными,  $g$  и  $b$  отличны от нуля только при наличии намагниченности в структуре.

Эффект Фарадея [125] наблюдается в прошедшем через образец свете, если есть ненулевая составляющая волнового вектора, параллельная направлению намагниченности (рис. 1.15 (а)). Проходящее через изотропную среду линейно поляризованное излучение может быть представлено как суперпозиция *правой* и *левой* циркулярно поляризованных волн. Во внешнем магнитном поле показатели преломления для *правой* и *левой* циркулярной поляризации света становятся различными ( $n_{right}$  и  $n_{left}$ ). Вследствие этого, при прохождении через среду (вдоль магнитного поля) линейно поляризованного излучения его циркулярно поляризованные составляющие распространяются с разными фазовыми скоростями, приобретая разность хода, линейно зависящую от оптической длины пути. В результате плоскость поляризации линейно поляризованного монохроматического света с

длиной волны  $\lambda$ , прошедшего в среде путь  $l$ , поворачивается на угол:

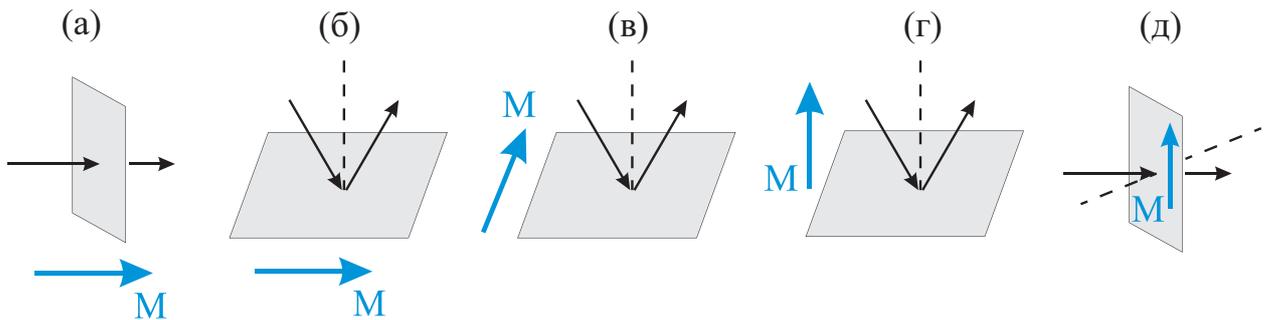
$$\alpha = \frac{\pi l(n_{right} - n_{left})}{\lambda}. \quad (1.35)$$

В области не очень сильных магнитных полей разность  $(n_{right} - n_{left})$  линейно зависит от намагниченности и в общем виде угол фарадеевского вращения описывается соотношением:

$$\alpha = V|\mathbf{M}|l, \quad (1.36)$$

где  $V$  - т.н. постоянная Верде, коэффициент пропорциональности, который зависит от свойств вещества, длины волны излучения и температуры;  $\mathbf{M}$  - намагниченность. Таким образом, угол поворота плоскости поляризации пропорционален намагниченности среды. Для действительных значений  $\epsilon_1$  и  $g$  волна в гиротропной среде остается линейно поляризованной. При наличии поглощения, зависящего от  $\mathbf{M}$ , волна приобретает эллиптическую поляризацию.

С микроскопической точки зрения вещество, намагниченное внешним магнитным полем или обладающее постоянной намагниченностью, характеризуется расщепленной системой электронных состояний (эффект Зеемана). Поэтому, процессы поглощения света с различной поляризацией сопровождаются различными электронными переходами, т. е. возникновением оптической анизотропии [40].



**Рис. 1.15.** Схемы приложения магнитного поля в геометриях (а) эффекта Фарадея; (б) меридионального, (в) экваториального, (г) полярного эффекта Керра; (д) Фохта.

Важной отличительной особенностью эффекта Фарадея является невязимость или нарушение симметрии относительно обращения времени. Направление вращения плоскости поляризации меняет свой знак при изменении направления намагниченности среды. При фиксированном направлении  $\mathbf{M}$ , угол  $\alpha$  увеличивается кратно, если свет проходит несколько

раз через среду, что является основным механизмом усиления эффекта Фарадея, например, в магнитофотонных микрорезонаторах [126]. Заметим, что для хиральных сред с естественной оптической активностью в качестве резонаторного слоя кратного увеличения угла поворота поляризации не происходит, и при четном количестве проходов луча восстанавливается исходная ориентация плоскости поляризации.

Магнитоиндуцированные эффекты, проявляющиеся при отражении света от поверхности намагниченного материала, принято объединять общим названием - магнитооптические эффекты Керра. В зависимости от геометрии эксперимента, различают экваториальный, меридиональный и полярный эффекты Керра (рис. 1.15 (б-г)). Экваториальный эффект Керра проявляется в изменении интенсивности и сдвиге фазы линейно поляризованной волны при отражении от поверхности намагниченного образца. Меридиональный и полярный эффекты Керра заключается во вращении плоскости поляризации и появлении эллиптичности при отражении линейно поляризованной волны от намагниченной среды [125].

Отметим также еще одну геометрию для наблюдения МО отклика - регистрация прошедшего через структуру света при приложении поперечного магнитного поля, т.н. геометрия Фохта (нем. Voigt), представленная на рис. 1.15 (д). Эффект проявляется в изменении интенсивности прошедшего света и нечетен по намагниченности. МО эффект в геометрии Фохта отличен от нуля, если различны показатели преломления сред, граничащих с магнитным слоем, а точнее - если различны коэффициенты отражения на верхней и нижней границах магнитного слоя. При одном и том же угле падения и постоянном направлении намагниченности эффект меняет свой знак при обращении хода луча, не меняя своего абсолютного значения [125].

### 1.5.2. Генерация магнитоиндуцированной ВГ

В работе [127] было одной из первых показано теоретически, а в статье [128] - экспериментально, что в средах с макроскопической намагниченностью (ферромагнетиках и парамагнетиках), находящихся в насыщающем внешнем поле, возможна генерация магнитоиндуцированной второй гармоники. Вектор намагниченности  $\mathbf{M}$  является аксиальным вектором. Он не меняется при преобразованиях полярного базиса [129], следовательно, не нарушает инверсной симметрии среды. Поэтому магнитоиндуцирован-

ная квадратичная поляризация возникает только в нецентросимметричных средах или на поверхностях и границах раздела центросимметричных сред. Однако аксиальный вектор  $\mathbf{M}$  меняет знак при инверсии времени, что и обуславливает особенности явления генерации магнитоиндуцированной ВГ [130].

Для однородно намагниченных сред нелинейная поляризация второго порядка может быть записана следующим образом [14]:

$$\mathbf{P}_{2\omega} = \hat{\chi}^{(2)cr} : \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega + \hat{\chi}^{(2)magn} : \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega \mathbf{M}. \quad (1.37)$$

В (1.37) первое слагаемое описывает кристаллографический вклад, а второе отлично от нуля только в присутствии намагниченности. Кристаллографический вклад описывается полярным тензором  $\hat{\chi}^{(2)cr}$  третьего ранга, магнитоиндуцированный вклад - аксиальным тензором (псевдотензором)  $\hat{\chi}^{(2)magn}$  четвертого ранга [131]. В прозрачной среде  $\hat{\chi}^{(2)cr}$  является вещественным тензором, а  $\hat{\chi}^{(2)magn}$  - мнимым тензором. Таким образом, слагаемые в (1.37) являются источниками неинтерферирующих волн. Интерференция возможна, только если частота падающего света лежит в полосе поглощения исследуемой среды, при этом оба тензора комплексны. Такая интерференция открывает широкие возможности для исследования нелинейных магнитооптических эффектов. Число ненулевых компонент  $\hat{\chi}^{(2)magn}$  зависит от кристаллографической симметрии образца [128]. Удобно рассматривать намагниченность как параметр, тогда последнее слагаемое в (1.37) можно записать как  $\hat{\chi}^{(2)magn}(M) : \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega$  (тогда  $\hat{\chi}^{(2)magn}(M)$  - тензор 3-го ранга). В простейшем случае можно ограничиться нечетными (линейными) по намагниченности компонентами  $\hat{\chi}^{(2)magn}$ , т.е.  $\hat{\chi}^{(2)magn}(-\mathbf{M}) = -\hat{\chi}^{(2)magn}(\mathbf{M})$ .

По аналогии с линейной магнитооптикой в зависимости от геометрии эксперимента, различают экваториальный, меридиональный и полярный эффекты Керра (рис. 1.15), магнитоиндуцированная ВГ может наблюдаться как в отраженном, так и в прошедшем отклике. В случае генерации отраженной магнитоиндуцированной второй гармоники наблюдается нелинейный магнитооптический эффект Керра - вращение плоскости поляризации (или осей поляризационного эллипса) ВГ относительно плоскости поляризации накачки или изменение интенсивности генерации второй гармоники под действием приложенного к образцу магнитного поля.

Остановимся сначала подробнее на экваториальном эффекте Керра. Пусть  $\mathbf{M} \parallel OY$ ,  $(XOZ)$  - плоскость падения. Для поверхности изотропной магнитной среды появляются дополнительные ненулевые компоненты тензора квадратичной восприимчивости, нечетные по намагниченности [131]:  $\chi_{xxx}^{(2)magn}$ ,  $\chi_{xyy}^{(2)magn}$ ,  $\chi_{xzz}^{(2)magn}$ ,  $\chi_{yxy}^{(2)magn}$ ,  $\chi_{zzx}^{(2)magn}$ . В формуле (1.37)  $\mathbf{E}_\omega$  и  $\mathbf{P}_{2\omega}$  - локальные поле и поляризация, чтобы соотнести их с падающей волной, надо использовать соответствующие коэффициенты Френеля. Пусть накачка  $s$ -поляризована (напряженность электрического поля  $\mathbf{E}_0$  направлена вдоль оси  $OY$ ), тогда генерацию второй гармоники определяет четная компонента  $\chi_{zyy}^{(2)cr}$  и нечетная компонента  $\chi_{xyy}^{(2)magn}$ . Таким образом, результирующая интенсивность второй гармоники:

$$\begin{aligned} I_{2\omega}(\pm\mathbf{M}) &\propto |\mathbf{E}_0|^4 (\alpha\chi_{zyy}^{(2)cr} \pm \beta\chi_{xyy}^{(2)magn})^2 = \\ &= |\mathbf{E}_0|^4 ((\alpha\chi_{zyy}^{(2)cr})^2 + (\beta\chi_{xyy}^{(2)magn})^2 \pm 2\alpha\beta\chi_{zyy}^{(2)cr}\chi_{xyy}^{(2)magn}), \end{aligned} \quad (1.38)$$

где  $\alpha$  и  $\beta$  - соответствующие факторы Френеля. Компонента  $\chi_{xyy}^{(2)magn}$  прямо пропорциональна намагниченности, тогда из (1.38) следует, что интенсивность ВГ также линейно зависит от намагниченности, а изменение знака магнитного поля приводит к изменению интенсивности второй гармоники.

В работе [132] была исследована генерация ВГ в тонких пленках гранатов при накачке *правым* и *левым* циркулярно поляризованным светом при приложении магнитного поля в геометрии Фарадея и нормальном падении излучения на структуру. Показано, что при разных круговых поляризациях лазерного излучения наблюдается различная эффективность формирования квадратичного оптического отклика. Такой эффект возникает вследствие интерференции кристаллографического и магнитоиндуцированного электродипольных вкладов. Важно, что в отличие от линейной магнитооптики, не наблюдается однозначное соответствие между направлением намагниченности в структуре и знаком эффекта циркулярного дихроизма ВГ.

В геометрии полярного или меридионального эффекта Керра в однородно намагниченных пленках наблюдается поворот плоскости поляризации ВГ относительно плоскости поляризации излучения накачки.

Следует отметить, что величины МО эффектов в генерации ВГ, как правило, на порядки превышают аналоги в линейном оптическом отклике, что обуславливает широкие возможности нелинейно-оптических методов

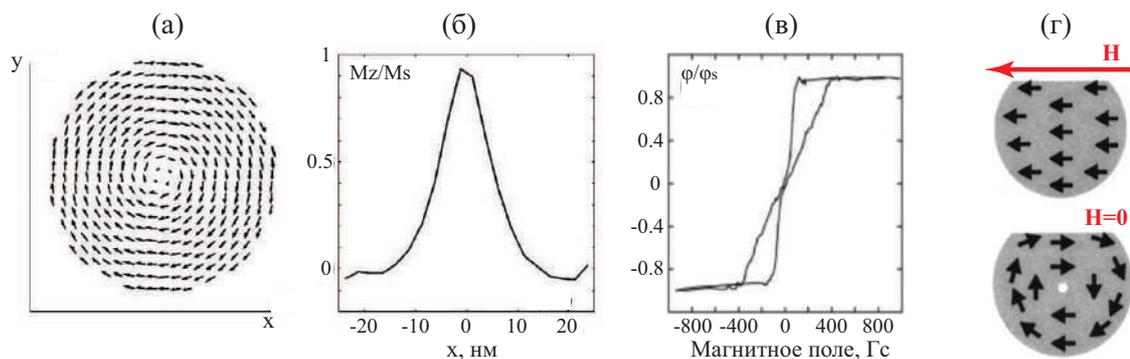
для исследования намагниченных сред, в том числе, структур с нетривиальным состоянием намагниченности. При этом, если источник линейного МО отклика - “объем” магнитной среды на глубине проникновения света, то генерация магнитоиндуцированной ВГ происходит на поверхности и границах раздела. Таким образом, нелинейно-оптические методики могут быть эффективно использованы для исследования распределения магнитных моментов, магнитного упорядочения, определения направления осей легкого намагничивания, свойств наноструктур и скрытых интерфейсов [133, 134].

### **1.5.3. Магнитооптика наноструктурированных нерезонансных сред**

Микро- и наноструктурированные магнитные среды являются предметом активных исследований в последние годы. Выделим в таких исследованиях три важных направления: мультислойные пленки, массивы наночастиц и инвертированные им структуры.

#### **Мультислойные магнитные пленки с обменным взаимодействием слоев**

Комбинирование тонких пленок ферромагнетиков с различной коэрцитивностью, антиферромагнетиков и немагнитных материалов позволяет получать композитные структуры с уникальными магнитными и магнитооптическими свойствами. Фундаментальный интерес также представляет исследование обменного взаимодействия магнитных слоев, где среди методов исследования важное место занимают методы нелинейной оптики. Так в работе [135] с помощью нелинейно-оптических методик исследовались мультислойные пленки состава  $\text{CoO}/\text{Cu}/\text{Fe}$ , в которых в зависимости от толщины медной прослойки варьировалась обменная связь между ферромагнетиком (Fe) и антиферромагнетиком (CoO). Экспериментально детектирована генерация ВГ на поверхностном слое антиферромагнетика, который даже при большой величине немагнитной прослойки остаётся связанным с ферромагнитным слоем. Генерация магнитоиндуцированной ВГ в структурах с обменно связанными слоями ферромагнетик/антиферромагнетик/ферромагнетик изучалась также в работе [136].



**Рис. 1.16.** (а) Вихревое распределение намагниченности в цилиндрической частице диаметром 50 нм в нулевом внешнем магнитном поле, (б) перпендикулярная составляющая магнитного момента, (в) характерный вид гистерезиса МО отклика в структурах с вихревой остаточной намагниченностью [145]. (г) Намагниченность пермаллоевой частицы с отрезанным сегментом в насыщающем магнитном поле и после его выключения [146].

Комплекс нелинейно-оптических экспериментов проводился также в структурах Ni/Cu/Ni/Cu, где величина обменного взаимодействия варьировалась в зависимости от толщины немагнитной прослойки [137]. В структуре ферромагнетик/ферримагнетик [138], благодаря совместному исследованию линейных и нелинейных магнитооптических экспериментов и анализу свойств компонент тензора  $\hat{\chi}^{(2)}$ , удалось по отдельности исследовать магнитные свойства различных интерфейсов.

## Массивы наноструктур с вихревым распределением намагниченности

Вихревым называется такое распределение намагниченности в наночастице, при котором намагниченность в каждой точке перпендикулярна радиус-вектору, проведенному из центра вихря (рис. 1.16 (а)). Путем решения уравнения Ландау-Лифшица было показано, что в цилиндрической ферромагнитной частице, радиус и высота которой не превышают некоторое критическое значение, вихревое состояние намагниченности является основным [139, 140]. В частицах меньшего размера (порядка 10-20 нм) основным состоянием является однодоменное. Экспериментально наличие вихревой намагниченности в массивах нанодисков из пермаллоя наблюдали методами магнитно-силовой микроскопии [141], рентгеновской микроскопии [142] и с помощью исследования эффекта Холла [143, 144].

МО эффекты пропорциональны намагниченности структуры, усред-

ненной по поперечному сечению светового луча. В состоянии остаточной вихревой намагниченности средняя величина  $\langle \mathbf{M} \rangle = 0$ , в насыщающем магнитном поле все магнитные моменты ориентированы вдоль  $\mathbf{H}$ . Таким образом, гистерезис МО отклика структур, демонстрирующих вихревое состояние намагниченности, имеет характерный восьмеркообразный вид. Например, на рис. **1.16** (с) представлен гистерезис меридионального магнитооптического эффекта Керра в массиве кобальтовых нанополусфер (коллоидных частиц полиметилметаакрилата диаметром 340 нм, покрытых пленкой кобальта толщиной 30 нм), в которых при нулевом внешнем магнитном поле формируется вихревое состояние намагниченности [147].

В цилиндрических наночастицах или нанополусферах образование вихрей остаточной намагниченности, направленных по часовой (CW) и против часовой (CCW) стрелки равновероятно, в независимости от направления приложенного магнитного поля. Для возникновения выделенного направления вихрей остаточной намагниченности принципиально важна пространственная неоднородность и нецентросимметричность распределения намагниченности в насыщающем магнитном поле [148, 149].

В асимметричных частицах направление остаточной вихревой намагниченности может зависеть от направления внешнего магнитного поля, как было впервые теоретически предсказано в работе [150]. Простейшая асимметричная форма частицы - цилиндрическая с отрезанным сегментом. В таком объекте может возникнуть вихревая намагниченность, если приложить и выключить магнитное поле вдоль плоского края (рис. **1.16** (г)), причем направление вихря зависит от того, в каком направлении было приложено поле [146]. Это связано с тем, что плоскому краю необходимо большее размагничивающее поле, чем круглому, т.е., возникает неоднородное распределение намагниченности. Нарушение симметрии, а, следовательно, временной обратимости происходящих в структуре процессов намагничивания, приводит к новым интересным магнитным и магнитооптическим эффектам.

В работе [151] исследовались массивы магнитных частиц в форме правильных  $n$ -угольников (рис. **1.17**). В начальный момент во всех трех образцах (с наночастицами треугольной, квадратной и пятиугольной формы) направления вихрей CW и CCW равновероятны. В наночастицах треугольной формы после приложения и выключения внешнего магнитного поля

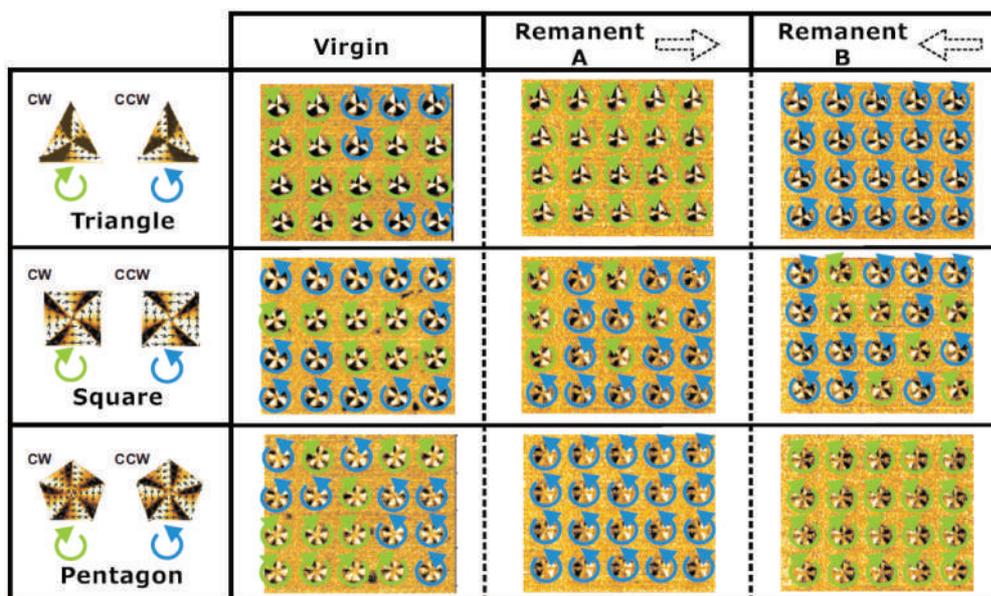
вправо (третий столбец на рис. 1.17) формируются вихри намагниченности по часовой стрелке. Если приложить магнитное поле, направленное влево (четвертый столбец на рис. 1.17), то намагниченности всех наночастиц оказываются завихрены против часовой стрелки. Теперь рассмотрим ансамбль частиц квадратной формы. Тогда после приложения магнитного поля в любую сторону направления вихрей по и против часовой стрелки равновероятны - это связано с тем, что энергии формирования вихрей, “закрученных” в разные стороны, одинаковы в таких симметричных частицах. Таким образом, симметрия магнитных частиц играет наиважнейшую роль в распределении остаточной вихревой намагниченности.

Формирование контролируемого направления вихревого распределения намагниченности, одинакового для всех частиц в макроскопических массивах (сравнимых по размеру, например, с диаметром лазерного луча), можно рассматривать как получение состояния с отличным от нуля угловым тороидным моментом, усредненным по объему всего массива. В таком случае при изучении формирования вихревой намагниченности нет необходимости иметь высокое пространственное разрешение. Для детектирования вихревой намагниченности необходимо разрабатывать методы, в которых регистрируемый сигнал будет пропорционален тороидному моменту  $\mathbf{T} \propto \int [\mathbf{r} \times \mathbf{M}] dV$ , причем величина этого сигнала будет отличаться при противоположных направлениях  $\mathbf{T}$ . Здесь идеальным кандидатом является метод генерации ВГ, благодаря своей чувствительности к магнитным и симметричным свойствам структур.

## Наноперфорированные структуры

Другой класс ферромагнитных объектов — инвертированные наноструктуры (в англоязычной литературе — “antidots”), то есть массивы отверстий в пленках магнитных материалов. Такие перфорированные пленки не имеют суперпарамагнитного состояния [152]. Влияние формы отверстий, их размеров и расположения на статику (коэрцитивность, намагниченность насыщения) и динамику (спиновые волны) намагниченности активно исследуется в последнее время [153, 154, 155]. Обратная задача, и именно, создание наноперфорированных магнитных пленок с желаемыми свойствами, также актуальна.

Анизотропия магнитных и магнитооптических свойств была исследо-



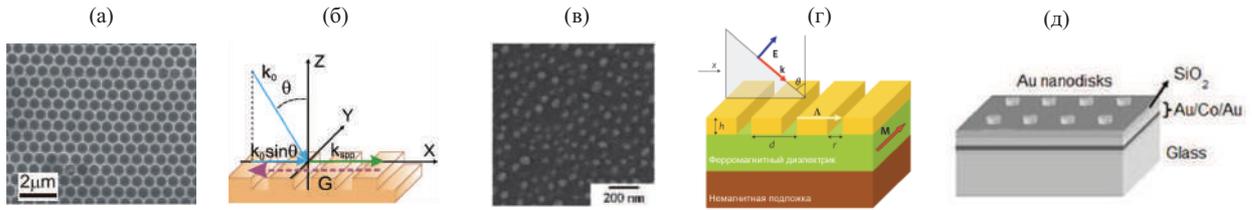
**Рис. 1.17.** Изображения частиц пермаллоя (первая колонка) и данные магнитно-силовой микроскопии для ансамблей частиц в исходном состоянии (вторая колонка), после приложения магнитного поля 80 мТл, направленного вправо (третья колонка), после приложения магнитного поля, направленного влево (четвертая колонка) [151].

вана в наноперфорированных пленках Co/Cd [156] и Co/Pu [157], однако нелинейно-оптических исследований подобных структур до сих пор проведено не было.

#### 1.5.4. Магнитооптика наноструктурированных плазмонных материалов

Взаимодействие света с плазмонными магнитными структурами привлекает внимание в связи с вопросом о влиянии усиления локального поля на их магнитооптические свойства. В прикладном аспекте плазмонные МО материалы интересны для высокоскоростного управления поляризационным состоянием волны и амплитудой сигнала под действием внешнего магнитного поля. Таким образом, плазмонные МО системы считаются перспективными, поскольку предоставляют потенциальные возможности для миниатюризации устройств посредством ближнепольной локализации света и сверхбыстрой модуляции оптического сигнала внешним магнитным полем [40].

Магнитоплазмонные материалы - это, например, массивы наноструктур из ферромагнитных металлов, т.е. никелевые инвертированные опалы



**Рис. 1.18.** Различные дизайны магнитоплазмонных структур: (а) никелевый инвертированный опал [158], (б) одномерная перфорированная пленка никеля [159], (в) массив золотых наночастиц в гранате [160], (г) золотая решетка на гранате [161], (д) массив золотых нанодисков на трехслойной пленке Au/Co/Au.

[158], одномерные перфорированные пленки никеля [159], массивы никелевых наностержней в диэлектрической матрице [113], массивы коллоидных наносфер, покрытых кобальтом [162], и др. (рис. 1.18) В таких материалах плазмоны возбуждаются в ферромагнетике. При этом добротность резонансов оказывается малой из-за сильных омических потерь, присущих ферромагнитным металлам [163]. Традиционное решение проблемы - комбинирование в одном материале наноструктур из благородных металлов, где возможно возбуждение высокодобротных плазмонов, и ферромагнитных металлов или диэлектриков для реализации МО активности. Дизайны таких композитных структур могут быть разными - наночастицы “ядро-оболочка” [164], наностержни “ядро-оболочка” [165], массивы неупорядоченных трехслойных нанодисков Au/Co/Au [166, 163, 167, 168], биметаллические решетки Au/пермаллой [169], массивы nanoотверстий в пленках Ag/пермаллой [170] и др.

1. Магнитное поле слабо влияет на положение резонансных частот локализованных плазмонов. В этом случае усиление магнитооптических эффектов может наблюдаться вследствие увеличения локального поля в ферромагнетике, соприкасающемся с плазмонной частицей, а, следовательно, с более эффективным взаимодействием света со средой [171]. Возбуждение ЛПП приводит к изменению ближнего поля в структуре и, следовательно, изменяет отклик в дальнем поле. Экспериментально усиление экваториального эффекта Керра при возбуждении локальных поверхностных плазмонов наблюдалось, например, в гранулярной пленке кобальта, покрытой слоем золота [172], а увеличение эффекта Фарадея в резонансе ЛПП - в пленках граната с включениями золотых наночастиц [160].

2. Что касается магнитоплазмонных кристаллов, следует выделить

серию работ группы В.И. Белотелова, посвященных усилению МО эффектов при возбуждении ППП в золотых одномерных решетках, нанесенных на поверхность ферромагнитного диэлектрика (рис. **1.18** (г)) [161, 173, 174, 175]. Выражение (1.24) для волнового вектора ППП, распространяющегося вдоль границы металла с ферромагнитным диэлектриком, принимает вид [161]:

$$\beta = k_0 \sqrt{\frac{\epsilon_{met}\epsilon_d}{\epsilon_{met} + \epsilon_d}} (1 + \gamma g_y), \quad (1.39)$$

где  $\gamma = (-\epsilon_{met}\epsilon_d)^{-1/2}(1 - \epsilon_d^2/\epsilon_{met}^2)^{-1}$ ,  $g_y$  пропорциональна величине поперечной намагниченности (вдоль оси  $OY$  на рис. **1.6**). При изменении внешнего поперечного магнитного поля изменяется  $g_y$ , приводя к смещению резонансной частоты возбуждения ППП на границе с магнитным материалом в различные стороны при противоположных направлениях магнитного поля. Смещение резонансной частоты влияет на положение особенностей в спектрах отражения и пропускания, связанных с возбуждением ППП. Это приводит к появлению поперечного магнитооптического эффекта Керра, заключающегося в изменении коэффициента отражения света при изменении знака магнитного поля, или МО в геометрии Фохта - при исследовании прошедшего через структуру излучения [174]. Характерные значения относительного магнитоиндуцированного изменения интенсивности отраженного или прошедшего через магнитоплазмонную структуру сигнала в резонансе -  $10^{-3} - 10^{-2}$ .

Поляризационные эффекты Фарадея и Керра также усиливаются в спектральной окрестности ППП, что связано как с вышеперечисленными эффектами усиления локального поля, так и с тем, что при вращении плоскости поляризации ТМ-накачки возникает ТЕ-компонента поля, которая не возбуждает ППП, следовательно, испытывает меньшее поглощение [176].

**3.** При возбуждении дифракционного плазмонного резонанса наблюдалось усиление фарадеевского вращения примерно в 5 раз в двумерных массивах золотых наночастиц, покрытых пленкой  $Bi:YIG$  [177]. Обнаружено, что эффект является взаимным, то есть при двухкратном прохождении через структуру итоговое вращение плоскости поляризации оказывается пренебрежимо малым. Было предложено объяснение наблюдаемых эффектов, связанное с различным пропусканием для падающей  $p$ -поляризованной и магнитоиндуцированной  $s$ -поляризованной компонента-

ми света, распространяющегося в структуре. Исследования интенсивных МО эффектов при возбуждении РПР до сих пор не проводилось.

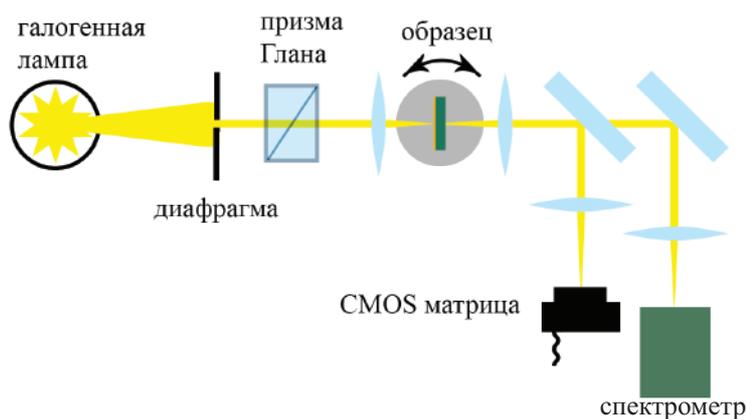
### 1.5.5. Генерация ВГ в магнитных плазмонных наноструктурах

Работы по исследованию магнитоиндуцированной ВГ при возбуждении плазмонных резонансов различной природы были выполнены, преимущественно, на Физическом факультете МГУ в научной группе под руководством проф. д.ф.-м.н. О.А. Акципетрова, а затем - доц. д.ф.-м.н. Мурзиной Т.В.

**1.** Усиление магнитоиндуцированной ВГ при возбуждении ЛПП в экваториальной геометрии приложения магнитного поля было обнаружено в наногранулярных пленках  $Co_xAg_{1-x}$  [178], биметаллической Co/Au пленке с гранулярной структурой [172], неупорядоченных массивах наночастиц “ядро-оболочка” ( $Fe_2O_3$ -Au) [179] и наносендвичей Au/Co/Au [166]. Было показано, что усиление магнитного нелинейно-оптического отклика связано с резонансным увеличением фактора локального поля, при этом величина относительного магнитоиндуцированного изменения интенсивности ВГ достигает десятков процентов.

**2.** Генерация магнитоиндуцированной ВГ в геометрии Фохта при возбуждении ППП была исследована в пленке феррит-граната, покрытой одномерной решеткой золотых полосок [180]. Обнаружено, что магнитный нелинейно-оптический эффект резонансно модулируется и меняет знак при возбуждении бегущего плазмона на интерфейсе золото/ферромагнетик и достигает значений десятков процентов. Спектроскопия фазы ВГ показала, что механизм модуляции интенсивности ВГ в области резонанса ППП заключается в изменении фазы между магнитной и немагнитной компонентами ВГ вплоть до  $110^\circ$ .

**3.** Исследований магнитоиндуцированного квадратичного отклика в структурах, демонстрирующих РПР, насколько известно автору, до сих пор не проводилось.



*Рис. 1.19.* Экспериментальная установка для исследования линейных оптических и магнитооптических эффектов.

## § 1.6. Описание использовавшихся экспериментальных установок и методик

### 1.6.1. Линейные оптические и магнитооптические эффекты

Исследование оптических и магнитооптических свойств структур было выполнено на установке, схема которой представлена на рис. 1.19. В качестве источника света использовалась галогенная лампа, с помощью призмы Глана устанавливалась плоскость поляризации падающего излучения. Собирающей линзой свет фокусировался в пятно диаметром 50-100 мкм на образце, расположенном на автоматизированной платформе с контролем угла падения. Для выбора нужной точки на образце использовалась CMOS-матрица. Прошедшее через образец излучение регистрировалось спектрометром в диапазоне длин волн от 400 нм до 1000 нм. Спектры пропускания нормировались на спектр галогенной лампы. С помощью спектрометра с разрешающей способностью 1 нм производился анализ прошедшего излучения. Для структур на непрозрачной подложке установка перестраивалась в геометрию “на отражение”.

Для исследования магнитооптических эффектов образец помещался в насыщающее поле постоянных магнитов. В экваториальной геометрии (в геометрии Фохта или экваториального МО эффекта Керра) магнитное поле перпендикулярно плоскости падения. Измерялась полная интенсивность прошедшего через структуру света и вычислялись значения магнитного контраста по формуле:

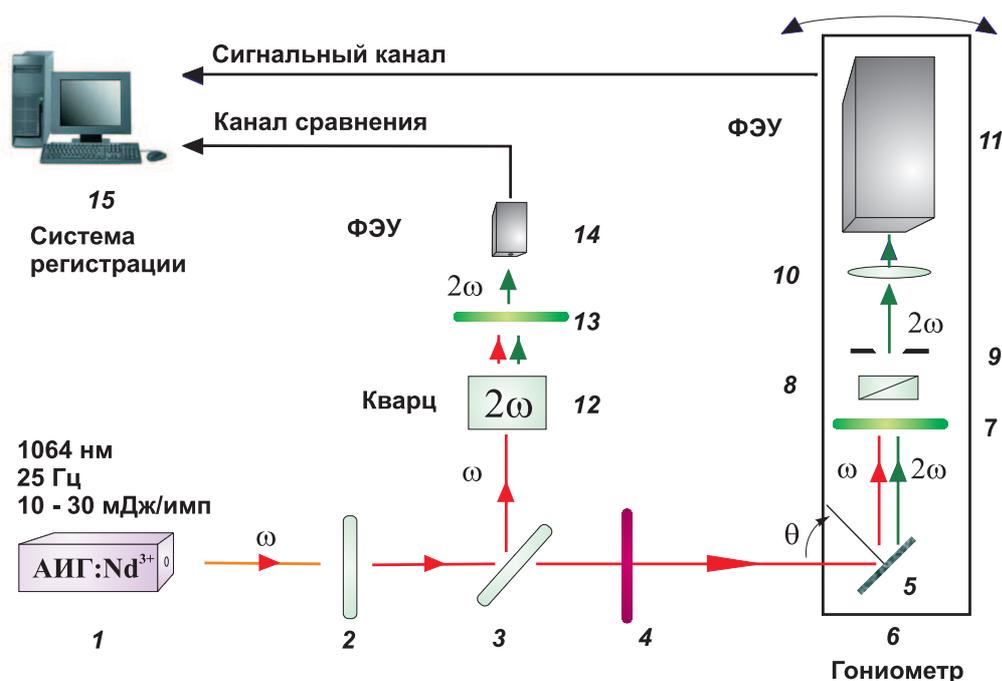
$$\rho_{\omega} = \frac{T(+H) - T(-H)}{T(+H) + T(-H)}, \quad (1.40)$$

где  $T(+H)$  и  $T(-H)$  - коэффициенты пропускания структуры, измеренные при противоположных значениях насыщающего магнитного поля. В геометрии “на отражение” выражение для магнитного контраста аналогично, с заменой  $T$  на коэффициент отражения  $R$ .

В меридиональной или фарадеевской геометрии перед детектором ставился анализатор, ориентированный под углом  $45^\circ$  к плоскости падения. Для оценки керровского или фарадеевского вращения в структуре (обозначим соответствующий угол поворота плоскости поляризации за  $\alpha$ ) измерялся магнитный контраст. Тогда, если пренебречь эллиптичностью регистрируемого излучения, в соответствии с законом Малюса,  $\rho_{\omega} = \frac{\cos^2(45^\circ - \alpha) - \cos^2(45^\circ + \alpha)}{\cos^2(45^\circ - \alpha) + \cos^2(45^\circ + \alpha)} = \sin 2\alpha \approx 2\alpha$ , то есть, экспериментально определив величину  $\rho_{\omega}$ , можно вычислить величину  $\alpha$ .

### 1.6.2. Экспериментальная установка для изучения нелинейно-оптических эффектов на основе АИГ:Nd<sup>3+</sup> лазера

Схема установки на основе АИГ:Nd<sup>3+</sup> лазера приведена на рисунке 1.20. Источником излучения накачки является АИГ:Nd<sup>3+</sup> лазер (1) со следующими характеристиками: длина волны излучения 1064 нм, частота повторения импульсов 25 Гц, длительность импульса  $\sim 15$  нс. При этом импульсная плотность мощности на образце составляет около 10 МВт/см<sup>2</sup>. Необходимая поляризация излучения накачки устанавливается с помощью пластинки  $\lambda/2$  (2). Для снижения влияния флуктуаций мощности лазерного излучения на регистрируемый сигнал ВГ от образца использовался дополнительный канал сравнения, куда часть излучения накачки (около 5%) отводится с помощью светоделительной пластинки (3). Накачка проходит через фильтр ИКС-5 (4) и попадает на образец. Столик с образцом (5) располагается на автоматическом гониометре (6), имеющем угловое разрешение  $0.24^\circ$ . Излучение, отраженное от образца, проходит через фильтр ВГ-39 (7), блокирующий волну на частоте накачки и пропускающий свет на частоте второй гармоники. Излучение второй гармоники проходит через диафрагму (9), фокусирующую линзу (10) и регистрируется фотоэлектронным умножителем ФЭУ-79. Перед фотокатодом ФЭУ находится интерфе-



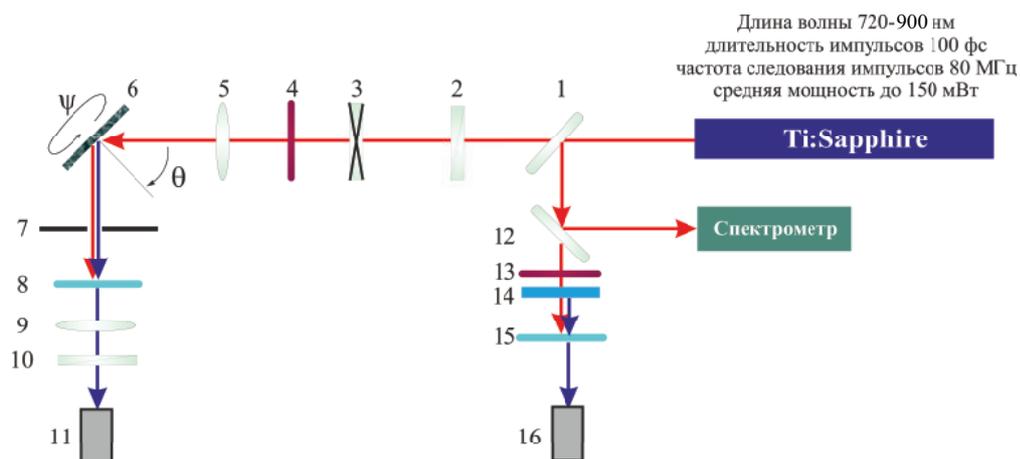
**Рис. 1.20.** Установка для изучения нелинейно-оптических эффектов на основе АИГ:Nd<sup>3+</sup> лазера: (1) лазер, (2) пластинка  $\lambda/2$ , (3) светоделительная пластинка, (4) фильтр ИКС-5, (5) образец, (6) гониометр, (7) фильтр BG-39, (8) анализатор, (9) диафрагма, (10) линза, (11, 14) ФЭУ, (12) кварц, (13) СЗС-17, (15) стробируемая система регистрации и компьютер.

ренционный фильтр с полосой пропускания 527-537 нм.

Излучение в канале сравнения попадает на кристалл  $z$ -кварца (12), который служит источником излучения на частоте второй гармоники. После прохождения через фильтр СЗС-17 (13), волна ВГ детектируется с помощью фотоэлектронного умножителя ФЭУ-79 (14).

Сигналы, поступающие из обоих каналов (сигнального и канала сравнения) через систему электронной стробируемой регистрации попадают на карту АЦП компьютера. Обработка результатов эксперимента, так же как и управление вращением гониометра, осуществляется с помощью компьютера (15).

Регистрируемой в эксперименте величиной являлась интенсивность ВГ сигнального канала, нормированная на интенсивность ВГ в канале сравнения, что позволяло уменьшить влияние флуктуаций пиковой мощности и формы импульса на величину регистрируемого сигнала.



**Рис. 1.21.** Установка для изучения нелинейно-оптических эффектов на основе Ti:Sapphire лазера: (1) и (12) светоделительные пластинки, (2) поляризатор, (3) компенсатор Бабин-Солейля, (4) и (13) RG695, (5) и (9) - фокусирующие линзы, (6) образец, (7) диафрагма, (8) и (15) фильтры BG-39, (10) анализатор, (11) и (16) ФЭУ, (15) кварц.

### 1.6.3. Экспериментальная установка для изучения нелинейно-оптических эффектов на основе Ti:Sapphire лазера

Схема экспериментальной установки на основе фемтосекундного лазера представлена на рис. 1.21. В качестве накачки используется излучение титан-сапфирового лазера, работающего в импульсном режиме (импульсы длительностью порядка 100 фс с частотой повторения 80 МГц). Средняя мощность излучения порядка 150 мВт. При исследовании структур с малой радиационной стойкостью мощность можно уменьшить с помощью градиентного аттенюатора. Длина волны излучения может изменяться в диапазоне 720 - 900 нм. Спектральная ширина линии на длине волны 800 нм составляет примерно 10 нм.

Излучение накачки проходит через поляризатор (2) и компенсатор Бабин-Солейля (3), позволяющие устанавливать нужную линейную или круговую поляризацию зондирующего излучения (в ряде экспериментов компенсатор заменялся на полуволновую или четвертьволновую пластинку). Далее свет проходит через фильтр RG-695 толщиной 3 мм (4), подавляющий засветку, и при помощи линзы (5) с фокусным расстоянием 50 мм фокусируется на образец (6) в пятно диаметром порядка 30-50 мкм. Фильтры CC-15 и BG-39 (8), расположенные после образца, отсекают излучение накачки и выделяют излучение второй гармоники. Оно проходит через призму Глана (10), определяющую поляризацию регистрируемого из-

лучения, и посредством линзы (9) фокусируется на входное окно ФЭУ, работающего в режиме счета фотонов. Сигнал с ФЭУ проходит через аналогоцифровой преобразователь (счетчик фотонов) и затем обрабатывается компьютером с помощью программы, написанной в среде LabView. Образец закреплен на столике, который при помощи шагового двигателя может вращаться вокруг нормали. Элементы (6)-(11) установлены на гониометр, который также управляется компьютером. Кроме того, элементы (7)-(11) могут быть переставлены за образец, т.е., в геометрию эксперимента “на просвет”.

Часть излучения лазера отводится светоделительной пластинкой (1) в канал сравнения, который контролирует флуктуации мощности излучения и длительности импульса. В качестве источника генерации ВГ в канале сравнения используется пластина кристаллического кварца (15), квадратичная восприимчивость которого не имеет спектральных особенностей в области перестройки Ti:Sa-лазера. Система спектрального выделения и регистрации излучения ВГ в канале сравнения такая же, как и в сигнальном канале.

#### **1.6.4. Нелинейно-оптические методики**

##### **Измерение индикатрисы ВГ**

Индикатриса рассеяния ВГ - зависимость интенсивности ВГ от угла рассеяния (угол отсчитывается от нормали к образцу), схема представлена на рис. 1.3. При этом исследуемая структура неподвижна, изменяется угол регистрации излучения на частоте ВГ. Излучение когерентно, если ширина зеркального пика (когда угол рассеяния равен углу падения) соответствует угловой апертуре системы регистрации, а интенсивность ВГ, рассеянной в других направлениях, близка к нулю. Измерения можно также проводить в геометрии “на пропускание”. Индикатрису рассеяния ВГ аппроксимируют функцией вида (1.18) для определения характерного масштаба неоднородности образца.

##### **Исследование поляризации ВГ**

Для исследования состояния поляризации излучения второй гармоники проводят измерение поляризационных зависимостей. После образца

ставится анализатор (призма Глана), вращаемый с помощью шагового двигателя, управляемого компьютером. При вращении анализатора на  $360^\circ$  относительно оси, совпадающей с лучом ВГ, получается поляризационная зависимость ВГ, то есть зависимость интенсивности ВГ от азимутального угла поворота анализатора  $\alpha$ . В случае, когда сигнал линейно поляризован, поляризационная зависимость, согласно закону Малюса, описывается функцией вида  $I_{2\omega}(\alpha) \propto \cos^2\alpha$ . Для полного анализа состояния поляризации квадратичного отклика измеряют все параметры Стокса. Для этого на установке **1.21** между линзой (9) и анализатором (10) ставится компенсатор Бабинне-Солейля. О параметрах Стокса будет подробно сказано в Главе 5.

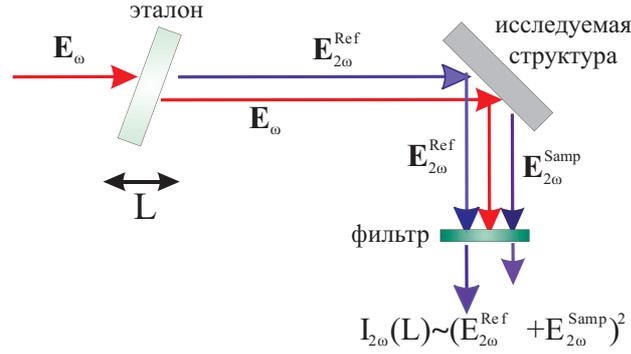
### **Азимутальная анизотропия ВГ**

Для исследования азимутальной анизотропии ВГ образец в процессе измерения вращается вокруг своей нормали, т.е. регистрируется зависимость отраженной или прошедшей ВГ от азимутального угла  $\psi$ . Анализ полученной зависимости позволяет сделать вывод о симметрии исследуемой структуры.

При нормальном падении излучения накачки анизотропия прошедшей через структуру ВГ может быть измерена по-другому - можно синхронно вращать анализатор и полуволновую пластинку перед образцом, которая задает линейную поляризацию накачки. При этом исследуемая структура покоится. Такая схема равносильна вышеописанной методике, но проще в юстировке.

### **Метод однолучевой интерферометрии второй гармоники**

В ряде научных задач важна информация о фазовых соотношениях различных интерферирующих полей на частоте ВГ, дающих вклад в формирование квадратичного оптического отклика. Измерение фазы волны ВГ можно осуществить с помощью метода однолучевой интерферометрии ВГ. Впервые методика измерения фазы квадратичного отклика была описана Ченгом и Бломбергенем [181]. С тех пор она эффективно используется для изучения объемных и поверхностных свойств различных материалов, а также, всевозможных резонансных эффектов. В настоящее время разработано

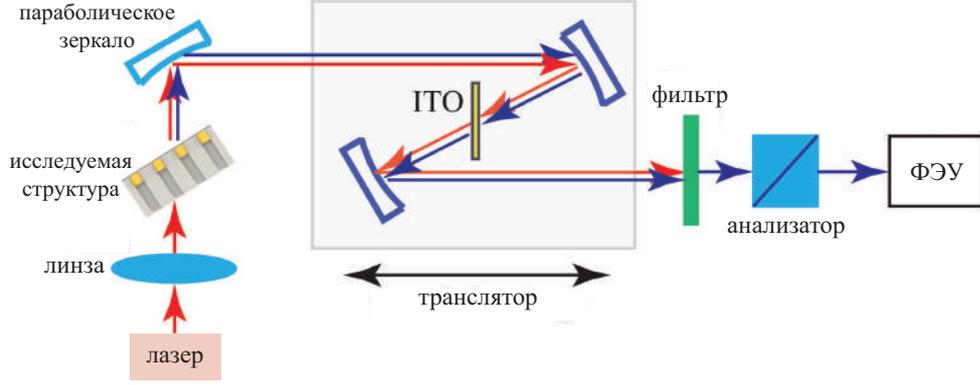


**Рис. 1.22.** Принципиальная схема метода интерферометрии ВГ.

несколько методов измерения фазы волны ВГ, основанных на получении интерференции от двух источников излучения ВГ - исследуемого образца и эталона. Третий составной элемент схемы интерферометрии - это ячейка фазового сдвига, предназначенная для изменения разности фаз между волнами ВГ от образца и эталона. В качестве ячейки фазового сдвига можно использовать кювету с газом переменного давления [181], либо дисперсионную пластину с изменяющимся углом поворота относительно направления излучения, или дисперсионный кристалл с переменной толщиной.

Наиболее простая методика интерферометрии основана на использовании дисперсии воздуха и впервые предложена в работах [182, 183]. Излучение накачки  $\mathbf{E}_\omega$  (рис. 1.22), проходя через тонкую нелинейную пластину (эталон) и отражаясь от образца, является источником волн ВГ, генерируемых в эталоне и в образце,  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp}$ , соответственно. Над поверхностью образца (до падения волн  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  и  $\mathbf{E}_\omega$  на образец) фаза  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  относительно  $\mathbf{E}_\omega$  определяется выражением  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref} = \hat{\chi}_R^{(2)} : \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega e^{-i(\mathbf{k}_{2\omega} Z + \Phi'_R)}$ , где  $\mathbf{k}_{2\omega}$  - волновой вектор ВГ в воздухе,  $Z$  - оптический путь волны накачки между эталоном и образцом,  $\hat{\chi}_R^{(2)}$  - нелинейная восприимчивость эталона, а величина  $\Phi'_R$  определяет фазовый сдвиг, приобретенный волной  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  относительно  $\mathbf{E}_\omega$  при генерации  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  в эталоне.

После отражения от исследуемой структуры (после генерации  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp}$  в ней) фазы  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp}$  определяются выражениями  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref} = \hat{\chi}_R^{(2)} : \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega e^{-i(\mathbf{k}_{2\omega} Z + \Phi'_R + \Phi''_R)}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp} = \hat{\chi}_S^{(2)} : \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega e^{-i(2\mathbf{k}_\omega Z + \Phi_S)}$ , где  $\Phi_S$  - фазовый сдвиг, приобретенный волной  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp}$  относительно  $\mathbf{E}_\omega$  в момент ее генерации и при распространении внутри образца,  $\Phi''_R$  - фазовый сдвиг, приобретенный волной  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  относительно  $\mathbf{E}_\omega$  в момент ее отражения от образца, а  $\mathbf{k}_\omega$ -волновой вектор накачки в воздухе.



**Рис. 1.23.** Оптимизированная схема однолучевой интерферометрии ВГ.

Таким образом, после исследуемой структуры фаза волны  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp}$  относительно волны  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  определяется величиной  $\delta\Phi = (\delta k Z + \Phi_R - \Phi_S)$ , где  $\delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_{2\omega} - 2\mathbf{k}_\omega$  и  $\Phi_R = \Phi'_R + \Phi''_R$ . Суммарная интенсивность излучения ВГ будет являться функцией расстояния между эталоном и образцом  $Z$ :

$$\begin{aligned}
 I_{2\omega}(Z) &\propto |\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref} + \mathbf{E}_{2\omega}^{Samp}|^2 = \\
 &= \langle (\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref})^* \mathbf{E}_{2\omega}^{Ref} \rangle + \langle (\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp})^* \mathbf{E}_{2\omega}^{Samp} \rangle + \langle (\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp})^* \mathbf{E}_{2\omega}^{Ref} \rangle + \\
 &+ \langle (\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref})^* \mathbf{E}_{2\omega}^{Samp} \rangle = I_{2\omega}^{Ref} + I_{2\omega}^{Samp} + 2\alpha \sqrt{I_{2\omega}^{Ref}} \sqrt{I_{2\omega}^{Samp}} \cos(\delta\Phi), \quad (1.41)
 \end{aligned}$$

где  $\langle \rangle$  обозначает статистическое усреднение по ансамблю источников ВГ в исследуемой структуре. Здесь учтено, что  $I_{2\omega}^i \propto |\mathbf{E}_{2\omega}^i|^2 = \langle (\mathbf{E}_{2\omega}^i)^* \mathbf{E}_{2\omega}^i \rangle$ ,  $i = Ref, Samp$ . Параметр  $\alpha$ , называемый степенью взаимной когерентности, определяет меру постоянства разности фаз между  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp}$  за время измерения. Разность фаз  $\delta\Phi$  записывается в виде:

$$\delta\Phi = \frac{2\pi(\delta n)}{\lambda_{2\omega}} Z + \Phi_R - \Phi_S = 2\pi Z/d(\lambda) + \Delta\Phi \quad (1.42)$$

где  $\delta n = n_{2\omega} - n_\omega$ ,  $d(\lambda)$  - период интерферограммы, определяемый разностью показателей преломления на частоте накачки и ВГ. При комнатной температуре и давлении 760 мм.рт. ст. на длине волны генерации Nd:YAG лазера 1064 нм период интерференционной картины равен примерно 13 см, а в диапазоне перестройки Ti:Sa лазера - 4-7 см [184]. В нашем случае интерес представляет сдвиг фаз  $\Delta\Phi$  между волнами  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Ref}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega}^{Samp}$ . Разумеется, в схеме на рис. 1.22 можно эталон и исследуемую структуру поменять местами.

Методика однолучевой интерферометрии была реализована на используемых экспериментальных установках по схеме, изображенной на рис.

**1.23.** В качестве эталона использовалась однородная тонкая пленка ИТО (Indium tin oxide), помещенная в фокус двух сферических металлических зеркал, установленных на трансляторе. Такое расположение элементов обеспечивает постоянство падающей на эталон интенсивности лазерного излучения. В процессе измерения менялось относительное расстояние между исследуемой структурой и референсной пленкой ИТО, т.е. варьировалась разность оптических путей для волн накачки и ВГ, обусловленная дисперсией воздуха. Измерялись интерферограммы, т.е. зависимости интенсивности ВГ от координаты транслятора  $I_{2\omega}(Z)$ ; полученные зависимости аппроксимировались функцией вида  $I_{2\omega}(Z) \propto A + I_0 \cos(2\pi Z/d(\lambda) + \Phi_S(\lambda))$ , в результате были получены спектры фазы  $\Phi_S(\lambda)$ . Далее аналогичные эксперименты были проведены с заменой образца на референсный источник, в результате чего был получен референсный спектр  $\Phi_R(\lambda)$ , используемый для нормировки. Для выделения эффектов, специфичных для исследуемой структуры, был вычислен спектр  $\Delta\Phi(\lambda) = \Phi_S(\lambda) - \Phi_R(\lambda)$ . Следует отметить, что в спектроскопии фазы ВГ физический смысл имеет не абсолютное значение фазы  $\Delta\Phi$ , а его изменение при варьировании длины волны накачки вблизи резонансов. Методика применима для спектроскопии фазы как отраженного, так и прошедшего через структуру отклика ВГ.

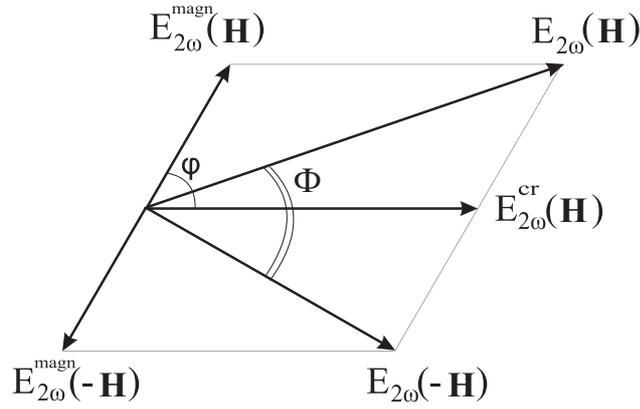
### Исследование генерации магнитоиндуцированной ВГ

Для исследования гистерезиса интенсивности генерации ВГ образец помещался в поле электромагнита, варьируя ток на котором, можно было получать магнитные поля до 3 кГс.

В насыщающем поле измеряемой величиной является магнитный контраст ВГ, определяемый соотношением:

$$\rho_{2\omega} = \frac{I_{2\omega}(+H) - I_{2\omega}(-H)}{I_{2\omega}(+H) + I_{2\omega}(-H)}, \quad (1.43)$$

где  $I_{2\omega}(+H)$  и  $I_{2\omega}(-H)$  - интенсивности отраженной или прошедшей ВГ, измеренные при противоположных значениях насыщающего внешнего магнитного поля. Магнитное поле в таких экспериментах создавалось либо с помощью электромагнита, либо двумя постоянными FeNdB магнитами.



**Рис. 1.24.** Фазовая диаграмма сложения кристаллографического и магнитоиндуцированного полей на частоте ВГ.

### Интерферометрия магнитоиндуцированной второй гармоники

Величина магнитного контраста не дает полной картины о формировании магнитоиндуцированной ВГ - необходимо иметь информацию о фазовых соотношениях интерферирующих полей на удвоенной частоте. В случае генерации когерентной ВГ кристаллографическое и магнитоиндуцированное электрическое поле на удвоенной частоте, индуцированные соответствующими компонентами тензора квадратичной восприимчивости, определяют полный отклик на частоте ВГ. Схема сложения полей на частоте ВГ изображена на фазовой диаграмме (рис. 1.24).

В общем случае между  $\mathbf{E}_{2\omega}^{magn}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega}^{cr}$  существует фазовый сдвиг  $\varphi$ , отличный от  $\pi/2$ . Магнитный контраст, в соответствии с (1.43):

$$\rho_{2\omega} = \frac{|\mathbf{E}_{2\omega}(\mathbf{H})|^2 - |\mathbf{E}_{2\omega}(-\mathbf{H})|^2}{|\mathbf{E}_{2\omega}(\mathbf{H})|^2 + |\mathbf{E}_{2\omega}(-\mathbf{H})|^2}, \quad (1.44)$$

откуда

$$|\mathbf{E}_{2\omega}(\mathbf{H})|^2 = |\mathbf{E}_{2\omega}(-\mathbf{H})|^2 \frac{1 + \rho_{2\omega}}{1 - \rho_{2\omega}}. \quad (1.45)$$

Применив теорему косинусов для двух треугольников на рис. 1.24, с учетом (1.45) получим:

$$\xi_{2\omega} = \frac{|\chi^{magn}|}{|\chi^{cr}|} = \frac{|\mathbf{E}_{2\omega}^{magn}|}{|\mathbf{E}_{2\omega}^{cr}|} = \sqrt{\frac{1 - \sqrt{1 - \rho_{2\omega}^2 \cos \Phi}}{1 + \sqrt{1 - \rho_{2\omega}^2 \cos \Phi}}}. \quad (1.46)$$

Информацию о фазовых соотношениях между полями  $\mathbf{E}_{2\omega}(\mathbf{H})$  и  $\mathbf{E}_{2\omega}(-\mathbf{H})$  можно получить с помощью метода однолучевой интерферометрии ВГ, изложенном выше. Определяют сдвиг фаз между интерферограм-

мами, измеренными при противоположных направлениях внешнего магнитного поля, соответствующий углу  $\Phi$  в схеме на рис. **1.24** (нормировка при этом не требуется). Затем, подставив значения магнитного контраста и угла  $\Phi$  в выражение (1.46), получают значение величины  $\xi_{2\omega} = \frac{|\chi^{magn}|}{|\chi^{cr}|}$ , характеризующей относительную величину магнитоиндуцированного вклада в генерацию ВГ. Сдвиг фаз  $\varphi$  между магнитоиндуцированной и кристаллографической напряженностями электрического поля на частоте ВГ можно вычислить по формуле:

$$\varphi = \arccos\left(\frac{\rho_{2\omega}\sqrt{1 + \sqrt{1 - \rho_{2\omega}^2}\cos\Phi}}{2\sqrt{1 - \sqrt{1 - \rho_{2\omega}^2}\cos\Phi}}\right). \quad (1.47)$$

---

## ГЛАВА 2

### Генерация магнитоиндуцированной второй гармоники в тонких магнитных пленках

---

Многослойные планарные структуры, содержащие субмикронные слои ферромагнетика, являются объектом интенсивных исследований в последнее десятилетие, что связано с возможностью их применения в устройствах носителей информации со сверхвысокой плотностью записи. Магнитотранспортные свойства пленок непосредственно связаны со структурой внутренних границ раздела нанослоев, таким образом исследование магнитных свойств тонких приповерхностных слоев ферромагнетика, соприкасающегося с различными немагнитными металлами, является важной задачей. Селективная чувствительность неразрушающего метода генерации ВГ к свойствам интерфейсов, скрытых для исследования с помощью других методик, мотивирует изучение тонких магнитных пленок методами нелинейной оптики. Следует также повторить, что магнитоиндуцированные эффекты при генерации ВГ на порядки превышают линейные аналоги, следовательно, можно ожидать проявления различных эффектов неоднородной намагниченности в квадратичном оптическом отклике, тогда как методами линейной магнитооптики указанные явления не визуализируются.

Глава построена следующим образом: сначала приведено краткое рассмотрение симметрии тензора магнитоиндуцированной квадратичной восприимчивости для латерально изотропной пленки, затем рассмотрена простейшая система - гладкая пленка кобальта и ее магнитоиндуцированный квадратичный отклик в различных геометриях эксперимента. Далее приведены результаты исследований композитных структур, состоящих из двух ферромагнитных слоев разной коэрцитивности с немагнитной прослойкой. В последнем разделе обсуждаются нетривиальные состояния намагниченности на границе кобальта с тяжелыми металлами.

Задачей исследования была разработка методов визуализации таких эффектов как возникновение анизотропии намагниченности, обменного

взаимодействия магнитных слоев и нетривиальных магнитных состояний в композитных ферромагнитных пленках с помощью анализа их нелинейно-оптического отклика.

### § 2.1. Симметрия тензоров нелинейной восприимчивости второго порядка для тонких магнитных пленок

Как отмечалось в обзоре литературы, намагничивание приводит к нарушению симметрии структуры, что, в свою очередь, ведет к появлению дополнительных ненулевых компонент тензора квадратичной восприимчивости.

Нелинейная поляризация может быть представлена в виде суммы кристаллографического (индекс “cr”), нечетного (индекс “odd”) и четного (индекс “even”) по намагниченности вкладов [128]:

$$\mathbf{P}_{2\omega} = \{ \hat{\chi}^{(2)cr} + \hat{\chi}^{(2)odd}(M) + \hat{\chi}^{(2)even}(M) \} : \mathbf{E}_\omega \mathbf{E}_\omega. \quad (2.1)$$

В рамках такого подхода намагниченность рассматривается как параметр и позволяет сравнивать относительные величины восприимчивостей в (2.1). Иначе можно записать эти компоненты как:  $\chi_{ijk}^{(2)odd}(M) \propto \chi_{ijkl}^{(2)} M_l$ ,  $\chi_{ijk}^{(2)even}(M) \propto \chi_{ijklm}^{(2)} M_l M_m$  [136], [129]. Обычно  $|\chi_{ijk}^{(2)odd}| \gg |\chi_{ijk}^{(2)even}|$ , поэтому квадратичные по намагниченности вклады трудно выявить экспериментально.

Генерация второй гармоники от поверхности намагниченного centrosymmetric металла была впервые исследована в работе [128], где впервые были введены понятия четных и нечетных магнитоиндуцированных компонент  $\hat{\chi}^{(2)}$ . В случае тонких магнитных пленок отклик ВГ формируется вкладами двух интерфейсов (так как в электродипольном приближении вклад от объема centrosymmetric среды отсутствует), восприимчивость каждого из них имеет кристаллографические, нечетные (линейные) и четные (квадратичные) по намагниченности компоненты.

Используя симметричный анализ, представленный в [128], и полагая  $\chi_{ijk}^{even} \propto M^2$ , в экваториальной геометрии приложения магнитного поля ненулевыми являются следующие компоненты тензора квадратичной восприимчивости для поверхности пленки изотропного металла:

$$\chi_{xzx}^{cr} = \chi_{xxz}^{cr} = \chi_{zyz}^{cr} = \chi_{yzy}^{cr}, \chi_{zxx}^{cr} = \chi_{zyy}^{cr}, \chi_{zzz}^{cr} \quad (2.2)$$

$$\chi_{yxy}^{odd} = \chi_{yyx}^{odd}, \chi_{xyy}^{odd}, \chi_{xxx}^{odd}, \chi_{xzz}^{odd}, \chi_{zxx}^{odd} = \chi_{zzx}^{odd} \quad (2.3)$$

$$\chi_{xxx}^{even} = \chi_{xxz}^{even} = \chi_{yyz}^{even} = \chi_{yzy}^{even}, \chi_{zxx}^{even} = \chi_{zyy}^{even}, \chi_{zzz}^{even}, \quad (2.4)$$

где ось  $Oz$  ориентирована вдоль нормали к поверхности, а магнитное поле направлено вдоль оси  $Oy$ .

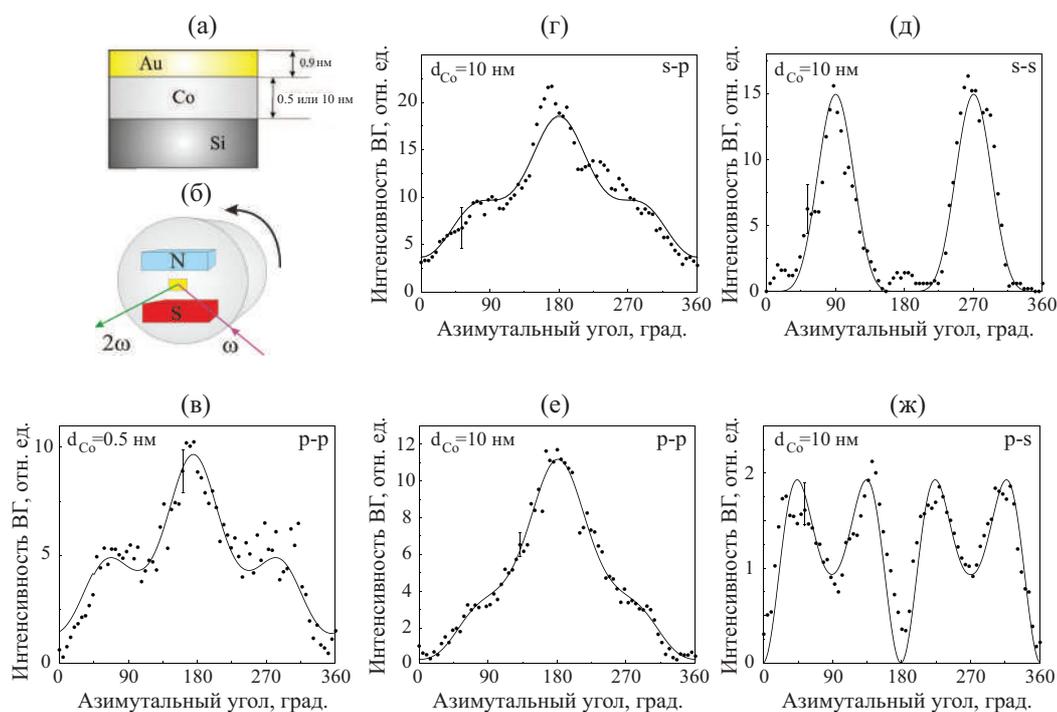
Комбинации этих компонент и определяют отклик ВГ при каждом конкретном выборе поляризации излучения накачки и ВГ. Заметим, что в общем случае компоненты тензора квадратичной восприимчивости  $\chi_{\alpha\beta\gamma}^i$  - комплексные величины, однако в нерезонансном случае можно считать, что все компоненты одного типа зависимости от магнитного поля имеют одинаковые фазы, независимые от угла падения зондирующего излучения. Обозначим в этой главе сдвиг фаз между  $\chi_{\alpha\beta\gamma}^{odd}$  и  $\chi_{\alpha\beta\gamma}^{cr}$  как  $\varphi$ , а фазовый сдвиг между  $\chi_{\alpha\beta\gamma}^{even}$  и  $\chi_{\alpha\beta\gamma}^{cr}$  компонентами - как  $\psi$ .

## § 2.2. Магнитоиндуцированная анизотропия пленок кобальт/золото на поверхности кремния

В данном параграфе описаны эксперименты по обнаружению индуцированной статическим магнитным полем анизотропии генерации второй гармоники в тонких изотропных магнитных пленках.

### 2.2.1. Изготовление и характеристика образцов

Образцы были изготовлены методом двухстадийного ионно-лучевого распыления в институте ГО НПЦ по материаловедению Национальной академии наук Беларуси. Исследовано две структуры - с толщинами слоя кобальта  $d_{Co} = 0.5$  и  $10$  нм. Кобальт был осажден на подложку кремния кристаллографической ориентации (100) и покрыт слоем золота толщиной  $0.9$  нм (рис. 2.1 (а)). Методика изготовления подробно описана в [172]. Морфология пленок была исследована методом атомно-силовой микроскопии, обнаружено, что поверхность золота в обеих пленках является гладкой и однородной. Также было показано, что магнитные свойства структур изотропны в плоскости пленки, поле насыщения намагниченности - около  $500$  Гс [172].



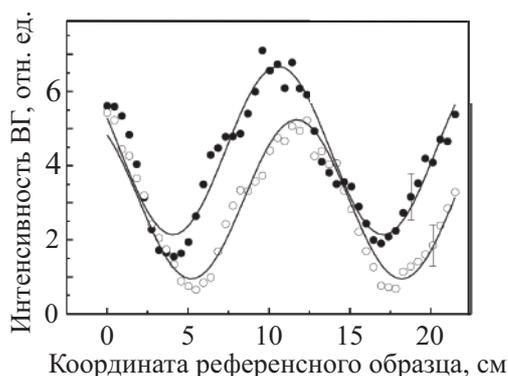
**Рис. 2.1.** (а) Схема структуры; (б) схема эксперимента; (в) азимутальная зависимость интенсивности ВГ в пленке с  $d_{Co} = 0.5$  нм; (г-ж) анизотропия интенсивности ВГ пленки кобальта толщиной  $d_{Co} = 10$  нм при различных комбинациях поляризации накачки и ВГ. Поляризации указаны в правом верхнем углу панелей: первая буква - поляризация излучения накачки, вторая буква - поляризация ВГ.

### 2.2.2. Генерация второй гармоники

Эксперимент проводился на установке, представленной на рис. 1.20, в геометрии “на отражение”. Азимутальная анизотропия ВГ была сначала измерена в немагнитных образцах. Обнаружено, что сигнал ВГ изотропен и  $p$ -поляризован. Согласно измерениям индикатрис ВГ, излучение квадратичного оптического отклика наблюдается только в зеркальном направлении, что соответствует наблюдению когерентного сигнала.

Далее образцы были помещены на держатель в поле постоянных NdFeB магнитов величиной 3.1 кГс, которое является насыщающим для исследуемых структур. В процессе измерения происходило одновременное азимутальное вращение образца и магнитного поля, т.е. направление намагничивания в образце было фиксировано. Угол падения составлял  $40^\circ$ , регистрировался отраженный сигнал ВГ (рис. 2.1 (б)).

На рис. 2.1 (в-ж) изображены зависимости интенсивности ВГ от азимутального угла  $\psi$ , измеренные для пленок в различных комбинациях поляризации излучения накачки и ВГ в фиксированном относительно струк-



**Рис. 2.2.** Интерферограммы интенсивности ВГ, измеренные при противоположных направлениях экваториального магнитного поля,  $d_{Co} = 10$  нм,  $p - p$  комбинация поляризаций излучения накачки и ВГ.

туры магнитном поле. Отметим, что в представленном эксперименте угол  $\psi$  определяет также азимутальную ориентацию магнитного поля в плоскости образца, вращающегося вместе с ним. Значения  $\psi = 0^\circ$  и  $\psi = 180^\circ$  соответствуют ориентации магнитного поля перпендикулярно плоскости падения (экваториальная геометрия). Видно, что наведенная намагничённостью анизотропия квадратичного отклика наблюдается во всех комбинациях поляризаций, в отличие от ненамагничённых пленок. В особенности интересен тот факт, что наблюдается генерация анизотропной  $s$ -поляризованной ВГ, запрещенной с точки зрения кристаллографической симметрии в немагнитной среде (рис. 2.1 (д,ж)).

Для структурно изотропной магнитной пленки магнитоиндуцированные изменения нелинейно-оптического отклика характеризуются величиной магнитного контраста ВГ, вычисляемого по формуле (1.43). Возникновение ненулевого магнитного контраста ВГ связано с тем, что в процессе вращения меняется компонента поперечного (перпендикулярного плоскости падения) магнитного поля. Максимальные значения экваториального магнитного поля соответствуют азимутальным углам  $\psi = 0^\circ$  и  $\psi = 180^\circ$ .

Для  $p - \omega$ ,  $p - 2\omega$  комбинации поляризаций значения магнитного контраста ВГ зависимости  $I_{2\omega}(\psi)$  качественно очень похожи для обеих пленок (рис. 2.1 (в,е)). Значения магнитного контраста, вычисленные путем подстановки в (1.43) значений интенсивности ВГ в максимуме и минимуме азимутальных зависимостей, составляют  $\rho_{2\omega} = 83\%$  в пленке с  $d_{Co} = 10$  нм и  $\rho_{2\omega} = 73\%$  в пленке с  $d_{Co} = 0.5$  нм, что, вероятно, связано с различными относительными величинами магнитоиндуцированных компонент  $\hat{\chi}^{odd}$  и будет

обсуждено ниже.

При  $s$ -поляризованном излучении накачки и  $p$ -поляризованной ВГ значение магнитного контраста в пленке с  $d_{Co}=10$  нм составляет 70%.

В структуре с  $d_{Co}=10$  нм были также измерены интерферограммы интенсивности ВГ при противоположных значениях экваториального магнитного поля в соответствии с методикой однолучевой интерферометрии ВГ. Сдвиг фаз между интерферограммами составляет  $\Phi = 34^\circ$  (рис. 2.2). Используя значение магнитного контраста 83% и угол  $\Phi$ , по формуле (1.47) рассчитано, что сдвиг фаз между магнитоиндуцированными и кристаллографическими компонентами в такой структуре составляет  $\varphi = 20^\circ$ .

### 2.2.3. Обсуждение результатов

Отклик ВГ от исследуемых образцов является когерентным, поэтому для анализа полученных зависимостей интенсивности ВГ можно использовать компоненты тензора квадратичной восприимчивости (2.2), (2.3) и (2.4). Ограничимся рассмотрением кристаллографического и нечетного по намагниченности вклада. Напомним также, что в нерезонансной системе мы считаем фазу всех нечетных по намагниченности компонент одинаковой, и что каждая магнитоиндуцированная компонента тензора квадратичной восприимчивости пленки - есть эффективная величина, характеризующая суммарный вклад соответствующих компонент интерфейсов Co/Au и Co/Si. Приложенное вдоль оси  $OY$  магнитное поле (при  $\psi = 0$ ) нарушает зеркальную симметрию. Если излучение накачки  $s$ -поляризовано, то из выражений (1.10) и (1.13) и рис. 1.1 можно записать:  $E'_x = E'_z = 0$ ,  $E'_y = E_0$ .

$$\begin{aligned}
 E_{2\omega,x}^{cr'} &= \chi_{xyy}^{cr'} E_0^2 = 0, \\
 E_{2\omega,y}^{cr'} &= \chi_{yyy}^{cr'} E_0^2 = 0, \\
 E_{2\omega,z}^{cr'} &= \chi_{zyy}^{cr'} E_0^2 = (\chi_{zxx}^{cr} \sin^2\psi + \chi_{zyy}^{cr} \cos^2\psi) E_0^2 = \chi_{zxx}^{odd} E_0^2, \\
 E_{2\omega,x}^{odd'} &= \chi_{xyy}^{odd'} E_0^2 = (\chi_{xyy}^{odd} \cos^3\psi + \chi_{xxx}^{odd} \cos\psi \sin^2\psi - 2\chi_{yyx}^{odd} \cos\psi \sin^2\psi) E_0^2, \\
 E_{2\omega,y}^{odd'} &= \chi_{yyy}^{odd'} E_0^2 = (\chi_{xxx}^{odd} \sin^3\psi + 2\chi_{yyx}^{odd} \cos^2\psi \sin\psi + \chi_{xyy}^{odd} \sin\psi \cos^2\psi) E_0^2, \\
 E_{2\omega,z}^{odd'} &= \chi_{zyy}^{odd'} E_0^2 = 0.
 \end{aligned} \tag{2.5}$$

В геометрии  $s-\omega$ ,  $s-2\omega$  только нечетные по намагниченности компоненты тензора квадратичной восприимчивости играют роль в генерации

ВГ. Отметим, что  $s$ -поляризованный отклик ВГ наблюдается только в случае, когда есть меридиональная компонента приложенного магнитного поля, т.е. при  $\psi = 90^\circ$  и  $\psi = 270^\circ$ . Отсутствие немагнитной ВГ при  $\psi = 0^\circ$  и  $\psi = 180^\circ$  свидетельствует о том, что квадрупольным вкладом в генерацию ВГ действительно можно пренебречь и рассматривать только электродипольные компоненты тензора квадратичной восприимчивости. Азимутальная анизотропия ВГ на рис. **2.1** (д) была аппроксимирована функцией

$$I_{2\omega}^{ss}(\psi) \propto |E'_{2\omega,y}|^2 \propto |\chi_{xxx}^{odd} \sin^3 \psi + (2\chi_{yyx}^{odd} + \chi_{xyy}^{odd}) \sin \psi \cos^2 \psi|^2, \quad (2.6)$$

откуда получено соотношение компонент (считаем, что все магнитоиндуцированные компоненты имеют одинаковую фазу)  $\frac{|2\chi_{yyx}^{odd} + \chi_{xyy}^{odd}|}{|\chi_{xxx}^{odd}|} \sim 0.1$ .

При  $s - \omega$ ,  $p - 2\omega$  комбинации поляризаций квадратичный отклик определяется несколькими независимыми  $\hat{\chi}^{(2)}$  компонентами, среди которых есть и магнитные, и кристаллографические, разность фаз  $\varphi$  между ними определена из интерферометрии. Будем считать, что для угла падения  $\theta = 40^\circ$  справедливо  $\cos \theta \approx \sin \theta$ , тогда азимутальная зависимость интенсивности ВГ:

$$I_{2\omega}^{sp}(\psi) \propto |E'_{2\omega,x} - E'_{2\omega,z}|^2 \propto |-\chi_{zxx}^{cr} e^{i\varphi} + (\chi_{xyy}^{odd} \cos^3 \psi + (\chi_{xxx}^{odd} - 2\chi_{yyx}^{odd}) \cos \psi \sin^2 \psi)|^2. \quad (2.7)$$

Аппроксимация экспериментальных данных на рис. **2.1** (г) функцией вида (2.7) изображена сплошной линией и дает значение  $\frac{|\chi_{xxx}^{odd} - 2\chi_{yyx}^{odd}|}{|\chi_{zxx}^{cr}|} \sim 0.06$ ,  $\frac{|\chi_{xyy}^{odd}|}{|\chi_{zxx}^{cr}|} \sim 0.6$ .

В случае  $p$ -поляризованного излучения накачки компоненты электрического поля на основной частоте:  $E'_{2\omega,x} \approx E'_{2\omega,z} = E_0$ ,  $E_y = 0$ . Тогда компоненты электрического поля волны ВГ с учетом преобразования (1.10) и (1.13) при повороте от системы координат, связанной с образцом, к лабораторной (рис. **1.1**):

$$\begin{aligned}
E_{2\omega,x}^{cr'} &= (\chi_{xxz}^{cr'} + \chi_{xzx}^{cr'} + \chi_{xxx}^{cr'} + \chi_{xzz}^{cr'})E_0^2 = \\
&= 2E_0^2(\chi_{xxz}^{cr} \cos^2\psi + \chi_{yzy}^{cr} \sin^2\psi) = 2E_0^2\chi_{xxz}^{cr}, \\
E_{2\omega,y}^{cr'} &= 0, \\
E_{2\omega,z}^{cr'} &= (\chi_{zzz}^{cr'} + \chi_{zxx}^{cr'} + \chi_{zzx}^{cr'} + \chi_{zxx}^{cr'})E_0^2 = (\chi_{zzz}^{cr} + \chi_{zxx}^{cr})E_0^2, \\
E_{2\omega,x}^{odd'} &= (\chi_{xxx}^{odd'} + \chi_{xzz}^{odd'} + \chi_{xzx}^{odd'} + \chi_{xxz}^{odd'})E_0^2 = \\
&= ((\chi_{xxx}^{odd} \cos^3\psi + 2\chi_{yyx}^{odd} \sin^2\psi \cos\psi + \chi_{xyy} \cos\psi \sin^2\psi) + \chi_{xzz}^{odd} \cos\psi)E_0^2, \\
E_{2\omega,y}^{odd'} &= (\chi_{yxx}^{odd'} + \chi_{yzz}^{odd'} + \chi_{yyx}^{odd'} + \chi_{yxx}^{odd'})E_0^2 = \\
&= ((\chi_{xxx}^{odd} \sin\psi \cos^2\psi - 2\chi_{yyx}^{odd} \cos^2\psi \sin\psi + \chi_{xyy}^{odd} \sin^3\psi) + \chi_{xzz}^{odd} \sin\psi)E_0^2 \\
E_{2\omega,z}^{odd'} &= (\chi_{zxx}^{odd'} + \chi_{zzz}^{odd'} + \chi_{zxx}^{odd'} + \chi_{zzx}^{odd'})E_0^2 = 2\chi_{zxx}^{odd} \cos\psi.
\end{aligned} \tag{2.8}$$

S-поляризованный сигнал ВГ в случае изотропной в плоскости слоев структуры Au/Co/Si полностью определяется магнитоиндуцированными компонентами тензора квадратичной восприимчивости. Экспериментальные данные, представленные на рис. **2.1** (ж) для геометрии  $p - \omega$ ,  $s - 2\omega$ , аппроксимированы функцией

$$I_{2\omega}^{ps}(\psi) \propto |E'_{2\omega,y}|^2 \propto |(\chi_{xxx}^{odd} - 2\chi_{yyx}^{odd}) \cos^2\psi \sin\psi + \chi_{xyy}^{odd} \sin^3\psi + \chi_{xzz}^{odd} \sin\psi|^2 \tag{2.9}$$

Отметим, что нулевые значения интенсивности ВГ соответствуют экваториальной геометрии приложенного магнитного поля. Из аппроксимации получено:  $\frac{|\chi_{xyy}^{odd}|}{|\chi_{xzz}^{odd}|} \sim 0.5$ ,  $\frac{|\chi_{xxx}^{odd} - 2\chi_{yyx}^{odd}|}{|\chi_{xzz}^{odd}|} \sim 2$ .

Наконец, для  $p - \omega$ ,  $p - 2\omega$  комбинации поляризаций, азимутальные зависимости интенсивности квадратичного отклика на рис. **2.1** (в, е) могут быть аппроксимированы функцией вида:

$$\begin{aligned}
I_{2\omega}^{pp}(\psi) &\propto \\
&\propto |(-\chi_{zzz}^{cr} - \chi_{zxx}^{cr} + 2\chi_{xxz}^{cr})e^{i\varphi} + \chi_{xxx}^{odd} \cos^3\psi + \\
&(\chi_{xzz}^{odd} - 2\chi_{zzx}^{odd}) \cos\psi + (2\chi_{yyx}^{odd} + \chi_{xyy}^{odd})) \cos\psi \sin^2\psi|^2.
\end{aligned} \tag{2.10}$$

Из аппроксимации получим следующие значения относительных магнитоиндуцированных компонент:  $\frac{|\chi_{xxx}^{odd}|}{|-\chi_{zzz}^{cr} - \chi_{zxx}^{cr} + 2\chi_{xxz}^{cr}|} \approx 0.3$ ,  $\frac{|\chi_{xzz}^{odd} - 2\chi_{zzx}^{odd}|}{|-\chi_{zzz}^{cr} - \chi_{zxx}^{cr} + 2\chi_{xxz}^{cr}|} \approx 0.5$ ,  $\frac{|2\chi_{yyx}^{odd} + \chi_{xyy}^{odd}|}{|-\chi_{zzz}^{cr} - \chi_{zxx}^{cr} + 2\chi_{xxz}^{cr}|} \approx 0.4$ . Для структуры Au/Co/Si с толщиной кобальта  $d_{Co} = 0.2$  нм эти соотношения оказались равными 0.15, 0.6 и 0.6, соответственно.

Аппроксимирующие кривые, изображенные на рис. **2.1** (в-ж), хорошо соответствуют экспериментальным данным, что подтверждает правильность феноменологического описания, приведенного выше. Величи-

ны магнитоиндуцированных компонент сравнимы с кристаллографическими во всех экспериментальных геометриях, что типично для магнитного нелинейно-оптического отклика поверхностей магнитных металлов [129].

Таким образом, была экспериментально продемонстрирована наведенная статическим магнитным полем магнитоиндуцированная анизотропия квадратичного нелинейно-оптического отклика в кристаллографически изотропных пленках.

### **§ 2.3. Генерация магнитоиндуцированной второй гармоники в многослойных пленках состава ферромагнетик/диэлектрик/ферромагнетик. Исследование квадратичного по намагниченности вклада в генерацию второй гармоники**

В данном параграфе приведены результаты исследования мультислойных пленок состава ферромагнетик/диэлектрик/ферромагнетик. Интерес представляет выявление четных по намагниченности вкладов в нелинейный магнитооптический отклик, а также, вклада, пропорционального произведению намагниченностей слоев. Проведена оптимизация геометрии эксперимента, а именно, подбор угла падения и поляризации излучения накачки для максимизации наблюдаемых эффектов.

Параграф построен следующим образом: сначала рассмотрена симметрия тензора квадратичной восприимчивости с учетом квадратичных по намагниченности вкладов в нелинейно-оптический отклик, затем приведены результаты экспериментального исследования тестовой структуры (пленки кобальта), а далее представлены экспериментальные данные для трехслойных пленок.

#### **2.3.1. Симметрия тензора магнитоиндуцированной квадратичной восприимчивости с учетом квадратичных по намагниченности вкладов**

Считаем, что азимутальное положение структур фиксировано, то есть, лабораторная система координат совпадает с системой координат, связанной с образцом. Внешнее магнитное поле также фиксировано в экваториальной геометрии. Поскольку ниже представлены экспериментальные

данные для линейной ( $p$ ) и циркулярной поляризации излучения накачки и  $p$ -поляризованного отклика ВГ, падающими на структуру под различными углами  $\theta$ , поэтому и рассмотрение компонент поля ВГ приведено для них.

### **$P$ -поляризованное излучение накачки**

В таком случае амплитуды компонент падающего электрического поля можно записать следующим образом:  $E_{\omega,x} = E_0 \cos\theta$ ,  $E_{\omega,y} = 0$ ,  $E_{\omega,z} = E_0 \sin\theta$ , где  $\theta$  - угол падения. Тогда для соответствующих компонент поля ВГ имеем (компоненты  $E_{2\omega,y}$  на частоте ВГ отсекаются анализатором, поэтому не приведены здесь).

$$\begin{aligned}
 E_{2\omega,x}^{cr} &\propto 2\chi_{xxz}^{cr} \sin\theta \cos\theta E_0^2; & (2.11) \\
 E_{2\omega,z}^{cr} &= (\chi_{zzz}^{cr} \sin^2\theta + \chi_{zxx}^{cr} \cos^2\theta) E_0^2; \\
 E_{2\omega,x}^{odd} &= (\chi_{xxx}^{odd} \cos^2\theta + \chi_{xzz}^{odd} \sin^2\theta) E_0^2; \\
 E_{2\omega,z}^{odd} &= 2\chi_{zxx}^{odd} \cos\theta \sin\theta E_0^2; \\
 E_{2\omega,x}^{even} &= 2\chi_{xxz}^{even} \sin\theta \cos\theta E_0^2; \\
 E_{2\omega,z}^{even} &= (\chi_{zzz}^{even} \sin^2\theta + \chi_{zxx}^{cr} \cos^2\theta) E_0^2.
 \end{aligned}$$

Пренебрегая дисперсией воздуха, можно считать, что углы, под которыми распространяется отраженная и прошедшая ВГ равны углу падения. Поэтому итоговый  $p$ -поляризованный отклик:  $E_{2\omega,p}^i = E_{2\omega,x}^i \cos\theta + E_{2\omega,z}^i \sin\theta$ ,  $i = cr, odd, even$  поэтому для амплитуд электрических полей на удвоенной частоте получим (нижний индекс  $pp$  здесь обозначает  $p$ -поляризованный отклик ВГ при  $p$ -поляризованном излучении накачки):

$$\begin{aligned}
 E_{pp}^{cr} &= (\chi_{zzz}^{cr} \sin^3\theta + \chi_{zxx}^{cr} \sin\theta \cos^2\theta + \chi_{xxz}^{cr} \cos\theta \sin 2\theta) E_0^2 = \chi_{pp}^{cr} E_0^2; & (2.12) \\
 E_{pp}^{odd} &= (\chi_{xxx}^{odd} \cos^3\theta + \chi_{xzz}^{odd} \sin^2\theta \cos\theta + \chi_{zxx}^{odd} \sin\theta \sin 2\theta) E_0^2 = \chi_{pp}^{odd} e^{i\varphi} E_0^2; \\
 E_{pp}^{even} &= (\chi_{zzz}^{even} \sin^3\theta + \chi_{zxx}^{even} \sin\theta \cos^2\theta + \chi_{xxz}^{even} \cos\theta \sin 2\theta) E_0^2 = \chi_{pp}^{even} e^{i\psi} E_0^2,
 \end{aligned}$$

где введены обозначения

$$\begin{aligned}\chi_{pp}^{cr} &= |\chi_{zzz}^{cr}| \sin^3\theta + |\chi_{zzx}^{odd}| \sin\theta \cos^2\theta + |\chi_{xxz}^{cr}| \cos\theta \sin 2\theta, \\ \chi_{pp}^{odd} &= |\chi_{xxx}^{odd}| \cos^3\theta + |\chi_{xxz}^{odd}| \cos\theta \sin^2\theta + |\chi_{zzz}^{odd}| \sin\theta \sin 2\theta, \\ \chi_{pp}^{even} &= |\chi_{zzz}^{even}| \sin^3\theta + |\chi_{zzx}^{even}| \sin\theta \cos^2\theta + |\chi_{xxz}^{even}| \cos\theta \sin 2\theta.\end{aligned}\quad (2.13)$$

Тогда интенсивность генерации ВГ:

$$I_{2\omega}^{pp}(M) \propto |E_{2\omega}^{pp}(M)|^2 \propto |\chi_{pp}^{cr} + \chi_{pp}^{odd} e^{i\varphi} + \chi_{pp}^{even} e^{i\psi}|^2, \quad (2.14)$$

где первое слагаемое не зависит от намагниченности, второе линейно по  $\mathbf{M}$ , третье - квадратично по  $\mathbf{M}$ .

В таком случае выражение для величины магнитного контраста ВГ, введенное в (1.43), с учетом того, что  $|\chi_{pp}^{even}| \ll |\chi_{pp}^{odd}| \ll |\chi_{pp}^{cr}|$ , принимает вид:

$$\rho_{2\omega} = \frac{I_{2\omega}(M) - I_{2\omega}(-M)}{I_{2\omega}(M) + I_{2\omega}(-M)} \propto \frac{2\chi_{pp}^{odd}}{\chi_{pp}^{cr}} \cos\varphi. \quad (2.15)$$

из вида выражения для  $\chi_{pp}^{odd}$  понятно, что в нерезонансном случае величина  $\rho_{2\omega}$  остается знакопостоянной для любого угла падения  $p$ -поляризованного излучения накачки на образец.

## Циркулярно поляризованное излучение накачки

При циркулярно поляризованном излучении накачки компоненты падающего электрического поля:  $E_{\omega,x} = E_0 \cos\theta$ ,  $E_{\omega,y} = iE_0$ ,  $E_{\omega,z} = E_0 \sin\theta$ , где  $\theta$  - угол падения. Тогда, например, для компоненты  $E_{2\omega,x}^{cr}$  имеем:

$$E_{2\omega,x}^{cr} = (\chi_{xxx} \cos^2\theta + \chi_{xxz} \sin^2\theta - \chi_{xyy} \cos^2\theta) E_0^2, \quad (2.16)$$

то есть одна компонента  $\chi_{xyy}^{cr}$  оказывается в противофазе с остальными. Аналогично получается и для других компонент поля. Проведя преобразования, аналогичные приведенным в предыдущем параграфе, и используя основное тригонометрическое тождество, получим (индекс  $cp$  введен для циркулярной поляризации излучения накачки и  $p$ -поляризованной ВГ):

$$\begin{aligned}E_{cp}^{cr} &= (-|\chi_{zyy}^{cr}| \sin^3\theta + |\chi_{zzz}^{cr}| \sin^3\theta + |\chi_{zzx}^{cr}| \sin\theta \cos^2\theta + \\ &+ |\chi_{xxz}^{cr}| \cos\theta \sin 2\theta) E_0^2 = \chi_{cp}^{cr} E_0^2;\end{aligned}\quad (2.17)$$

$$\begin{aligned}
E_p^{odd} &= (|\chi_{xxx}^{odd}|\cos^3\theta + |\chi_{xzz}^{odd}|\cos\theta\sin^2\theta + |\chi_{zxx}^{odd}|\sin\theta\sin 2\theta - \\
&\quad - |\chi_{xyy}^{odd}|\cos\theta)E_0^2 = \chi_{cp}^{odd}e^{i\varphi}E_0^2; \\
E_p^{even} &= (-|\chi_{zyy}^{even}|\sin^3\theta + |\chi_{zzz}^{even}|\sin^3\theta + |\chi_{zxx}^{even}|\sin\theta\cos^2\theta + \\
&\quad + |\chi_{xxz}^{even}|\cos\theta\sin 2\theta)E_0^2 = \chi_{cp}^{even}e^{i\psi}E_0^2,
\end{aligned}$$

где введены обозначения эффективных восприимчивостей

$$\begin{aligned}
\chi_{cp}^{cr} &= -|\chi_{zyy}^{cr}|\sin^3\theta + |\chi_{zzz}^{cr}|\sin^3\theta + |\chi_{xxz}^{cr}|\cos\theta\sin 2\theta, \\
\chi_{cp}^{odd} &= |\chi_{xxx}^{odd}|\cos^3\theta - |\chi_{xyy}^{odd}|\cos\theta + |\chi_{xzz}^{odd}|\cos\theta\sin^2\theta + |\chi_{zxx}^{odd}|\sin\theta\sin 2\theta, \\
\chi_{cp}^{even} &= -|\chi_{zyy}^{even}|\sin^3\theta + |\chi_{zzz}^{even}|\sin^3\theta + |\chi_{xxz}^{even}|\cos\theta\sin 2\theta,
\end{aligned} \tag{2.18}$$

а полная интенсивность на частоте ВГ:

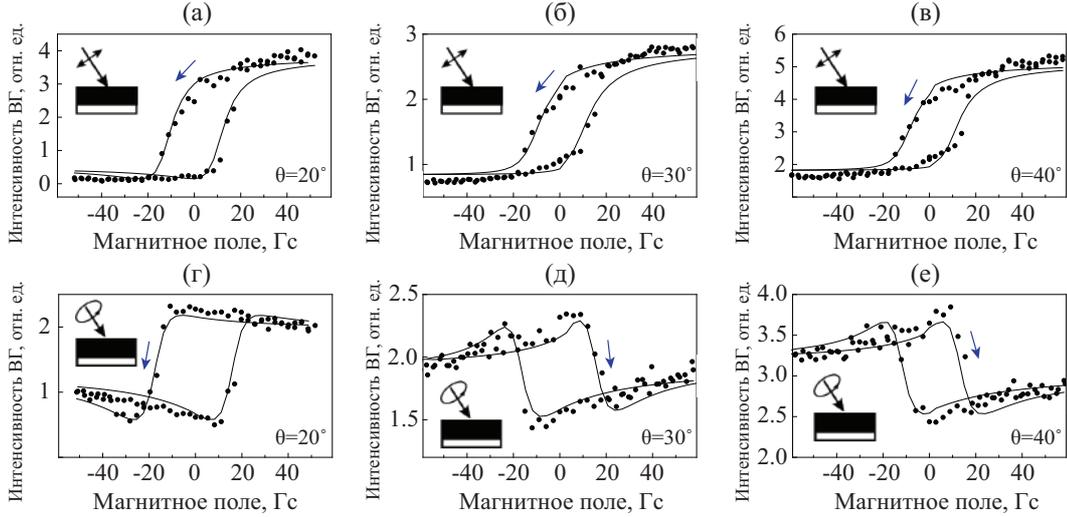
$$I_{2\omega}^{cp} \propto |E_{cp}(M)|^2 \propto |\chi_{cp}^{cr} + \chi_{cp}^{odd}e^{i\varphi} + \chi_{cp}^{even}e^{i\psi}|^2. \tag{2.19}$$

В отличие от случая линейно поляризованного зондирующего излучения, величина  $\chi_{cp}^{odd}$ , а, следовательно,  $\rho_{2\omega} \propto \chi_{cp}^{odd}$  может обращаться в ноль и менять знак при некотором значении угла падения  $\theta$ , зависящем от соотношения компонент  $\chi_{xxx}^{odd}$ ,  $\chi_{xyy}^{odd}$ ,  $\chi_{xzz}^{odd}$  и  $\chi_{zxx}^{odd}$ . В таком случае квадратичный по намагниченности вклад в генерацию ВГ является доминирующим и может быть проще детектирован экспериментально.

### 2.3.2. Исследование тестовой структуры. Гистерезис интенсивности второй гармоники в пленке кобальта толщиной 60 нм

В качестве тестовой структуры была исследована пленка кобальта толщиной 60 нм на стекле. Проверено, что в размагниченной структуре сигнал ВГ  $p$ -поляризован, генерация происходит только в зеркальном или соответствующем прошедшему лучу направлениях, что типично для гладких однородных металлических поверхностей. Эксперименты были проведены в геометрии “на пропускание” на установке (1.21). Длина волны излучения накачки 780 нм, угол падения варьировался.

На рисунках 2.3 (а-в) представлены петли магнитного гистерезиса генерации отраженной ВГ при различных углах падения  $p$ -поляризованного излучения накачки ( $\theta=20^\circ$ ,  $30^\circ$  и  $40^\circ$ ). Форма представленных зависимостей



**Рис. 2.3.** Гистерезисы интенсивности ВГ, измеренные в пленке кобальта толщиной 60 нм для линейно поляризованного (а-в) и циркулярно поляризованного зондирующего излучения (г-е). Углы падения составляли  $20^\circ$  (а, г),  $30^\circ$  (б, д) и  $40^\circ$  (в, е). Сплошными линиями показан результат аппроксимации экспериментальных данных функцией (2.14) (а-в) и функцией (2.19) (г-е). Синие стрелки указывают направление обхода.

типична для магнитооптических эффектов в ферромагнетиках. Аппроксимация экспериментальных данных формулой (2.14) показана на рис. 2.3 (а-в) сплошными линиями. Из аппроксимации следует, что квадратичные по намагниченности эффекты, соответствующие  $\chi_{pp}^{even}$ , при генерации второй гармоники в данных видах структур пренебрежимо малы, по сравнению с линейными и немагнитными (т.е. кристаллографическими). Для аппроксимации была использована зависимость намагниченности от приложенного магнитного поля вида:  $M(H) \propto \arctg(\gamma(H \pm H_c))$ ,  $H_c$  - коэрцитивная сила, знаки  $\pm$  соответствуют разным ветвям петли гистерезиса. Величины  $\gamma = 0.16 \text{ Гс}^{-1}$  и  $H_c = 12 \text{ Гс}$  взяты из аппроксимации гистерезиса линейного МО эффекта Керра.

Используя значения интенсивности ВГ при насыщающих значениях внешнего магнитного поля, был вычислен магнитный контраст, составивший  $\rho_{2\omega} = 92\%$  для  $\theta=20^\circ$ ,  $56\%$  для  $\theta=30^\circ$  и  $52\%$  для  $\theta=40^\circ$ . Более детальные исследования показали, что величина магнитного контраста ВГ положительна для всех углов падения и уменьшается с увеличением  $\theta$ . Такое поведение согласуется с выражениями для  $\chi_{pp}^{cr} \propto \sin\theta$ ,  $\chi_{pp}^{odd} \propto \cos\theta$  (2.13) и для  $\rho_{2\omega}$  (2.15).

Зависимости интенсивности ВГ от магнитного поля при циркулярно

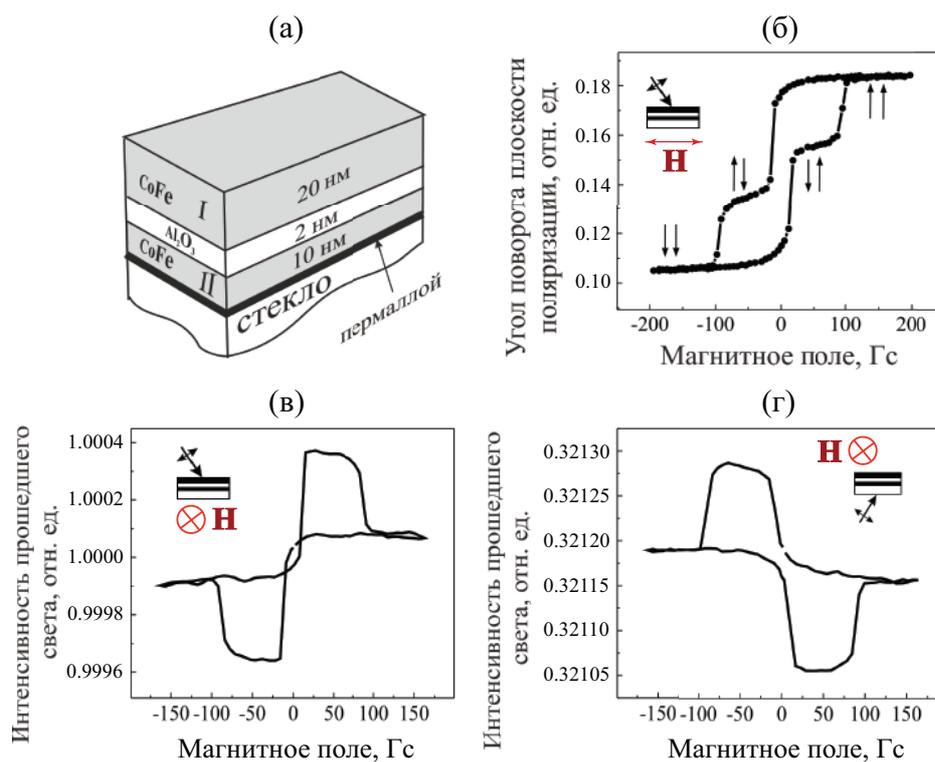
поляризованном излучении накачки представлены на рисунках **2.3** (г-е). Видно, что форма петель гистерезиса существенно отличается от измеренных при линейно поляризованной накачке. Более того, магнитный контраст меняет знак при увеличении угла падения:  $\rho_{2\omega}=32\%$  для  $\theta=20^\circ$ , в то время как  $\rho_{2\omega}=-1\%$  и  $-7\%$  для  $\theta=30^\circ$  и  $40^\circ$ , соответственно.

Таким образом, можно сделать два важных вывода о различиях магнитоиндуцированного квадратичного отклика при линейном и циркулярно поляризованном излучении накачки: во-первых, величины  $\rho_{2\omega}$  существенно меньше в случае циркулярно поляризованного зондирующего излучения во всем диапазоне углов падения; во-вторых, при  $\theta$  в районе  $30^\circ$  магнитный контраст ВГ меняет знак, что в принципе недостижимо в изотропной однородной пленке ферромагнетика при линейно поляризованной накачке. Такие утверждения соотносятся с выражениями для  $\chi_{cp}^{odd}$  (2.18).

Было обнаружено, что наличие максимумов на графиках **2.3** (г-е) невозможно аппроксимировать без учета квадратичных по  $\mathbf{M}$  слагаемых. Для аппроксимации была использована функция (2.19). Значения  $\gamma$  и  $H_c$  Гс были взяты из аппроксимации данных для линейного МО отклика.

### 2.3.3. Генерация магнитоиндуцированной второй гармоники в трехслойных структурах $\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}$

Ферромагнитные трехслойные структуры состава  $\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}$  были изготовлены в ИФМ РАН (г. Нижний Новгород) методом магнетронного напыления тонких пленок  $\text{Co}_{0.6}\text{Fe}_{0.4}$  на поверхность стекла. Для уменьшения коэрцитивности первого слоя он был нанесен на прослойку пермаллоя NiFe. Магнитные слои разделены слоем диэлектрика толщиной 2 нм. В качестве диэлектрика выбран алюминий, окисленный в атмосфере кислородной плазмы перед осаждением второго магнитного слоя. Давление аргона в ходе осаждения составляло  $4 \cdot 10^{-3}$  Торр, скорость осаждения при этом составляла 1 нм/сек. Толщины первого и второго слоев CoFe составили 10 и 20 нм, соответственно. Структура трехслойного образца схематично показана на рис. **2.4** (а). Наличие прослойки пермаллоя на подложке приводит к тому, что соседний с ней слой CoFe становится более магнито-мягким, чем верхний магнитный слой, таким образом в некотором интервале значений напряженности внешнего магнитного поля реализуемо антиферромагнитное состояние намагниченности образца. Интерес пред-



**Рис. 2.4.** (а) Схема образца трехслойной структуры CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CoFe. (б) Зависимость угла поворота плоскости поляризации от магнитного поля в геометрии меридионального эффекта Керра. Сплошными линиями показана аппроксимация функцией вида (2.20). (в,г) Зависимости коэффициента пропускания от внешнего поперечного магнитного поля (геометрия Фохта) в трехслойной структуре CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CoFe, угол падения 70°, луч падает со стороны пленки и со стороны подложки, соответственно.

ставляет изучение взаимовлияния магнитных свойств слоев, в частности, их обменного взаимодействия, энергия которого пропорциональна скалярному произведению намагниченностей  $E \sim -\mathbf{M}_I \mathbf{M}_{II}$  [136].

### Линейная магнитооптика

Линейный магнитооптический эффект Керра (МОЭК) был исследован в Институте физики микроструктур РАН, г. Нижний Новгород. В качестве источника излучения накачки использовался He-Ne лазер на длине волны 628 нм. Угол падения составлял 45°. Сначала образцы были помещены в меридиональное магнитное поле  $\mathbf{H}$ , была измерена зависимость угла поворота плоскости поляризации отраженного излучения от  $|\mathbf{H}|$  (рис. 2.4, (б)). Наблюдается типичный гистерезис МОЭК для трехслойной структуры. Видны “ступеньки”, что соответствует перемагничиванию двух магнитных слоев с коэрцитивными силами  $H_{cI} = 93$  Гс и  $H_{cII} = 14$  Гс. Та-

ким образом, для разных значений магнитного поля в структуре реализуемы четыре магнитных состояния - два с параллельными и два с антипараллельными магнитными моментами слоев (схематично они показаны на рис. 2.4 (б) стрелками). При промежуточных значениях внешнего магнитного поля (от 14 до 93 Гс) намагниченности слоев антипараллельны, что соответствует возникновению магнитного тороидного момента системы  $\mathbf{T} = [(\mathbf{M}_I - \mathbf{M}_{II}) \times \mathbf{n}]$ , где  $\mathbf{n}$  - единичный вектор нормали, направленный от верхней к нижней пленке. Направление  $\mathbf{T}$  перпендикулярно намагниченности и параллельно слоям. Отметим, что, хотя намагниченность является аксиальным вектором, тороидный момент - реальный вектор, который может привести к появлению дополнительного вклада в нелинейно-оптический отклик на частоте второй гармоники.

На рисунках 2.4 (в,г) показаны зависимости коэффициента пропускания образца от приложенного магнитного поля при угле падения излучения накачки  $70^\circ$  в экваториальной геометрии. Видна значительная модуляция пропускания для значений  $\mathbf{H}$ , соответствующих антиферромагнитному состоянию образца (поля от 14 до 93 Гс), в то время как в ферромагнитном состоянии относительные изменения интенсивности прошедшего излучения существенно менее выражены (поля более 100 Гс) в выбранной геометрии эксперимента. Из данных на рис. 2.4 (в,г) понятно, что, во-первых, интенсивность прошедшего света  $I_\omega$  нечетна как по средней намагниченности, так и по тороидному моменту  $\mathbf{T}$ , т.к.  $I_\omega(M) \neq I_\omega(-M)$  и  $I_\omega(T) \neq I_\omega(-T)$ . Во-вторых, было обнаружено, что если луч падает со стороны подложки, то меняется знак модуляции интенсивности  $\delta I_\omega = I_\omega(H) - I_\omega(H = 0)$ . Это подтверждение невзаимности наблюдаемых эффектов. Отметим также, что упомянутые интенсивностные эффекты в магнитооптическом отклике при поперечном намагничивании наблюдаются только при  $p$ -поляризованном излучении накачки [125].

Отметим также, что наблюдаемые линейные МО эффекты хорошо описываются лишь с помощью формул Френеля для прошедшего и отраженного излучения, т.е. учета обменного взаимодействия слоев, пропорционального произведению их намагниченностей, не требуется. Кривые на рис. 2.4 (б) хорошо аппроксимируются выражением:

$$I_\omega(H) = I_0 + a_I \arctg(\gamma_I(H \pm H_{cI})) + a_{II} \arctg(\gamma_{II}(H \pm H_{cII})), \quad (2.20)$$

где второе и третье слагаемое соответствуют вкладам магнитных слоев, а знаки  $\pm$  - разным ветвям петли гистерезиса. Аппроксимация дает следующие значения параметров  $\gamma_I = 0.26 \text{ Гс}^{-1}$ ,  $\gamma_{II} = 0.41 \text{ Гс}^{-1}$ ,  $H_I = 29 \text{ Гс}$ ,  $H_{II} = 6 \text{ Гс}$ , которые будут использованы в дальнейшем.

### Магнитный нелинейно-оптический отклик

Нелинейно-оптические эксперименты проводились на установке, представленной на рис. 1.21. Было использовано линейно ( $p$ ) или *циркулярно* поляризованное зондирующее излучение на длине волны 780 нм. Угол падения варьировался от  $5^\circ$  до  $50^\circ$ . Регистрировалась интенсивность  $p$ -поляризованной ВГ, прошедшей через пленку. В процессе измерений образец был помещен между полюсами электромагнита в геометрии Фохта.

Индикатриса и поляризационная зависимость ВГ, прошедшей через образец, показали, что квадратичный отклик является когерентным и  $p$ -поляризованным. Следовательно, поверхность и интерфейсы слоев в образце являются плоскими и гладкими.

Петли магнитного гистерезиса прошедшей ВГ для трехслойной пленки  $\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}$  показаны на рис. 2.5. Видно, что для малых углов падения  $\theta=5^\circ$  форма кривой весьма нетривиальна (см. рис. 2.5 (а,г)). Во-первых, на них видны широкие, “крылья” при величинах внешнего магнитного поля, соответствующих антиферромагнитному состоянию. Во-вторых, стоит отметить практически нулевой магнитный контраст ВГ при  $|\mathbf{H}|$  близких к насыщению. Более того, ветви петли пересекаются при  $H=0$ , что формально дает нулевую ширину кривой. Это возможно в случае, когда магнитные (нечетные и четные по намагниченности) вклады в генерацию ВГ превосходят кристаллографический вклад, что возможно при малых углах  $\theta$ , если обратиться к формулам (2.13) и (2.18). Немагнитная ВГ стремится к нулю при  $\theta \rightarrow 0$  для изотропных поверхностей.

Гистерезис ВГ был измерен для различных углов падения линейно поляризованного излучения накачки вплоть до  $\theta=50^\circ$ , типичная зависимость изображена на рис. 2.5 (б) для угла падения  $25^\circ$  (для остальных значений  $\theta$  при линейно поляризованной накачке зависимости качественно аналогичны). Две “ступеньки” на левой ветви петли гистерезиса соответствуют перемагничиванию слоев с коэрцитивностями  $H_{cI} = 93 \text{ Гс}$  и  $H_{cII} = 14 \text{ Гс}$ , аналогично линейному МО эффекту Керра.

На рисунке **2.5** (в) показан гистерезис ВГ в исследуемой структуре при падении зондирующего излучения со стороны подложки под углом 35 градусов к нормали. Видно, что гистерезисы на рисунках **2.5** (б) и **2.5** (в) выглядят как зеркальные изображения друг друга, знаки магнитного контраста интенсивности ВГ противоположны. Это аналогично результатам измерения линейного МО эффекта в геометрии Фохта и с анализом симметрии генерации магнитоиндуцированной ВГ.

Экспериментальные данные, представленные на рис. **2.5**, были аппроксимированы функцией (здесь мы опустили квадратичные по намагниченности компоненты, которые пренебрежимо малы в пределах погрешности эксперимента при линейно поляризованном излучении накачки, как и в однородной магнитной пленке):

$$I_{2\omega}^{pp}(H) \propto |\chi_{pp}^{cr} + \chi_{pp,I}^{odd} e^{i\varphi_I} + \chi_{pp,II}^{odd} e^{i\varphi_{II}}|^2, \quad (2.21)$$

где  $\varphi_I$  and  $\varphi_{II}$  фазы нечетных по намагниченности компонент относительно кристаллографических. Зависимости восприимчивостей от магнитного поля взяты в виде:  $\chi_{pp,i}^{odd} \propto M_i \propto \arctg(\gamma_i(H - H_{c_i}))$ , нижние индексы  $i = I, II$  обозначают номер магнитного слоя (рис. **2.4** (а)). Параметры  $\gamma_I = 0.26$  Гс<sup>-1</sup>,  $\gamma_{II} = 0.41$  Гс<sup>-1</sup>,  $H_I = 29$  Гс,  $H_{II} = 6$  Гс были взяты из аппроксимации данных линейного МО эффекта Керра и фиксированы. Отношения модулей  $\chi_{pp}^{odd}$  и  $\chi_{pp}^{cr}$  для двух магнитных слоев в насыщающем внешнем магнитном поле, полученные из аппроксимации, приведены в таблице 2.1. Видно, что нечетные по намагниченности компоненты тензора квадратичной восприимчивости для обоих слоев уменьшаются при увеличении угла падения при линейно поляризованной накачке, что хорошо соотносится с феноменологическим описанием (см. формулы (2.13)). Стоит также уточнить, что источниками генерации магнитоиндуцированной ВГ являются интерфейсы CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, CoFe/воздух и CoFe(пермаллой)/стекло, так как “в объеме” все составляющие образец материалы центросимметричны. Таким образом,  $\chi_{pp,I}^{odd}$  - эффективная компонента, включающая в себя интерференцию полей ВГ от интерфейсов CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и CoFe/воздух, при этом оба вклада зависят от намагниченности аналогично “объему” верхнего слоя. Величина  $\chi_{pp,II}^{odd}$  является эффективной компонентой, отражающей вклады интерфейсов CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> и CoFe/пермаллой. Отметим, что судя по таблице 2.1,  $\chi_{pp,II}^{odd} > \chi_{pp,I}^{odd}$  для всех значений  $\theta$ . По-видимому, это связано с

Таблица 2.1. Параметры, полученные из аппроксимации экспериментальных зависимостей интенсивности генерации ВГ от приложенного магнитного поля функцией вида (2.21).

$P$ –поляризованное излучение накачки падает со стороны образца.

$\theta$	$ \chi_{pp,I}^{odd} / \chi_{pp}^{cr} $	$ \chi_{pp,II}^{odd} / \chi_{pp}^{cr} $	$ \chi_T / \chi_{pp}^{cr} $
$5^\circ$	0.30	0.65	0.35
$20^\circ$	0.14	0.42	0.28
$25^\circ$	0.11	0.34	0.23
$35^\circ$	0.08	0.19	0.11
$40^\circ$	0.05	0.21	0.16
$50^\circ$	0.04	0.19	0.15

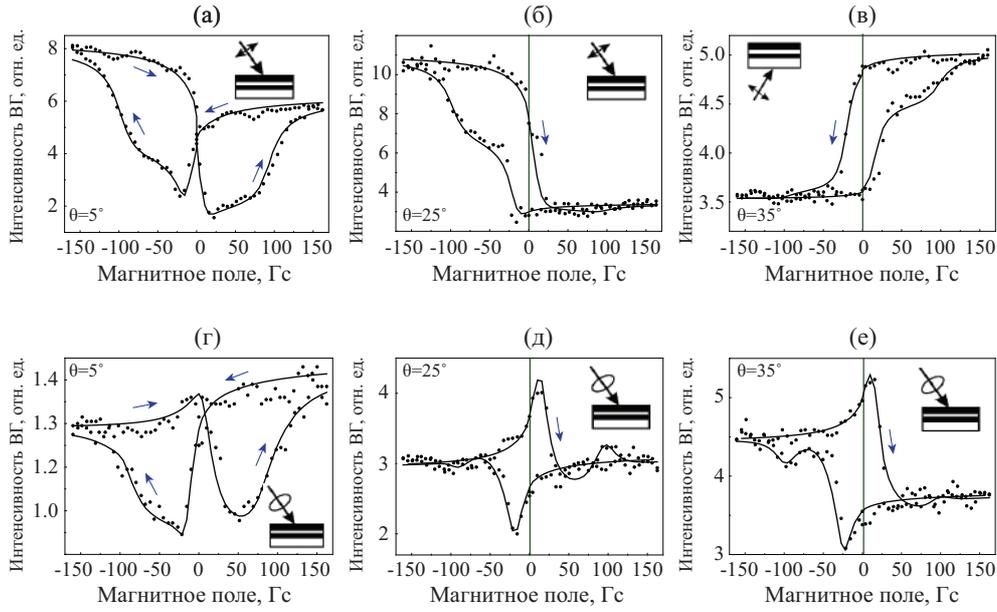
тем, что нижний магнитный слой имеет более асимметричные границы - у него с одной стороны диэлектрик  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $\epsilon_{\text{Al}_2\text{O}_3} \approx 3.1$ ), а с другой - металл пермаллой ( $\epsilon_{\text{NiFe}} \approx -12 + 26i$ ). Верхний магнитный слой граничит с обеих сторон с диэлектриками -  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ( $\epsilon_{\text{Al}_2\text{O}_3} \approx 3.1$ ) и воздухом ( $\epsilon_{\text{air}} \approx 1$ ). Кристаллографическая компонента  $\chi_{pp}^{cr}$  содержит вклад от всех интерфейсов в образце, а также, от его поверхности.

Была оценена квадратичная восприимчивость, индуцированная тороидным моментом, как  $|\chi_T| \propto |\chi_I^{odd}| - |\chi_{II}^{odd}|$ , где учтено, что магнитные моменты слоев параллельны плоскости структуры. Соответствующие значения (в относительных единицах) представлены в четвертой колонке таблицы 2.1. Легко видеть, что вклад  $\mathbf{T}$  уменьшается с увеличением  $\theta$ . Это разумно, если мы учтем, что тороидный момент системы также лежит в плоскости структуры, таким образом величина вклада  $\mathbf{T}$  в квадратичный отклик структуры уменьшается с ростом угла падения.

Теперь рассмотрим случай циркулярно поляризованного излучения накачки. На рисунке **2.5** (г-е) представлены гистерезисы ВГ, измеренные при углах падения зондирующего излучения  $\theta=5^\circ$ ,  $25^\circ$  и  $35^\circ$ . По аналогии со случаем однородной пленки кобальта, магнитный контраст ВГ при увеличении угла падения уменьшается до нуля и меняет знак при  $\theta \sim 25^\circ$ . Более того, оказывается, что нечетных по намагниченности вкладов недостаточно для описания экспериментальных данных. Поэтому точки на графиках рис. **2.5** (г-е), были аппроксимированы функцией вида:

$$I_{2\omega}^{cp}(H) \propto |\chi_{cp}^{cr} + \chi_{cp,I}^{odd}e^{i\varphi_I} + \chi_{cp,II}^{odd}e^{i\varphi_{II}} + \chi_{cp,I}^{even}e^{i\psi_I} + \chi_{cp,II}^{even}e^{i\psi_{II}} + \chi_{cp,I+II}^{even}e^{i\varphi_{I+II}}|^2, \quad (2.22)$$

где  $\chi_{cp,i}^{odd} \propto M_i \propto \text{arctg}(\gamma_i(H - H_{c_i}))$ ,  $\chi_{cp,i}^{even} \propto (M_i)^2 \propto (\text{arctg}(\gamma_i(H - H_{c_i})))^2$ ,



**Рис. 2.5.** Гистерезисы интенсивности генерации ВГ в пленке  $\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}$  для линейно (а-в) и циркулярно поляризованного (г-е) излучения накачки. Углы падения  $5^\circ$  (а), (г);  $25^\circ$  (б), (д),  $35^\circ$  (в), (е). Зондирующее излучение падает со стороны трехслойной пленки (а-б), (г-е); со стороны подложки (в), как показано на вставках. Сплошными линиями показан результат аппроксимации формулами (2.21) (а-в) и (2.22) (г-е). Синими стрелками показаны направления обхода.

$i = I, II, \chi_{sp, I+II}^{even} \propto M_I M_{II} \propto \arctg(\gamma_I(H - H_{cI})) * \arctg(\gamma_{II}(H - H_{cII}))$ .  
 Параметры  $\gamma_I = 0.26 \text{ Гс}^{-1}$ ,  $\gamma_{II} = 0.41 \text{ Гс}^{-1}$ ,  $H_I = 29 \text{ Гс}$ ,  $H_{II} = 6 \text{ Гс}$  были взяты из аппроксимации данных МО эффекта Керра и фиксированы.

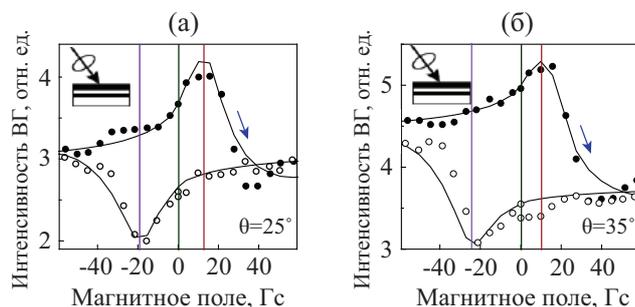
Параметры аппроксимации приведены в таблице 2.2. Из таблицы 2.2 видно, что, как и в случае однородной пленки, четные (квадратичные) по намагниченности компоненты тензора квадратичной восприимчивости сравнимы с нечетными. Кроме того, относительный вклад “обменных” слагаемых при некоторых углах падения даже превосходит четные, т.е. достаточно хорошо наблюдается при исследовании магнитоиндуцированной ВГ.

## Обсуждение результатов

Основной аспект для обсуждения - выявление квадратичных по намагниченности вкладов в нелинейную поляризацию исследуемых структур.

Таблица 2.2. Относительные значения нечетных и четных по намагниченности компонент тензора квадратичной восприимчивости, полученные при аппроксимации формулой вида (2.22) экспериментальных данных на рис. 2.5 для CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CoFe с прослойкой 2 нм.

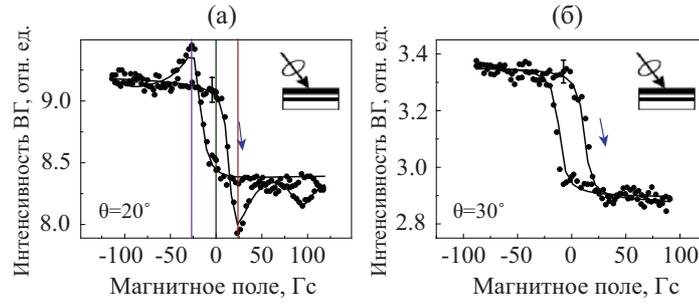
$\theta$	$\frac{ \chi_{cp,I}^{odd} }{ \chi_{cp}^{cr} }$	$\frac{ \chi_{cp,II}^{odd} }{ \chi_{cp}^{cr} }$	$\frac{ \chi_{cp,I}^{even} }{ \chi_{cp}^{cr} }$	$\frac{ \chi_{cp,II}^{even} }{ \chi_{cp}^{cr} }$	$\frac{ \chi_{cp,I+II}^{even} }{ \chi_{cp}^{cr} }$
5°	0.07	0.63	0.02	0.29	0.11
20°	0.21	0.43	0.08	0.16	0.18
25°	0.11	0.16	0.10	0.10	0.23
30°	0.01	0.21	0.02	0.05	0.05
35°	0.24	0.37	0.07	0.11	0.14
50°	0.09	0.14	0.06	0.09	0.21



**Рис. 2.6.** Гистерезисы интенсивности ВГ в увеличенном масштабе вблизи  $H = 0$ . Пленка CoFe/Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>/CoFe, циркулярная поляризация излучения накачки, угол падения (а)  $\theta = 25^\circ$ , (б)  $\theta = 35^\circ$ . Сплошными линиями показан результат аппроксимации формулой вида (2.22). Фиолетовыми и красными вертикальными линиями показаны положения максимумов и минимумов зависимостей.

Как было сказано выше, нечетные и четные по намагниченности вклады имеют примерно одинаковую величину при накачке циркулярно поляризованным светом. В представленных экспериментах это было впервые обнаружено.

Основополагающий механизм этого эффекта - относительное “подавление” эффективной нечетной по намагниченности компоненты тензора квадратичной восприимчивости, которое достигается при циркулярной поляризации зондирующего излучения вследствие наличия компоненты  $\chi_{xyy}^{odd}$ , противоположной по фазе с остальными компонентами в  $\chi_{cp}^{odd}$  (см. выражение 2.18). Таким образом, эта компонента может компенсировать остальные при определенном угле падения, уменьшая до нуля магнитный контраст при насыщающих магнитных полях, как и было обнаружено в эксперименте (рис. 2.5 (д)). Тогда основной вклад в нелинейный магнитооптический отклик дают четные (квадратичные) по намагниченности компонен-



**Рис. 2.7.** Гистерезисы интенсивности ВГ в пленке  $\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}$  с прослойкой оксида алюминия 10 нм, циркулярная поляризация излучения накачки, угол падения (а)  $\theta = 20^\circ$ , (б)  $\theta = 30^\circ$ . Сплошными линиями показан результат аппроксимации формулой вида (2.22).

ты. Следует также подчеркнуть, что для всех углов падения эффективные магнитоиндуцированные компоненты магнитомягкого слоя (индекс II) превосходят по величине вклады более жесткого слоя (индекс I), что уже обсуждалось ранее для  $p$ -поляризованного излучения накачки и связано с тем, что нижний магнитный слой граничит с материалами, обладающими существенно различными диэлектрическими проницаемостями.

Другой интересный эффект, не наблюдавшийся ранее, состоит в появлении вклада в генерацию ВГ, пропорционального скалярному произведению магнитных моментов двух слоев  $\text{CoFe}$   $P_{I+II}^{even} \propto M_I M_{II}$ , который можно связать с их обменным взаимодействием. Как видно по таблице 2.2,  $|\chi_{cp,I+II}^{even}|/|\chi_{cp,I}^{even}| \geq 2$  и  $|\chi_{cp,I+II}^{even}|/|\chi_{cp,II}^{ev}| \geq 1$  в широком диапазоне углов падения, т.е. эффект соразмерен квадратичным по намагниченности вкладом. Проявление  $P_{I+II}^{even}$  в генерации ВГ можно видеть даже без аппроксимации экспериментальных зависимостей, а лишь анализируя асимметрию гистерезисов ВГ при относительно малых значениях приложенного магнитного поля (рис. 2.6). Различия в величинах магнитного поля, соответствующих максимуму и минимуму интенсивности генерации ВГ,  $H_{min}$  и  $H_{max}$ , показаны на рис. 2.6 цветными линиями, видно, что  $|H_{min}| \neq -|H_{max}|$ . Таким образом, по асимметрии гистерезиса может быть детектировано обменное взаимодействие  $M_I M_{II}$  магнитных слоев.

Для дополнительного подтверждения этой гипотезы были проведены аналогичные измерения пленки с прослойкой  $\text{Al}_2\text{O}_3$  толщиной 10 нм (рис. 2.7). При такой толщине диэлектрической прослойки взаимодействие магнитных слоев должно быть существенно меньше, чем в структуре с двухнанометровой прослойкой. Гистерезисы ВГ при углах падения циркулярно

Таблица 2.3. Параметры, полученные из аппроксимации экспериментальных зависимостей ВГ от приложенного магнитного поля для образца с прослойкой  $\text{Al}_2\text{O}_3$  толщиной 10 нм (рис. 2.7).

Циркулярно поляризованное излучение накачки.

$\theta$	$\frac{ \chi_{cp,I}^{odd} }{ \chi_{cp}^{cr} }$	$\frac{ \chi_{cp,II}^{odd} }{ \chi_{cp}^{cr} }$	$\frac{ \chi_{cp,I}^{even} }{ \chi_{cp}^{cr} }$	$\frac{ \chi_{cp,II}^{even} }{ \chi_{cp}^{cr} }$	$\frac{ \chi_{cp,I+II}^{even} }{ \chi_{cp}^{cr} }$
20°	0.070	0.093	0.028	0.076	0.022
25°	0.127	0.068	0.015	0.057	0.010
30°	0.008	0.033	0.001	0.001	0.000

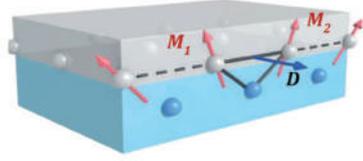
поляризованного зондирующего излучения 20° и 30° представлены на рис. 2.7 (данные для угла падения 25° не приведены, т.к. они похожи на результат при  $\theta = 20^\circ$ ). Обнаружено, что в структуре с толстым слоем оксида алюминия  $|\chi_{cp,I+II}^{even}|/|\chi_{cp,I}^{even}| \leq 1$  и  $|\chi_{cp,I+II}^{even}|/|\chi_{cp,II}^{even}| \leq 1/3$ , что существенно меньше, чем в образце с тонким (2 нм) диэлектрическим слоем, т.к. толстая прослойка уменьшает эффективность взаимодействия магнитных слоев.

Параметры, полученные из аппроксимации экспериментальных зависимостей ВГ от приложенного магнитного поля для образца с толстой диэлектрической прослойкой (10 нм), приведены в таблице 2.3, кривые аппроксимировались при фиксированных значениях  $H_{cI} = 96$  Гс,  $H_{cII} = 12$  Гс,  $\gamma_I = 0.07$  Гс<sup>-1</sup>,  $\gamma_{II} = 0.27$  Гс<sup>-1</sup>. Можно также отметить, что этой структуре вклад верхнего слоя больше (вторая и четвертая колонки в таблице 2.3) превосходит вклад нижнего слоя, прилегающего к подложке (третья и пятая колонки таблицы 2.3). Это, по-видимому, связано с затуханием излучения накачки при прохождении десятинанометрового слоя оксида алюминия.

Подводя итог, было показано, что визуализация взаимодействия магнитных слоев возможна нелинейно-оптическими методами, причем предпочтительно использование циркулярно поляризованного излучения накачки.

## § 2.4. Мультислойные пленки на основе кобальта и тяжелых металлов

В данном разделе приведены результаты исследования свойств границ раздела пленок ферромагнитного металла (кобальта) и тяжелого металла с большим значением спин-орбитальной постоянной. Интерес представляет, в частности, возникновение дополнительного взаимодей-



**Рис. 2.8.** Схема ВДМ на границе раздела атомов ферромагнетика (белые)/немагнитного материала (голубые).  $\mathbf{D}$  - вектор Дзялошинского-Мории,  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$  - магнитные моменты атомов ферромагнетика [188].

ствия магнитных моментов на интерфейсах, известное как поверхностно-индуцированное взаимодействие Дзялошинского–Мория (ВДМ) [9, 185, 186]. ВДМ является антисимметричным обменным взаимодействием и рассматривается как поправка к спин-орбитальному взаимодействию. Для границы раздела ферромагнетик/немагнитный материал энергия ВДМ записывается в виде [187]:

$$E_{DMI} = \mathbf{D}[\mathbf{M}_1 \times \mathbf{M}_2], \quad (2.23)$$

где  $\mathbf{D}$  - вектор Дзялошинского-Мория,  $\mathbf{M}_1$  и  $\mathbf{M}_2$  - магнитные моменты атомов ферромагнетика (рис. 2.8).

ВДМ приводит к формированию нетривиальных магнитных состояний на границах раздела, как, например, хиральное распределение намагниченности и скирмионы [189, 190], которые характеризуются отличным от нуля векторным произведением вида  $\mathbf{M} \times \nabla \mathbf{M}$ , определяющим т.н. флексо-магнитоэлектрический вектор  $\mathbf{Q}$ :

$$Q_i = \epsilon_{ijk} [\mathbf{m} \times \frac{\partial \mathbf{m}}{\partial x_j}]_k, \quad (2.24)$$

где  $\mathbf{m} = \frac{\mathbf{M}}{|\mathbf{M}|}$ ,  $\epsilon_{ijk}$  - тензор Леви-Чивиты. В рамках феноменологического подхода было показано, что флексо-магнитоэлектрический вектор может приводить к появлению вклада в нелинейную поляризацию на частоте ВГ [191]:

$$\mathbf{P}_{2\omega}^Q = \alpha \epsilon_{ijk} [\mathbf{M} \times \frac{\partial \mathbf{M}}{\partial x_j}]_i \mathbf{e}_k, \quad (2.25)$$

где  $\alpha$  - константа,  $\mathbf{e}_k$  - орт вдоль соответствующей оси.

Экспериментальное изучение соответствующих эффектов является сложной задачей, потому что, во-первых, речь идет не о поверхности, а

о скрытых границах раздела, а во-вторых, нужно выявить слабые магнитные эффекты, индуцированные на поверхности, на фоне магнитооптического отклика гораздо более толстых окружающих пленок. В настоящее время изучение ВДМ проводится с использованием методов рассеяния Мандельштама–Бриллюэна и спин-поляризованной туннельной микроскопии, лоренцевской микроскопии [192].

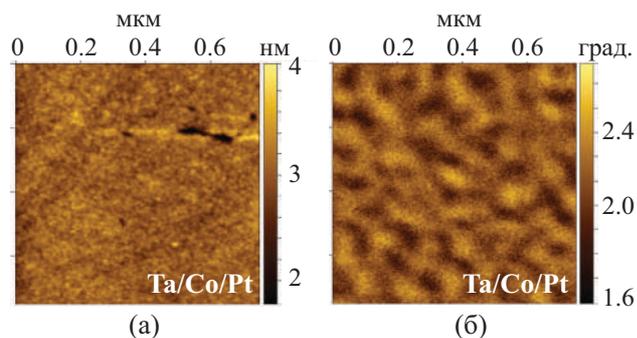
Поскольку метод генерации ВГ обладает высокой чувствительностью к интерфейсной намагниченности, была предпринята попытка визуализировать таким образом вклад в квадратичный нелинейно-оптический отклик от нетривиальных состояний намагниченности на границах раздела, связанных с сильными градиентами намагниченности вдоль нормали к слоям.

#### **2.4.1. Пленки Co/Pt и Co/Ta с латеральной анизотропией магнитных свойств**

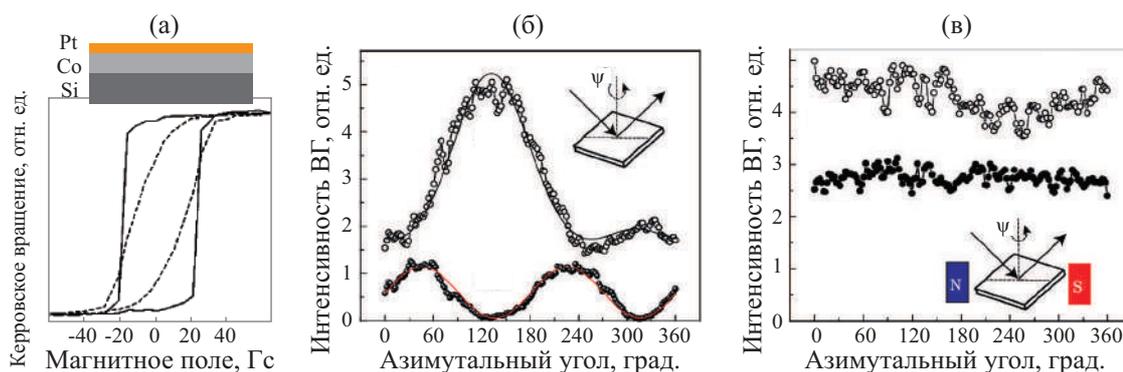
##### **Исследуемые структуры**

Магнитные структуры Co(20 нм)/Pt(3 нм) и Co(20 нм)/Ta(3 нм), Pt(3 нм)/Co(3 нм)/Pt(3 нм), Pt(3 нм)/Co(3 нм)/Ta(3 нм), Ta(3 нм)/Co(3 нм)/Ta(3 нм) были изготовлены в ИФМ РАН (г. Нижний Новгород) методом магнетронного напыления в атмосфере аргона. Напыление проводилось с отдельных мишеней Ta, Co, Pt при комнатной температуре на подложки из кристаллического кремния или покровного стекла. Контроль толщин осуществлялся с помощью предварительной калибровки пленок с параметрами, близкими к рабочим, методом малоугловой рентгеновской дифрактометрии. Выбор тяжелых металлов (Ta и Pt) обусловлен тем, что они имеют большие значения константы спин-орбитального взаимодействия, знак которых различен для тантала и платины, в связи с этим можно ожидать разный знак эффектов, возникающих за счет ВДМ.

Морфология поверхности и распределение намагниченности были исследованы методами атомно-силовой и магнитно-силовой микроскопии (рис. 2.9) в ИРЭ им. В.А. Котельникова (филиал в г. Фрязино). Измерения показали, что поверхность пленок ровная, причем трехслойные пленки имеют большую шероховатость, чем двухслойные. Латеральный размер “зёрен” на поверхности составляет около 25 нм для Ta/Co/Pt (рис. 2.9 (б))



**Рис. 2.9.** АСМ (а) и МСМ (б) изображения для пленок Ta/Co/Pt.



**Рис. 2.10.** Экспериментальные данные для пленки Co/Pt: (а) зависимости МО эффекта Керра от приложенного магнитного поля для двух азимутальных положений образца, смещенных друг относительно друга на  $90^\circ$ ; азимутальные зависимости интенсивности ВГ (б) в отсутствие и (в) при приложении к пленке статического меридионального магнитного поля; заполненные и незаполненные символы соответствуют *s*- и *p*-поляризации ВГ, соответственно.

и 18 нм для Co/Pt. Аналогичные значения были получены для остальных структур.

Измерения в магнитно-силовом микроскопе (МСМ) показали, что в отсутствие внешнего магнитного поля намагниченность всех структур, преимущественно, плоскостная, однако, также наблюдается нормальная к поверхности компонента намагниченности, величина которой неоднородна (рис. 2.9 (б)). Средний латеральный размер такой неоднородности составляет около 80 нм для пленки Co/Pt и около 60-70 нм для Ta/Co/Pt, т.е. намного больше, чем размер структурных неоднородностей поверхности, что может быть связано с нетривиальными состояниями намагниченности на интерфейсах вследствие ВДМ.

Характеризация магнитных свойств пленок проводилась методом МО эффекта Керра. Гистерезисы керровского вращения были измерены для двух взаимно перпендикулярных азимутальных положений бислойной

структуры (на рис. **2.10** (а) представлены результаты для пленки Co/Pt). Полученное существенное различие формы гистерезисов МО отклика указывает на наличие магнитной анизотропии исследуемых структур, причем коэрцитивность  $H_C$  исследованных бислойных пленок составляет около 15 и 20 Гс, а поле насыщения - менее 100 Гс. Аналогичные величины  $H_C$  и полей насыщения наблюдаются и в остальных пленках.

## Генерация ВГ

Эксперименты проводились на установке, представленной на рис. **1.21**, при длине волны  $p$ -поляризованного лазерного излучения 820 нм, в геометрии “на отражение”, угол падения  $\theta = 45^\circ$ .

На рис. **2.10** (б) приведены азимутальные зависимости интенсивности ВГ для пленки Co/Pt, измеренные после того, как к образцу было приложено, а затем снято статическое магнитное поле напряженностью около 1 кГс. Видно, что для  $p$ -поляризованной ВГ наблюдается один выраженный максимум в азимутальной ориентации  $\psi = 130^\circ$ , тогда как при детектировании  $s$ -поляризованной ВГ наблюдаются два пика, причем максимумы  $p$ - и  $s$ -поляризованной ВГ смещены друг относительно друга на  $90^\circ$ , что соответствует симметрии отклика ВГ в анизотропных структурах.

Далее пленка была помещена в статическое меридиональное поле напряженностью 1.5 кГс и измерены азимутальные зависимости интенсивности ВГ, не выключая поле. В таком случае наблюдается практически изотропный сигнал и  $p$ - и  $s$ -поляризованной ВГ (рис. **2.10** (в)).

На основе анализа полученных результатов можно сказать, что наблюдаемые зависимости  $I_{2\omega}(\psi)$  (рис. **2.10** (б)) указывают на существование оси легкого намагничивания в плоскости пленки при  $\psi = 40^\circ$  и  $220^\circ$ , вдоль которой формируется остаточная намагниченность после выключения внешнего магнитного поля. Результат похож на тот, что наблюдался в пленке Co/Au в параграфе 2.2. Разница в том, что в пленке Co/Au была создана намагниченность насыщения, в Co/Pt - остаточная. Но в обоих случаях направление намагниченности в образце вращалось в процессе измерения азимутальных зависимостей ВГ при вращении образца. Максимум  $p$ -поляризованной ВГ соответствует конструктивной интерференции кристаллографического и экваториального магнитоиндуцированного полей ВГ, а минимум - деструктивной. Различие интенсивности ВГ для

$\psi=130^\circ$  и  $\psi=310^\circ$  соответствует наблюдению экваториального МО эффекта Керра на частоте ВГ, вызванного остаточной намагниченностью структуры, а соответствующий магнитный контраст  $\rho_{2\omega} \approx 43\%$ . Анизотропная зависимость  $s$ -поляризованной ВГ определяется генерацией магнитоиндуцированной ВГ; максимумы  $I_{2\omega}$  наблюдаются для азимутальных положений структуры, при которых ось легкого намагничивания соответствует реализации меридиональной геометрии. Экспериментальные результаты на рис. **2.10** (б) были аппроксимированы функциями вида (2.10) и (2.9).

Таким образом, метод генерации ВГ в отсутствие внешнего магнитного поля позволяет определить положение оси легкого намагничивания в ферромагнитных пленках.

Зависимости  $I_{2\omega}(\psi)$  в присутствии постоянного магнитного поля практически изотропны (рис. **2.10** (в)). Поскольку в данном случае направление намагниченности, а, следовательно, магнитоиндуцированное поле ВГ зафиксировано, то близкая к изотропной зависимость  $I_{2\omega}(\psi)$  указывает на отсутствие кристаллографической анизотропии пленки, с точностью до погрешности эксперимента. Следует отметить также, что природа  $s$ -поляризованной компоненты ВГ является чисто магнитоиндуцированной.

Гистерезисы интенсивности магнитоиндуцированной ВГ измерялись в меридиональной геометрии приложения внешнего статического магнитного поля. Введем систему координат следующим образом: плоскость  $XOY$  параллельна пленке,  $XOZ$  - плоскость падения. Тогда магнитное поле ориентировано вдоль оси  $OX$ , возникают следующие нечетные по намагниченности компоненты тензора квадратичной восприимчивости:

$$\chi_{xyx}^{odd} = \chi_{xxy}^{odd}, \chi_{yxx}^{odd}, \chi_{yyy}^{odd}, \chi_{yzz}^{odd}, \chi_{zyz}^{odd} = \chi_{zzz}^{odd}. \quad (2.26)$$

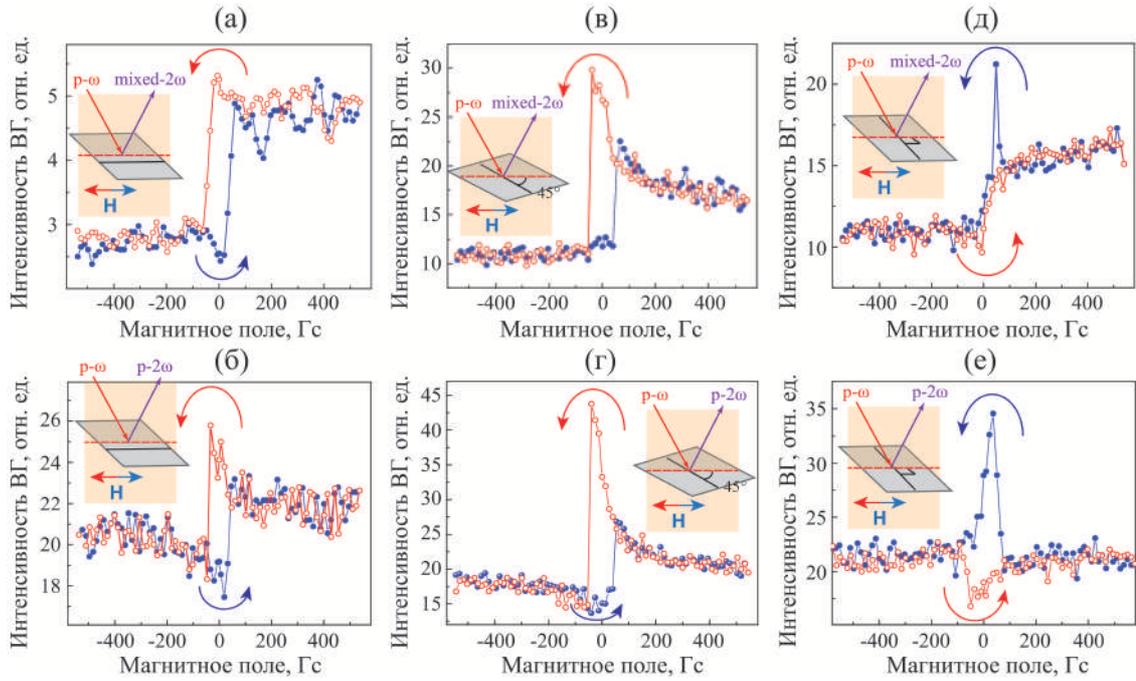
Таким образом, при  $p$ -поляризованном излучении накачки в генерации ВГ участвуют две магнитные нечетные компоненты -  $\chi_{yxx}^{odd}$  и  $\chi_{yzz}^{odd}$ , обе они дают вклад в генерацию только  $s$ -поляризованной ВГ. Проведено две серии измерений - при детектировании  $p$ -поляризованной ВГ и *mixed*-поляризованной, т.е. когда перед ФЭУ стоял анализатор, ориентированный на пропускание света, поляризованного под  $45^\circ$  к плоскости падения. Будем называть второй вариант “разрешенной геометрией”, так как при таком положении анализатора наблюдается и  $p$ -поляризованная кристаллогра-

фическая, и  $s$ —поляризованная магнитоиндуцированная волны ВГ. Детектирование  $p$ —поляризованного отклика будем называть “запрещенной геометрией”, т.к. в таком случае магнитоиндуцированных изменений интенсивности генерации ВГ от латерально симметричной пленки возникать не должно. Именно поэтому в “запрещенной геометрии” можно обнаружить малый вклад нетривиальных состояний намагниченности на внутренних интерфейсах пленок в наблюдаемый квадратичный нелинейно-оптический отклик структур. В “разрешенной геометрии” этот вклад незаметен на фоне более выраженных магнитоиндуцированных эффектов.

На рис. **2.11** приведены зависимости интенсивности ВГ от напряженности меридионального магнитного поля в “разрешенной” (а, в, д) и “запрещенной геометрии” (б, г, е) в структуре Co/Pt. Эксперименты выполнены при трех азимутальных положениях структуры - когда ось легкого намагничивания составляет с меридиональным полем угол  $\psi=0^\circ$  (а,б),  $\psi=45^\circ$  (в,г) и  $\psi=90^\circ$  (д,е). Видно, что во всех случаях наблюдается значительная магнитоиндуцированная модуляция квадратичного отклика.

В “разрешенной геометрии” намагничивание вдоль легкой оси (рис. **2.11** (а)) приводит к появлению практически прямоугольной петли гистерезиса, где поле насыщения составляет примерно 100 Гс, аналогичные значения получены для линейного МО эффекта Керра, характеризующего магнитные свойства объема пленки кобальта. При намагничивании структуры перпендикулярно легкой оси (рис. **2.11** (д)) гистерезис ВГ не наблюдается; однако также проявляется резкий (статистически повторяющийся) выброс интенсивности ВГ вблизи  $H = 0$ .

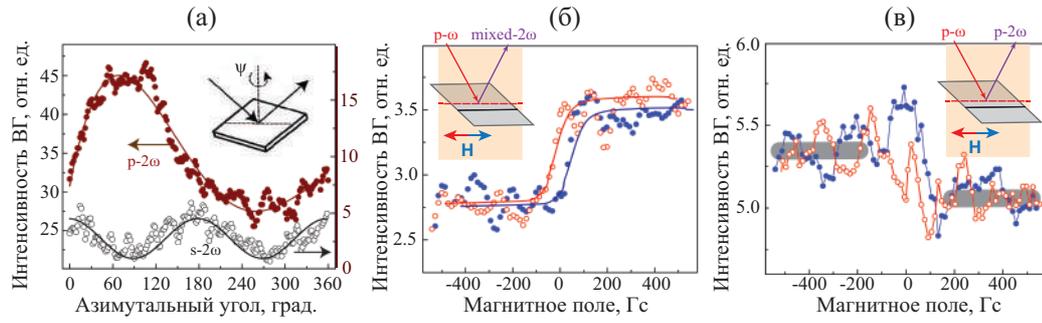
В “запрещенной геометрии” также наблюдается магнитоиндуцированная ВГ. Следует отметить две особенности гистерезисов в таком случае. Во-первых, это резкое изменение сигнала ВГ в окрестности нулевого значения внешнего магнитного поля. Поскольку, как было сказано выше, меридиональная намагниченность изотропной пленки не дает вклад в магнитоиндуцированный  $p$ —поляризованный отклик ВГ, то можно предположить, что такой эффект возникает при перемагничивании пленки кобальта путем разворота намагниченности в плоскости пленки с появлением экваториальной составляющей  $\mathbf{M}$  при  $\mathbf{H} \sim 0$ . Вероятно, направление поворота  $\mathbf{M}$  различно для двух ветвей гистерезиса, что приводит к разному знаку экваториального эффекта Керра на частоте ВГ. Во-вторых, при ориента-



**Рис. 2.11.** Зависимости интенсивности ВГ от напряженности магнитного поля в бислойной пленке Co/Pt в “разрешенной” (первая строка) и “запрещенной геометрии” (вторая строка); легкая ось намагничивания параллельна внешнему магнитному полю (а,б), ориентирована под  $45^\circ$  (в,г) и перпендикулярна ему (д,е), как показано на схемах.

ции структуры, когда ось легкого намагничивания НЕ перпендикулярна меридиональному магнитному полю (рис. 2.11 (б, г)) в насыщающем поле наблюдается ненулевой магнитный контраст. Его величина положительна и составляет около 5%. Можно предположить, что в этом случае в отлике ВГ проявляются особенности магнитных свойств интерфейсов в структуре, в том числе возникновение нетривиальных состояний намагниченности, характеризуемых градиентами намагниченности в направлении нормали к интерфейсам.

Для проверки данного предположения аналогичные эксперименты были выполнены для бислойной пленки Co/Ta (рис. 2.12). Как и для пленки Co/Pt, в отсутствие внешнего магнитного поля также наблюдалась анизотропия зависимости  $I_{2\omega}(\psi)$ , откуда выяснена ориентация оси легкого намагничивания при  $\psi = 160$  или  $340^\circ$ , при этом для структуры Co/Ta интенсивность ВГ была значительно ниже по сравнению с Co/Pt. Зависимости интенсивности *mixed*- и *p*-поляризованной ВГ от магнитного поля приведены на рис. 2.12 (б,в). Аналогично пленке Co/Pt, в “разрешенной геометрии” наблюдается гистерезис интенсивности ВГ, поле насыщения со-



**Рис. 2.12.** Экспериментальные результаты для бислойной пленки Co/Ta: (а) азимутальные зависимости интенсивности ВГ для  $p$ - (заполненные точки, левая ось) и  $s$ -поляризованной ВГ (выколотые точки, правая ось), измеренные без магнитного поля; (б,в) зависимости интенсивности ВГ от напряженности меридионального магнитного поля в “разрешенной” и “запрещенной геометрии”. Внешнее поле параллельно оси легкого намагничивания.

ставляет около 100 Гс. В “запрещенной геометрии” за пределами области перемагничивания наблюдается отрицательный магнитный контраст интенсивности ВГ, его величина - около 2%.

Таким образом, в структурах Co/Ta и Co/Pt в насыщающем меридиональном магнитном поле наблюдается магнитный контраст разного знака для  $p$ -поляризованной ВГ. Поскольку симметричные рассмотрения для латерально изотропной пленки (что подтверждается измерениями анизотропии ВГ в насыщающем магнитном поле) запрещают генерацию магнитоиндуцированной ВГ, то можно предположить, что такой эффект связан с наличием нетривиальных состояний намагниченности на границах раздела кобальта с Pt и Ta, обусловленных разным знаком ВДМ для этих интерфейсов [186].

Данное предположение требует дальнейших исследований бислойных пленок кобальта с различными немагнитными материалами.

#### 2.4.2. Латерально изотропные бислойные пленки кобальт/немагнитный материал

##### Исследуемые структуры

Чтобы избежать влияния плоскостной анизотропии на наблюдаемые эффекты нетривиальных состояний намагниченности в квадратичном нелинейно-оптическом отклике была изготовлена серия бислойных структур, состоящих из кобальта толщиной 20 нм и немагнитных материалов

толщиной 3 нм на стеклянных и кремниевых подложках. Для создания латерально изотропных пленок их напыление проводилось при равномерном латеральном вращении подложки с угловой скоростью  $10^3$  оборотов в секунду. В качестве немагнитного вещества выбраны Pt, Ta, W, Cu и MgO. Константа спин-орбитального взаимодействия  $A$ , определяющая величину ВДМ, пропорциональна квадрату атомного номера элемента, а ее знак определяется электронной конфигурацией. Выбор немагнитных веществ обусловлен тем, что тантал, вольфрам и медь имеют  $A > 0$ , платина -  $A < 0$ . При этом, для меди величина константы спин-орбитального взаимодействия примерно в 4-5 раз меньше, чем для Pt, Ta и W. Оксид магния - диэлектрик, следовательно, на границе с ним не возникает ВДМ. Таким образом, анализируя нелинейно-оптический отклик серии указанных структур, можно сделать выводы о состоянии интерфейсной намагниченности кобальта с немагнитными материалами.

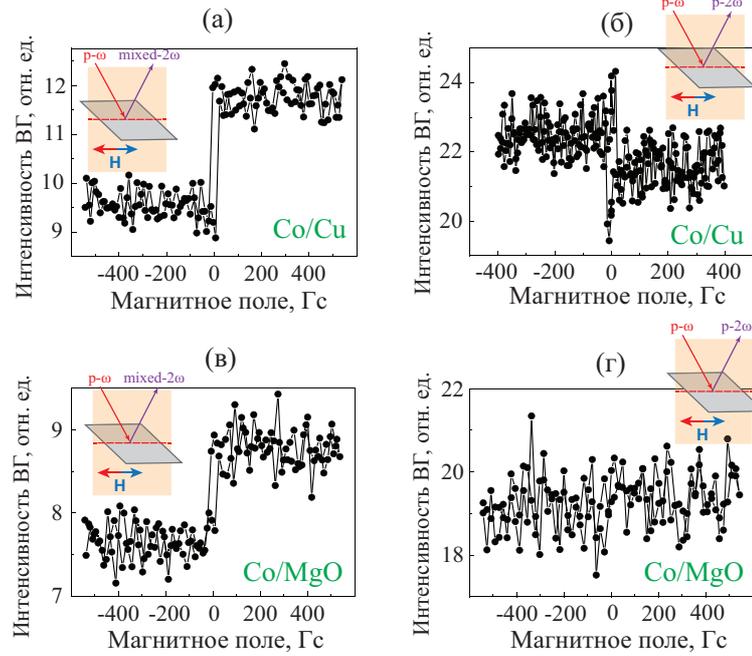
## Генерация ВГ

Нелинейно-оптические эксперименты были также проведены в “запрещенной” и “разрешенной геометрии” при приложении меридионального магнитного поля при  $p$ -поляризованном излучении накачки.

В структурах Co/Pt и Co/Ta результаты аналогичны представленным на рис. **2.11** (а,б) и **2.12** (б,в). Величина магнитного контраста для  $p$ -поляризованной ВГ  $|\rho_{2\omega}| = 6.0 \pm 1.5\%$  для Co/Pt и  $|\rho_{2\omega}| = 3.0 \pm 1.5\%$  для Co/Ta. В структуре Co/W величина магнитного контраста ВГ  $4.0 \pm 1.5\%$ , она того же знака, что и в Co/Ta.

Данные для Co/Cu представлены на рис. **2.13** (а,б). Видно, что в “разрешенной геометрии” есть магнитоиндуцированные эффекты в квадратичном нелинейно-оптическом отклике - наблюдается практически квадратная петля магнитного гистерезиса, коэрцитивность составляет примерно 15-20 Гс. В “запрещенной геометрии” вне области перемагничивания наблюдается магнитный контраст  $\rho_{2\omega} = -2.0 \pm 1.5\%$ , то есть его величина меньше, чем в структурах кобальта с более тяжелыми металлами. При этом следует отметить, что знак магнитного контраста для  $p$ -поляризованной ВГ и *mixed*-поляризованной ВГ оказывается разным.

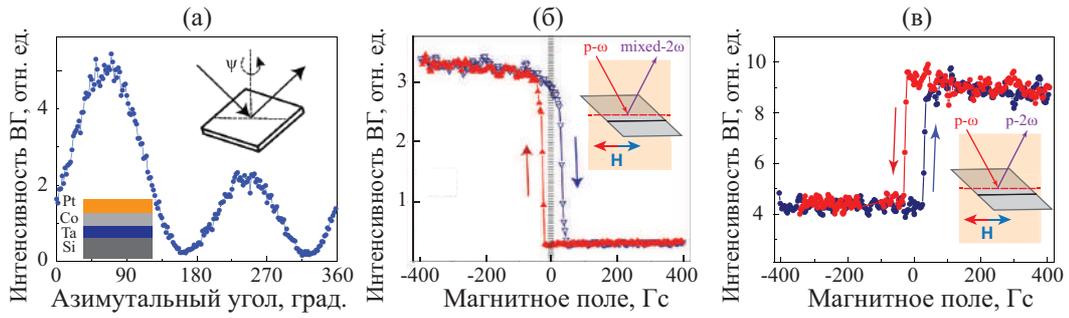
Теперь обратимся к рассмотрению данных для пленки Co/MgO (рис. **2.13**) (в,г). В “разрешенной” геометрии наблюдается практически квадрат-



**Рис. 2.13.** Зависимости интенсивности ВГ от напряженности меридионального магнитного поля в “разрешенной” (а,в) и “запрещенной” геометрии (б,г) для бислойных пленок Co/Cu и Co/MgO.

ная петля магнитного гистерезиса, коэрцитивность составляет около 15 Гс. В “запрещенной” же геометрии интенсивность ВГ в пределах погрешности эксперимента не зависит от приложенного магнитного поля. Величина магнитного контраста  $p$ -поляризованной ВГ в насыщающем магнитном поле составляет  $1 \pm 2\%$ . Аналогичные эксперименты были также проведены в структурах Co/Ag и Co/Au, в “запрещенной” геометрии магнитоиндуцированная ВГ отсутствует в пределах погрешности эксперимента.

Таким образом, экспериментальные исследования серии латерально изотропных пленок кобальта, граничащего с различными немагнитными веществами показали, что в “запрещенной” геометрии знак и величина магнитного контраста коррелирует со знаком константы спин-орбитального взаимодействия, что указывает на то, что природа возникновения  $p$ -поляризованной ВГ связана, вероятно, с градиентами намагниченности на границах раздела кобальта с тяжелыми металлами вследствие ВДМ и не связана с анизотропией. На интерфейсах Co/диэлектрик, Co/Ag и Co/Au нетривиальные состояния намагниченности не возникают.



**Рис. 2.14.** Экспериментальные результаты для структуры Ta/Co/Pt на кремниевой подложке: (а) анизотропия интенсивности  $p$ -поляризованной ВГ, измеренная без внешнего магнитного поля; (б,в) - гистерезисы интенсивности  $mixed$ - и  $p$ -поляризованной ВГ, соответственно, в меридиональной геометрии, ось легкого намагничивания параллельна внешнему магнитному полю.

### 2.4.3. Трехслойные пленки Ta/Co/Ta, Pt/Co/Pt и Ta/Co/Pt

Аналогично анизотропным бислойным структурам, сначала была измерена азимутальная анизотропия интенсивности ВГ, что позволило определить ориентацию оси легкого намагничивания в плоскости структуры и воспроизводимым образом позиционировать образец. На рис. 2.14 (а) представлены зависимости интенсивности ВГ в трехслойной Ta/Co/Pt пленке после того, как было приложено и затем выключено постоянное плоскостное поле напряженностью 1.5 кГс. Наблюдается анизотропия интенсивности  $p$ -поляризованного квадратичного оптического отклика, соответствующая наличию остаточной намагниченности вдоль легкой оси, ориентированной под углом  $\psi \sim \pm 45^\circ$ . При этом в присутствии постоянного насыщающего меридионального поля генерация ВГ близка к изотропной, что указывает на малость кристаллографической анизотропии пленок.

Аналогичные эксперименты были проведены во всех структурах, далее гистерезисы магнитоиндуцированной ВГ были измерены при ориентации пленок таким образом, что их легкая ось намагничивания была вдоль меридионального магнитного поля.

На рис. 2.14 (б,в) приведены зависимости интенсивности ВГ от напряженности меридионального магнитного поля  $\mathbf{H}$  для  $mixed$  и  $p$ -поляризованных составляющих ВГ в структуре Ta/Co/Pt. В “разрешенной геометрии” наблюдается гистерезис интенсивности ВГ с выходом на насыщение при  $|\mathbf{H}| \approx 70$  Гс, при этом величина  $|\rho_{2\omega}| \approx 70\%$ . В “запрещенной геометрии” наблюдается область перемагничивания  $|\mathbf{H}| < 70$  Гс, а также,

ненулевой магнитный контраст  $|\rho_{2\omega}| \approx 30 - 35\%$  в насыщающем поле.

В пленке Pt/Co/Pt в “разрешенной геометрии” наблюдается магнитный контраст  $|\rho_{2\omega}| \approx 15\%$ , а в “запрещенной” -  $|\rho_{2\omega}| \approx 3\%$ . В структуре Ta/Co/Ta эти значения  $|\rho_{2\omega}| \approx 10\%$  и  $\rho_{2\omega} \approx 0\%$ , соответственно. Таким образом, наибольшие магнитные эффекты демонстрирует структура Ta/Co/Pt.

## Обсуждение результатов

Проведенные исследования позволяют заключить, что наблюдение магнитоиндуцированных эффектов в квадратичном нелинейно-оптическом отклике в “запрещенной” геометрии связано с формированием неоднородной намагниченности на интерфейсах ферромагнитного (Co) и тяжелого (Pt, Ta, Cu) металлов, т.к. однородно намагниченная структура не дает генерации магнитоиндуцированной  $p$ -поляризованной ВГ. Неоднородное распределение намагниченности может быть связано с различными эффектами: (i) шероховатостями поликристаллических магнитных слоев, что соответствует данным МСМ (рис. 2.9); (ii) наличием переходных слоев на интерфейсах, связанных с частичной взаимной диффузией; (iii) градиентами намагниченности.

Коллегами из Саратовского Государственного Университета были проведены эксперименты по изучению бриллюэновского рассеяния в исследуемых мультислойных пленках и было выявлено наличие ВДМ на интерфейсах, которое индуцирует возникновение хиральных состояний намагниченности [A8]. Показано, что максимальная величина константы ВДМ наблюдается в асимметричной структуре Ta/Co/Pt. Данный вывод является ожидаемым, поскольку ВДМ в данном случае усиливается вследствие наличия двух противоположно-ориентированных интерфейсов ферромагнитного и тяжелого металлов с константами ВДМ разных знаков. Следует также отметить, что интенсивность немагнитного сигнала ВГ в асимметричной структуре Ta/Co/Pt примерно на порядок превышает интенсивность квадратичного оптического отклика от бислойных пленок и от симметричных структур Ta/Co/Ta и Pt/Co/Pt. Такой эффект ожидаем, т.к. вклады симметричных границ тонкой пленки в генерацию ВГ частично деструктивно интерферируют.

Состояние интерфейсной намагниченности отличается от “объемной”

намагниченности, что может быть причиной возникновения макроскопически неоднородного распределения  $\mathbf{M}$ . В таком случае необходимо рассматривать дополнительные вклады в квадратичную восприимчивость [15, 193]:

$$\begin{aligned} \chi_{ijk} = & \chi_{ijk}^{cr} + \chi_{ijkL}^{magn} M_L + \chi_{ijkLM}^{magn} M_L M_M + \\ & + \chi_{ijklM}^{magn\nabla} \nabla_l M_M + \chi_{ijkLmN}^{magn\nabla} M_L \nabla_m M_N + \chi_{ijklMnP}^{magn\nabla} \nabla_l M_M \nabla_n M_P, \end{aligned} \quad (2.27)$$

где  $\mathbf{M}$  - локальная намагниченность в структуре, а индексы, обозначенные заглавными буквами, соответствуют ее компонентам. Слагаемые в (2.27), содержащие верхний индекс  $\nabla$ , соответствуют вкладам неоднородной намагниченности в нелинейно-оптический отклик ВГ.

Вклады, характеризуемые тензорами  $\hat{\chi}$  с четным количеством полярных индексов (обозначенных строчными буквами в 2.27), разрешены по симметрии в centrosymmetric materials, к которым относятся Co, Pt, Ta и др.

Исследуемые пленки ориентированы так, что намагничивание происходит вдоль легкой оси, поэтому насыщающее внешнее поле индуцирует намагниченность “объема” кобальта вдоль оси  $OX$ . Слагаемыми с  $\nabla_x M_x$  и  $\nabla_x M_z$  можно пренебречь, т.к. основной вклад дает градиент намагниченности вдоль нормали  $\nabla_z M_x$  и  $\nabla_z M_z$ . По-видимому, основной вклад в генерацию магнитоиндуцированной  $p$ -поляризованной ВГ дает предпоследнее слагаемое в (2.27), а именно, члены вида  $M_z \nabla_z M_z$  и  $M_x \nabla_z M_z$ . Градиенты  $z$ -компоненты намагниченности могут возникнуть в рассматриваемой структуре за счет индуцированных ВДМ нетривиальных состояний намагниченности (см. выражения (2.24) и (2.25)).

## Выводы по Главе 2

Анализируя полученные результаты, можно сделать следующие выводы:

1. Намагниченность структурно изотропной пленки приводит к возникновению анизотропии генерации оптической второй гармоники.

2. В трёхслойных магнитных структурах ферромагнетик/немагнитный материал/ферромагнетик показано, что при взаимодействии с пленкой циркулярно поляризованного излучения вклады квадратичных и линейных по намагниченности компонент нелинейной

поляризации в генерацию ВГ сравнимы по величине. В квадратичном оптическом отклике обнаружена компонента, пропорциональная произведению намагниченности двух ферромагнитных слоев, что может быть связано с их взаимодействием. Относительная величина соответствующей нелинейной поляризации достигает 23% от немагнитной составляющей.

3. В мультислойных пленках на основе кобальта и тяжелых металлов наблюдается нечетный по намагниченности интенсивностный эффект в нелинейно-оптическом отклике, запрещенный по симметрии для однородно намагниченных структур. Максимальная величина указанного эффекта наблюдается в асимметричной пленке Pt/Co/Ta, превышает 30% при намагничивании вдоль легкой оси и связана, по-видимому, с сильными градиентами нормальной составляющей намагниченности, обусловленными взаимодействием Дзялошинского-Мория. Показано также, что в бислойных пленках кобальта с тяжелыми металлами знак “запрещенного” по симметрии магнитного эффекта коррелирует с знаком константы спин-орбитального взаимодействия.

*Результаты, представленные в Главе 2, опубликованы в работах [A1, A9, A10, A26, A28, A33-A35, A43].*

---

## ГЛАВА 3

### Генерация второй гармоники в ферромагнитных наноструктурированных пленках

---

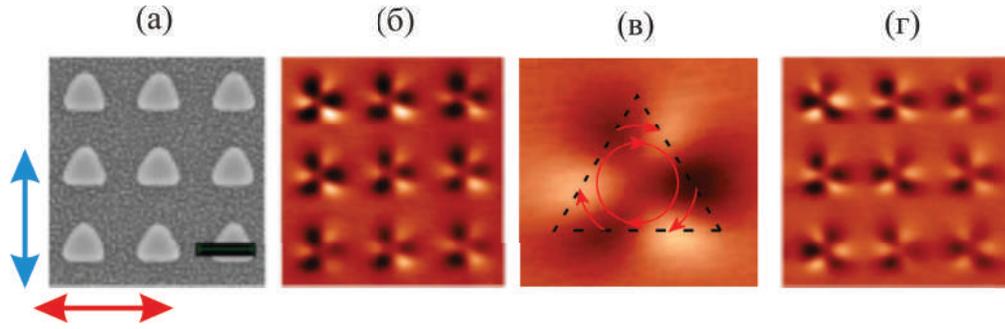
Микро- и наноструктурированные магнитные среды являются предметом активных исследований в последние годы, т.к. они могут найти широкое применение в спинтронике, магнитооптической сенсорике и миниатюрных элементах памяти и логики в системах хранения и обработки информации [194, 195, 196, 197, 198, 199]. Дизайн наноструктур обуславливает их магнитные и магнитооптические свойства, при этом могут возникать эффекты, ненаблюдаемые в объемных ферромагнетиках и сплошных тонких пленках.

В этой главе представлены результаты исследования вихревой намагниченности в упорядоченных массивах кобальтовых наночастиц треугольной формы. Выбор образцов основан на том, что в них возможно “переключение” направления вихрей при приложении внешнего статического магнитного поля. В качестве инвертированной структуры выбрана наноперфорированная пленка пермаллоя. Изучено влияние возникновения тороидного момента и симметрии массива магнитных наночастиц на магнитный нелинейно-оптический отклик структуры, предложено феноменологическое обсуждение наблюдаемых явлений.

#### § 3.1. Структуры с вихревым распределением намагниченности

##### 3.1.1. Изучаемые образцы

Структура представляла собой двумерную квадратную решетку кобальтовых частиц треугольной формы на кварцевой подложке (рис. 3.1 (а)). Образцы были изготовлены в Институте физики микроструктур РАН (г. Нижний Новгород) методом электронно-лучевой литографии и техники “lift-off”, подробное описание процесса изготовления приведено в работе [144]. Толщина магнитных наноструктур 30 нм, длина стороны треугольника 0.7 мкм, период решетки 1.4 мкм. Нецентросимметричная форма на-

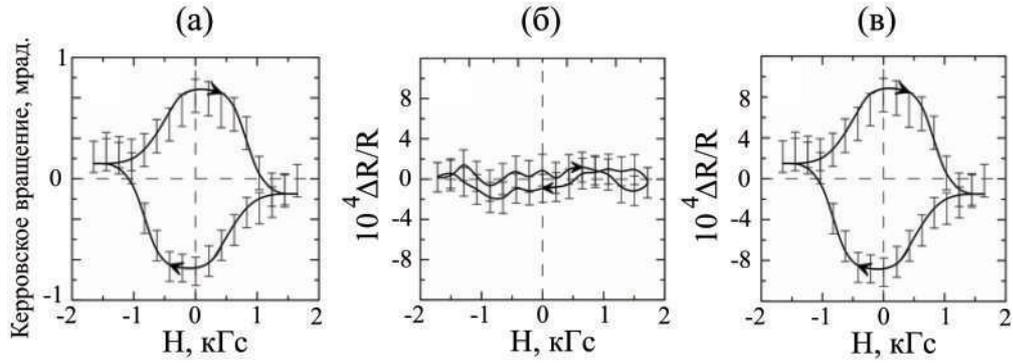


**Рис. 3.1.** Изображения образца массива кобальтовых треугольных частиц: (а) в сканирующем электронном микроскопе (длина указанного отрезка 1 мкм); (б), (в) в магнитно-силовом микроскопе после намагничивания вдоль красной стрелки; (г) в магнитно-силовом микроскопе после намагничивания вдоль синей стрелки.

ночастиц, наряду с их упорядоченным расположением на подложке, приводят к тому, что после приложения внешнего магнитного поля вдоль основания треугольника (вдоль красной стрелки на рисунке **3.1** (а)) формируются вихри намагниченности, как видно на изображении структуры в магнитно-силовом микроскопе (рис. **3.1** (б)). При этом, 90-100% вихрей закручены одинаково. Однако при намагничивании вдоль высоты треугольников (вдоль синей стрелки на рис. **3.1** (а)) в частицах возникают вихри намагниченности как по часовой стрелке (CW), так и в противоположном направлении (CCW), так что средний по образцу тороидный момент получается равным нулю (рис. **3.1** (в)). Таким образом, влияние возникновения вихревой намагниченности на оптический и нелинейно-оптический отклик образца можно выделить, используя разные геометрии эксперимента.

### 3.1.2. Линейный магнитооптический эффект Керра

Коллегами из Института микроструктур РАН (г. Нижний Новгород) было проведено исследование линейного магнитооптического эффекта Керра в образцах массивов кобальтовых треугольников. На рисунке **3.2** (а) изображен гистерезис величины угла поворота плоскости поляризации зеркально отраженного света в меридиональной геометрии. Это типичная восьмеркообразная петля гистерезиса для структур с вихревой намагниченностью. При насыщающих полях, больших 1 кГс, частицы намагничены однородно, при уменьшении магнитного поля возникают вихри намагниченности. После приложения насыщающего поля в противоположную сторону формируются вихри с другим направлением “закручивания”.



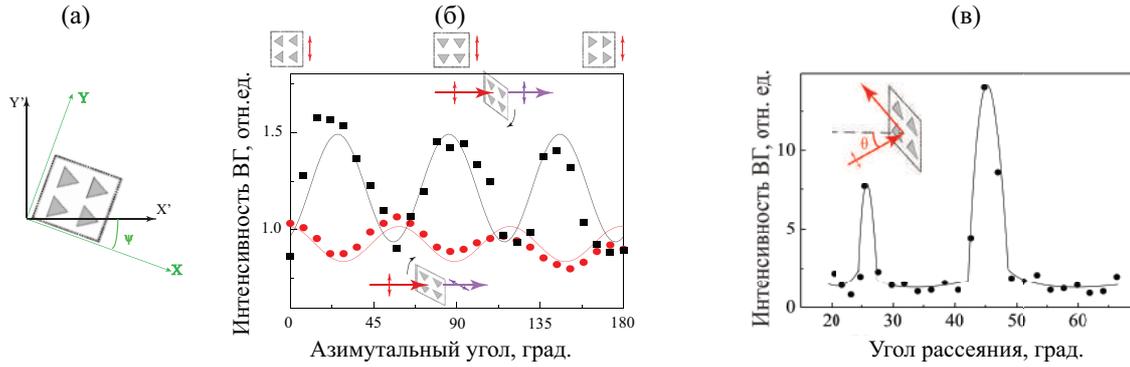
**Рис. 3.2.** Зависимости меридионального МО эффекта Керра (а) и магнитоиндуцированного относительного изменения коэффициента отражения в первом дифракционном максимуме (б, в) от приложенного магнитного поля; (а), (в) - намагничивание вдоль оснований треугольников, (б) - намагничивание вдоль высот треугольников [200]. Угол падения  $\theta = 5^\circ$ .

Если в магнитооптическом отклике есть составляющие, зависящие от направления вихря, они должны проявиться при изучении всего массива, т.е. при усреднении тороидного момента вихрей намагниченности по площади поперечного сечения пучка света. Кроме того, поскольку направление вихря зависит от направления намагниченности насыщения частиц, предшествующей формированию вихря, эти составляющие должны быть различны на разных ветвях петли гистерезиса и иметь максимальную разницу при малом внешнем поле. Геометрия, где наглядно демонстрируется вклад вихревой намагниченности в линейных МО отклик, была предложена в работе [200]. Измеряемой величиной является магнитоиндуцированное относительное изменение интенсивности коэффициента отражения в направлении первого дифракционного максимума. При намагничивании вдоль высот треугольников макроскопической вихревой намагниченности не наблюдается, так как энергии образования (а, следовательно, и вероятности возникновения) магнитных вихрей, закрученных против и по часовой стрелке, одинаковы (рис. 3.2 (б)). При намагничивании вдоль оснований треугольников 3.2 (в) разные ветви гистерезиса соответствуют CW и CCW направлениям вихрей, поэтому наблюдается максимальная разница сигнала на ветвях гистерезиса в малом магнитном поле. Таким образом, меняя направление внешнего магнитного поля, мы можем синхронно управлять направлением закручивания магнитных вихрей.

### 3.1.3. Генерация второй гармоники. Экспериментальные результаты

Для анализа вклада тороидного момента намагниченности в нелинейно-оптический отклик необходимо сначала выявить механизм генерации немагнитной второй гармоники. Измерения проводились на установке, представленной на рис. 1.21, в геометрии “на просвет”, излучение накачки на длине волны 780 нм падало на образец под нормалью к поверхности. До эксперимента к образцу было приложено и выключено магнитное поле вдоль высоты треугольников, т.е. образец был размагничен, причем и средняя намагниченность, и средний тороидный момент были равны нулю, что позволило выявить чисто кристаллографический квадратичный отклик. Если учесть, что диаметр сфокусированного зондирующего луча около 50 мкм, а период решетки 1.4 мкм, то можно оценить, что облучается более 1000 частиц. На рисунке 3.3 (б) изображена азимутальная зависимость интенсивности генерации ВГ для линейно поляризованного излучения накачки, т.е. плоскости поляризации падающего излучения и второй гармоники были параллельны (черные точки) или взаимно перпендикулярны (красные точки). Нулевой азимутальный угол соответствует положению образца, когда плоскость поляризации падающей волны параллельна сторонам треугольников. Число азимутальных максимумов интенсивности соответствует симметрии  $3m$ , следовательно, нелинейно-оптический отклик структуры обусловлен, преимущественно, симметрией одной частицы, а не симметрией их квадратного массива расположения. Это разумно, если принять во внимание, что размер одной частицы сравним с длиной волны падающего излучения. Следует подчеркнуть, что экспериментальные графики для параллельных и скрещенных поляризаций излучения накачки и ВГ сдвинуты друг относительно друга по оси абсцисс, что обусловлено симметрией структуры. Изотропный фон, вероятно, соответствует гиперрелеевскому рассеянию на частоте ВГ в пространственно неоднородной структуре.

Для анализа механизма квадратичного отклика была измерена индикатриса рассеяния ВГ (рис. 3.3 (в)), угол падения составлял  $45^\circ$ . На ней четко виден зеркальный максимум (соответствующий углу рассеяния  $45^\circ$ ), ширина которого соответствует угловой апертуре системы регистрации. Также наблюдается дифракционный максимум под углом примерно

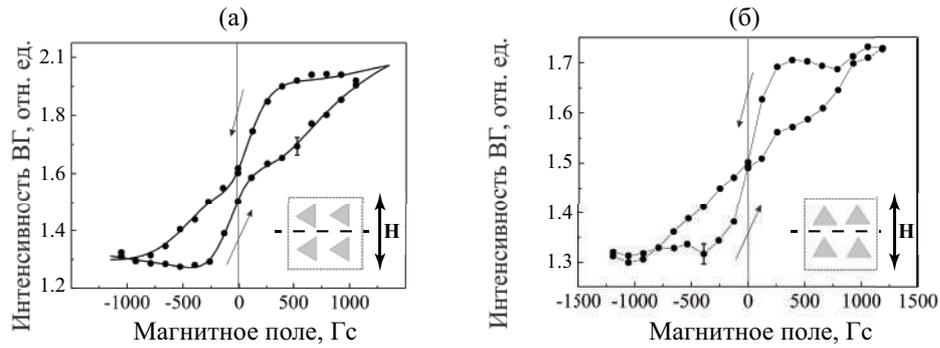


**Рис. 3.3.** (а) Ориентация осей лабораторной системы отсчета (черные оси) и системы отсчета, связанной с образцом (зеленые оси). (б) Азимутальная анизотропия линейно поляризованной прошедшей ВГ, измеренной при нормальном падении зондирующего излучения: плоскость поляризации линейно поляризованного излучения накачки параллельна (черные точки, верхняя схема) или перпендикулярна (красные точки, нижняя схема) плоскости поляризации ВГ, сплошные линии - результат аппроксимации экспериментальных данных функциями  $I_{2\omega} \propto a + |b \sin 3\psi|^2$  и  $I_{2\omega} \propto a + |b \cos 3\psi|^2$ , соответственно ( $\psi$  - азимутальный угол, соответствующие азимутальные положения образца относительно плоскости поляризации излучения накачки показаны над панелью). (в) Индикатриса рассеяния ВГ при р-поляризованном излучении накачки, геометрия “на отражение”,  $\theta = 45^\circ$ . Угол рассеяния отсчитывается от нормали к поверхности.

$26^\circ$ . Дифракция возникает вследствие периодического расположения кобальтовых частиц на подложке. Таким образом, генерация ВГ является преимущественно когерентной, изотропный фон соответствует гиперрелевскому рассеянию.

Магнитный нелинейно-оптический отклик был исследован в геометрии экваториального магнитооптического эффекта Керра, регистрировалось только р-поляризованное излучение ВГ, зеркально отраженное от образца (угловая апертура системы регистрации - около  $5^\circ$ ). Угол падения составлял  $\theta = 40^\circ$ . Для выделения вклада вихревой намагниченности в генерацию магнитоиндуцированной ВГ эксперименты были проведены для двух положений образца - когда магнитное поле направлено вдоль оснований и вдоль высот треугольников.

На рисунке 3.4 (а) представлена зависимость интенсивности генерации ВГ от приложенного магнитного поля вдоль оснований треугольников при р-поляризованном излучении накачки. Такая геометрия приложения магнитного поля приводит к возникновению макроскопической вихревой намагниченности, которая максимальна при  $H=0$ . Форма петли гистерези-

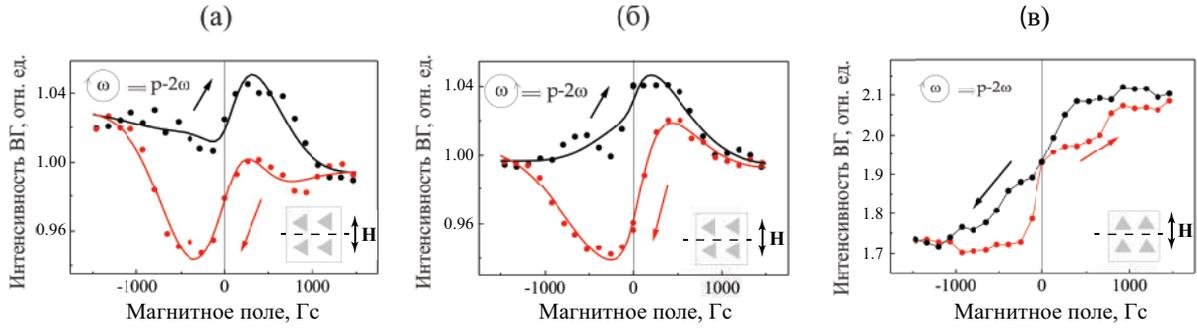


**Рис. 3.4.** Гистерезис интенсивности ВГ при  $p$ -поляризованном зондирующем излучении. Намагничивание вдоль основания (а) и вдоль высоты (б) треугольников. Стрелками показаны направления обхода. Сплошная кривая на рисунке (а) - результат аппроксимации экспериментальной зависимости функцией вида (3.3). На схемах эксперимента плоскость падения ориентирована перпендикулярно плоскости рисунка и вдоль пунктирной линии.

са похожа на соответствующую зависимость линейного магнитооптического эффекта Керра (рис. 3.2 (а)) для исследуемого образца и имеет очень малую коэрцитивность. При намагничивании вдоль высот треугольников (рис. 3.4 (б)) форма кривой аналогична, однако стоит отметить полное совпадение ветвей петли при  $H=0$ . Таким образом, исследование магнитоиндуцированной ВГ при линейно поляризованном излучении накачки демонстрирует низкую чувствительность к упорядоченности вихрей в структуре (как и линейный МО эффект Керра). В такой геометрии  $I_{2\omega}$  пропорциональна средней (по площади поперечного сечения лазерного луча) экваториальной намагниченности в структуре, что проявляется в форме гистерезиса интенсивности магнитоиндуцированной ВГ - в области малых значений  $H$  возникает вихревая намагниченность с нулевой средней намагниченностью, а при увеличении внешнего магнитного поля наблюдается однородная намагниченность.

Относительную величину магнитоиндуцированного вклада в генерацию ВГ можно оценить, вычислив магнитный контраст ВГ при противоположных значениях насыщающего магнитного поля  $\pm 1.2$  кГс по формуле (1.43):  $\rho_{2\omega} \approx 10\%$ . Одинаковые значения  $\rho_{2\omega}$  при разных направлениях намагничивания относительно структуры получаются потому, что при насыщающем магнитном поле вклад в квадратичный отклик дает средняя, а не вихревая намагниченность.

Аналогичные эксперименты были проведены с использованием цир-

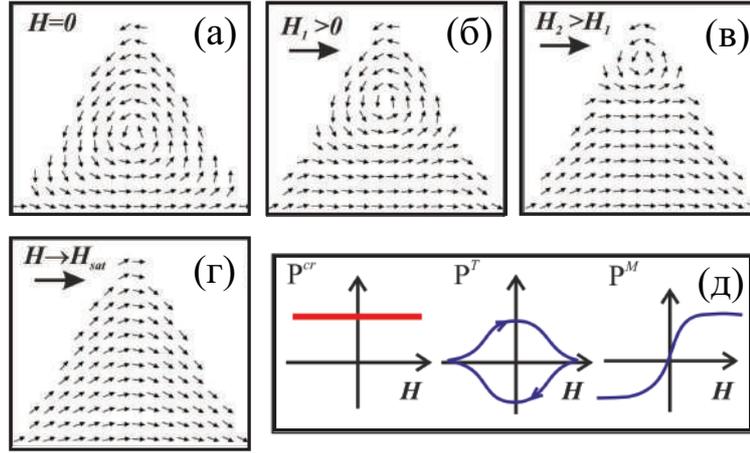


**Рис. 3.5.** Гистерезис интенсивности ВГ при (а) *правой* и (б) *левой* циркулярной поляризации зондирующего излучения, когда магнитное поле приложено вдоль основания треугольников. Сплошные линии - результат аппроксимации графиков функцией вида (3.3), параметры аппроксимации приведены в таблице 3.1. (в) Гистерезис ВГ при правой циркулярной поляризации зондирующего излучения, магнитное поле направлено вдоль высот треугольников. На схемах плоскость падения ориентирована перпендикулярно плоскости рисунка и вдоль пунктирной линии.

кулярно поляризованного зондирующего излучения (рис. 3.5 (а,б)). Форма петли гистерезиса интенсивности ВГ при намагничивании вдоль сторон треугольников существенно отличается от наблюдавшихся в случае линейно поляризованного излучения накачки. Главное различие заключается в том, что при нулевом внешнем магнитном поле петля магнитного гистерезиса интенсивности ВГ имеет ненулевую ширину, что может быть отражением вклада тороидного момента в генерацию ВГ, достигающего своего максимального значения при  $H = 0$ . Интенсивность ВГ при нулевом внешнем поле (и, следовательно, нулевой средней намагниченности) различна для разных ветвей гистерезиса, т.е. когда направления вихрей дают максимальный по величине и противоположный по знаку макроскопический тороидный момент. Для проверки этой гипотезы аналогичная зависимость была измерена при намагничивании образца вдоль высоты треугольников, когда макроскопическая вихревая намагниченность отсутствует (рис. 3.5 (в)). Обнаружено, что в таком случае петля гистерезиса качественно похожа на ту, что получена для линейно поляризованного излучения накачки.

#### 3.1.4. Микромагнитное моделирование

Микромагнитное моделирование было выполнено в программном пакете “Object Oriented Micromagnetic Framework” путем численного решения



**Рис. 3.6.** (а-г) Результат микромагнитного моделирования пространственного распределения магнитных диполей (стрелки) в изолированной треугольной частице при различных значениях внешнего магнитного поля; (д) схематичный вид зависимостей  $\mathbf{P}^{cr}$ ,  $\mathbf{P}^M$  и  $\mathbf{P}^T$  от  $H$ .

уравнения Ландау-Лифшица [145]:

$$\frac{\partial \mathbf{M}}{\partial t} = -\gamma(\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff}) - \frac{\gamma\alpha}{M_s}[\mathbf{M} \times (\mathbf{M} \times \mathbf{H}_{eff})], \quad (3.1)$$

где  $\mathbf{M}$  - намагниченность,  $\gamma$  - гиромагнитное отношение,  $\alpha$  - безразмерный параметр затухания,  $M_s$  - намагниченность материала при насыщении. Эффективное поле  $H_{eff} = -\frac{\delta E}{\delta \mathbf{M}}$  - вариационная производная полной энергии по намагниченности. В программном пакете задавалась геометрия исследуемой структуры, выбирался материал (кобальт), диапазон изменения и шаг величины внешнего магнитного поля  $\mathbf{H}$ . На основе численного решения уравнения (3.1) методом конечных разностей программа строит гистерезисы проекций намагниченности на оси координат и картины равновесного распределения намагниченности на каждом шаге по  $\mathbf{H}$  [201].

Результаты микромагнитного моделирования изолированной треугольной частицы при различных значениях внешнего магнитного поля представлены на рис. 3.6 (а-г). Вихревая намагниченность формируется при нулевом внешнем магнитном поле (рис. 3.6 (а)), при этом центр вихря совпадает с геометрическим центром частицы. На рисунке 3.6 (г) показано пространственное распределение намагниченности  $\mathbf{M}$  при приложении внешнего магнитного поля, близкого по величине к насыщающему. Видно, что при этом вихревая структура разрушается и средняя намагниченность  $\langle \mathbf{M} \rangle \neq 0$ . Рисунки 3.6 (б, в) соответствуют промежуточной ситуации.

### 3.1.5. Феноменологическое описание генерации ВГ в структурах с вихревой намагниченностью

При описании наблюдаемых явлений следует учесть, что генерация ВГ в исследуемом образце определяется, преимущественно, откликом каждой треугольной частицы.

Для треугольной частицы с симметрией  $3m$  кристаллографическая часть  $\hat{\chi}^{cr}$  имеет следующие ненулевые электродипольные компоненты, играющие роль в формировании отклика на частоте ВГ (в системе координат, связанной с образцом, которая показана зеленым цветом на рис. 3.3 (а)) [202]:

$$\begin{aligned}\chi_{xxz}^{cr} &= \chi_{xzx}^{cr} = \chi_{yzy}^{cr} = \chi_{yyz}^{cr}, \\ \chi_{xxx}^{cr} &= -\chi_{xzz}^{cr} = -\chi_{yxy}^{cr} = -\chi_{yyx}^{cr}, \\ \chi_{zxx}^{cr} &= \chi_{zyy}^{cr}, \chi_{zzz}^{cr}.\end{aligned}\quad (3.2)$$

В геометрии “на просвет”, когда зондирующее излучение падает перпендикулярно поверхности, поляризовано в плоскости  $YOZ$ , для компонент электрического поля накачки имеем:  $E_x = E_z = 0$ ,  $E_y = E_0$ . Тогда для ВГ, поляризованной в плоскости  $YOZ$  (параллельные поляризации излучения накачки и ВГ), дает вклад единственная компонента тензора квадратичной восприимчивости в лабораторной системе отсчета  $\chi_{yyy}^{cr'}$ . Применив преобразования координат (1.10) и (1.13) при переходе от системы отсчета, связанной с образцом, в лабораторную и с учетом равенств (3.2), получим:  $\chi_{yyy}^{cr'} = \chi_{xxx}^{cr} \sin 3\psi$ . Тогда интенсивность немагнитной когерентной ВГ в указанной геометрии эксперимента:  $I_{2\omega}^{cr} \propto |\chi_{yyy}^{cr'}|^2 \propto |\chi_{xxx}^{cr} \sin 3\psi|^2 E_0^2$ . Однако, как видно из индикатрисы рассеяния (3.3 (в)), необходимо также учитывать некогерентную изотропную составляющую. Поэтому черные точки на рис. 3.3 (а) аппроксимированы функцией вида  $a + |\chi_{xxx}^{cr} \sin 3\psi|^2$ .

В генерацию ВГ, поляризованной в плоскости  $XOZ$  (скрещенные поляризации излучения накачки и ВГ), дает вклад единственная компонента тензора квадратичной восприимчивости  $\chi_{xyy}^{cr'}$ . Применив преобразования координат (1.10) и (1.13) и с учетом равенств (3.2), получим:  $\chi_{xyy}^{cr'} = -\chi_{xxx}^{cr} \cos 3\psi$ . Тогда интенсивность немагнитной когерентной ВГ в указанной геометрии эксперимента:  $I_{2\omega}^{cr} \propto |\chi_{xyy}^{cr'}|^2 \propto |\chi_{xxx}^{cr} \cos 3\psi|^2 E_0^2$ . С учетом изотропного фона, красные точки на рис. 3.3 (а) аппроксимированы функцией вида  $a + |\chi_{xxx}^{cr} \cos 3\psi|^2$ .

Теперь рассмотрим магнитоиндуцированный вклад в генерацию ВГ.

Поляризации на частоте ВГ, индуцированная средней намагниченностью, может быть записана как  $\mathbf{P}^M = \hat{\chi}^{(2)M} \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{M}$  [14]. Здесь и далее для сокращения громоздких формул будем обозначать  $\mathbf{M}$  среднюю намагниченность наночастиц  $\langle \mathbf{M} \rangle$  (усреднение проводится по объему частицы). Аналогично, часть нелинейной поляризации, индуцированная тороидным моментом намагниченности  $\mathbf{T} = \int [\mathbf{r} \times \mathbf{M}] dV$ , может быть записана как  $\mathbf{P}^T = \hat{\chi}^{(2)T} \mathbf{E}(\omega) \mathbf{E}(\omega) \mathbf{T}$ . Здесь  $\hat{\chi}^{(2)T}$  и  $\hat{\chi}^{(2)M}$  обозначают соответствующие вклады в квадратичную восприимчивость. Таким образом, интенсивность генерации второй гармоники от одной частицы может быть представлена как функция внешнего магнитного поля  $H$ :

$$I_{2\omega}(H) \propto |\mathbf{E}_{2\omega}(H)|^2 \propto |\mathbf{P}(H)|^2 = |\mathbf{P}^{cr} + \mathbf{P}^M(H) + \mathbf{P}^T(H)|^2, \quad (3.3)$$

где  $\mathbf{P}^{cr}$  - немагнитная (кристаллографическая) часть нелинейной поляризации. Три слагаемых в (3.3) описывают вклады с разной зависимостью от приложенного магнитного поля. Первое - не зависит, второе  $\mathbf{P}^M(H)$  нечетно по  $H$  и обращается в ноль при  $H = 0$ . Третье слагаемое симметрично относительно  $H = 0$  и имеет противоположные знаки на разных ветвях петли гистерезиса. Зависимости каждого из вкладов от приложенного магнитного поля схематично показаны на рис. 3.6 (д).

Следует подчеркнуть, что  $\mathbf{P}^T$  и  $\mathbf{P}^M$  отражают разные физические процессы и зависимости от внешнего магнитного поля.  $\mathbf{T}$  - вектор, ориентированный вдоль нормали к поверхности. Тороидный момент достигает максимума при выключенном внешнем поле, обращается в ноль в насыщающем поле и меняет знак при смене направления вихрей. С другой стороны,  $\mathbf{P}^M$  индуцирована аксиальным тензором, у которого другая симметрия. В частности, смена знака внешнего поля приводит к смене направления намагниченности и знака  $\mathbf{P}^M$ . Этот вклад приводит к наблюдению магнитного нелинейно-оптического эффекта Керра и наиболее существенно проявляется в насыщающих полях.

Компоненты тензора  $\hat{\chi}^{(2)}$  определяют зависимость интенсивности ВГ от приложенного магнитного поля для выбранной комбинации поляризаций излучения накачки и ВГ. Для  $i$ -ой проекции нелинейной поляризации  $\mathbf{P}$ :

$$P_i = \sum_{jk} \chi_{ijk}^{cr} E_j E_k + e^{i\varphi_1} \sum_{jkl} \chi_{ijkL}^T E_j E_k T_L + e^{i\varphi_2} \sum_{jkl} \chi_{ijkL}^M E_j E_k M_L, \quad (3.4)$$

где  $\varphi_1$  и  $\varphi_2$  - относительные фазовые сдвиги различных вкладов.

Зафиксируем азимутальный угол  $\psi = 0$ , тогда системы координат  $XYZ$  и  $X'Y'Z'$  совпадают, поэтому в нижеследующих выкладках будем использовать  $XYZ$ . Обратимся к описанию отраженной магнитоиндуцированной ВГ. Пусть внешнее магнитное поле приложено вдоль основания треугольников,  $M \parallel OY$  (система координат указана на рис. 3.3 (а)), тогда наличие средней однородной намагниченности понижает симметрию структуры от  $\mathcal{3}m$  до  $m$ , ненулевыми становятся следующие магнитоиндуцированные компоненты тензора квадратичной восприимчивости [128] (последний нижний индекс  $Y$ , обозначающий направление намагниченности, опустим для краткости):

$$\chi_{xzz}^M, \chi_{zxx}^M = \chi_{zzx}^M. \quad (3.5)$$

Теперь обсудим симметрию ВГ, индуцированную тороидным моментом. Как правило, в системах, в которых реализуется вихревое состояние намагниченности, плоскость вихря находится в плоскости поверхности нанoelementa, так что тороидный момент направлен вдоль нормали к поверхности структуры,  $\mathbf{T} \parallel OZ$  [149, 203]. Поскольку материал (кобальт) centrosymmetric, то генерация ВГ возникает преимущественно на поверхности, что обусловлено снятием симметрии вдоль нормали. Следовательно, тороидный момент индуцирует те же компоненты тензора квадратичной восприимчивости, что присутствуют из-за наличия поверхности. Тороидным моментом, направленным вдоль оси  $OZ$ , индуцированы следующие компоненты квадратичной восприимчивости (последний нижний индекс  $Z$  опустим для краткости):

$$\begin{aligned} \chi_{yyz}^T &= \chi_{yzy}^T = \chi_{xzx}^T = \chi_{xxz}^T, \\ \chi_{xxx}^T &= -\chi_{xyy}^T = -\chi_{yxy}^T = -\chi_{yyx}^T, \\ \chi_{zxx}^T &= \chi_{zyy}^T, \chi_{zzz}^T. \end{aligned} \quad (3.6)$$

Указанные в (3.6) компоненты зависят от  $\mathbf{T}$ , а именно, равны нулю в однородно намагниченных частицах и меняют знак при смене направления вихря. Отметим также, что в силу симметрии  $\mathbf{T}$  к инверсии времени, в прозрачной среде сдвиг фаз между кристаллографическим вкладом в ВГ и вкладом тороидного момента равен  $\pi/2$ .

Если падающая волна  $p$ -поляризована, то компоненты электрическо-

го поля накачки  $E_x = E_0 \cos\theta$ ,  $E_y = 0$ ,  $E_z = E_0 \sin\theta$ . Тогда для компонент поля на частоте ВГ имеем:

$$\begin{aligned}
E_{2\omega,x}^{cr} &= (\chi_{xxx}^{cr} \sin 2\theta + \chi_{xxx}^{cr} \cos^2\theta) E_0^2, \\
E_{2\omega,z}^{cr} &= (\chi_{zxx}^{cr} \cos^2\theta + \chi_{zzz}^{cr} \sin^2\theta) E_0^2, \\
E_{2\omega,x}^M &= \chi_{xzz}^M \sin^2\theta, \\
E_{2\omega,z}^M &= \chi_{zxx}^M \sin 2\theta E_0^2, \\
E_{2\omega,x}^T &= (\chi_{xxx}^T \sin 2\theta + \chi_{xxx}^T \cos^2\theta) E_0^2, \\
E_{2\omega,z}^T &= (\chi_{zxx}^T \cos^2\theta + \chi_{zzz}^T \sin^2\theta) E_0^2.
\end{aligned} \tag{3.7}$$

Для каждого вклада из (3.4) для  $p$ -поляризованной отраженной волны ВГ при  $p$ -поляризованном излучении накачки можно записать:  $E_{pp}^i = E_x^i \cos\theta - E_z^i \sin\theta$ ,  $i = cr, M, T$ , тогда:

$$\begin{aligned}
E_{pp}^{cr} &= \chi_{pp}^{cr} E_0^2 = \\
&= (\chi_{xxx}^{cr} \sin 2\theta \cos\theta + \chi_{xxx}^{cr} \cos^3\theta - \chi_{zxx}^{cr} \cos^2\theta \sin\theta - \chi_{zzz}^{cr} \sin^3\theta) E_0^2, \\
E_{pp}^M &= \chi_{pp}^M E_0^2 = (\chi_{xzz}^M \sin^2\theta \cos\theta + \chi_{zxx}^M \sin 2\theta \sin\theta) E_0^2, \\
E_{pp}^T &= \chi_{pp}^T E_0^2 = \\
&= (\chi_{xxx}^T \sin 2\theta \cos\theta + \chi_{xxx}^T \cos^3\theta - \chi_{zxx}^T \cos^2\theta \sin\theta - \chi_{zzz}^T \sin^3\theta) E_0^2.
\end{aligned} \tag{3.8}$$

Таким образом, в выбранной геометрии эксперимента отличны от нуля все три вклада в квадратичный нелинейно-оптический отклик. Экспериментальные данные на рис. 3.4 (а) аппроксимированы функцией (3.3), предполагая что  $P^M(H) \sim M(H) \propto \arctan(H)$ , где  $M(H)$  - средняя намагниченность, а  $P^T(H) \propto e^{-\frac{H^2}{\sigma}}$ . Результат аппроксимации показан на рис. 3.4 (а) сплошной линией. Видно хорошее соответствие расчетной кривой и экспериментальных данных. Полученные значения относительных амплитуд различных вкладов приведены в таблице 3.1. Видно, что вклад тороидного момента существенно меньше вклада средней намагниченности. Тем не менее, можно заметить, что контраст значений интенсивности ВГ на разных ветвях петли гистерезиса при  $H = 0$  не равен нулю, как при намагничивании вдоль высот треугольников, и составляет примерно 3%.

Теперь рассмотрим циркулярно поляризованное зондирующее излучение. Тогда компоненты электрического поля накачки:  $E_x = E_0 \cos\theta$ ,  $E_y = iE_0$ ,  $E_z = E_0 \sin\theta$ . Для компонент поля на частоте ВГ получим:

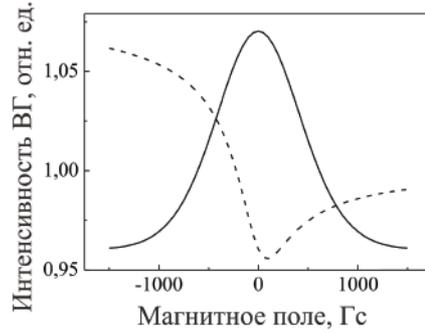
$$\begin{aligned}
E_{2\omega,x}^{cr} &= (\chi_{xxz}^{cr} \sin 2\theta + \chi_{xxx}^{cr} (\cos^2 \theta + 1)) E_0^2, \\
E_{2\omega,z}^{cr} &= (-\chi_{zxx}^{cr} \sin^2 \theta + \chi_{zzz}^{cr} \sin^2 \theta) E_0^2, \\
E_{2\omega,x}^M &= \chi_{xzz}^M \sin^2 \theta E_0^2 \\
E_{2\omega,z}^M &= \chi_{zxx}^M \sin 2\theta E_0^2, \\
E_{2\omega,x}^T &= (\chi_{xxz}^T \sin 2\theta + \chi_{xxx}^T (\cos^2 \theta + 1)) E_0^2, \\
E_{2\omega,z}^T &= (-\chi_{zxx}^T \cos^2 \theta + \chi_{zzz}^T \sin^2 \theta) E_0^2,
\end{aligned} \tag{3.9}$$

где учтены равенства компонент в (3.2, 3.5, 3.6) и  $i^2 = -1$ . Из (3.9) получаем компоненты  $p$ -поляризованного отклика ВГ при циркулярно поляризованном излучении накачки:

$$\begin{aligned}
E_{cp}^{cr}(2\omega) &= \chi_{cp}^{cr} E_0^2 = \\
&= (\chi_{xxz}^{cr} \sin 2\theta \cos \theta + \chi_{xxx}^{cr} \cos \theta (\cos^2 \theta + 1) + \chi_{zxx}^{cr} \sin^3 \theta - \chi_{zzz}^{cr} \sin^3 \theta) E_0^2, \\
E_{cp}^M(2\omega) &= \chi_{cp}^M E_0^2 = -(\chi_{zxx}^M \sin 2\theta \sin \theta + \chi_{xzz}^M \cos \theta \sin^3 \theta) E_0^2, \\
E_{cp}^T(2\omega) &= \chi_{cp}^T E_0^2 = \\
&= (\chi_{xxz}^T \sin 2\theta \cos \theta + \chi_{xxx}^T \cos \theta (\cos^2 \theta + 1) + \chi_{zxx}^T \sin^3 \theta - \chi_{zzz}^T \sin^3 \theta) E_0^2.
\end{aligned} \tag{3.10}$$

Поскольку в исследуемой структуре в выбранном спектральном диапазоне не наблюдается резонансных особенностей, то можно предположить, что все компоненты  $\chi_{ijk}^T$  имеют одинаковую фазу. Тогда из приведенных выражений видно, что  $|\chi_{cp}^T| > |\chi_{pp}^T|$ , поэтому вклад тороидного момента при циркулярно поляризованном излучении накачки должен быть выражен более явно, чем при линейно поляризованном, в то время как вклад средней намагниченности в квадратичный отклик практически не меняется. Из аппроксимации экспериментальных данных, представленных на рис. 3.5, выражением вида (3.3) получены относительные вклады ВГ, индуцированной средней намагниченностью и тороидным моментом.

Результаты аппроксимации приведены в таблице 3.1. Следует отметить, что вклады вихревой намагниченности  $\chi_{cp}^T$  превышают вклад средней намагниченности (вторая и третья колонка). Для иллюстрации этого утверждения на рис. 3.7 показаны графики функций  $|\mathbf{P}^{cr} + \mathbf{P}^M(H)|^2$  (пунктирная кривая) и  $|\mathbf{P}^{cr} + \mathbf{P}^T(H)|^2$  (сплошная кривая) при значениях амплитуд и фаз вкладов, указанных в таблице 3.1, где видно, что значения функций сопоставимы по величине. Учет всех трех вкладов дает верхнюю ветвь на рис. 3.5 (а). Таким образом, мы можем заключить, что возникно-



**Рис. 3.7.** Графики функций  $I_{2\omega}(H) \propto |\mathbf{P}^{cr} + \mathbf{P}^M(H)|^2$  (пунктирная кривая) и  $I_{2\omega}(H) \propto |\mathbf{P}^{cr} + \mathbf{P}^T(H)|^2$  (сплошная кривая), параметры взяты из аппроксимации гистерезиса для *правой* циркулярной поляризации (см. Таблица 3.1).

вление магнитного тороидного момента, обусловленного вихревым состоянием намагниченности частиц метаповерхности, существенно проявляется в отклике ВГ при циркулярно поляризованном излучении накачки, в то время как для линейной поляризации света этот эффект выражен намного слабее. Такое явление связано с тем, что для циркулярной накачки компоненты магнитоиндуцированной ВГ имеют другую зависимость от угла падения (см. выражения 3.8 и 3.10)

Полученные при аппроксимации экспериментальных данных значения фазовых сдвигов  $\varphi_1$  и  $\varphi_2$  отличаются от  $\pi/2$ , поскольку среда поглощающая (хотя и близки к этому значению). Важно отметить, что фаза поля, индуцированного средней намагниченностью, при линейно поляризованном лазерном излучении сильнее отличается от  $\pi/2$ , чем при циркулярном. Поэтому в насыщающем внешнем магнитном поле  $\rho_{2\omega}$  при циркулярной накачке существенно меньше аналогичного значения при линейной, на фоне чего более заметно проявляется вклад тороидного момента. Такие значения фазы могут быть связаны с эффектами запаздывания квадратичного отклика в треугольных частицах, которые проявляются при наклонном падении света на образец и не возникают при нормальном (рис. 3.3). При более строгом анализе наблюдаемых явлений следует учитывать квадрупольные компоненты тензора квадратичной восприимчивости, которые по симметрии совпадают дипольными, но имеют разные фазы, что и дает разные значения  $\varphi_1$  и  $\varphi_2$  при линейном и циркулярно поляризованном зондирующем излучении.

Отметим, что все электродипольные вклады в генерацию ВГ ( $\mathbf{P}^{cr}$ ,  $\mathbf{P}^M$  и  $\mathbf{P}^T$ ) сильно анизотропны, поэтому квадратичный отклик исследуемой

Таблица 3.1. Параметры, полученные из аппроксимации экспериментальных зависимостей ВГ от приложенного магнитного поля при намагничивании вдоль основания треугольников при различных поляризациях излучения накачки, угол падения  $\theta = 40^\circ$ .

поляризация	$ \frac{\chi^T}{\chi^{cr}} $	$ \frac{\chi^M}{\chi^{cr}} $	$\varphi_1$	$\varphi_2$
$p$	$0.12 \pm 0.02$	$0.26 \pm 0.02$	$85^\circ \pm 2^\circ$	$78^\circ \pm 2^\circ$
правая	$0.20 \pm 0.02$	$0.18 \pm 0.02$	$100^\circ \pm 2^\circ$	$86^\circ \pm 2^\circ$
левая	$0.16 \pm 0.02$	$0.10 \pm 0.02$	$86^\circ \pm 2^\circ$	$93^\circ \pm 2^\circ$

метаповерхности существенно зависит от ее азимутального положения.

Наконец, следует отметить, что при намагничивании образца вдоль высоты треугольников симметрия структуры станет  $C_3$ , то есть, среди элементов симметрии останется только ось третьего порядка. При этом возникнут другие компоненты тензора  $\hat{\chi}^M$ , а тороидный момент и индуцированные им компоненты тензора квадратичной восприимчивости будут равны нулю.

Таким образом, визуализация макроскопического тороидного момента в системах одинаково направленных вихрей намагниченности возможна методом генерации ВГ, причем в эксперименте предпочтительно использование циркулярно поляризованного излучения накачки.

## § 3.2. Наноперфорированные пленки пермаллоя

### 3.2.1. Изучаемые структуры

Образцы представляли собой массивы круглых отверстий с диаметром 420 нм в пленке пермаллоя ( $\text{Ni}_{80}\text{Fe}_{20}$ ) толщиной 30 нм на кремниевой подложке, отверстия расположены в узлах квадратной решетки со стороной 600 нм (рис. 3.8 (а)). Структуры были изготовлены в Национальном Университете Сингапура методом УФ литографии и техники lift-off. Для создания перфорации подложка была сначала покрыта 480-нанометровым слоем фоторезиста. Для экспонирования резиста использовался литографический позиционер Nikon S203, использующий излучение KrF эксимерного лазера. В результате был сформирован массив нанодисков резиста диаметром около 420 нм. Далее он был покрыт 30-нанометровым слоем пермаллоя. После удаления резиста был получен массив наноотверстий в пленке пермаллоя. Детали процесса изготовления описаны в работе [204].

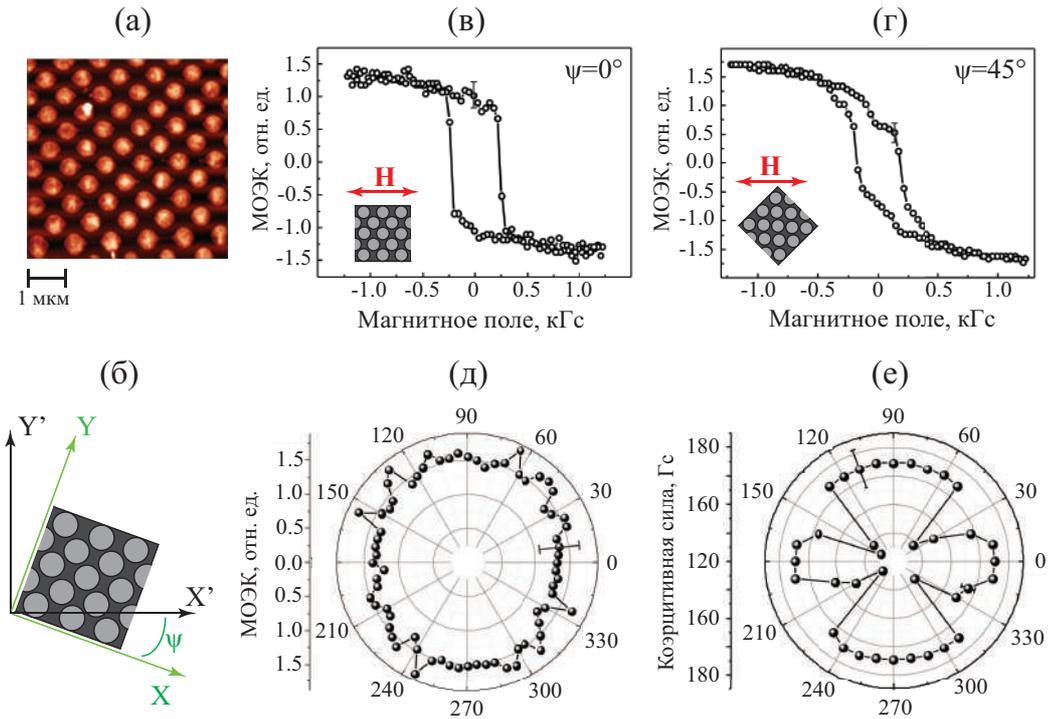
### 3.2.2. Результаты исследования линейного магнитооптического эффекта Керра

Исследование линейного МО отклика структуры проводилось коллегами из Университета г. Белосток (Польша) при комнатной температуре методом микроскопии меридионального МО эффекта Керра с помощью микроскопа EVECО. Регистрировалась интенсивность отраженного света, анализатор был ориентирован под углом  $4^\circ$  к плоскости падения. Ориентация внешнего магнитного поля на установке была неизменной, варьировалось азимутальное положение структуры относительно поля, т.е. изменялся угол  $\psi$ . Положение  $\psi = 0^\circ$  соответствовало случаю, когда магнитное поле было параллельно диагонали к решетке нанотрещинок (рис. 3.8 (б)).

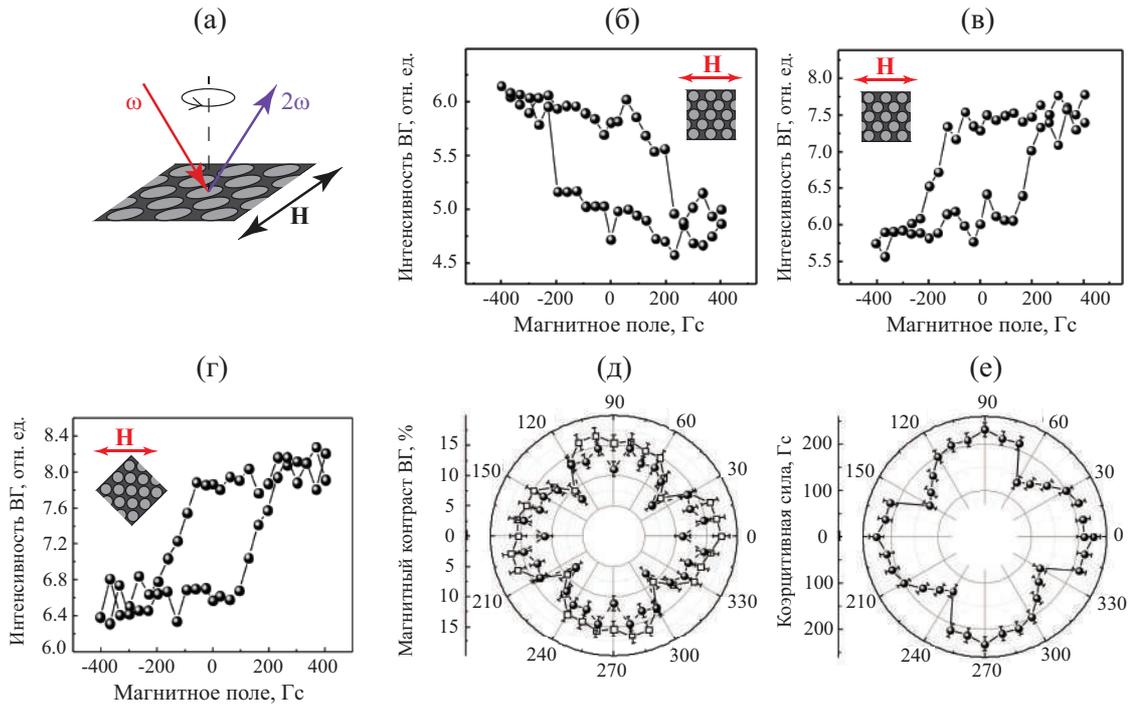
Зависимости величины угла магнитоиндуцированного поворота плоскости поляризации от напряженности магнитного поля для двух ориентаций образца представлены на рис. 3.8 (в,г). Видно, что форма петель различается, а коэрцитивная сила при  $\psi = 0^\circ$  составляет около 170 Гс, что примерно в полтора раза больше, чем при  $\psi = 45^\circ$ . Таким образом, наноперфорированная пленка обладает анизотропией магнитных свойств. Аналогичные гистерезисы были измерены при других азимутальных ориентациях исследуемой структуры, из полученных данных определены коэрцитивности и величины керровского вращения в насыщающем магнитном поле. Величина МОЭК, пропорциональная намагниченности насыщения, не зависит от  $\psi$  (рис. 3.8 (д)), а азимутальная анизотропия коэрцитивности (рис. 3.8 (е)) демонстрирует наличие оси легкого намагничивания вдоль диагонали квадратной решетки ( $\psi = 0^\circ$ ) и оси трудного намагничивания вдоль стороны массива ( $\psi = 45^\circ$ ).

### 3.2.3. Генерация магнитоиндуцированной ВГ

Исследования были проведены на экспериментальной установке, представленной на рис. 1.21, в геометрии “на отражение” при угле падения  $p$ - или  $s$ -поляризованного зондирующего излучения  $\theta = 40^\circ$  (рис. 3.9). В первую очередь, в результате анализа анизотропии интенсивности ВГ было выяснено, что немагнитный квадратичный отклик азимутально изотропен, что характерно для структуры, обладающей симметрией 4-го порядка. В дальнейших экспериментах статическое магнитное поле с напряженно-



**Рис. 3.8.** (а) АСМ-изображение поверхности наноперфорированной пленки пермаллоя; (б) лабораторная система координат ( $X'Y'Z'$ ) и система координат, связанная с пленкой ( $XYZ$ ),  $\psi$  - азимутальный угол; (в), (г) гистерезисы линейного меридионального МОЭК при азимутальных углах  $\psi = 0^\circ$  и  $\psi = 45^\circ$ , соответственно (ориентация внешнего магнитного поля относительно структуры изображена на вставках); (д) азимутальная зависимость величины МО эффекта Керра в насыщающем магнитном поле; (е) азимутальная зависимость коэрцитивной силы.



**Рис. 3.9.** (а) Схема эксперимента по исследованию генерации ВГ в наноперфорированных пленках пермаллоя; (б) гистерезис интенсивности  $p$ -поляризованной ВГ при  $p$ -поляризованном излучении накачки,  $\psi = 0^\circ$ ; (в), (г) гистерезисы интенсивности ВГ при  $s$ -поляризованном излучении накачки при  $\psi = 0^\circ$  и  $\psi = 45^\circ$ , соответственно; (д) азимутальные зависимости модуля магнитного контраста ВГ при  $p$ - (круглые точки) и  $s$ -поляризованном (квадратные точки) излучении накачки; (е) азимутальная зависимость значений коэрцитивной силы, определенных из нелинейно-оптических измерений.

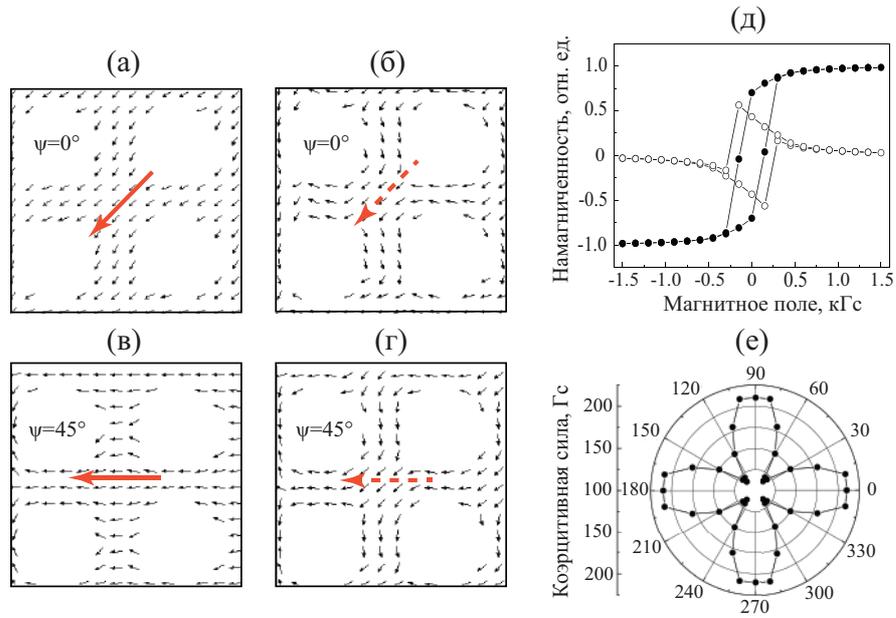
стью до 400 Гс было приложено к образцу в экваториальной геометрии, и измерялась интенсивность ВГ, изменение которой в первом приближении пропорционально намагниченности. Измерены гистерезисы магнитоиндуцированной ВГ при различных азимутальных положениях образца, определены значения коэрцитивной силы и величины магнитного контраста ВГ по формуле (1.43).

Гистерезисы интенсивности ВГ представлены на рис. 3.9 (б-г). Видно, что для  $p$ - и  $s$ -поляризованного излучения накачки знаки  $\rho_{2\omega}$  противоположны (рис. 3.9 (б,в)). При намагничивании вдоль диагонали квадратного массива нанотвертей петля гистерезиса шире, чем при намагничивании вдоль стороны.

Азимутальные зависимости магнитного контраста ВГ (рис. 3.9 (д)) отражают симметрию 4-го порядка, что связано с симметрией свойствами магнитоиндуцированных компонент тензора квадратичной восприимчивости для структуры. Что касается величины эффекта, то максимум  $\rho_{2\omega}$  наблюдается при приложении магнитного поля вдоль диагонали квадратной решетки нанотвертей. Зависимость  $H_c(\psi)$  (рис. 3.9 (е)) примерно совпадает с графиком, полученным из линейных измерений (рис. 3.8 (е)).

#### 3.2.4. Расчет распределения намагниченности

Результаты микромагнитного моделирования распределения намагниченности наноперфорированной пленки пермаллоя, выполненные в пакете “OOMMF” путем численного решения уравнения (3.1), представлены на рис. 3.10. Когда внешнее насыщающее магнитное поле  $H_s = 1.5$  кГс приложено вдоль диагонали к квадратной решетке нанотвертей, все магнитные моменты ориентированы вдоль  $\mathbf{H}$ . Они сохраняют это направление и при выключении внешнего поля (рис. 3.10 (а, б)). Когда же внешнее магнитное поле приложено вдоль стороны квадратного массива, то в насыщении магнитные моменты направлены вдоль  $\mathbf{H}$ , однако, при выключении поля появляется компонента намагниченности, ориентированная вдоль диагонали (рис. 3.10 (в, г)), что указывает на наличие магнитной анизотропии структуры с легкой осью, параллельной диагонали массива отверстий. Рассчитанные зависимости компонент намагниченности вдоль  $M_{\parallel}$  (заполненные точки) и поперек  $M_{\perp}$  (выколотые точки)  $\mathbf{H}$  представлены на рис. 3.10 (д). Из гистерезисов  $M_{\parallel}(H)$  определены значения  $H_c$  для различных



**Рис. 3.10.** Результаты расчетов в программном пакете “OOMMF”. Распределения намагниченности в наноперфорированной пленке пермаллоя: (а) в насыщающем магнитном поле 1.5 кГс, приложенном вдоль красной стрелки, и (б) после его выключения; (в) в насыщающем магнитном поле 1.5 кГс, приложенном вдоль красной стрелки, и (г) после его выключения. (д) Зависимости значений средней намагниченности вдоль (заполненные точки) и поперек (выколотые точки) внешнего магнитного поля от  $\mathbf{H}$  (при  $\psi = 45^\circ$ ). (е) Азимутальная зависимость коэрцитивной силы.

$\psi$  и построена азимутальная зависимость коэрцитивной силы (рис. 3.10 (е)), откуда также видна магнитная анизотропия структуры.

### 3.2.5. Обсуждение результатов

Азимутальные зависимости коэрцитивной силы, полученные методом линейной магнитооптики, нелинейной магнитооптики и при расчетах аналогичны и однозначно указывают на наличие анизотропии магнитных свойств, соответствующей симметрии  $4m$ , что соответствует симметрии самой структуры (рис. 3.8 (е), 3.9 (е), 3.10 (е)). Ось легкого намагничивания ориентирована вдоль диагонали к квадратной решетке нанотверстий ( $\psi \sim 0^\circ, 90^\circ$ ), при этом коэрцитивность максимальна; ось трудного намагничивания направлена вдоль стороны массива, при этом  $H_c$  минимальна.

Измеряемая величина линейного МО эффекта Керра пропорциональна средней намагниченности, ориентированной вдоль внешнего магнитного

поля,  $M_{\parallel}$ . В насыщении намагниченность (обозначим ее  $M_{sat}$ ) направлена вдоль  $\mathbf{H}$ . Как видно из рис. 3.8 (д), величина МО эффекта Керра не зависит от  $\psi$ , тогда  $M_{sat}(\psi) = const$ .

Величина магнитного контраста ВГ анизотропна и максимальна при намагничивании вдоль легкой оси. Для объяснения этого эффекта рассмотрим симметрию тензора квадратичной восприимчивости, разбив его на немагнитную (кристаллографическую) и магнитоиндуцированную часть. Будем считать, что в рассматриваемом нерезонансном случае все кристаллографические компоненты тензора квадратичной восприимчивости имеют одну и ту же фазу, а все магнитоиндуцированные - другую.

Как уже было сказано, для поверхности структуры с симметрией  $4m$  являются ненулевыми компоненты тензора  $\hat{\chi}^{cr}$ , указанные в (2.2) (оси показаны на рис. 3.8 (б)). Для  $p$ -поляризованного падающего излучения компоненты поля накачки:  $E'_x = E_0 \cos\theta$ ,  $E'_y = 0$ ,  $E'_z = E_0 \sin\theta$ ,  $\theta$  - угол падения. Поскольку в нашем эксперименте  $\theta = 40^\circ$ , можно считать, что  $E'_x = E'_z$ . Тогда компоненты  $p$ -поляризованной ВГ, в соответствии с (2.8):

$$E_{p,2\omega}^{cr} \propto (2\chi_{xzx}^{cr} - \chi_{zxx}^{cr} - \chi_{zzz}^{cr})E_0^2. \quad (3.11)$$

Для  $s$ -поляризованного излучения накачки  $E_x = E_z = 0$ ,  $E_y = E_0$ , тогда поле ВГ, в соответствии с (2.5):

$$E_{s,2\omega}^{cr} = -\chi_{zxx}^{cr}E_0^2. \quad (3.12)$$

Магнитоиндуцированный вклад в генерацию ВГ описывается тензором 4-го ранга  $\hat{\chi}^{magn}$  со следующими ненулевыми компонентами:  $\chi_{xxxY}^{magn} = -\chi_{yyyX}^{magn}$ ,  $\chi_{xyyY}^{magn} = -\chi_{yxxX}^{magn}$ ,  $\chi_{xzzY}^{magn} = -\chi_{yzzX}^{magn}$ ,  $\chi_{yxyY}^{magn} = \chi_{yxxY}^{magn} = -\chi_{xxyX}^{magn} = -\chi_{xyxX}^{magn}$ ,  $\chi_{zxxY}^{magn} = \chi_{zzxY}^{magn} = -\chi_{zyxX}^{magn} = -\chi_{zzxX}^{magn}$ , где последний индекс соответствует направлению магнитного поля. Здесь следует подчеркнуть, что в проведенных экспериментах направление магнитного поля фиксировано в лабораторной системе отсчета и варьируется в системе отсчета, связанной с образцом, при азимутальном вращении. Указанные компоненты нечетны по намагниченности, т.е.  $\chi_{ijkL}^{magn}(M) = -\chi_{ijkL}^{magn}(-M)$  [128]. Соответствующее электрическое поле на частоте ВГ:  $\chi_{ijkL}^{magn}E_jE_kM_L$ . Внешнее магнитное поле приложено вдоль оси  $OY'$  лабораторной системы координат, а магнитоиндуцированные компоненты при переходе от штрихованной к лабораторной системе координат преобразуются по правилу:

$\chi_{ijkL}^{magn'} = T_{i'i'}T_{j'j'}T_{z'z'}T_{LL'}\chi_{ijkL}^{magn}$ . Тогда, для  $p$ -поляризованного излучения накачки магнитоиндуцированная компонента  $p$ -поляризованной ВГ:

$$E_{p,2\omega}^{magn} = (\chi_{xxxY}^{magn} + \chi_{xzzY}^{magn} + \chi_{zzxY}^{magn} + \chi_{zxxY}^{magn} + 1/2(\chi_{xyyY}^{magn} - \chi_{xxxY}^{magn} + 2\chi_{yxyY}^{magn})\sin^2 2\psi)E_0^2\langle M_{sat} \rangle, \quad (3.13)$$

где  $\langle M_{sat} \rangle$  - средняя по площади лазерного пятна намагниченность пленки в насыщающем магнитном поле. В случае  $s$ -поляризованного излучения накачки:

$$E_{s,2\omega}^{magn} = (\chi_{xyyY}^{magn} + 1/2(\chi_{xxxY}^{magn} - \chi_{xyyY}^{magn} - 2\chi_{yxyY}^{magn})\sin^2 2\psi)E_0^2\langle M_{sat} \rangle. \quad (3.14)$$

Принимая во внимание, что  $\mathbf{E}_{p(s),2\omega} = \mathbf{E}_{p(s),2\omega}^{cr} + \mathbf{E}_{p(s),2\omega}^{magn}$ ,  $I_{p(s),2\omega} \propto |E_{p(s),2\omega}|^2$  и  $E_{p(s),2\omega}^{cr} \gg E_{p(s),2\omega}^{magn}$ ,  $|\chi_{ijkL}^{magn}| \sim \langle M_{sat} \rangle$ , получим следующие выражения для азимутальной зависимости магнитного контраста ВГ при  $s$ - и  $p$ -поляризованном излучении накачки в насыщающем магнитном поле:

$$\begin{aligned} \rho_{2\omega,p}(\psi) &\propto \\ &\propto 2 \frac{(\chi_{xxxY}^{magn} + \chi_{xzzY}^{magn} - 2\chi_{zzxY}^{magn} + \frac{1}{2}(\chi_{xyyY}^{magn} - \chi_{xxxY}^{magn} + 2\chi_{yxyY}^{magn})\sin^2 2\psi)}{2\chi_{zxx}^{cr} - \chi_{zxx}^{cr} - \chi_{zzz}^{cr}} \sim \langle M_{sat} \rangle \end{aligned} \quad (3.15)$$

$$\rho_{2\omega,s}(\psi) \propto -2 \frac{(\chi_{xyyY}^{magn} + 1/2(\chi_{xxxY}^{magn} - \chi_{xyyY}^{magn} - 2\chi_{yxyY}^{magn})\sin^2 2\psi)}{\chi_{zxx}^{cr}} \sim \langle M_{sat} \rangle \quad (3.16)$$

Поскольку  $\sin^2 2\psi = 1/2(1 - \cos 4\psi)$ , то из формул (3.15) и (3.16) следует, что зависимость магнитного контраста от азимутального угла демонстрирует симметрию 4-го порядка. При этом, в зависимости от соотношения компонент  $\chi_{ijkY}^{magn}$ , которые, в свою очередь определяются геометрией поверхности структуры, величины  $|\rho_{2\omega,p}|$  и  $|\rho_{2\omega,s}|$  могут достигать максимума вдоль диагонали или стороны массива; в наших экспериментах максимум модуля магнитного контраста наблюдается при  $\psi=0^\circ$ .

Таким образом, анизотропия магнитного контраста ВГ в насыщающем магнитном поле наблюдается благодаря тому, что тензор  $\hat{\chi}^{magn}$ , характеризующий магнитоиндуцированный отклик, имеет более высокий ранг (4-й), чем тензор  $\hat{\chi}^{cr}$  (3-го ранга в электродипольном приближении). В генерации магнитоиндуцированной ВГ симметричные эффекты оказываются более значимыми, чем в немагнитном отклике.

Похожую азимутальную анизотропию магнитооптического отклика наблюдали в сверхрешетках Fe/Au (001) [193], однако в метаповерхности такие исследования проведены впервые.

Итак, результаты исследования азимутальной анизотропии оптического и нелинейно оптического отклика наноперфорированной пленки пермаллоя демонстрируют наличие осей легкого и трудного намагничивания. Величина линейного МО эффекта Керра, пропорциональная средней намагниченности структуры в насыщении, изотропна, в то время как магнитный контраст ВГ анизотропен и максимален при намагничивании вдоль легкой оси. Можно также сделать вывод о том, что метод генерации магнитоиндуцированной ВГ является более чувствительным к симметричным свойствам магнитной пленки, чем линейный МО отклик и чем генерация кристаллографической ВГ.

Кроме того, показано, что дизайн наноперфорации пленки может определять вид магнитной анизотропии. Следовательно, подбирая геометрические параметры и форму перфорации и предварительно рассчитав распределение намагниченности и коэрцитивность, можно изготавливать поверхности с магнитными свойствами, необходимыми для различных научных и практических задач.

### **Выводы по Главе 3**

1. Предложен нелинейно-оптический метод визуализации вихревого состояния намагниченности в системе кобальтовых треугольников. Наиболее явно вклад макроскопического магнитного тороидного момента проявляется при циркулярно поляризованном лазерном излучении и достигает 20% от немагнитной составляющей ВГ. Величина такого вклада пропорциональна тороидному моменту, а его симметрия соответствует экспериментально наблюдавшейся.

2. Исследованы магнитные, магнитооптические и магнитные нелинейно-оптические свойства наноперфорированной пленки пермаллоя. Детектирована ориентация осей легкого и трудного намагничивания, коэрцитивные силы при намагниченности вдоль них отличаются примерно в полтора раза. Показано, что в насыщающем магнитном поле величина магнитного контраста в линейном отклике изотропна, а в квадратич-

ном наблюдается симметрия 4-го порядка. Кристаллографическая ВГ изотропна. Дело в том, что ранг симметрии тензора магнитоиндуцированной квадратичной восприимчивости (четвертый) выше, чем тензора диэлектрической проницаемости (второй) и чем у тензора немагнитной ВГ (третий), что обуславливает более высокую чувствительность магнитного нелинейно-оптического отклика к симметрии и анизотропии магнитных свойств исследуемых структур.

*Результаты, изложенные в Главе 3, опубликованы в работах [A7, A10, A14, A16, A39].*

---

## ГЛАВА 4

### Резонансные эффекты в оптическом отклике наноструктур

---

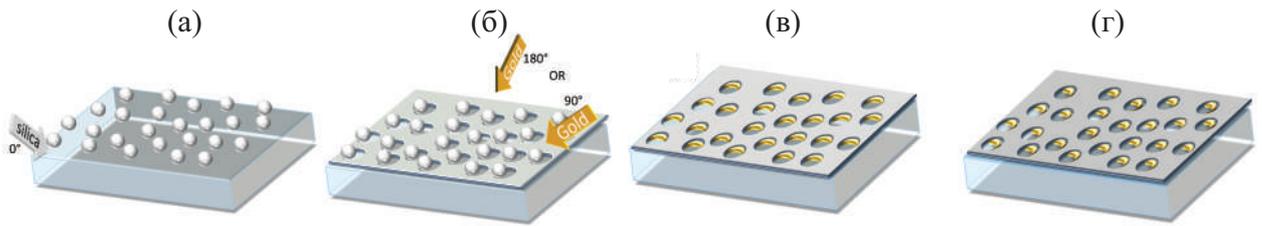
Глава посвящена исследованию оптического отклика резонансных структур, в частности усилению эффектов генерации ВГ, линейного и нелинейного МО эффектов при возбуждении плазмонных резонансов. Рассмотрено 4 типа структур: массивы наночастиц в форме полумесяцев, ансамбли наностержней кобальта, гетероструктуры опал/Co и опал/Co/Ag, массивы золотых наночастиц в слое ферромагнитного железо-иттриевого граната и упорядоченные планарные массивы нанодисков Au/MgF<sub>2</sub>/Au. В зависимости от дизайна структур и геометрии эксперимента, происходит возбуждение магнитодипольных и электродипольных резонансов различной природы, определяющих возникновение особенностей линейного и нелинейного оптического отклика исследуемой среды.

#### § 4.1. Оптический отклик неупорядоченных массивов металлических наночастиц в форме цилиндров и полумесяцев при возбуждении локальных поверхностных плазмонов

##### 4.1.1. Массивы наночастиц в форме полумесяцев

###### Структуры, их изготовление и характеристика

Структуры были изготовлены в.н.с. Химического факультета МГУ к.х.н. В.Е. Боченковым методом коллоидной литографии. Сначала на подложку были нанесены коллоидные полимерные наносферы диаметром 270 нм производства фирмы Thermo Fisher Scientific, они образовали маску на поверхности [205, 206, 207]. Затем следовала промывка структур водой Milli-Q и сушка. Далее на структуру был напылен слой титана толщиной 2 нм для последующей лучшей адгезии резиста. Резист из диоксида кремния толщиной 25 нм был нанесен под углом 30° к нормали к поверхности (без вращения подложки), как показано на рис. 4.1 (а). Резист покры-



**Рис. 4.1.** Изготовление массивов частиц в форме полумесяцев и запятых методом коллоидной литографии: (а) нанесение сфер, затем под полярным углом  $30^\circ$  и азимутальным углом  $0^\circ$  наносится слой резиста; (б) слой резиста с нанодоверстиями, стрелки показывают направление последующего напыления золота для формирования массивов наночастиц в форме полумесяцев ( $40^\circ$  полярный угол и  $180^\circ$  азимутальный угол) и запятых ( $40^\circ$  полярный угол и  $90^\circ$  азимутальный угол). (в,г) Полученные массивы частиц после удаления коллоидной маски.

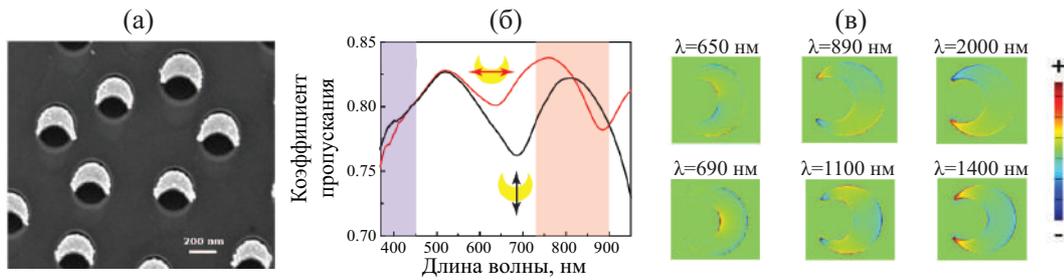
вал поверхность подложки между частицами, оставляя доступными для дальнейшего осаждения металла только области, затененные наносферами. Подложка была азимутально повернута на угол  $180^\circ$  вокруг нормали и под углом падения  $40^\circ$  к нормали был нанесен слой золота толщиной 20 нм 4.1 (б). После удаления резиста с остатками золота на подложке остался массив наночастиц в форме полумесяцев 4.1 (в). На завершающем этапе удалили резист и ту часть металла, которая оказалась на нем (т.н. техника “lift-off”).

Если золото напылить под азимутальным углом  $90^\circ$  и под углом  $40^\circ$  к нормали, то получится массив наночастиц в форме запятых (рис. 4.1 (г)), о которых речь пойдет в следующей главе.

Итак, исследуемая метаповерхность состоит из золотых наночастиц в форме полумесяцев с латеральным размером около 200 нм и толщиной около 20 нм. Наночастицы хаотически распределены на подложке, но одинаково ориентированы. На рис. 4.2 (а) приведено изображение структуры в сканирующем электронном микроскопе (СЭМ).

### Линейные оптические свойства

Спектры пропускания метаповерхности были измерены на установке (1.19) при нормальном падении излучения накачки при двух азимутальных ориентациях - когда плоскость поляризации падающего света ориентирована вдоль и поперек полумесяцев, как показано схематично на рис. 4.2 (б). Результат спектроскопии представлен на рис. 4.2 (б). Наблюдаются



**Рис. 4.2.** (а) СЭМ-изображение поверхности массива наночастиц в форме полумесяцев; (б) спектры коэффициента пропускания структуры при нормальном падении света и двух ориентациях метаповерхности относительно плоскости поляризации света (диапазон перестройки длин волн генерации Ti:Sa лазера на частоте накачки и ВГ выделен красным и фиолетовым цветом, соответственно); (в) рассчитанные распределения плотности электрического заряда на указанной резонансной длине волны, когда поляризация падающего света ориентирована вдоль (верхний ряд) и поперек наноэлемента (нижний ряд) [206].

минимумы пропускания на длинах волн примерно 650 и 890 нм при ориентации плоскости поляризации зондирующего излучения вдоль полумесяца (красная кривая на рис. 4.2 (б)) и при  $\lambda = 690$  нм при перпендикулярной азимутальной ориентации (черная кривая на рис. 4.2 (б)).

В работе [206] методом FDTD в программном пакете Lumerical Solutions были рассчитаны спектры поглощения изолированной золотой частицы в форме полумесяца. В расчетной спектральной области было обнаружено три локальных плазмонных резонанса на длинах волн примерно 650, 890 и 2000 нм при ориентации плоскости поляризации падающего света вдоль полумесяца и при  $\lambda = 690$ , 1100 и 1400 нм в ортогональном положении. Расчеты показали, что распределение плотности заряда при возбуждении указанных резонансов различно (рис. 4.2 (в)) [206]. Самый длинноволновый резонанс соответствует электродипольному плазмону, остальные соответствуют электрическим мультиполям более высокого порядка.

Расчеты распределения поля накачки в структуре показали, что при возбуждении электродипольного резонанса амплитуда электрического поля вблизи острых концов полумесяца увеличивается более чем в 30 раз, по сравнению с амплитудой электрического поля падающей волны [206].

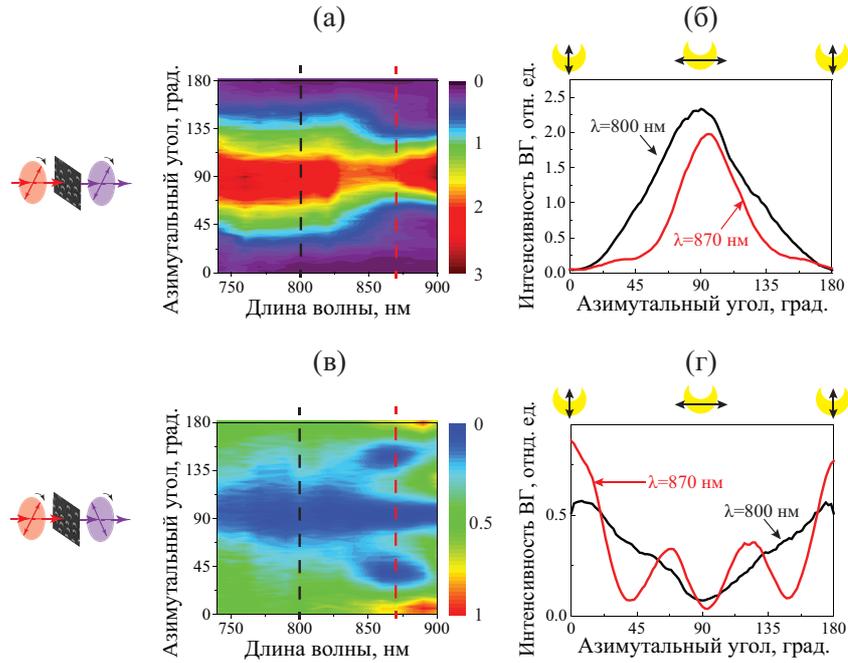
## Генерация ВГ

Эксперименты были проведены при нормальном падении лазерного излучения, в геометрии “на пропускание”, мощность волны накачки на об-

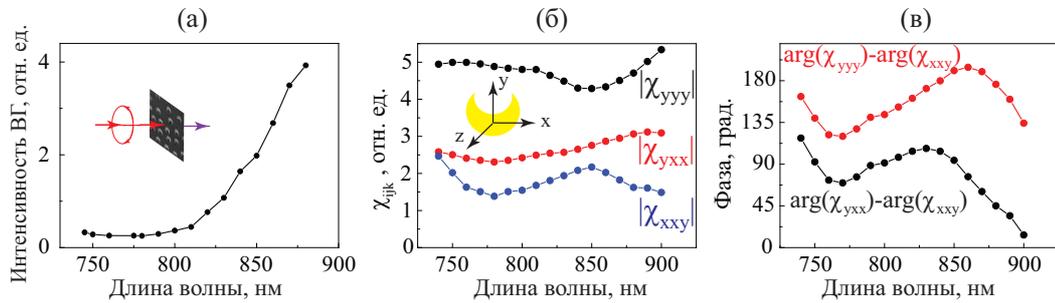
разце составляла около 100 мВт (установка на рис. 1.21). Свет фокусировался на структуре в пятно диаметром 50 мкм, так что облучалось около 10000 наноэлементов. При измерении азимутальных зависимостей интенсивности ВГ при линейно поляризованной накачке плоскость поляризации лазерного излучения устанавливалась с помощью полуволновой пластинки, а плоскость поляризации регистрируемой ВГ - с помощью анализатора. Исследуемая структура была неподвижна, а пластинка  $\lambda/2$  и анализатор вращались синхронно. Такая методика эксперимента проще с точки зрения юстировки, чем вращение самой метаповерхности при фиксированных положениях оптических элементов.

Измерения были проведены для параллельных и скрещенных поляризаций зондирующего излучения и ВГ при вращении плоскости поляризации падающего света на  $2\pi$ . Все полученные азимутальные зависимости демонстрируют повторяемость с периодом  $\pi$ , поэтому для краткости результаты представлены только для углового диапазона  $\psi \in [0, \pi]$  на рис. 4.3. Выяснилось, что форма зависимостей  $I_{2\omega}$  существенно меняется при перестройке длины волны зондирующего излучения, особенно это заметно в скрещенных поляризациях падающего и детектируемого света. Так, при использовании в качестве накачки излучения на коротковолновом краю перестройки лазера наблюдаются два максимума ВГ на азимутальный оборот, а на длинноволновом – шесть неравновеликих максимумов (рис. 4.3 (б,г)). Средняя по азимутальному углу интенсивность ВГ возрастает на порядок при увеличении длины волны. В минимумах зависимости  $I_{2\omega}(\psi)$  интенсивность квадратичного нелинейно-оптического сигнала пренебрежимо мала, что говорит об отсутствии некогерентного отклика, обусловленного шероховатостью структуры.

Спектры полной интенсивности прошедшей ВГ были также измерены при *левой* и *правой* циркулярной поляризации излучения накачки и вычислен спектр  $I_{2\omega} = (I_{2\omega}^{left} + I_{2\omega}^{right})/2$ , что позволило исключить влияние анизотропии структуры на эффективность квадратичного нелинейно-оптического отклика. Рассчитанный таким образом спектр интенсивности ВГ (рис. 4.4 (а)) демонстрирует рост сигнала при увеличении длины волны излучения накачки.



**Рис. 4.3.** Анизотропия интенсивности ВГ в массиве наночастиц в форме полумесяцев: (а) интенсивность ВГ (цветовая шкала) при различных азимутальных ориентациях структуры в случае, когда плоскости поляризации излучения накачки и регистрируемой ВГ параллельны; (б) срезы рисунка (а) при  $\lambda = 800$  нм (черная линия) и  $\lambda = 870$  нм (красная линия); (в) интенсивность ВГ (цветовая шкала) при различных азимутальных ориентациях структуры в случае, когда плоскости поляризации излучения накачки и регистрируемой ВГ перпендикулярны; (г) срезы рисунка (в) при  $\lambda = 800$  нм (черная линия) и  $\lambda = 870$  нм (красная линия). Примерные азимутальные положения структуры по отношению к поляризации падающей волны  $\psi = 0, 90$  и  $180^\circ$  схематически показаны над панелями.



**Рис. 4.4.** (а) Спектр полной интенсивности ВГ при циркулярной поляризации излучения накачки. Данные, полученные из аппроксимации экспериментальных результатов: (б) спектры амплитуд и (в) спектры относительных фаз компонент тензора квадратичной восприимчивости. На панели (б) также указана система координат.

## Обсуждение результатов

Для начала отметим, что диапазон перестройки Ti:Sa лазера находится между спектральными положениями двух локальных поверхностных плазмонов (см. рис. 4.2 (б)), при возбуждении которых формируется специфическое распределение локального электрического поля в нанозементах. Таким образом, можно ожидать спектральных изменений амплитуд и фаз эффективных компонент тензора квадратичной восприимчивости.

В соответствии с (1.28), поле ВГ в структуре может быть записано как:

$$E_{2\omega,i}^{local} \propto L_{2\omega,i} \chi_{ijk}^{(2)} E_j^{local} E_k^{local} \propto \chi_{ijk}^{(2)} E_{j0} L_{\omega,j} E_{k0} L_{\omega,k} \propto \chi_{ijk}^{(2)eff} E_{j0} E_{k0}, \quad (4.1)$$

$E_{j0}, E_{k0}$  - компоненты поля накачки,  $L_{\omega,j,k}$  - компоненты фактора локального поля,  $\chi_{ijk}^{(2)eff}$  - эффективные компоненты тензора квадратичной восприимчивости,  $i, j, k = x, y, z$ , система координат показана на рис. 4.4 (б). На частоте ВГ плазмонных резонансов не наблюдается, что было подтверждено расчетами в работе [206], поэтому спектральной зависимостью компоненты фактора локального поля на удвоенной частоте можно пренебречь. При этом на частоте накачки разные спектральные зависимости компонент  $L_x$  и  $L_y$  приводят к разным спектрам  $\chi_{ijk}^{(2)eff}$  (индекс  $(2)eff$  далее в этом параграфе опущен для краткости). Разное спектральное поведение этих компонент приводит к качественным изменениям азимутальных зависимостей интенсивности ВГ при перестройке длины волны излучения накачки.

Действительно, для зеркально-симметричных элементов при нормальном падении света играют роль следующие компоненты тензора квадратичной восприимчивости:  $\chi_{yyy}, \chi_{yxx}$  и  $\chi_{xxy} = \chi_{xyx}$  (плоскость симметрии  $YOZ$ ). Обозначив азимутальный угол между осью  $OX$  и плоскостью поляризации зондирующего излучения как  $\psi$ , получим следующие выражения для азимутальной зависимости интенсивности ВГ:

$$I_{2\omega} \propto |\chi_{yyy} \sin^3 \psi + (2\chi_{xxy} + \chi_{yxx}) \cos^2 \psi \sin \psi|^2 \quad (4.2)$$

для параллельных поляризаций накачки и ВГ и

$$I_{2\omega} \propto |\chi_{yxx} \cos^3 \psi + (\chi_{yyy} - 2\chi_{xxy}) \cos \psi \sin^2 \psi|^2 \quad (4.3)$$

для ортогональных.

В случае циркулярно поляризованного зондирующего излучения выражение для полной интенсивности ВГ имеет следующий вид:

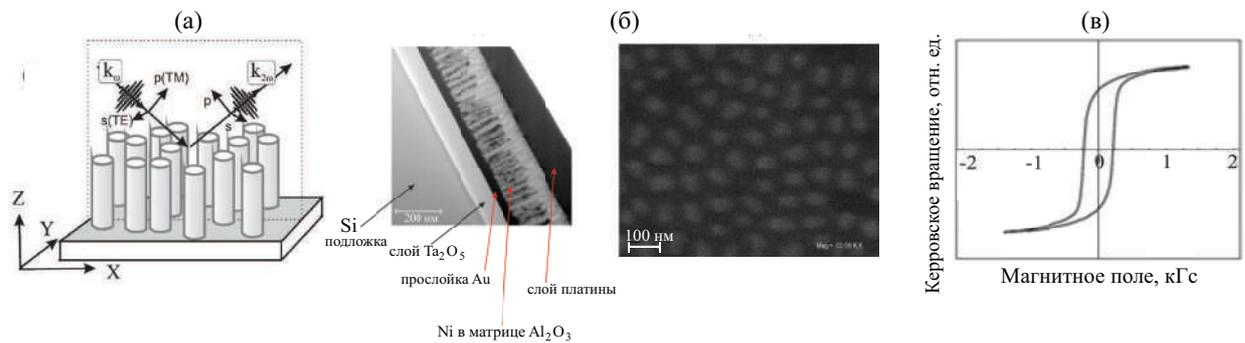
$$I_{2\omega} \propto 4|\chi_{xxy}|^2 + |\chi_{yxx}|^2 + |\chi_{yyy}|^2 - 2|\chi_{yxx}||\chi_{yyy}|\cos(\arg(\chi_{yxx}) - \arg(\chi_{yyy})). \quad (4.4)$$

Аппроксимация экспериментальных данных, представленных на рис. 4.3) и рис. 4.4 (а) при каждой длине волны дает систему уравнений для относительных амплитуд и фаз компонент тензора квадратичной восприимчивости. Система уравнений была решена численно в пакете Wolfram. Mathematica, в результате чего были получены спектры  $|\chi_{yxx}|$ ,  $|\chi_{xxy}|$ ,  $|\chi_{yyy}|$  (в относительных единицах),  $\arg(\chi_{yxx}) - \arg(\chi_{xxy})$  и  $\arg(\chi_{yyy}) - \arg(\chi_{xxy})$  (рис. 4.4 (б,в)).

Очевидно, что амплитуды и фазы компонент демонстрируют немонотонную зависимость от длины волны вблизи 860 нм, что близко к резонансу при  $\lambda = 890$  нм (рис. 4.2 (б)). Это связано с перераспределением локального электрического поля на частоте накачки в структуре, а в результате приводит к спектрально-зависимой анизотропии ВГ. Другой сильный эффект, определяющий квадратичный нелинейно-оптический отклик - изменение фазы между компонентами  $\hat{\chi}^{(2)}$  (рис. 4.4 (в)). Очевидно, что разность фаз между  $\chi_{yxx}$  и  $\chi_{yyy}$  существенно увеличивается при сдвиге длины волны накачки в красную область, что следует из разницы красной и черной кривых на рис. 4.4 (в). Такое увеличение разности фаз возникает вследствие различных спектральных зависимостей  $x$ - и  $y$ -компонент локального поля в структуре в диапазоне  $\lambda$  между резонансами с разным пространственным распределением электрического поля в наноэлементах.

Небольшой азимутальный сдвиг максимума анизотропных зависимостей (хорошо виден на рис. 4.3 (б)), вероятно, связан с нелокальностью отклика ВГ или с перераспределением поля на частоте накачки.

Таким образом продемонстрировано, что в резонансных структурах анизотропия ВГ определяется не только формой наноэлементов, но и распределением поля накачки в структуре, которое существенно зависит от длины волны.



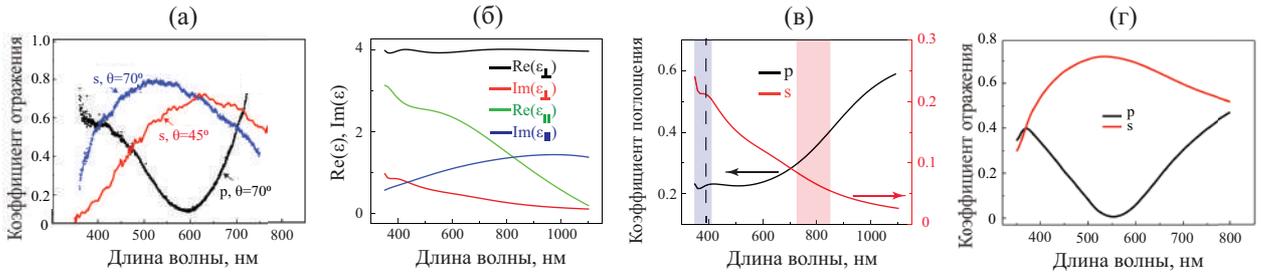
**Рис. 4.5.** (а) Схема структуры; (б) изображения скола и поверхности массива наностержней в сканирующем электронном микроскопе; (в) гистерезис МО отклика в геометрии МО эффекта Керра.

#### 4.1.2. Массивы никелевых наностержней

##### Изготовление и характеристика образцов

Массивы никелевых наностержней (рис. 4.5 (а)) были изготовлены в Королевском Колледже, г. Лондон, методом электрохимического травления пористого алюминия с последующим электроосаждением никеля в поры [113]. Сначала методом магнетронного распыления была изготовлена пленка алюминия на буферном слое из Au и Ta, нанесенном на кремниевую подложку, что необходимо для хорошей адгезии и предотвращения отслаивания алюминия [208]. Формирование пор производилось методом электрохимического травления в растворе серной кислоты при постоянном напряжении в ячейке с алюминиевым анодом и платиновым катодом. Во время реакции электролит был охлажден до  $275^\circ\text{K}$  и проводился постоянный контроль температуры. Таким образом был получен темплат анодного оксида алюминия с порами диаметром 20 нм и характерным расстоянием между их центрами 40 нм, что соответствует пористости около 20%. Электроосаждение никеля происходило в течение 60 с, при этом высота наностержней составила 175 нм. Геометрические параметры полученной структуры оценивались с помощью СЭМ (рис. 4.5 (б)).

Характеризация магнитных свойств образцов была проведена методом меридионального МО эффекта Керра, гистерезис керровского вращения представленный на рис. 4.5 (в), демонстрирует ферромагнитные свойства исследуемого массива наностержней, причем насыщающее поле при намагничивании в плоскости образца составляет около 1 кГс.



**Рис. 4.6.** (а) Спектры линейного коэффициента отражения образца массива наностержней (эксперимент); (б) спектры компонент тензора диэлектрической проницаемости, рассчитанные в рамках модели эффективной среды; (в) спектры поглощения структуры при  $p$ - (черная кривая, левая ось) и  $s$ -поляризованном (красная кривая, правая ось) излучении накачки (без учета подложки) при  $\theta = 70^\circ$ , на рисунке выделены области перестройки накачки и ВГ Ti:Sa лазера; (г) спектры отражения структуры, рассчитанные методом матриц распространения (с учетом подложки) при  $\theta = 70^\circ$ .

## Линейные оптические свойства

Линейные спектры отражения структуры представлены на рис. 4.6 (а) для углов падения  $45^\circ$  и  $70^\circ$ . Легко видеть, что в случае  $s$ -поляризованного излучения накачки спектр отражения смещается в коротковолновую область примерно на 100 нм при увеличении угла падения.

## Расчеты линейного оптического отклика

Расчеты спектрального положения резонансов изолированного никелевого стержня, окруженного оксидом алюминия (в качестве модели вместо стержня был взят эллипсоид с близким аспектным отношением) показали, что поперечный плазмонный резонанс возбуждается на длине волны около 290 нм, а продольный - на длине волны около 2000 нм.

Однако известно, что коллективные эффекты приводят к сближению спектрального положения плазмонных резонансов в наночастицах [33]. Для расчета свойств массива наностержней можно пользоваться моделями эффективной среды (Максвелла-Гарнетта, Бруггемана и др.), которые предполагают, что композитный изотропный материал характеризуется эффективной диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_{eff}$ , которая задает связь между электрической индукцией и полем в среде:  $\langle \mathbf{D} \rangle = \epsilon_{eff} \langle \mathbf{E} \rangle$ , где угловые скобки обозначают усреднение по объему материала [209]. Для анизотропных сред можно ввести тензор эффективной диэлектрической

проницаемости  $\hat{\epsilon}_{eff}$ .

Были рассчитаны спектры составляющих тензора эффективной диэлектрической проницаемости  $\epsilon_{\perp}$  и  $\epsilon_{\parallel}$  (здесь и далее индекс *eff* опущен для краткости) для двухкомпонентного ГММ “массив никелевых наностержней в матрице анодного оксида алюминия (АОА)” в рамках модели Максвелла-Гарнетта, обобщенной на случай анизотропной среды [112]:

$$\epsilon_i = \epsilon_{AOA} \left( 1 + \frac{f\alpha_i}{1 - f\alpha_i\gamma} \right), i = \parallel, \perp, \quad (4.5)$$

где  $\gamma = 1/3$ ,  $f$  - объемная доля металла, а компоненты удельной поляризуемости ГММ  $\alpha_i$  были вычислены по формуле:

$$\alpha_i = \frac{\epsilon_{Ni} - \epsilon_{AOA}}{L_i(\epsilon_{Ni} - \epsilon_{AOA}) + \epsilon_{AOA}}, i = \parallel, \perp. \quad (4.6)$$

Значения диэлектрической проницаемости никеля и АОА,  $\epsilon_{Ni}$  и  $\epsilon_{AOA}$ , были взяты из [210] (хотя, вообще говоря,  $\epsilon_{Ni}$  электроосажденного золота может немного отличаться от приведенных в этой книге значений для объемного Ni). Компоненты тензора деполяризации были вычислены по формулам:  $L_{\parallel} = \frac{1-e^2}{e^2} \left( \frac{1}{2e} \ln\left(\frac{1+e}{1-e}\right) - 1 \right)$ ,  $L_{\perp} = \frac{1-L_{\parallel}}{2}$ ,  $e = 1 - d^2/l^2$ . Диаметр  $d$  и длина  $l$  наностержней были взяты из статистического анализа СЭМ изображений **4.5**. Приведенные формулы справедливы только для случая  $d < l$ .

Результаты расчетов компонент тензора диэлектрической проницаемости эффективной пленки представлены на рис. **4.6** (б). Видно, что структура является сильно анизотропной, но все компоненты эpsilon положительны, т.е. гиперболический режим дисперсии в исследуемом спектральном диапазоне не реализуется.

Были рассчитаны спектры поглощения структуры (без учета подложки) для *p*- и *s*-поляризованного излучения накачки в рамках модели эффективной среды при  $\theta = 70^\circ$ . В расчетах не учитывалась многолучевая интерференция в пленке. В обоих случаях наблюдается низкодобротная особенность - небольшое усиление пропускания на длине волны около 380 нм, которое, по-видимому, связано с возбуждением плазмонного резонанса электрическим полем, направленным поперек наностержней. В остальных спектрах монотонны, причем в спектральной области  $\lambda > 400$  нм при *p*-поляризованном излучении накачки поглощение больше, чем при

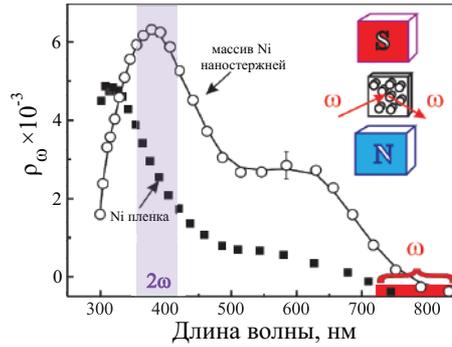
$s$ –поляризованном. По-видимому, это связано с тем, что с увеличением длины волны увеличивается эффективность возбуждения резонанса вдоль наностержней, который, согласно расчетам, находится при  $\lambda \sim 1150$  нм. Длинноволновый резонанс может возбуждаться только при наклонном падении  $p$ –поляризованного излучения накачки, т.е. когда есть ненулевая компонента поля накачки вдоль оси  $OZ$  (система координат показана на рис. 4.5 (а)). Оба резонанса низкодобротны из-за высоких омических потерь в никеле.

Методом матриц распространения были рассчитаны спектры отражения структуры в рамках модели эффективной среды с использованием спектров компонент диэлектрической проницаемости на рис. 4.6 (б) при  $\theta = 70^\circ$  с учетом влияния кремниевой подложки, результат представлен на рис. 4.6 (г). Зависимости коэффициента отражения от длины волны света качественно похожи на экспериментальные (рис. 4.6 (а)), различия расчетных и экспериментальных значений коэффициента отражения могут быть связаны с такими факторами как: (i) оптические свойства электроосажденного никеля отличаются от свойств объемного никеля, которые приведены в литературе, (ii) неоднородностью образца, (iii) границами применимости модели эффективной среды и др.

Качественный вид экспериментального и расчетного спектров отражения (наличие максимума отражения  $s$ –поляризованного света и минимума отражения  $p$ –поляризованного в области длин волн 500-600 нм) объясняется многолучевой интерференцией в эффективной пленке, состоящей из никелевых наностержней и алюминиевой матрице. При этом возбуждение плазмонов методом линейной оптической спектроскопии не детектируется, что связано, по видимому, с их низкой добротностью.

## Линейный МО эффект Керра

Экваториальный МОЭК был исследован в группе Е.А. Ганьшиной на кафедре магнетизма Физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова. Для этого применялась модуляционная методика, к структуре было приложено переменное магнитное поле амплитудой 3 кГс. Детектировалось отраженное от образца  $p$ –поляризованное излучение, полезный сигнал выделялся на частоте модуляции магнитного поля и определялся магнитный контраст,  $\rho_\omega$ . Измерения были проведены в спектральном диапазоне от 300



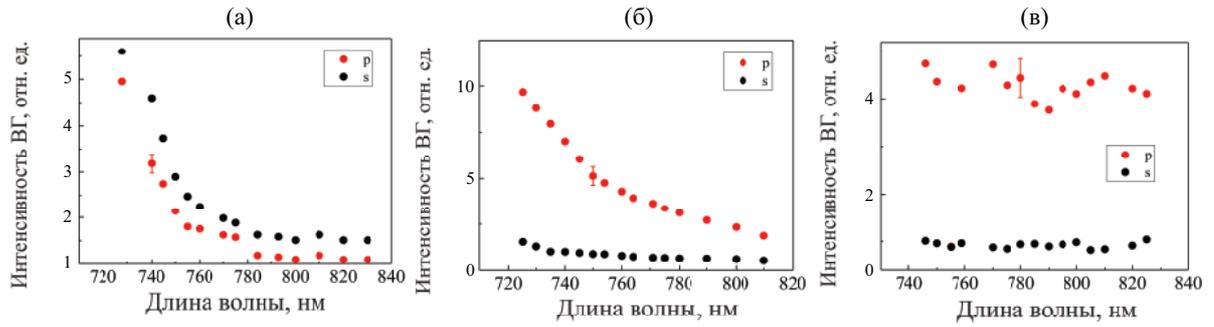
**Рис. 4.7.** Спектры экваториального МО эффекта Керра для массива наностержней и сплошной никелевой пленки при  $\theta = 68^\circ$ . Фиолетовым цветом выделена область перестройки ВГ Ti:Sa лазера.

до 850 нм, угол падения составлял  $68^\circ$ .

Спектр магнитного контраста метаматериала, представленный на рис. 4.7, демонстрирует максимум в районе 380 нм, что близко к возбуждению плазмонного резонанса в никелевых наностержнях при колебаниях электронного газа перпендикулярно их осям. Широкий пик в районе 600 нм соответствует резонансу Фабри-Перо в эффективной пленке анизотропного материала при данном угле падения (рис. 4.6 (а), черная кривая). Эта мода определяется параметрами эффективной среды и ее толщиной. Следует отметить, что вдали от резонансов (как от плазмонного, так и от интерференционного) величина магнитного контраста относительно мала, что может быть связано с низкой долей никеля в исследуемой пленке (остальные составляющие метаматериала немагнитны). Поскольку магнитный контраст оптического отклика определяется отношением магнитной и немагнитной компонент эффективной диэлектрической проницаемости, он имеет максимум в районе 600 нм, т.е. в окрестности минимума спектра отражения, обусловленного многолучевой интерференцией в пленке. В то же время, гладкая однородная пленка никеля той же толщины демонстрирует более низкую величину магнитного контраста, несмотря на большее количество магнитного материала (рис. 4.7). Похожие спектры МО эффекта Керра были получены для массива никелевых наностержней в работе [211].

## Генерация ВГ

Из-за непрозрачности кремниевой подложки генерация оптической второй гармоники исследовалась в геометрии “на отражение” на установ-

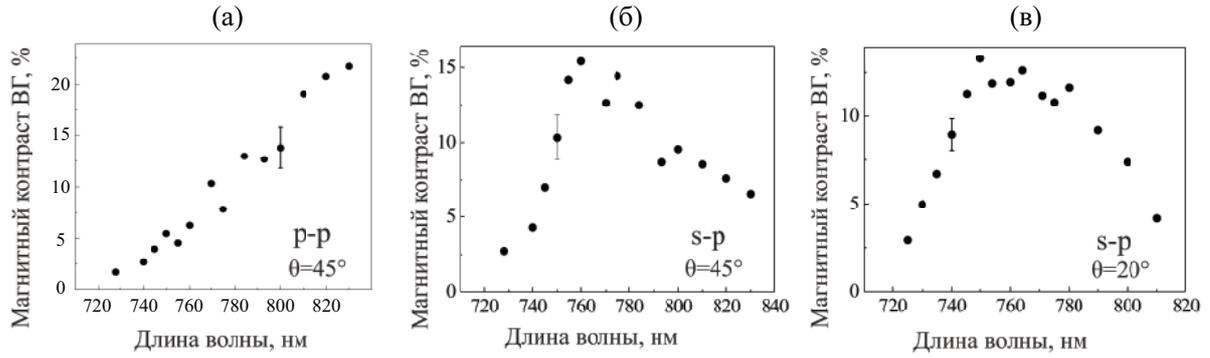


**Рис. 4.8.** Спектры интенсивности ВГ при  $p$ - (красные точки) и  $s$ -поляризованном (черные точки) зондирующем излучении. Углы падения: (а)  $20^\circ$ , (б)  $45^\circ$ , (в)  $70^\circ$ .

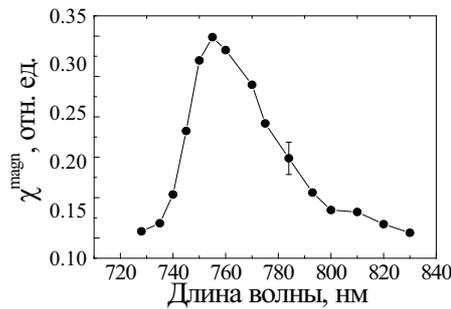
ке, представленной на рис. 1.21. Были проведены эксперименты при различных углах падения  $p$ - и  $s$ -поляризованного света на образец. Обнаружено, что волна ВГ наблюдается только в направлении зеркального отражения и является  $p$ -поляризованной. Эти свойства нелинейно-оптического отклика на удвоенной частоте указывают на когерентный механизм генерации, а следовательно, применимость модели эффективной среды и тензора квадратичной восприимчивости для описания исследуемого изотропного в плоскости слоя материала.

На рисунке 4.8 (а) представлен спектр интенсивности ВГ, измеренный при  $s$ -поляризованном излучении накачки с длиной волны 730-830 нм, угол падения составлял  $20^\circ$  градусов. Экспериментальные данные показывают, что интенсивность ВГ убывает при увеличении длины волны накачки. Похожие зависимости наблюдаются при других углах падения и линейных поляризациях зондирующего излучения (рис. 4.8 (б, в)) - спектры  $I_{2\omega}$  монотонны и не демонстрируют резонансных особенностей. Вид спектров можно объяснить лишь угловыми зависимостями коэффициентов Френеля для выбранной поляризации излучения накачки, в соответствии с линейными спектрами отражения на частотах накачки и ВГ (рис. 4.6).

Магнитоиндуцированный отклик ВГ был измерен в экваториальной геометрии при приложении насыщающего статического магнитного поля. На рисунке 4.9 показаны спектры магнитного контраста ВГ  $\rho_{2\omega}$ , измеренные для  $p$ -поляризованного квадратичного отклика при накачке  $s$ - или  $p$ -поляризованным светом. Видно, что для  $s$ -поляризованного падающего света наблюдается максимум магнитного контраста ВГ в районе 760 нм (рис. 4.9 (б, в)) для углов падения  $20^\circ$  и  $45^\circ$ . С другой стороны, спектры  $\rho_{2\omega}$ , измеренные при обоих углах падения  $p$ -поляризованного излучения



**Рис. 4.9.** Спектры магнитного контраста ВГ при  $p$ - (а) и  $s$ -поляризованном (б,в) зондирующем излучении. Углы падения: (а), (б) -  $45^\circ$ , (в) -  $20^\circ$ .



**Рис. 4.10.** Спектр магнитоиндуцированной компоненты тензора квадратичной восприимчивости  $\chi_{xy}^{magn}$ ,  $\theta = 45^\circ$ .

накачки, монотонно возрастают с увеличением длины волны (рис. 4.9 (а)). Здесь следует отметить, что, во-первых, длина волны, соответствующая максимуму магнитного контраста ВГ, в 2 раза превосходит длину волны, где наблюдается максимум линейного  $\rho_\omega$ ; во-вторых, длина волны, соответствующая максимуму  $\rho_{2\omega}$ , не зависит от угла падения  $s$ -поляризованного излучения накачки, т.е. эффект усиления  $\rho_{2\omega}$  не может быть связан с интерференцией в эффективной пленке.

В соответствии с (1.46), чтобы узнать отношение магнитоиндуцированной компоненты поля ВГ к немагнитной компоненте,  $\frac{|\mathbf{E}_{2\omega}^{magn}|}{|\mathbf{E}_{2\omega}^{cr}|}$ , помимо величины магнитного контраста  $\rho_{2\omega}$  необходимо также определить разность фаз  $\Phi$ . Ее можно определить экспериментально методом интерферометрии второй гармоники при противоположных ориентациях внешнего магнитного поля. Такие измерения были проведены при  $s$ -поляризованном излучении накачки на длине волны 785 нм и разных углах  $\theta$ . Обнаружено, что разность фаз  $\Phi$  не превышает  $2^\circ$  для всех  $\lambda$  и  $\theta$ . В этом случае, полагая  $\Phi \sim 0$ , получаем что  $\frac{\chi_{odd}}{\chi_{even}} = \frac{\rho_{2\omega}}{2}$ . Тогда спектр магнитоиндуцированного

вклада во вторую гармонику можно рассчитать путем домножения спектра  $\rho_{2\omega}$  на спектр немагнитной компоненты поля во второй гармонике (квадратный корень из спектра интенсивности ВГ). Результат для  $\theta = 45^\circ$  показан на рис. 4.10. Видно существенное усиление магнитоиндуцированного нелинейно-оптического вклада в районе длины волны излучения накачки 760 нм.

## Обсуждение результатов

Прежде всего заметим, что в исследуемой структуре возможно возбуждение двух плазмонных мод: вдоль и поперёк оси стержня. Результаты расчёта поглощения, а также, спектр  $\rho_\omega$  свидетельствуют о том, что резонансная длина волны поперечной моды составляет около 380 нм. Усиление линейного МО отклика при возбуждении локального поверхностного плазмона связано с увеличением плотности фотонных состояний и повышением эффективности взаимодействия света с резонансной средой. В немагнитном линейном отклике возбуждение поперечного плазмонного резонанса не наблюдается в силу его низкой добротности на фоне эффектов, обусловленных многолучевой интерференцией в эффективной среде, содержащей массив наностержней.

Прежде чем обсуждать особенности нелинейного отклика, отметим что падающая на образец *s*-поляризованная волна может возбуждать только поперечный резонанс, в то время как *p*-поляризованное лазерное излучение возбуждает оба плазмона, но преимущественно поперечную моду при малых углах падения и продольную при больших.

Рассмотрим симметрию магнитоиндуцированной и кристаллографической компонент поля второй гармоники с учётом факторов локального поля. Введём систему координат, где ось *OZ* параллельна осям наностержней (нормальна к поверхности структуры), оси *OX* и *OY* лежат в плоскости образца, причём ось *OY* перпендикулярна плоскости падения (рис. 4.5 (а)). Тогда при *s*-поляризованном излучении накачки и *p*-поляризованном излучении ВГ имеем:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_{2\omega} &= \mathbf{E}_{2\omega}^{cr} + \mathbf{E}_{2\omega}^{magn} \\ E_{2\omega}^{cr} &= E_{2\omega,z} \propto \chi_{zyy}^{cr} E_{\omega,y} E_{\omega,y} L_{\omega,y}^2 L_{2\omega,z} \propto L_{\omega,\perp}^2 L_{2\omega,\parallel}, \\ E_{2\omega}^{magn} &= E_{2\omega,x} \propto \chi_{xyy}^m E_{\omega,y} E_{\omega,y} L_{\omega,y}^2 L_{2\omega,x} \propto L_{\omega,\perp}^2 L_{2\omega,\perp}. \end{aligned} \quad (4.7)$$

В окрестности длины волны 380 нм фактор локального поля  $L_{2\omega,\perp}$  является резонансным, в то время как остальные факторы локального поля в выражении (4.7) нерезонансные в исследуемом спектральном диапазоне. В таком случае должно наблюдаться усиление магнитоиндуцированной второй гармоники по отношению к немагнитному отклику на длине волны лазерного излучения 760 нм, что и было экспериментально зарегистрировано (см. рис. 4.10, 4.9 (б,в)). Заметим, что в спектре магнитного контраста не проявляются спектральные особенности, связанные с интерференцией волны накачки в эффективной плёнке.

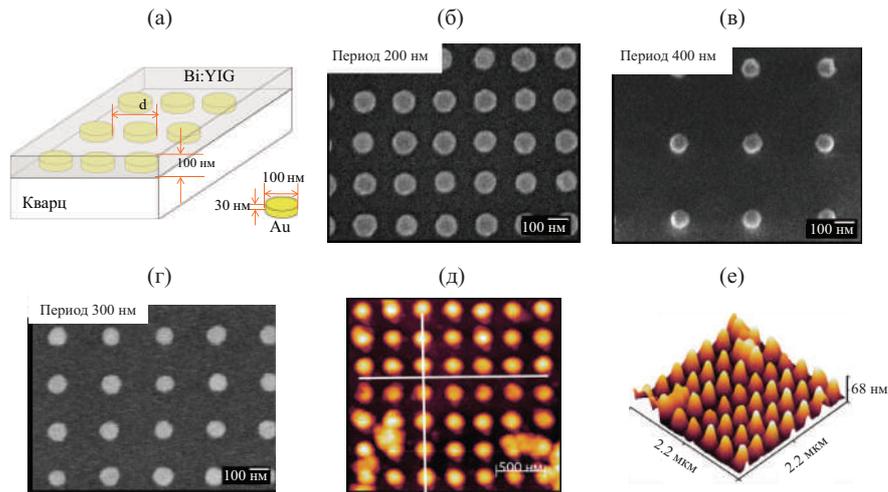
При  $p$ -поляризованном излучении накачки и  $p$ -поляризованном излучении ВГ имеем:

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}_{2\omega} &= \mathbf{E}_{2\omega}^{cr} + \mathbf{E}_{2\omega}^{magn} \\
E_{2\omega,z}^{cr} &\propto \chi_{zzz}^{cr} E_{\omega,z} E_{\omega,z} L_{\omega,z}^2 L_{2\omega,z} + \chi_{zxx}^{cr} E_{\omega,x} E_{\omega,x} L_{\omega,x}^2 L_{2\omega,z} \propto L_{\omega,\parallel}^2 L_{2\omega,\parallel} + L_{\omega,\perp}^2 L_{2\omega,\parallel}, \\
E_{2\omega,x}^{cr} &\propto \chi_{xxz}^{cr} E_{\omega,z} E_{\omega,x} L_{\omega,z} L_{\omega,x} L_{2\omega,x} \propto L_{\omega,\parallel} L_{\omega,\perp} L_{2\omega,\perp}, \\
E_{2\omega}^{magn} &= E_{2\omega,x} \propto \chi_{xxx}^m E_{\omega,x} E_{\omega,x} L_{\omega,x}^2 L_{2\omega,x} \propto L_{\omega,\perp}^2 L_{2\omega,\perp}.
\end{aligned} \tag{4.8}$$

Таким образом, при  $p$ -поляризованном излучении накачки резонансный множитель  $L_{2\omega,\perp}$  есть и в магнитном, и в немагнитном отклике. Поэтому в спектре магнитного контраста (рис. 4.9 (а)), который пропорционален отношению  $\frac{|E_{2\omega}^{magn}|}{|E_{2\omega}^{cr}|}$ , не наблюдается усиление магнитного нелинейно-оптического отклика.

Следует также отметить, что несмотря на то, что в выражение  $E_{2\omega,x}^{cr}$  в (4.8) входит резонансный множитель  $L_{2\omega,\perp}$ , усиление немагнитной ВГ при этом не наблюдается (см. рис. 4.8). Это, по-видимому, тоже связано с низкой добротностью плазмонного резонанса на фоне сильных интерференционных эффектов.

Итак, было показано, при возбуждении плазмонного резонанса наблюдается усиление магнитного нелинейно-оптического отклика, тогда как в спектре интенсивности немагнитной ВГ не наблюдаются резонансные особенности. Таким образом, метод генерации магнитоиндуцированной ВГ является более чувствительным к резонансным свойствам структуры, чем исследование кристаллографического квадратичного нелинейно-оптического отклика.

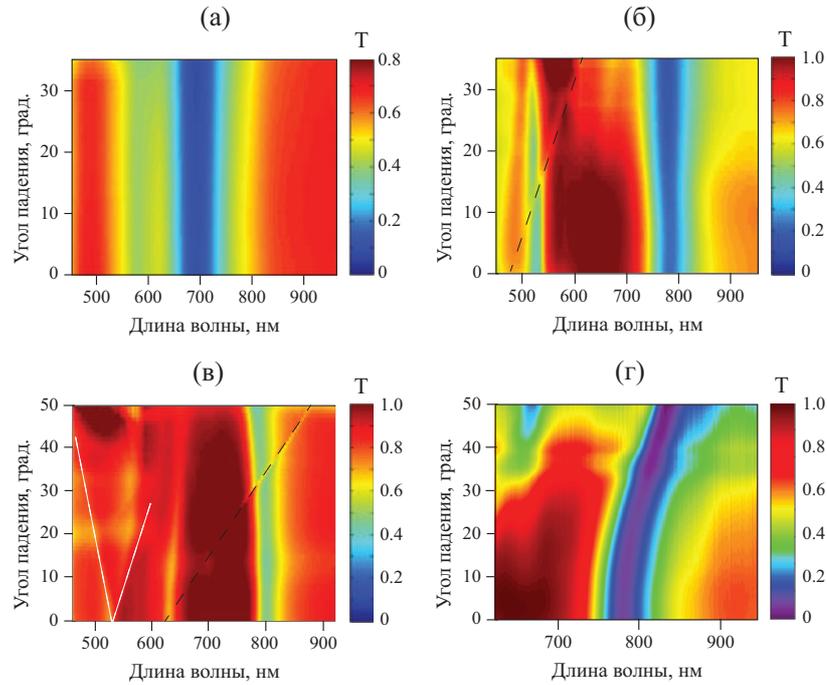


**Рис. 4.11.** Двумерные массивы золотых нанодисков в слое Bi:YIG: (а) схема структуры; (б,в,г) - РЭМ-изображения массивов с периодами 200, 400 и 300 нм, соответственно, до отжига; (д,е) АСМ-изображения массива с периодом 300 нм после отжига.

## § 4.2. Решеточный (дифракционный) поверхностный плазмон

### 4.2.1. Исследуемые структуры

Структуры были изготовлены в Технологическом университете г. То-яхаши, Япония (Toyoashi University of Technology). Двумерная квадратная решетка золотых нанодисков толщиной 30 нм и диаметром 100 нм была изготовлена методом электронной литографии на кварцевой подложке [177] (рис. 4.11 (а)). Далее наносился слой висмут-замещённого железиттриевого граната (Bi:YIG) толщиной 100 нм и проводился отжиг полученной структуры при температуре 700°C для кристаллизации граната. Были изготовлены и исследованы три структуры с периодами решетки  $d = 200$  нм, 300 нм и 400 нм. Их изображения в растровом электронном микроскопе (РЭМ) до отжига приведены на рис. 4.11 (б,в,г). Видна хорошая периодичность и пространственная однородность структуры. После отжига частицы оказались несколько деформированы, однако периодичность массива золотых наночастиц сохранилась, что подтверждено методом атомно-силовой микроскопии (рис. 4.11 (д,е)).



**Рис. 4.12.** Частотно-угловые спектры пропускания структур с периодом (а) 200 нм, (б) 300 нм, (в) 400 нм при  $p$ -поляризованном излучении накачки. Дисперсионные кривые для волноводных мод и ППП изображены черными и белыми пунктирными линиями, соответственно; (г) спектр пропускания структуры с периодом 300 нм при  $s$ -поляризованном излучении накачки.

## 4.2.2. Оптические свойства

### Экспериментальные результаты

Частотно-угловые спектры пропускания образцов, измеренные на установке (рис. 1.19), представлены на рис. 4.12. Во всех трех массивах при  $p$ -поляризованном излучении накачки наблюдаются минимумы пропускания, спектральное положение которых не зависит от угла падения излучения накачки  $\theta$ , однако смещается в длинноволновую область при увеличении периода структуры  $d$ . Резонансные длины волн составляют: 690 нм для структуры с периодом  $d = 200$  нм, 530 и 780 нм для структуры с периодом  $d = 300$  нм, 630 и 800 нм для структуры с периодом  $d = 400$  нм (рис. 4.12). Однако, при  $s$ -поляризованном зондирующем излучении спектральное положение минимума пропускания смещается в длинноволновую область при увеличении угла падения, как видно из рис. 4.12 (г) для структуры с  $d = 300$  нм. Кроме того, видны узкие минимумы, спектральное положение которых существенно зависит от  $\theta$ , их природа будет обсуждена ниже.

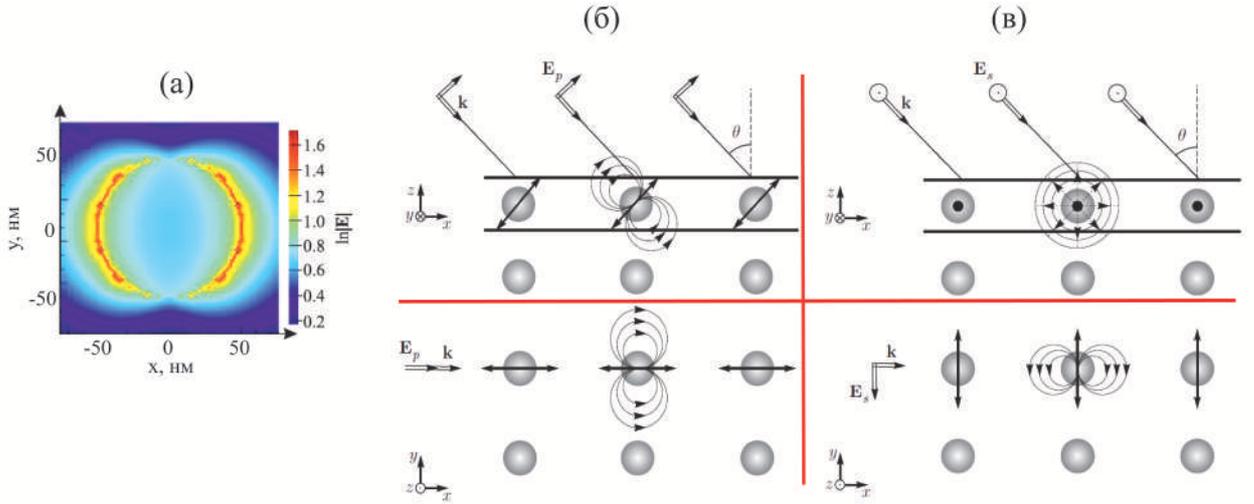
## Обсуждение

Следуя рассмотрению, проведенному в работах [35, 36, 37], спектральная особенность, зависящая от периода планарного массива и от поляризации зондирующего излучения, - это поверхностный решеточный (дифракционный) плазмонный резонанс. Действительно, под влиянием внешнего линейно поляризованного электромагнитного поля световой волны в наночастицах золота наводятся диполи, сонаправленные с напряженностью электрического поля (расчет пространственного распределения напряженности электрического поля в массиве с периодом 400 нм представлен на рис. 4.13 (а)). Они излучают в направлении, перпендикулярном направлению колебаний диполей [30]. При рассмотрении массива наноструктур необходимо учитывать взаимодействие между диполями. Ближнепольное взаимодействие наблюдается, когда расстояние между частицами составляет несколько десятков нанометров [212], а в нашем случае можно рассматривать образец как ансамбль независимо излучающих диполей [37, 213]. Интерференция полей диполей определяет спектральное положение минимума пропускания. При увеличении периода структуры оптическая разность хода между соседними частицами  $dn_{YIG}$  увеличивается ( $n_{YIG} = 2.17$  на длине волны 800 нм), поэтому увеличивается  $\lambda$ , соответствующая резонансу.

Пусть  $XOZ$  - плоскость падения,  $XOY$  - плоскость массива (рис. 4.13 (б)). При возбуждении структуры  $p$ -поляризованным светом диполи осциллируют вдоль направления напряженности падающего поля и интерференция их откликов в направлении оси  $OY$  не зависит от угла падения. При увеличении  $\theta$  происходит уменьшение  $x$ -компоненты падающего электрического поля, а, следовательно, величины диполя, что приводит к небольшому уменьшению добротности резонанса. Длина волны, соответствующая возбуждению решеточного плазмона, удовлетворяет соотношению (1.23). Значения эффективного показателя преломления исследуемых пленок были вычислены в рамках теории Максвелла-Гарнетта в работе [40]:

$$n_{eff}^2 = n_{YIG}^2 \left( 1 - \frac{3V(n_{YIG}^2 - \epsilon_{Au})}{2n_{YIG}^2 + \epsilon_{Au} + V(n_{YIG}^2 - \epsilon_{Au})} \right), \quad (4.9)$$

где  $V$  - объемная доля золота, значения показателей преломления  $Bi:YIG$  и золота взяты из книги [210]. В массиве с  $d = 200$  нм наблюдаемый мини-



**Рис. 4.13.** (а) Результат расчета пространственного распределения напряженности электрического поля в массиве частиц с периодом 400 нм, электрическое поле накачки ориентировано вдоль оси  $OX$ ; (б,в) схема возбуждения решеточного плазмонного резонанса в 2D массиве при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки, соответственно [214].

мум пропускания на длине волны 690 нм соответствует первому порядку дифракции. В массиве с  $d = 300$  нм минимумы на длинах волн 530 и 780 нм соответствуют  $m = 2$  и  $m = 1$ . В структуре с  $d = 400$  нм наблюдаемые минимумы при  $\lambda = 640$  и 800 нм соответствуют  $m = 2$  и  $m = 1$ , соответственно.

Для  $s$ -поляризованного излучения накачки спектр пропускания структуры определяется интерференцией полей диполей в направлении оси  $OX$ , при этом с ростом  $\theta$  увеличивается оптическая разность хода лучей между соседними частицами и резонансная длина волны сдвигается в красную область, что и наблюдается в эксперименте [38, 39] (схема на рис. 4.13 (в)).

Длина волны, при которой возбуждается решеточный резонанс при  $s$ -поляризованном излучении накачки, определяется соотношением [214]:

$$\lambda = \lambda_{\theta=0} + \frac{d \sin^2 \theta}{n_{eff}}. \quad (4.10)$$

Изменение спектрального положения длины волны решеточного плазмона при изменении угла падения света на структуру, наблюдаемое в эксперименте (рис. 4.12 (г)), соответствует выражению (4.10).

В массивах с периодами  $d = 300$  и 400 нм в исследуемом спектральном диапазоне наблюдается также высокодобротная особенность, положе-

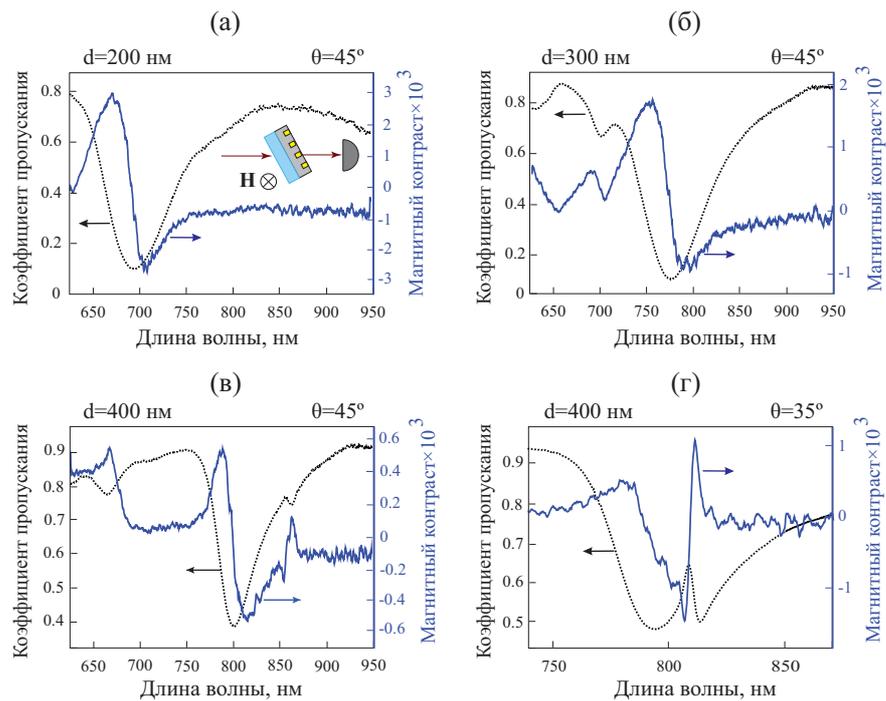
ние которой смещается в длинноволновую область спектра при увеличении угла падения. Вероятно, это волноводная мода (ВМ), возбуждаемая в диэлектрическом слое за счет наличия в структуре решетки золотых частиц. Ее закон дисперсии не зависит от поляризации излучения накачки и описывается выражением:

$$k_{wg} = k_0 \sin\theta + 2\pi m/d, \quad (4.11)$$

где  $\mathbf{k}_0$ -волновой вектор падающего излучения,  $m$  - целое число,  $d$  - период решетки. На рис. 4.12 (б,в) черными пунктирными линиями показаны рассчитанные законы дисперсии ВМ в исследуемой структуре. Для расчета были взяты значения  $m=1$ ,  $d=385$  нм, эффективный показатель преломления  $n_{eff} = 2.15$  [40].

Поскольку спектральное положение ВМ, в отличие от положения РПП при  $p$ -поляризованном излучении накачки, существенно зависит от  $\theta$ , взаимным спектральным положением этих двух резонансных особенностей можно управлять выбором угла падения. При  $\theta < 28^\circ$  ВМ находится далеко от РПП и проявляется как минимум в спектре пропускания, тогда как при углах падения  $28^\circ \div 40^\circ$  - как максимум, что связано с деструктивной интерференцией вкладов плазмона и ВМ [215] в прошедший через структуру оптический отклик. Аналогичный эффект наблюдался в упорядоченной 2D структуре золотых частиц, расположенных на слое ИТО [35]. При дальнейшем увеличении угла падения ВМ снова проявляется как минимум в спектре пропускания.

Следует отметить, что в спектре пропускания образца с  $d = 400$  нм есть также особенность в районе длин волн 500-600 нм (рис. 4.12 (в)). Согласно расчетам, в этом спектральном диапазоне наблюдается возбуждение ППП, их дисперсионные кривые, рассчитанные по формулам (1.24) и (1.25) при  $G_1 = G_2 = \frac{2\pi}{d}$  и  $\mathbf{G}_1 \perp \mathbf{G}_2$ , изображены белым пунктиром на рис. 4.12 (в). Однако в данном разделе не будем касаться рассмотрением особенностей магнитооптического и нелинейно-оптического отклика при возбуждении ППП.



**Рис. 4.14.** Спектры пропускания (черные кривые) и магнитного контраста (синие кривые) при угле падения  $p$ -поляризованного зондирующего излучения  $45^\circ$  для массивов с периодами (а)  $d = 200$  нм, (б)  $d = 300$  нм, (в)  $d = 400$  нм. (г) Спектры пропускания (черная кривая) и магнитного контраста (синяя кривая) при угле падения зондирующего излучения  $35^\circ$  для структуры с периодом с  $d = 400$  нм.

### 4.2.3. Магнитооптический отклик

#### Экспериментальные результаты

Магнитооптические измерения были проведены при приложении внешнего насыщающего [177] магнитного поля 3 кГс в геометрии Фохта. На рис. 4.14 (а-в) приведены спектры магнитного контраста исследуемых массивов, измеренные при  $\theta=45^\circ$ . Для удобства анализа полученных данных они совмещены со спектрами пропускания при том же угле падения. Видно, что в спектральной окрестности плазмонного резонанса для всех трех структур наблюдается возрастание  $\rho_\omega$ , сопровождающееся сменой знака магнитного контраста. При этом необходимо отметить, что величина  $\rho_\omega$  как в области резонанса, так и вдали от него различна для структур с разными периодами решетки: МО эффект достигает максимальных значений для структуры с наименьшим периодом.

#### Обсуждение результатов

Напомним, что линейный по намагниченности интенсивностный эффект в геометрии Фохта в пленке с симметричными границами наблюдаться не должен [125]. В исследуемых структурах границы пленки  $\text{Vi:YIG}$  несимметричны из-за наличия на интерфейсе с кварцем золотых нанодисков. При уменьшении периода массива возрастает поверхностная плотность золота на границе с кварцем, что увеличивает разницу коэффициентов Френеля на границах магнитной пленки, а, следовательно, приводит к возрастанию магнитного контраста. Вблизи спектрального положения решеточного плазмона  $\rho_\omega = 3 \cdot 10^{-3}$ ,  $1.5 \cdot 10^{-3}$  и  $0.5 \cdot 10^{-3}$  для структур с  $d=200$ , 300 и 400 нм, соответственно. Изменение знака магнитного контраста при возбуждении РПР связано с магнитоиндуцированным изменением диэлектрической проницаемости ферромагнетика  $\text{Vi:YIG}$ , определяющей резонансные условия возбуждения плазмона.

Интересно также проанализировать влияние ВМ на спектральное поведение магнитного контраста. На рис. 4.12 (г) представлены спектры пропускания и  $\rho_\omega$  для массива с  $d=400$  нм при угле падения  $35^\circ$ , то есть для случая, когда волноводная мода находится в области возбуждения РПР. Наблюдается возрастание модуля магнитного контраста до 0.1%, сопровождающееся дополнительной сменой его знака. Данный эффект очевидно

определяется зависимостью закона дисперсии волноводной моды от намагниченности структуры, аналогично наблюдавшемуся для магнитоплазмонных кристаллов [216]. В данном случае наблюдается совместное влияние как решеточного плазмона, так и волноводной моды на поперечный МО эффект.

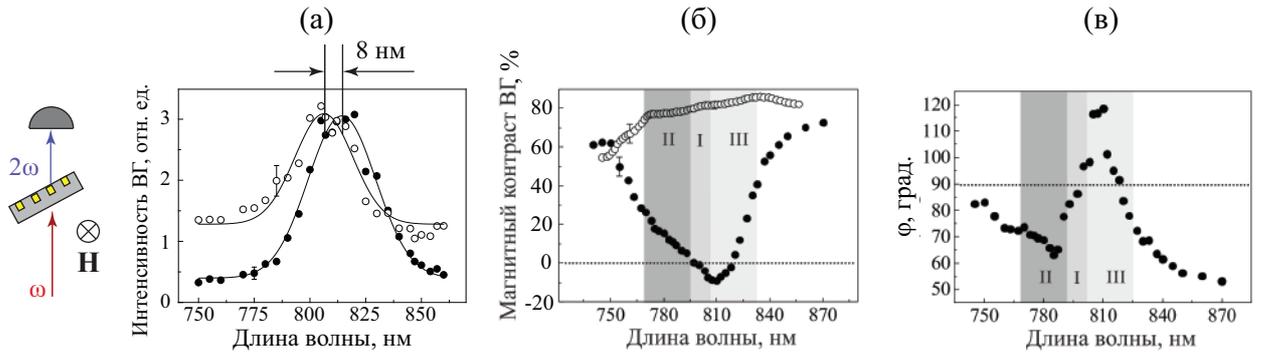
#### 4.2.4. Генерация ВГ

##### Экспериментальные результаты

Для экспериментов был выбран массив с периодом 400 нм, т.к. в нем при  $p$ -поляризованном излучении накачки возбуждается решеточный плазмон на длине волны 800 нм, что находится в середине спектральной области перестройки Ti:Sa лазера, что позволяет проводить нелинейно-оптические исследования. Насыщающее магнитное поле 2 кЭ было приложено в геометрии Фохта, то есть перпендикулярно плоскости падения (XOZ).

Спектры интенсивности второй гармоники  $I_{2\omega}(\lambda, \pm H)$ , полученные при  $p$ -поляризованном излучении накачки и угле падения  $\theta=15^\circ$  при противоположных значениях статического магнитного поля, представлены на рисунке 4.15 (а). Малый угол падения был выбран, чтобы максимизировать магнитоиндуцированный вклад в квадратичный отклик. Видно усиление интенсивности генерации ВГ в спектральной окрестности решеточного плазмонного резонанса. Более того, максимумы спектральных зависимостей  $I_{2\omega}(\lambda, \pm H)$  сдвинуты относительно друг друга примерно на 8 нм. Аналогичный эффект наблюдается при других значениях угла падения  $\theta$  - например, при  $\theta=30^\circ$  сдвиг спектральных кривых  $I_{2\omega}(\lambda, \pm H)$  составляет 3-4 нм.

Используя данные, представленные на рис. 4.14 (а), был рассчитан магнитный контраст интенсивности ВГ по формуле (1.43) для использованных в эксперименте длин волн; соответствующий спектр приведен на рис. 4.14 (б) (заполненные символы). Аналогичные измерения были проведены для однородной пленки Vi:YIG той же толщины и без золотых нанодисков; результат представлен на рис. 4.15 (б) (выколотые точки). Важно, что, несмотря на постоянный знак  $\rho_{2\omega}(\lambda)$  для однородной Vi:YIG пленки, зависимость  $\rho_{2\omega}(\lambda)$  для массива нанодисков меняет знак дважды в спектральной окрестности решеточного плазмона. В то же время, вдали от



**Рис. 4.15.** Генерация ВГ в двумерном массиве золотых нанодисков с периодом 400 нм: (а) спектры интенсивности ВГ, измеренные при противоположных направлениях поперечного магнитного поля,  $p$ -поляризованное излучение накачки, угол падения  $15^\circ$ ; (б) экспериментальный спектр магнитного контраста ВГ для массива нанодисков (заполненные точки) и сплошной пленки Bi:YIG (выколотые точки); (в) экспериментальный спектр фазы между магнитоиндуцированным и кристаллографическим полями на частоте ВГ.

резонанса значения магнитного контраста ВГ близки к тем, что получены для однородной пленки.

Как уже было сказано, измерения интенсивности ВГ не дают полной информации о магнитоиндуцированном вкладе, если отсутствуют данные о фазовых соотношениях интерферирующих полей на частоте ВГ. Чтобы выявить изменения фазы между кристаллографическим и магнитоиндуцированным нелинейными электрическими полями  $\mathbf{E}_{2\omega}^{cryst}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega}^{magn}$ , в спектральной окрестности решеточного плазмона были проведены измерения интерферометрии ВГ на установке, схематически представленной на рис. 1.23. Пленка ITO толщиной 50 нм была выбрана как референсный источник второй гармоники. Интерферограммы второй гармоники были получены при противоположных направлениях приложенного магнитного поля, затем они были аппроксимированы функцией  $I_{2\omega}(\lambda, z)(\pm H) \propto I_0 \cos(2\pi z/d(\lambda) + \Phi(\lambda, \pm H))$ , где  $d(\lambda)$  - период интерферограммы, а  $\Phi(\lambda, \pm H)$  - фаза волны второй гармоники от образца. Используя значения магнитного контраста ВГ и фазового сдвига между полями второй гармоники при противоположных значениях магнитного поля,  $\Phi = \Phi(\lambda, H) - \Phi(\lambda, -H)$  (изображен на рис. 4.16 (г)), относительный сдвиг фаз между кристаллографическим и магнитоиндуцированным полями на удвоенной частоте  $\varphi$  был вычислен в исследуемом спектральном диапазоне по формуле (1.47). Полученная зависимость изображена на рисунке 4.15 (в). Видно, что в диапазоне длин волн 740-870 нм значение  $\varphi$  существенно меняется, а на длинах волн вблизи

резонанса близко к  $\pi/2$ .

## Обсуждение результатов

Для объяснения полученных экспериментальных результатов сначала рассмотрим возможные источники кристаллографической и магнитоиндуцированной второй гармоники в спектральной окрестности решеточного плазмона. Так как все материалы, из которых состоит образец (золото, Bi:YIG и плавленый кварц), центросимметричны, то генерация второй гармоники происходит преимущественно на границах раздела Au/Bi:YIG, воздух/Bi:YIG, кварц/Bi:YIG. Последние два вклада нерезонансны, а первый резонансно возрастает при возбуждении решеточного плазмона за счет усиления локального электрического поля. Таким образом, поле кристаллографической ВГ,  $\mathbf{E}_{2\omega}^{cryst}$ , получается как сумма резонансного,  $\mathbf{E}_{2\omega,r}^{cryst}$ , и нерезонансного  $\mathbf{E}_{2\omega,n}^{cryst}$  вкладов. Аналогично, магнитоиндуцированное поле второй гармоники  $\mathbf{E}_{2\omega}^{magn} = \mathbf{E}_{2\omega,r}^{magn} + \mathbf{E}_{2\omega,n}^{magn}$ . Здесь следует сделать несколько предположений:

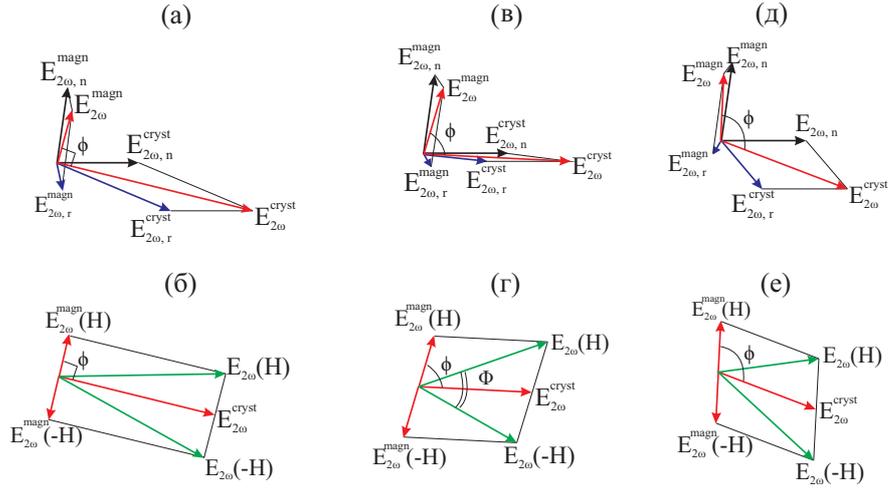
(i) амплитуды и фазы нерезонансных вкладов не имеют спектральных особенностей в исследуемом диапазоне длин волн;

(ii) амплитуды  $\mathbf{E}_{2\omega,r}^{cryst}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega,r}^{magn}$  прямо пропорциональны квадрату одного и того же фактора локального поля  $L^2(\omega)$ ;

(iii) поскольку все вещества, из которых состоит образец, являются поглощающими, фазовые сдвиги между  $\mathbf{E}_{2\omega,r}^{cryst}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega,r}^{magn}$  или между  $\mathbf{E}_{2\omega,n}^{cryst}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega,n}^{magn}$  могут быть произвольными (необязательно равны  $\pi/2$  [131]);

(iv) фазы локального поля вблизи границы раздела золото/Bi:YIG имеют противоположные значения на коротковолновом и длинноволновом краях резонанса, поэтому резонансное поле ВГ также вращается в противоположных направлениях в спектральных областях, обозначенных как (II) и (III) на рис. 4.15.

Возможные векторные диаграммы интерферирующих полей ВГ в резонансном случае (область, обозначенная (I) на рис. 4.15 (б,в)) показаны на рис. 4.16 (а,б). Черные стрелки означают нерезонансные, синие - резонансные, а красные - суммарные кристаллографическое и магнитоиндуцированное поля. Можно подобрать амплитуды и фазы полей таким образом, что угол  $\varphi$  между результирующими  $\mathbf{E}_{2\omega}^{magn}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega}^{cryst}$  окажется равным  $\pi/2$ . Как видно на схеме на рис. 4.16 (б), в таком случае экспериментально на-



**Рис. 4.16.** Комплексные амплитуды: (а,б) спектральная область (I) на рис. 4.15; (в,г) - область (II); (д,е) - область (III).

блюдаемые интенсивности  $I_{2\omega}(H) = I_{2\omega}(-H)$ , тогда магнитный контраст ВГ равен нулю (область (I) на рис. 4.15 (б,в)).

Другая ситуация наблюдается в случае, когда длина волны излучения накачки меньше резонансной (область, обозначенная (II) на рис. 4.15 (б,в)). На рис. 4.16 (в) нерезонансные вклады такие же, как и на рис. 4.16 (а), резонансные вклады меньше по модулю, а их комплексные амплитуды повернуты по часовой стрелке на один и тот же небольшой угол. Красные стрелки - результат векторного сложения соответствующих полей  $\mathbf{E}_{2\omega,n}^{magn}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega,r}^{magn}$  или  $\mathbf{E}_{2\omega,n}^{cryst}$  и  $\mathbf{E}_{2\omega,r}^{cryst}$ . Тогда  $\varphi < \pi/2$ ,  $I_{2\omega}(H) > I_{2\omega}(-H)$  (рис. 4.16 (г)) и  $\rho_{2\omega} > 0$  (область (II) на рис. 4.15 (б,в)).

Случай, когда длина волны излучения накачки больше резонансной (область (III) на рис. 4.15 (б,в)), изображен на рис. 4.16 (д). Нерезонансные вклады такие же, как на рис. 4.16 (а), резонансные - меньше по модулю и повернуты против часовой стрелки на один и тот же угол. Здесь  $\varphi > \pi/2$ ,  $I_{2\omega}(H) < I_{2\omega}(-H)$  (рис. 4.16 (е)) и  $\rho_{2\omega} < 0$  (область (III) на рис. 4.15 (б,в)). По-видимому, приложение насыщающего магнитного поля приводит к спектральным изменениям фазы ВГ, что, в свою очередь, объясняет наблюдаемый спектральный сдвиг зависимостей  $I_{2\omega}(\lambda, \pm H)$ .

Подводя итог, экспериментальные исследования продемонстрировали усиление магнитооптического, нелинейно-оптического и магнитного нелинейно-оптического отклика при возбуждении решеточного плазмонного резонанса в 2D массиве золотых нанодисков. Механизмы усиления указанных эффектов различны: увеличение магнитного контраста в линейном

оптическом отклике при поперечном намагничивании связано с магнитоиндуцированным спектральным сдвигом РПР, рост эффективности генерации ВГ связан с резонансным усилением фактора локального поля, а спектральное поведение  $\rho_{2\omega}$  обусловлено специфическими амплитудными и фазовыми соотношениями резонансных и нерезонансных кристаллографических и магнитоиндуцированных вкладов в электрическое поле на частоте ВГ.

### § 4.3. Бегущий плазмон-поляритон

#### 4.3.1. Гетероструктуры опал/Со

##### Исследуемые структуры

Высокоупорядоченные пленки опала были изготовлены в ФТИ им. А.Ф. Иоффе, г. Санкт-Петербург. Они синтезировались методом жидкофазной коллоидной эпитаксии из водных и водно-спиртовых суспензий монодисперсных сферических частиц аморфного кремнезема [217, 218]. В качестве подложек использовались полированные с двух сторон пластинки плавленого кварца толщиной 0.5 мм. Было изготовлено 5 образцов гетероструктур (ГС) с диаметрами сфер  $d = 250, 310, 370, 520$  и  $640$  нм, далее они будут обозначены как ГС-1,2,3,4 и 5, соответственно. Среднеквадратическое отклонение размеров частиц в каждой ГС не превышало 4%. Толщины пленок опала составляли 10-15 монослоев плотноупакованных в гексагональную решетку сферических частиц. Плоскость (111) упаковки сфер была ориентирована параллельно подложке. Выращенные опаловые пленки выдерживали длительный нагрев до  $800^\circ\text{C}$  без изменения фотоннокристаллических свойств и растрескивания.

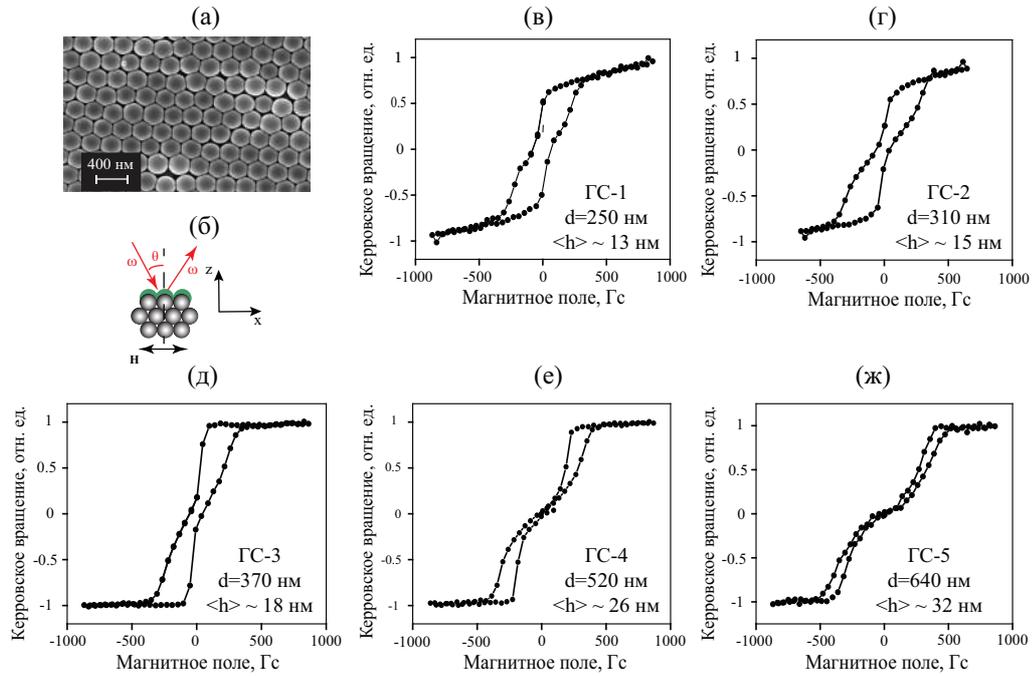
Затем в ИФМ РАН г. Нижний Новгород на поверхность опала (111) методом магнетронного распыления был нанесен слой кобальта, эффективная толщина которого составила около  $h_{eff} \approx 0.1d$ . Таким образом, частицы  $\text{SiO}_2$  оказались покрыты полусферическими оболочками кобальта, а в целом такую структуру можно рассматривать как 2D-периодический гексагональный массив нанотверстий между соприкасающимися полусферами. Референсные пленки кобальта на кварце были изготовлены в том же процессе напыления на плоские кварцевые подложки. Реальная средняя

толщина кобальта на опале  $\langle h \rangle$  вдвое меньше, чем на плоской поверхности, т.к. площадь поверхности полусферы в два раза больше, чем площадь круга, на которую она опирается. Морфология изготовленных ГС была исследована методом сканирующей электронной микроскопии (рис. 4.17 (а)).

Характеризация магнитных свойств гетероструктур была проведена методом МО эффекта Керра, схема которого представлена на рис. 4.17 (б). Необходимо отметить, что на поверхности опала сформированы кристаллиты размером порядка 30-50 мкм с различными ориентациями кристаллографических осей. Диаметр светового пучка составлял 150 мкм, в результате чего МО отклик в этих экспериментах усредняется по нескольким кристаллитам с различными ориентациями. На рис. 4.17 (в-ж) представлены зависимости керровского вращения от магнитного поля для всех ГС. Форма петли с сужением при  $H = 0$  свидетельствует о формировании вихревого распределения намагниченности. Аналогичные гистерезисы были получены для пленок кобальта на поверхности коллоидного ПММА кристалла [219, 220]. Для ГС-4 и ГС-5 нулевая толщина петли при  $H = 0$  указывает на то, что во всех кобальтовых полусферах формируется вихревая намагниченность. Для остальных структур при  $H = 0$  наблюдается смешанное состояние намагниченности, т.е. в структуре присутствуют одновременно и полусферы с вихревой намагниченностью, и с однодоменной. По формуле  $\frac{M_{sat} - M_{res}}{M_{res}}$ , где  $M_{sat}$  и  $M_{res}$  - намагниченность насыщения и остаточная намагниченность, можно оценить, что относительное число частиц в вихревом состоянии - 45, 70 и 80% для ГС-1, ГС-2 и ГС-3, соответственно. Референсные пленки кобальта той же эффективной толщины демонстрируют прямоугольный гистерезис [220]. Поле насыщения во всех структурах не превышает 1 кГс. Детальные исследования влияния толщины кобальта на состояние намагниченности подобных полусфер было представлено в работе [145].

### Линейные оптические свойства

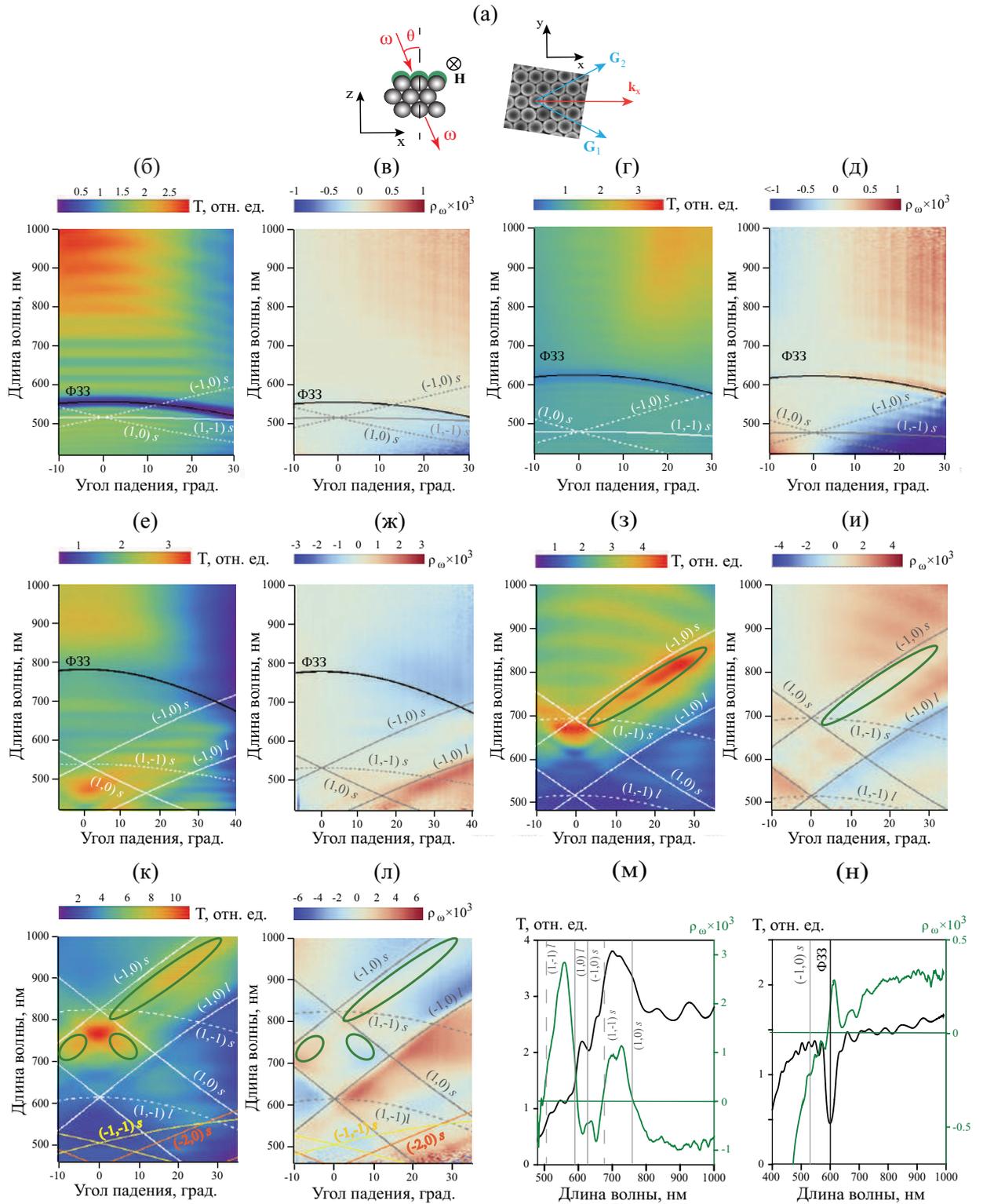
Частотно-угловые спектры пропускания ГС были измерены на установке, представленной на рис. 1.19, размер светового пятна на образце составлял около 50 мкм. Все полученные зависимости нормированы на спектры пропускания соответствующих референсных пленок. Магнитооп-



**Рис. 4.17.** (а) СЭМ-изображение поверхности ГС-1 опал/Со с диаметром сфер  $d = 250$  нм; (б) схема меридионального МО эффекта Керра (зеленый цвет соответствует кобальтовой пленке); (в-ж) гистерезисы керровского вращения в меридиональной геометрии для ГС-1-ГС-5, соответственно, диаметры сфер  $d$  и средние толщины слоя кобальта в ГС указаны на панелях.

тические измерения были проведены для внешнего поперечного магнитного поля с напряженностью около 1.5 кГс, которое является насыщающим в плоскости пленки для исследуемых структур (рис. 4.17 (а)). Эксперименты были проведены для такой азимутальной ориентации образцов относительно плоскости падения  $OZ$ , что проекция волнового вектора на структуру  $\mathbf{k}_x$  лежит вдоль биссектрисы угла между векторами обратной решетки (рис. 4.18 (а)).

Экспериментальные результаты представлены на рис. 4.18 (б-н). Для ГС-1 и ГС-2 на частотно-угловых спектрах пропускания наблюдается только одна особенность - дугообразный минимум в диапазоне длин волн  $\lambda \sim 500-550$  нм (рис. 4.18 (б)) и  $\lambda \sim 550-600$  нм (рис. 4.18 (г)), соответственно. В ГС-3 детектируется V-образная область аномального пропускания (красно-желтая) с центром на 460 нм при нормальном падении излучения, при этом нормированное пропускание достигает трех (рис. 4.18 (е)). Также присутствует слабовыраженный дугообразный минимум в районе 700 нм. Для ГС-4 и ГС-5 спектры  $T(\theta, \lambda)$  демонстрируют V-образные области аномального пропускания, где величина относительного  $T$  достигает 5 и 12, соответственно (рис. 4.18 (з,к)).



**Рис. 4.18.** (а) Схема эксперимента для исследовани МО отклика ГС в геометрии Фохта. Частотно-угловые спектры пропускания, нормированные на пропускание  $T(\theta, \lambda)$  референсных плоских пленок кобальта, и магнитного контраста в геометрии Фохта для ГС-1 (б,в), ГС-2 (г,д), ГС-3 (е,ж), ГС-4 (з,и) и ГС-5 (к,л); (м)  $T(\lambda)$  (черная кривая) и  $\rho(\lambda)$  (зеленая кривая) для ГС-4 при  $\theta = -10^\circ$ ; (н)  $T(\lambda)$  (черная кривая) и  $\rho(\lambda)$  (зеленая кривая) для ГС-2 при  $\theta = 15^\circ$ .

Спектры  $\rho_\omega(\theta, \lambda)$  нечетны по углу падения (изменяют знак при смене  $\theta$  на  $-\theta$ ), что типично для конфигурации Фохта (рис. 4.18 (в,д,ж,и,л)). Порядок величины  $\rho_\omega \sim 1 \cdot 10^{-3} - 6 \cdot 10^{-3}$  типичен для магнитоплазменных структур [161, 167]. Экспериментальные частотно-угловые спектры магнитного контраста демонстрируют сложное знакопеременное поведение, физический механизм которого будет обсужден ниже. Частотно-угловые спектры референсных пленок кобальта монотонны и знакопостоянны при  $\theta > 0$ , величины магнитного контраста не превышают  $5 \cdot 10^{-4}$ .

### Расчеты дисперсионных кривых ППП

Глубину проникновения ППП в  $i$ -ую среду на интерфейсе  $i$ -ой и  $j$ -ой сред можно оценить как  $l_i = \frac{1}{k_0} \left| \frac{\sqrt{-(\epsilon_i + \epsilon_j)}}{\epsilon_i} \right|$  [31]. Рассчитано, что глубина проникновения в кобальт  $l_1$  составляет 20-25 нм, что сравнимо с толщиной слоя кобальта. Для опала и воздуха соответствующие значения составили  $l_2 \sim 350 - 400$  нм и  $l_3 \sim 600 - 650$  нм.

Для расчетов дисперсионных кривых ППП была использована модель двумерной металлической гексагональной решетки, граничащей с одной стороны с опалом, с другой - с воздухом [53]. Закон сохранения импульса для волнового вектора ППП  $\beta$  в этом случае можно записать следующим образом [43]:

$$\beta = \mathbf{k}_x + m\mathbf{G}_1 + n\mathbf{G}_2, \quad (4.12)$$

где  $\mathbf{k}_x$  - проекция волнового вектора на поверхность структуры,  $|\mathbf{k}_x| = k_x = k_0 \sin \theta$ ,  $\mathbf{k}_0$  - волновой вектор волны накачки в вакууме,  $(m; n)$  - пара целых чисел,  $|\mathbf{G}_1| = |\mathbf{G}_2| = G = \frac{4\pi}{\sqrt{3}d}$  - векторы обратной решетки для гексагонального массива с периодом  $d$ , оси координат указаны на рис. 4.18 (а). Поскольку в эксперименте плоскость падения ориентирована вдоль биссектрисы угла между векторами обратной решетки  $\mathbf{G}_1$  и  $\mathbf{G}_2$  (рис. 4.18 (а)), то  $\mathbf{G}_1 = G\mathbf{e}_x \cos(\pi/6) - G\mathbf{e}_y \sin(\pi/6)$ ,  $\mathbf{G}_2 = G\mathbf{e}_x \cos(\pi/6) + G\mathbf{e}_y \sin(\pi/6)$ ,  $\mathbf{e}_x$  и  $\mathbf{e}_y$  - орты вдоль соответствующих координатных осей. Возведение в квадрат равенства (4.12) дает:

$$\beta^2 = (k_x)^2 + G^2(m^2 + n^2 + mn) + \sqrt{3}Gk_x(m + n). \quad (4.13)$$

Поскольку в исследуемых ГС толщина слоя кобальта сравнима с тол-

щиной скин-слоя, то Со/опал и Со/воздух не являются независимыми интерфейсами [221, 216]. Решая уравнения Маквелла с соответствующими граничными условиями, можно получить следующее выражение для дисперсии ППП мод в тонкой металлической пленке между двух диэлектриков [31]:

$$e^{-2k_1 \langle h \rangle} = \frac{k_1/\epsilon_1 + k_2/\epsilon_2}{k_1/\epsilon_1 - k_2/\epsilon_2} \frac{k_1/\epsilon_1 + k_3/\epsilon_3}{k_1/\epsilon_1 - k_3/\epsilon_3} \quad (4.14)$$

$$k_i^2 = \beta^2 - k_0^2 \epsilon_i, \quad i = 1, 2, 3,$$

где  $\langle h \rangle$  - толщина слоя кобальта,  $\epsilon_1$ ,  $\epsilon_2$  и  $\epsilon_3$  - в нашем случае, диэлектрические проницаемости кобальта, опала и воздуха, соответственно.

Следует отметить, что чаще всего расчеты дисперсии ППП в подобных системах выполняются путем подстановки (4.13) в (1.24). При этом получаются ветви ППП для двух независимых интерфейсов опал/Со и Со/воздух. Для исследуемых ГС были проведены и такие расчеты. Оказалось, что для ГС-4 и ГС-5 результаты расчетов по двум указанным методам получаются схожими, а с уменьшением толщины слоя кобальта (ГС-1 и ГС-2) наблюдаются существенные различия в спектральном положении дисперсионных кривых ППП, вычисленных по формулам (4.14) и (1.24). Поэтому было решено во всех структурах этой серии проводить расчеты в рамках модели двух взаимодействующих интерфейсов (выражение 4.14).

Эффективная диэлектрическая проницаемость опала была рассчитана в модели эффективной среды  $\epsilon_2 = \epsilon_{SiO_2} * f + (1 - f)$ , где  $f$  - объемная доля сфер [222]. Данные для оптических свойств кобальта и оксида кремния взяты из [210].

Подставляя  $\beta^2$  из (4.13) в (4.14) и численно решая полученное трансцендентное уравнение в пакете Wolfram Mathematica, были получены дисперсионные кривые для ППП. Они показаны сплошными и пунктирными линиями на рис. 4.18 (б-н). Соответствующие пары чисел  $(m, n)$  указаны рядом с кривыми. Каждой паре  $(m, n)$  соответствуют две моды ППП, имеющие относительно малую и большую длину распространения (т.н. “short-range” и “long-range”) [31] и отмеченные как  $s$  и  $l$  на рис. 4.18 (б-н)). Следует также отметить, что в силу симметрии геометрии эксперимента парам  $(m; n)$  и  $(n; m)$  - соответствует одна и та же дисперсионная кривая (на рис. 4.18 указана только одна пара чисел для каждой ветви во избежание перегруженности рисунка). Положение узлов пучков дисперсионных кривых не зависит от азимутальной ориентации образца и определяется выражением

$|\beta| = G\sqrt{m^2 + n^2 + mn}$  [44, 50]. Самые длинноволновые пучки дисперсионных кривых на рис. 4.18 (б-л) соответствуют таким наборам чисел  $(m; n)$ , что  $\sqrt{m^2 + n^2 + mn} = 1$ .

Спектральное положение ФЗЗ было рассчитано по формуле [222]:

$$\lambda_{PVG}(\theta) = \sqrt{\frac{8}{3}}d\sqrt{\epsilon_2 - \sin^2\theta}, \quad (4.15)$$

результат показан на рис. 4.17 (б-н) черной линией. Для структур ГС-4 и ГС-5 с диаметрами сфер  $d = 500$  и  $640$  нм ФЗЗ находится в ближнем ИК диапазоне.

Следует подчеркнуть, что разные зависимости спектрального положения ФЗЗ и ППП от диаметра сфер  $d$  позволяют проанализировать оптические свойства гетероструктур, связанные с взаимным влиянием этих особенностей.

## Обсуждение результатов исследования линейного оптического и МО отклика

Сравнение экспериментальных и расчетных данных позволяет сделать вывод, что дугообразные минимумы на спектрах пропускания соответствуют фотонным запрещенным зонам в пленках опала. Наиболее заметно ФЗЗ проявляется в ГС-1 с наименьшим диаметром сфер.

V-образные максимумы пропускания в ГС-3, ГС-4 и ГС-5 соответствуют возбуждению  $(1,0)s$  и  $(-1,0)s$  ППП, т.к. имеют тот же наклон, что и расчетные кривые (рис. 4.18 (е, з, к)). Аномально большое пропускание через нанотверстия связано с возбуждением ППП. Похожие эффекты наблюдались в различных планарных массивах нанотверстий [43] и в покрытых металлом монослоях коллоидных сфер [50, 223]. Небольшой спектральный сдвиг областей высокого пропускания относительно дисперсионных кривых ППП может быть связан с рассеянием в субволновых отверстиях [44, 224], волнистым профилем металлической пленки, сложной формой отверстий, перераспределением интенсивности света в ППП различных порядков [43] и др.

Следует также отметить, что моды  $(1,0)l$  и  $(-1,0)l$  совпадают с локальным минимумом пропускания (рис. 4.18 (е, з, к)). Аналогичная ситуация наблюдалась, например, в массивах цилиндрических нанотверстий в пленке Ag/Pu [170] или Au [44].

Оценку величины аномального пропускания можно получить из следующих соображений. В ГС-5 при нормальном падении света нормированное на референсную пленку пропускание достигает 12 (при  $\lambda = 780$  нм), это соответствует абсолютной величине пропускания  $T_{abs} = 12\%$ . Простые геометрические соображения дают оценку доли поверхности структуры, занимаемой отверстиями,  $T_{eff} \sim 9\%$  (на самом деле, эта доля еще меньше, т.к. (i) наносферы диоксида кремния спекаются при отжиге и (ii) нанотверстия между ними “зарастают” металлом при напылении кобальта). В соответствии с общепринятым подходом [225], получим следующую оценку снизу для аномального пропускания ГС-5 при  $\lambda = 780$  нм:  $T_{abs}/T_{eff} \sim 130\%$ . Для ГС-4 при  $\lambda = 680$  нм аналогичные оценки дают:  $T_{abs} = 10\%$ ,  $T_{abs}/T_{eff} \sim 110\%$ . Для ГС-3 при  $\lambda = 480$  нм:  $T_{abs} = 15\%$ ,  $T_{abs}/T_{eff} \sim 160\%$ .

В оптических спектрах ГС-1 и ГС-2 не наблюдаются области аномально большого  $T$  в исследуемом диапазоне длин волн, хотя, согласно расчетам, возбуждение ППП возможно (рис. 4.18 (б)). Вероятно, усиление пропускания в этом случае компенсируется минимумом  $T$ , обусловленным ФЗЗ, находящейся в том же спектральном районе. Увеличение пропускания в длинноволновой области в широком диапазоне углов  $\theta$  связано с уменьшением рассеяния света на неоднородностях структур.

Ненулевой магнитный контраст в геометрии Фохта в референсных плоских пленках кобальта связан с асимметрией интерфейсов Со/опал и Со/воздух и связанных с ней различных коэффициентах отражения на этих границах раздела [125]. Такой же механизм МО эффекта наблюдается в гетероструктурах в частотно-угловых диапазонах вдали от ППП и ФЗЗ. Вблизи ППП усиление магнитного контраста связано с магнитоиндуцированным сдвигом дисперсионных кривых ППП в противоположных направлениях при приложении магнитного поля  $+H$  и  $-H$ . Таким образом, возникает нулевой магнитный контраст  $\rho_\omega$  в непосредственной спектральной окрестности ППП и усиление  $|\rho_\omega|$  вблизи дисперсионных кривых ППП. Рост магнитного контраста наиболее заметен вблизи ППП  $(1,0)l$  и  $(-1,0)l$ . Смена знака  $\rho_\omega$  при возбуждении ППП наблюдается в структурах ГС-3, ГС-4, ГС-5. Величины резонансных значений магнитного контраста растут с увеличением толщины кобальта, что типично для линейных МО эффектов.

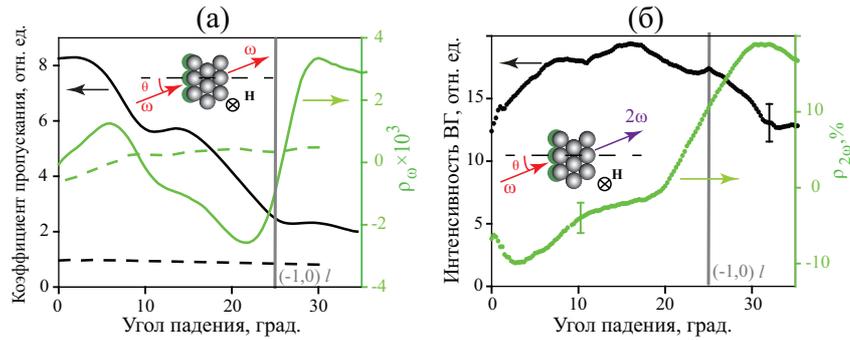
Важно отметить, что частотно-угловые спектры ГС-4 и ГС-5 содержат области, где одновременно возрастают и пропускание, и магнитный контраст (эти области выделены зелеными овалами на рис. 4.18 (з-л)). Для более наглядной иллюстрации этого факта на рис. 4.18 (м) представлены срезы частотно-угловых спектров пропускания и магнитного контраста ГС-4 при  $\theta = -10^\circ$ . Длины волн, соответствующие возбуждению ППП, показаны вертикальными прямыми. Видно, что аномальное пропускание, достигающее 3.9, и магнитный контраст, достигающий  $10^{-3}$ , наблюдаются одновременно в спектральном диапазоне  $\lambda \in (680; 760)$  нм. Такое сочетание оптического и МО отклика, вкуче с резким фронтом спектра  $\rho_\omega$  весьма перспективно для нанофотоники и задач манипулирования параметрами света.

К сожалению, из-за ограниченности доступного в эксперименте спектрального диапазона невозможно исследовать спектральные особенности  $\rho_\omega$  в районе ФЗЗ в ГС-4 и ГС-5. Для ГС-3 наблюдается небольшое усиление  $|\rho_\omega|$  на длинноволновом крае ФЗЗ, что, вероятно, связано с минимумом пропускания, т.е. с уменьшением знаменателя в выражении для магнитного контраста. Изменение знака  $\rho_\omega$  при этом не наблюдается.

Для ГС-1 и ГС-2 наблюдается смена знака магнитного контраста и усиление  $|\rho_\omega|$  вблизи ФЗЗ. Это более очевидно при  $\lambda \sim 600$  нм на срезах  $T(\theta, \lambda)$  и  $\rho_\omega(\theta, \lambda)$  для ГС-2 (рис. 4.18 (н)) при  $\theta = 15^\circ$ . ППП  $(-1,0)_s$  при этом угле падения наблюдается на длине волны 540 нм (серая прямая). Напомним, что: (i) в ГС-3, где ФЗЗ далеко от ППП, не наблюдается смена знака магнитного контраста вблизи ФЗЗ; (ii) спектральное поведение  $\rho_\omega$  при возбуждении ППП как правило состоит в изменении знака с локальным усилением  $|\rho_\omega|$  по обе стороны от нулевого значения  $\rho_\omega$ . Основываясь на этих рассуждениях, можно заключить, что в ГС-1 и ГС-2 обе спектральные особенности, т.е. и ФЗЗ, и ППП, играют роль в спектральном поведении магнитного контраста. Точный механизм наблюдаемых явлений достаточно сложен и требует дальнейшего рассмотрения.

## Генерация ВГ

Нелинейно-оптические исследования были проведены на установке, представленной на рис. 1.21. Для экспериментов была выбрана структура ГС-5, поскольку в ее спектре наблюдаются резонансные особенности в обла-



**Рис. 4.19.** (а) Угловой спектр пропускания (черные кривые, левая ось) и магнитного контраста  $\rho_\omega$  (зеленые кривые, правая ось) для ГС-5 (сплошные линии) и референсной пленки кобальта (пунктирные линии); (б) угловой спектр интенсивности ВГ (черные точки, левая ось) и  $\rho_{2\omega}$  (зеленые точки, правая ось). Длина волны излучения накачки  $\lambda = 800$  нм. Серые линии указывают угол, соответствующий возбуждению ППП при указанной длине волны.

сти перестройки Ti:Sa лазера. Исследования были проведены на длине волны  $\lambda = 800$  нм, при  $p$ -поляризованном излучении накачки. На рис. 4.19 (а) для последующего сравнения с характеристиками нелинейно-оптического отклика приведены спектры относительного пропускания и  $\rho_\omega$  в линейном отклике ГС-5 на длине волны  $\lambda = 800$  нм в зависимости от угла падения - это срезы рис. 4.18 (к,л).

Измерялись зависимости интенсивности ВГ от угла падения света на структуру  $\theta$  в геометрии “на пропускание”. При изучении магнитоиндуцированной ВГ ГС была помещена в поперечное насыщающее поле 600 Гс, создаваемое двумя постоянными магнитами.

Результаты нелинейно-оптических исследований ГС представлены на рис. 4.19 (б). Угловой спектр интенсивности ВГ демонстрирует максимум при  $\theta \sim 18^\circ$ , что близко к  $(-1,0)l$  ППП моде. Знак  $\rho_{2\omega}$  меняется при  $\theta = 20^\circ$ , а величина возрастает почти до 20% в окрестности этой точки.

### Обсуждение результатов исследования нелинейно-оптического отклика

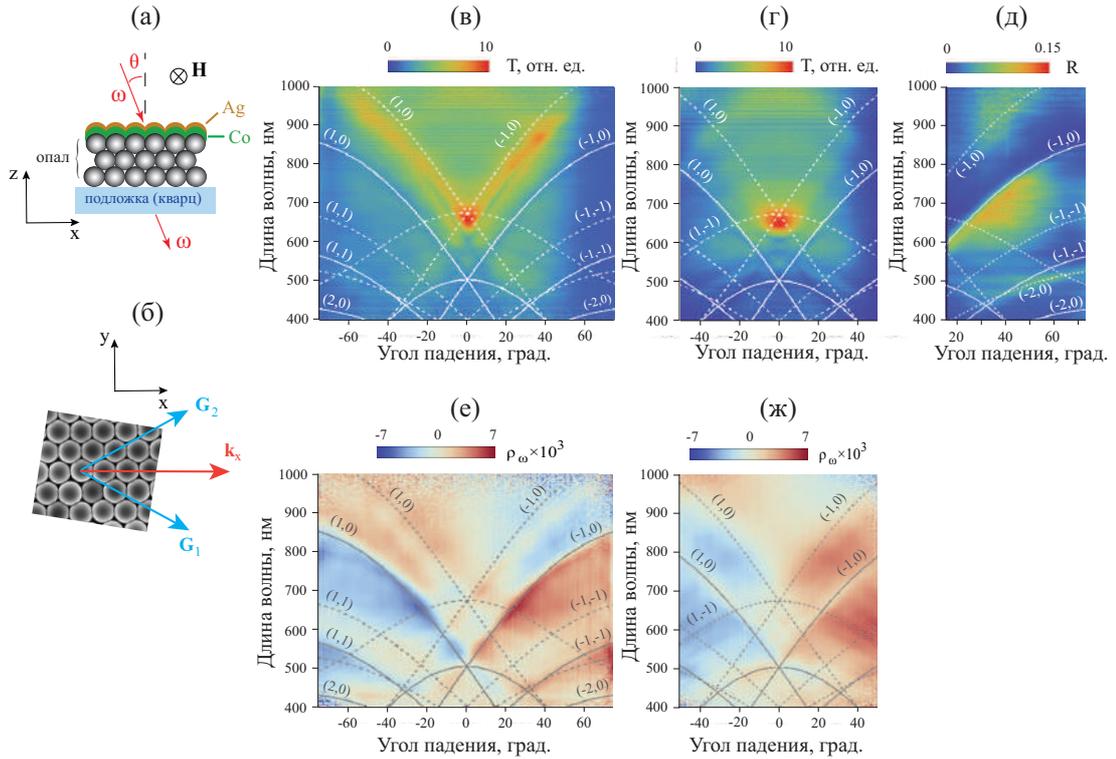
При обсуждении генерации ВГ необходимо учесть, что процесс формирования квадратичного нелинейно-оптического отклика в плазмонных материалах - результат суперпозиции двух конкурирующих процессов на частоте накачки: (i) резонансного усиления локального электрического поля вблизи поверхности металла и (ii) усиления поглощения. Более того,

необходимо учитывать симметрию структуры, которая определяет ненулевые компоненты тензора  $\hat{\chi}^{(2)}$ . В массивах наноотверстий максимум интенсивности ВГ обычно совпадает с областью аномального пропускания, что связано с локализацией поля на интерфейсах, а также, с эффектом громоотвода на острых металлических частях структуры [59, 60]. В ГС-5 при  $\lambda = 800$  нм, аномальное пропускание наблюдается при  $\theta = 0^\circ$  (рис. 4.19 (а)). Однако в структуре с гексагональной симметрией нет плоскостных компонент тензора  $\hat{\chi}^{(2)}$  [202], поэтому процесс генерации ВГ более эффективен при наклонном падении излучения накачки, чем при  $\theta = 0$ . Таким образом, угловое положение максимума интенсивности ВГ  $\theta = 18^\circ$  сдвинуто относительно пика пропускания при  $\theta = 0^\circ$  (рис. 4.19 (б), черные точки).

Для рассматриваемого образца генерация магнитоиндуцированной ВГ является результатом интерференции четырех вкладов: нерезонансного немагнитного в объеме опала, нерезонансного магнитного от объема кобальта, резонансного немагнитного и магнитного от интерфейсов Со/воздух и Со/опал. Таким образом, в нелинейно-оптическом отклике наблюдается резонанс Фано [42], как и при возбуждении решеточного плазмона. Это приводит к тому, что точка  $\rho_{2\omega} = 0$  (при  $\theta = 20^\circ$ ) и возбуждение ППП  $(-1,0)l$  ( $\theta = 25^\circ$ ) наблюдаются при разных углах падения (рис. 4.19 (б), зеленые точки). Тем не менее, наблюдаемое усиление и смена знака  $\rho_{2\omega}$  связаны именно с возбуждением ППП, так как для плоской референсной пленки кобальта знак магнитного контраста ВГ при линейно поляризованном излучении накачки постоянен. Следует также отметить, что максимальное значение  $\rho_{2\omega}$  на два порядка превосходит аналогичное значение в линейном отклике,  $\rho_\omega$ , что в очередной раз подтверждает особую чувствительность нелинейно-оптических методов к свойствам наноструктур.

### 4.3.2. Гетероструктуры опал/Со/Ag

Для оптимизации свойств ГС была предложена идея дополнить исследуемые структуры пленкой серебра. Сочетание ферромагнетика (для наблюдения МО отклика) и благородного металла (для возбуждения добротного плазмона) - традиционный прием для создания композитных структур, демонстрирующих резонансное усиление МО эффектов [161, 167, 174, 226, 227].



**Рис. 4.20.** (а), (б) Схема структуры опал/Со/Аg и схема эксперимента, плоскость падения излучения накачки  $XOZ$ , магнитное поле приложено вдоль оси  $OY$ ; (в), (г) частотно-угловые спектры пропускания структуры при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки (нормированы на пропускание сплошной плоской пленки Со/Аg); (д) частотно-угловой спектр отражения при  $p$ -поляризованном излучении накачки (нормирован на спектр источника); (е), (ж) частотно-угловые спектры магнитного контраста при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки. Пунктирными кривыми показаны дисперсионные зависимости ППП на границе раздела опал/Со, а сплошными кривыми - на интерфейсе Со/воздух.

В ИФМ РАН, г. Нижний Новгород на ГС-4 был напылен слой серебра с эффективной толщиной  $d_{Ag} = 10$  нм (рис. 4.20 (а)). Магнитные свойства композита при этом не изменились.

### Линейные оптические свойства

Частотно-угловые спектры пропускания и магнитного контраста в геометрии Фохта для структуры опал/Со/Аg были измерены по той же методике, что и гетероструктуры (рис. 4.20 (а)). Эксперименты были проведены для двух азимутальных ориентаций образца относительно плоскости падения  $XOZ$ , для которых проекция волнового вектора на структуру  $\mathbf{k}_x$  параллельна биссектрисе угла между векторами обратной решетки  $\mathbf{G}_1$  и  $\mathbf{G}_2$  (рис. 4.20 (б)) и параллельна одному из векторов обратной решетки

(рис. 4.21 (а)).

Полученные в результате измерений частотно-угловые спектры пропускания представлены на рис. 4.20 (в,г) и 4.21 (б,в), они нормированы на пропускание сплошной пленки Co/Ag. На всех частотно-угловых спектрах  $T$  наблюдается максимум пропускания на длине волны около 680 нм при нормальном падении света на структуру. Спектры, измеренные для  $p$ -поляризованного излучения накачки, как и в ГС-4 и ГС-5 без серебра, имеют V-образную форму области высокого пропускания, причем угол наклона “ветвей” меняется при азимутальном повороте образца (см. рис. 4.20 (в) и 4.21 (б)). При  $s$ -поляризованном излучении накачки ярко выражен только максимум при  $\theta = 0^\circ$  (рис. 4.20 (г) и 4.21 (в)).

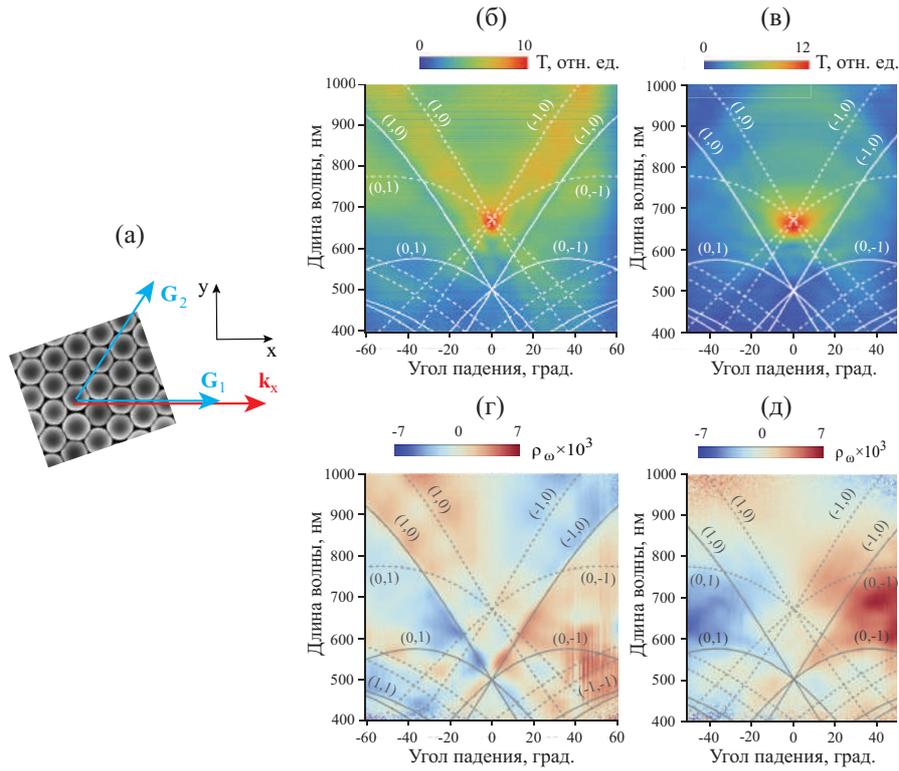
Частотно-угловой спектр отражения нормирован на спектр используемого в эксперименте источника света. В  $R(\theta, \lambda)$  наблюдается область максимального отражения вблизи длин волн 600-800 нм, для которых  $R(\theta, \lambda)$  достигает значения 0.15 (рис. 4.20 (д)).

Частотно-угловые спектры магнитного контраста (рис. 4.20 (е,ж) и 4.21 (г,д)) демонстрируют сложное знакопеременное поведение, максимальная величина  $\rho_\omega(\theta, \lambda)$  составляет  $6.5 \cdot 10^{-3}$ . При этом  $\rho_\omega(\theta, \lambda)$  является нечетной функцией угла падения, что, как уже было сказано, характерно для МО эффекта в геометрии Фохта [125].

## Расчет дисперсионных кривых ППП

Для расчетов дисперсионных кривых ППП использовалась формула (1.24) для границ раздела Co/опал и Co/воздух. Как уже было сказано, для такой толщины кобальта результаты рассмотрения двух интерфейсов по отдельности или пленки кобальта как одного волноводного слоя совпадают. Пленка серебра достаточно тонкая (реальная ее толщина составляет около 5 нм) и при расчетах в первом приближении можно ее не учитывать.

Для расчета дисперсионных кривых ППП в геометрии, когда плоскость падения света параллельна биссектрисе угла между векторами обратной решетки  $\mathbf{G}_1$  и  $\mathbf{G}_2$  (рис. 4.20 (б)), подставляем выражение (4.13) в (1.24) и численно решаем полученное трансцендентное уравнение. Результат представлен на рис. 4.20 (в-ж). Каждой паре целых чисел  $(m; n)$  соответствуют два плазмона, возбуждаемые на границах раздела опал/Co (пунктирные кривые) и Co/воздух (сплошные кривые).



**Рис. 4.21.** (а) Схема эксперимента, плоскость падения излучения накачки  $XOZ$ , магнитное поле приложено вдоль оси  $OY$ ; (б), (в) частотно-угловые спектры пропускания структуры при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки (нормированы на пропускание сплошной плоской пленки  $Co/Ag$ ); (г), (д) частотно-угловые спектры магнитного контраста при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки. Пунктирными кривыми показаны дисперсионные зависимости ППП на границе раздела опал/ $Co$ , а сплошными кривыми - на интерфейсе  $Co/воздух$ .

Если проекция волнового вектора излучения накачки ориентирована вдоль одного из векторов обратной решетки (рис. 4.21 (а)), т.е.  $\mathbf{k}_x$  коллинеарен  $\mathbf{G}_1$ , то  $\mathbf{G}_1 = G\mathbf{e}_x$ ,  $\mathbf{G}_2 = G\mathbf{e}_x \cos(\pi/3) + G\mathbf{e}_y \sin(\pi/3)$  ( $\mathbf{e}_x$  и  $\mathbf{e}_y$  - орты вдоль соответствующих осей), а возведение в квадрат равенства (4.12) дает:

$$\beta^2 = (k_x + mG + \frac{nG}{2})^2 + (\frac{nG\sqrt{3}}{2})^2. \quad (4.16)$$

Тогда подставляем (4.16) в (1.24) и получаем дисперсионные кривые для второй азимутальной ориентации структуры (сплошные и пунктирные линии на рис. 4.21 (б-д)). Таким образом, для различной ориентации плоскости падения зондирующего излучения относительно кристаллографических осей поверхностной металлической гексагональной решетки спектры ППП будут смещены друг относительно друга - сохраняются только узлы пучков дисперсионных кривых при  $\theta = 0^\circ$ . Видно, что в исследуемой спектральной области есть два узла в окрестности длин волн 500 нм и 680 нм, и соответствующие таким наборам чисел  $(m; n)$ , что  $\sqrt{m^2 + n^2 + mn} = 1$ .

## Обсуждение результатов

На основе сопоставления экспериментальных и расчетных результатов, можно сделать вывод о том, что V-образные максимумы пропускания (рис. 4.20 (в) и 4.21 (б)) связаны с возбуждением ППП  $(\pm 1; 0)$ , что характерно для наноперфорированных структур [44, 45, 52]. Очевидно также, что спектральное положение максимумов  $T(\theta, \lambda)$  при наклонном падении света на структуру существенно зависит от азимутальной ориентации образца, что соответствует формулам (4.16) и (4.13).

Оценим теперь величину аномального пропускания для структуры опал/Со/Аг и сравним его с данными для этого же образца до нанесения слоя серебра. Нормированное на референсную пленку пропускание составляет около 10 (при нормальном падении света на длине волны около 680 нм), пропускание референсной пленки Со/Аг - 1%, тогда абсолютное значение -  $T_{abs} \sim 10\%$ , доля площади поверхности отверстий -  $T_{eff} \sim 9\%$  (реально  $T_{eff} < 9\%$  за счет "спекания" сфер диоксида кремния и "зарастания" отверстий металлом при напылении). Таким образом, оценка снизу для величины аномального пропускания -  $T_{abs}/T_{eff} \sim 110\%$ . Такое же значение получилось для ГС-4. Таким образом, можно сделать вывод, что после

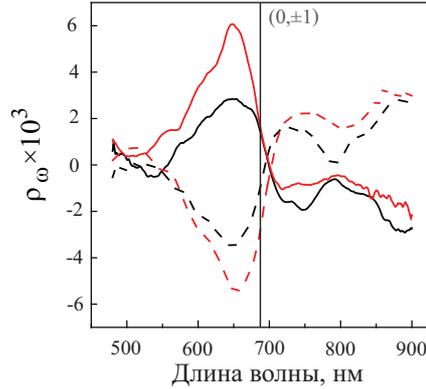
напыления Ag не изменилось ни спектральное положение максимумов пропускания ни величина  $T(\theta, \lambda)$  в спектральной окрестности ППП.

Усиление коэффициента отражения вдоль дисперсионной кривой ППП  $(-1; 0)$  также, очевидно, связано с возбуждением плазменных мод (сплошная кривая на рис. 4.20 (д)). Аналогичный эффект наблюдался в серебряных пленках на опале в работе [53]. Также можно отметить слабое увеличение  $R$  вдоль дисперсионной кривой ППП  $(-2; 0)$ .

Частотно-угловые спектры  $\rho_\omega(\theta, \lambda)$  демонстрируют смену знака магнитного контраста вдоль дисперсионных кривых ППП  $(\pm 1; 0)$  (рис. 4.20 (е) и 4.21 (г)), аналогично ГС-4 и ГС-5, что обусловлено магнитоиндуцированным спектральным сдвигом резонанса ППП при приложении поперечного насыщающего магнитного поля. Связь спектрального поведения магнитного контраста с возбуждением ППП в коротковолновой области неочевидна из-за большого количества дисперсионных кривых в этом диапазоне.

Величину МО отклика структуры опал/Co/Ag следует сравнить с аналогичной структурой без серебра (ГС-4) в том же азимутальном положении. Качественно спектры  $\rho_\omega(\theta, \lambda)$  аналогичны, но по величине магнитный контраст в образце с серебром в районе дисперсионной кривой  $(\pm 1; 0)$  примерно в 2 раза больше, чем в ГС-4. Для более наглядного сравнения на рис. 4.22 представлены срезы рис. 4.20 (е) и рис. 4.18 (и) при  $\theta = \pm 25^\circ$ . Максимум модуля магнитного контраста  $|\rho_\omega(\theta, \lambda)|$  достигается на длине волны около 650 нм и составляет  $6 \cdot 10^{-3}$  для структуры опал/Co/Ag и  $3 \cdot 10^{-3}$  для ГС-4. Таким образом, наличие в составе рассматриваемой гетероструктуры тонкой пленки серебра приводит к усилению МО эффекта в 2 раза, при этом, как было отмечено выше, уменьшения пропускания структуры не наблюдается. Из-за сложной формы экспериментальных спектров  $T(\theta, \lambda)$  невозможно напрямую оценить добротность возбуждаемых ППП. Тем не менее, можно предположить, что наличие серебра приводит к возбуждению более добротного ППП, который участвует в формировании и оптического (аномального пропускания), и магнитооптического отклика. Таким образом оптимизация исследуемых гетероструктур путем напыления благородного металла на их поверхность обеспечивает “выигрыш” в МО отклике без дополнительных потерь на поглощение света в структуре.

Теперь рассмотрим спектры пропускания и магнитного контраста, полученные при  $s$ -поляризованном излучении накачки. В случае, когда про-

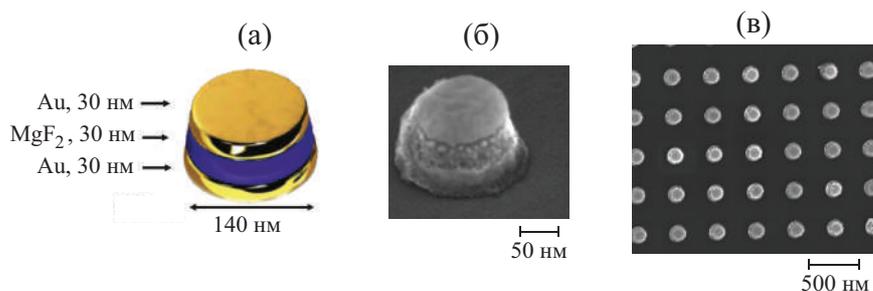


**Рис. 4.22.** Спектры магнитного контраста образца опал/Со (черные линии) и опал/Со/Аg (красные линии), измеренные при  $p$ -поляризованном падающем излучении, при  $\theta = 25^\circ$  (сплошные линии) и  $\theta = -25^\circ$  (пунктирные линии). Вертикальная серая линия соответствует спектральному положению ППП.

екция волнового вектора на плоскость образца параллельна биссектрисе угла между векторами обратной решетки (рис. 4.20 (б)), то наблюдаются минимумы модуля магнитного контраста на ветвях  $(\pm 1; 0)$  (сплошные линии на рис. 4.20 (ж)) без смены знака  $\rho_\omega(\theta, \lambda)$ . По-видимому, при этом происходит возбуждение двух близких по частоте ППП, распространяющихся под противоположными углами ( $\phi$  и  $-\phi$ ) к  $\mathbf{k}_x$  и, соответственно, проявляющих противоположные знаки магнитооптических эффектов. Следствием взаимодействия этих двух плазмонов, спектры магнитооптического эффекта которых различаются знаком, является наблюдающийся в эксперименте минимум модуля магнитного контраста. Аналогичный эффект наблюдался в работе [169] в одномерных магнитоплазмонных кристаллах.

В другой азимутальной ориентации (волновой вектор параллелен  $\mathbf{G}_1$ , схема на рис. 4.21 (а)) в силу граничных условий не возбуждаются ППП с  $n = 0$ , (напомним, что ППП - это ТМ-волна [31]), поэтому ветви с  $(\pm 1; 0)$ , которые хорошо детектируются в оптическом отклике при  $p$ -накачке, при  $s$ -накачке не проявлены ни в спектре  $T(\theta, \lambda)$  (рис. 4.21 (в)), ни в спектре  $\rho(\theta, \lambda)$  (рис. 4.21 (д)). При этом смена знака  $\rho_\omega(\theta, \lambda)$  наблюдается вдоль кривой ППП  $(0; \pm 1)$ .

Подводя итог, изучен новый тип плазмонных структур опал/Со, для изготовления которых не требуются методы литографии. В спектрах таких структур обнаружены области, где наблюдается аномальное пропускание, превышающее 110%, а также, усиление МО отклика в геометрии Фохта,



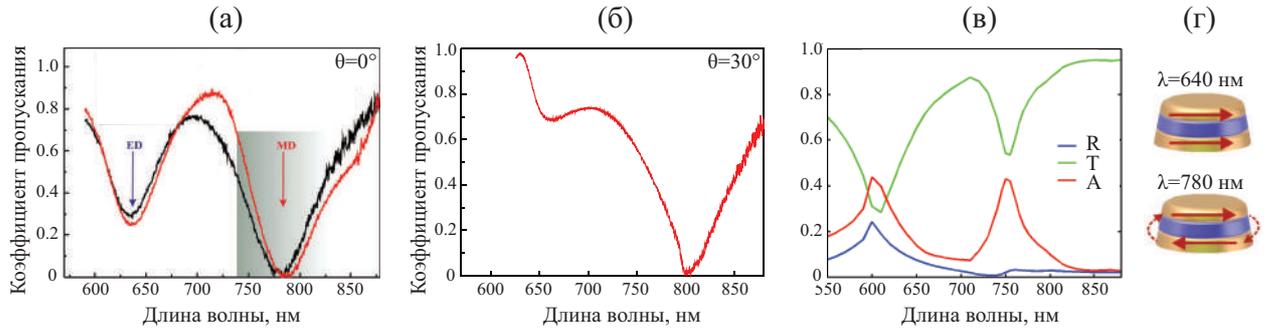
**Рис. 4.23.** Массив трехслойных нанодисков, демонстрирующих возбуждение магнито-дипольного резонанса: (а) схема наноэлемента; (б) СЭМ-изображение элемента; (в) СЭМ-изображение массива.

что обусловлено возбуждением ППП. Выполненные исследования также показывают, что возможна дальнейшая оптимизация плазмонных свойств гетероструктур на основе пленок опала - например, сочетание с благородными металлами, что позволяет рассматривать их как перспективные материалы нанофотоники, для управления параметрами электромагнитного излучения путем изменения угла падения света, азимутальной ориентации структуры и приложения статического магнитного поля.

## § 4.4. Магнито-дипольный плазмонный резонанс

### 4.4.1. Исследуемые структуры

Образцы были изготовлены в Национальном Университете Австралии, г. Канберра, методом электронно-лучевой литографии. Они представляют собой упорядоченные массивы трехслойных нанодисков Au/MgF<sub>2</sub>/Au на поверхности кварца. Толщины золотых слоев и диэлектрической прослойки составляют около 30 нм, радиус нижнего золотого диска около 140 нм. Процедура изготовления такова, что элементы имеют форму не цилиндра, а усеченного конуса с углом наклона образующей к вертикали около 10°, как показано на рис. 4.23 (а). Элементы находятся в узлах квадратной решетки с элементарной ячейкой 400x400 нм. Размер образцов 100x100 мкм, изображения одного элемента и массива в сканирующем электронном микроскопе приведены на рис. 4.23 (б,в).



**Рис. 4.24.** Результаты исследования линейного оптического отклика массивов трехслойных нанодисков: (а) экспериментальные спектры пропускания, измеренные при нормальном падении света на структуру при двух взаимно перпендикулярных азимутальных ориентациях массива (сторона массива ориентирована вдоль плоскости поляризации падающего света); (б) экспериментальный спектр пропускания, угол падения  $30^\circ$ ,  $p$ -поляризованное излучение накачки; (в) рассчитанные спектры отражения (синяя кривая), пропускания (зеленая кривая) и поглощения (красная кривая) при нормальном падении излучения; (г) схемы осцилляции электрического тока в структуре на резонансных длинах волн.

#### 4.4.2. Линейные оптические свойства

На рис. 4.24 (а) представлены линейные спектры пропускания исследуемой структуры, измеренные при нормальном падении зондирующего излучения на установку (1.19). Плоскость поляризации света была ориентирована параллельно сторонам массива. При двух взаимно перпендикулярных азимутальных ориентациях структуры относительно поляризации волны накачки в спектрах пропускания видны два минимума с центрами на длинах волн около 640 нм и 780 нм. Их спектральное положение незначительно различается при разных азимутальных ориентациях структуры, что может быть связано с небольшой асимметрией элементов (рис. 4.23 (б)).

При наклонном падении излучения накачки (рис. 4.24 (б)) в спектре пропускания также видны два минимума. Спектральное положение коротковолнового минимума практически не изменилось по сравнению со случаем  $\theta = 0^\circ$ , однако, существенно снизилась его добротность. Длинноволновый минимум сместился в красную область примерно на 15-20 нм, а его добротность практически не изменилась.

### 4.4.3. Расчеты оптического отклика

Расчеты пропускания, отражения и поглощения исследуемых структур были выполнены нашими коллегами из Австралийского Национального Университета методом обобщенных источников (generalized-source method). Спектральные положения резонансов хорошо соответствуют экспериментальным данным (рис. 4.24 (в)). В пакете CST Microwave Studio были рассчитаны направления токов, наведенных падающим излучением в верхнем и нижнем металлических нанодисках при резонансных длинах волн (рис. 4.24 (г)). Минимумы пропускания на длинах волн  $\lambda = 640$  нм и  $\lambda = 780$  нм соответствуют возбуждению сонаправленных и противоположно направленных токов в золотых нанодисках, соответственно.

Результат можно интерпретировать в рамках мультипольного приближения для источников рассеянного наноэлементом поля, а именно, распределения зарядов и токов в мета-атомах:

$$\begin{aligned}\mathbf{p}_\omega &= \int \mathbf{P}_\omega(\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \\ \mathbf{m}_\omega &= -i\frac{\omega}{2} \int \mathbf{r} \times \mathbf{P}_\omega(\mathbf{r}) d\mathbf{r}, \\ Q_{\omega,jk} &= \int [3(r_j P_{\omega,k} + r_k P_{\omega,j}) - 2\delta_{jk} \mathbf{r} \mathbf{P}_\omega(\mathbf{r})] d\mathbf{r},\end{aligned}\quad (4.17)$$

где  $\mathbf{P}_\omega(\mathbf{r}) = \epsilon_0(\epsilon_\omega(\mathbf{r}) - 1)\mathbf{E}_\omega(\mathbf{r})$  - поляризация среды в точке  $\mathbf{r}$ ,  $\mathbf{E}_\omega(\mathbf{r})$  - электрическое поле,  $\epsilon_\omega(\mathbf{r})$  - диэлектрическая проницаемость,  $\mathbf{p}_\omega$ ,  $\mathbf{m}_\omega$  и  $Q_{\omega,jk}$  - электрический дипольный момент, магнитодипольный момент и компоненты электрического квадрупольного момента мета-атома, соответственно. С учетом выражения (4.17) были рассчитаны вклады в оптический отклик наноэлементов от каждого мультиполя. Расчеты показали, что коротковолновый минимум на рис. 4.24 (в) обусловлен возбуждением электродипольного резонанса, а длинноволновый - интерференцией вкладов магнитодипольного, электрквадрупольного и электродипольного.

Следует также отметить, что аналогичные эффекты ранее наблюдали в квадратных массивах трехслойных наночастиц Au/MgO/Au [228]. Согласно проведенным авторами расчетам, при возбуждении коротковолнового резонанса наблюдаются токи большой величины в верхнем металлическом слое и слабый ток в нижнем, что эквивалентно изолированному электрическому диполю. При возбуждении длинноволнового резонанса токи в металлических слоях сравнимы по величине и антипараллельны. Такое распределение токов эквивалентно магнитному диполю, ориенти-

рованному перпендикулярно токам. В работе [228] также отмечено, что при возбуждении магнитодипольного резонанса наблюдается более сильная локализация электромагнитного поля в структуре, чем при возбуждении электродипольного. Кроме того, обнаружено, что магнитодипольный резонанс практически не чувствителен к периодичности расположения наноэлементов, в то время как электродипольный не возбуждается в массивах хаотически расположенных на подложке трехслойных наноэлементов [229].

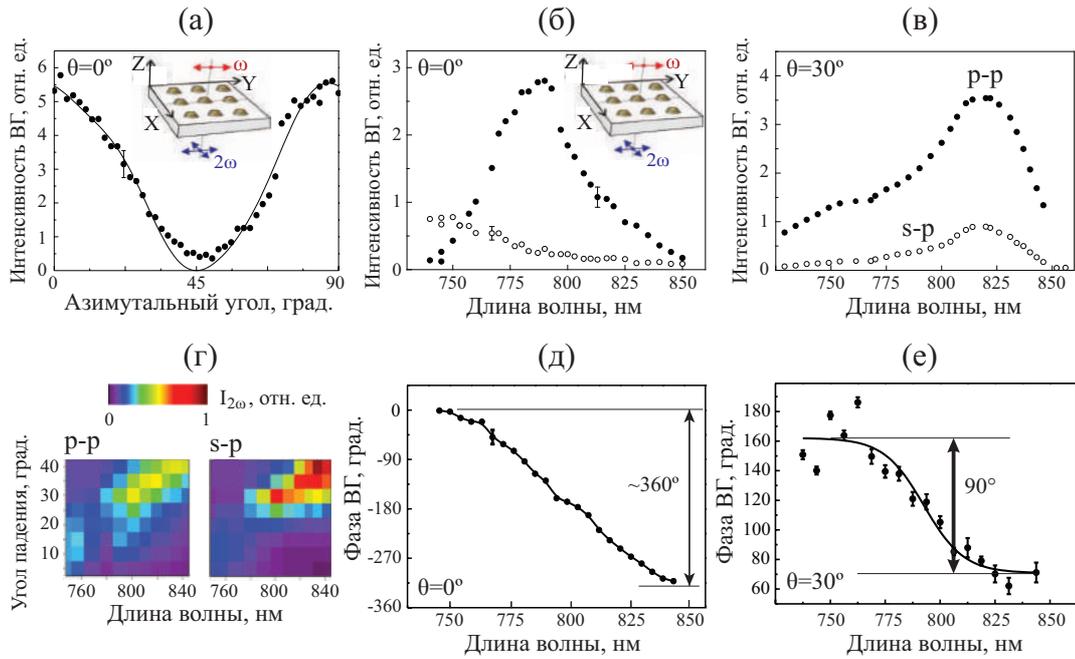
#### 4.4.4. Генерация ВГ

Эксперименты были проведены на установке, представленной на рис. 1.21, в геометрии “на пропускание”. Для выделения сигнала ВГ на фоне двухфотонной люминесценции перед ФЭУ стоял монохроматор.

В первую очередь отметим, что интенсивность ВГ от сплошной референсной пленки Au/MgF<sub>2</sub>/Au одинакова на всех длинах волн исследуемого спектрального диапазона, а ее величина примерно в 20-30 раз меньше, чем от исследуемой метаповерхности. Причем сигнал наблюдается только при *p*-поляризованном излучении накачки и при детектировании *p*-поляризованной ВГ. Излучение ВГ от кварцевой подложки не превышает шумовой сигнал.

На рис. 4.25 (а) представлена азимутальная зависимость интенсивности ВГ, измеренная при нормальном падении зондирующего излучения для диапазона углов  $\psi \in [0; 90^\circ]$ . При  $\psi = 0^\circ$  плоскость поляризации лазерного излучения была параллельна стороне исследуемого массива. Форма зависимости  $I_{2\omega}(\psi)$  соответствует симметрии изучаемой метаповерхности, близкой к симметрии 4-го порядка. В последующих экспериментах структура была ориентирована под углом  $\psi = 0^\circ$ , чтобы детектировать максимальный квадратичный оптический отклик.

Спектры интенсивности ВГ были измерены при нормальном падении излучения накачки, при параллельных (заполненные точки на рис. 4.25 (б)) и ортогональных (выколотые точки на рис. 4.25 (б)) поляризациях излучения накачки и ВГ. В первом случае наблюдается максимум на длине волны около 795 нм, что приблизительно соответствует спектральному положению магнитодипольного резонанса. При этом сигнал ВГ возрастает примерно в 10 раз. Во втором случае интенсивность ВГ на порядок меньше, а зависимость  $I_{2\omega}(\lambda)$  монотонно убывает. Следует отметить, что для



**Рис. 4.25.** Экспериментальные данные исследования нелинейно-оптического отклика массивов трехслойных нанодисков: (а) азимутальная анизотропия интенсивности ВГ,  $\theta = 0^\circ$ ,  $\lambda = 790$  нм, поляризации волны накачки и ВГ сонаправлены и при  $\psi = 0^\circ$  параллельны стороне массива; (б) спектры интенсивности ВГ при  $\theta = 0^\circ$ ,  $\psi = 0^\circ$ , параллельные (заполненные символы) и перпендикулярные (выколотые точки) плоскости поляризации накачки и ВГ; (в) спектры интенсивности ВГ при  $\theta = 30^\circ$ ,  $\psi = 0^\circ$ ,  $p-p$  (заполненные символы) и  $s-p$  (выколотые точки) комбинации поляризаций накачки и ВГ; (г) частотно-угловые спектры интенсивности ВГ при  $\psi = 0^\circ$ ,  $p-p$  (левая панель) и  $s-p$  (правая панель) комбинации поляризаций накачки и ВГ; (д) спектр фазы ВГ,  $\theta = 0^\circ$ ,  $\psi = 0^\circ$ , параллельные поляризации; (е) спектр фазы ВГ,  $\theta = 30^\circ$ ,  $\psi = 0^\circ$ ,  $s-p$ .

структуры с симметрией  $4m$  отсутствуют компоненты нелинейной восприимчивости второго порядка, приводящие к генерации ВГ при нормальном падении зондирующего излучения на структуру [230]. Механизм такого эффекта будет обсужден ниже.

При наклонном падении излучения накачки были измерены частотно-угловые спектры интенсивности  $p$ -поляризованной ВГ при  $p$ - и  $s$ -поляризованном лазерном излучении (рис. 4.25 (г)). Видно, что эффективность квадратичного нелинейно-оптического отклика возрастает с увеличением  $\theta$ , что характерно для  $p$ -поляризованного излучения ВГ. Кроме того, максимум интенсивности ВГ немного смещается в красную область в увеличением угла падения.

Спектры интенсивности  $p$ -поляризованной ВГ при  $p$ - и  $s$ -

поляризованном лазерном излучении, падающем на метаповерхность под углом  $30^\circ$ , представлены на рис. 4.25 (в). В обеих комбинациях поляризаций наблюдается максимум в районе  $\lambda = 820$  нм.

Спектры фазы ВГ в окрестности магнитодипольного резонанса были получены методом однолучевой интерферометрии ВГ (схема на рис. 1.23). Для нормировки использовался кристалл кварца, у которого нет резонансных особенностей в исследуемом спектральном диапазоне [182]. При  $\theta = 0^\circ$  эксперимент проводился при параллельных ориентациях поляризации излучения накачки и ВГ. Наблюдается изменение фазы ВГ почти на  $360^\circ$  при прохождении длины волны излучения накачки через магнитодипольный резонанс (рис. 4.25 (д)). При наклонном падении лазерного излучения фаза в аналогичном спектральном диапазоне меняется примерно на  $90^\circ$  (рис. 4.25 (е)).

#### 4.4.5. Обсуждение результатов

Для анализа экспериментальных данных рассмотрим симметрию исследуемой метаповерхности. Она близка к симметрии 4-го порядка, однако анизотропия ВГ (рис. 4.25 (а)) и СЭМ-изображение элемента (рис. 4.23 (б)) указывают на то, что структура имеет плоскость зеркальной симметрии, перпендикулярную плоскости массива, что связано с особенностями изготовления. Действительно, наноэлементы слегка наклонены (все в одном направлении), что подтверждается СЭМ-изображением мета-атома (рис. 4.23 (б)), то есть симметрия структуры (как и всей метаповерхности) -  $m$ . Такая форма элементов, предположительно, также приводит к сдвигу спектрального положения минимумов пропускания в линейном отклике при различных азимутальных ориентациях структуры (рис. 4.24 (а)).

Компоненту нелинейной поляризации можно записать следующим образом:

$$P_{2\omega,i} = \chi_{ijk}^{eee} E_{\omega,j} E_{\omega,k} + \chi_{ijk}^{eem} E_{\omega,j} B_{\omega,k} + \chi_{ijk}^{emm} B_{\omega,j} B_{\omega,k} + \chi_{ijkl}^{eeQ} E_{\omega,j} \nabla_k E_{\omega,l}, \quad (4.18)$$

где верхние индексы  $eee$  соответствуют электродипольным компонентам,  $eem$  и  $emm$  - магнитодипольным, а  $eeQ$  - электроквадрупольным.

Обычно ограничиваются первым (электродипольным) слагаемым в (4.18), однако при резонансном возбуждении магнитного диполя в струк-

туре или при возбуждении квадруполья все слагаемые могут быть соизмеримы. В [230] было показано, что симметрия тензора  $\hat{\chi}^{eee}$  совпадает с симметрией  $\hat{\chi}^{emm}$ . Для зеркальной симметрии относительно плоскости  $YOZ$  отличны от нуля следующие магнитодипольные компоненты [202]:

$$\begin{aligned}\chi_{xxz}^{emm} &= \chi_{xzx}^{emm}, \chi_{yyz}^{emm} = \chi_{zyy}^{emm}, \chi_{zxx}^{emm}, \\ \chi_{zyy}^{emm}, \chi_{zzz}^{emm}, \chi_{xxy}^{emm} &= \chi_{xyx}^{emm}, \chi_{yyy}^{emm}, \\ \chi_{zyz}^{emm} &= \chi_{zzy}^{emm}, \chi_{yxx}^{emm}, \chi_{yzz}^{emm}.\end{aligned}\quad (4.19)$$

Рассмотрим сначала случай нормального падения излучения накачки на структуры симметрии  $m$ , параллельные поляризации накачки и ВГ. Пусть плоскость поляризации ориентирована вдоль  $YOZ$  (см. схему на рис. 4.25 (а)), тогда есть ненулевая  $y$ -компонента электрического поля и  $x$ -компонента магнитного поля. Когда плоскость поляризации ВГ ориентирована вдоль  $YOZ$ , то основную роль в формировании нелинейно-оптического отклика играет компонента  $\chi_{yxx}^{emm}$ . Тогда поле ВГ:

$$E_{2\omega}^{emm} \propto \chi_{yxx}^{emm} B_{\omega,x}^2 L_{\omega,magn}^2(\omega), \quad (4.20)$$

где  $L_{\omega,magn}$  - резонансный фактор локального поля на частоте накачки (здесь учтено, что на частоте ВГ спектральных особенностей в структуре не наблюдается). При этом электродипольный вклад  $\chi_{yyy}^{eee} E_{\omega}^2$  мал в нерезонансных (для электрического поля в структуре) условиях для слабо асимметричной метаповерхности. Экспериментальные точки на рис. 4.25 (а) были аппроксимированы функцией вида  $I_{2\omega}(\psi) \propto |\chi_{yxx}^{emm} \cos^3 \psi + \chi_{yyy}^{emm} \cos \psi \sin^2 \psi - 2\chi_{xxy}^{emm} \sin \psi \cos^2 \psi|^2$  [13].

Следует также отметить, что, в соответствии с (4.18), есть еще один вклад в генерацию ВГ, индуцированный компонентами  $\chi_{yyx}^{eem} = \chi_{yxy}^{eem}$ . Соответствующее электрическое поле  $E_{2\omega}^{eem} \propto \chi_{yyx}^{eem} B_{\omega} L_{\omega,magn} E_{\omega} L_{\omega,el}$  ( $L_{\omega,el}$  - фактор локального поля для электродипольного резонанса на основной частоте) слабее, чем  $E_{2\omega}^{emm}$  так как содержит только один резонансный множитель  $L_{\omega,magn}$ .

В силу того, что интенсивность ВГ  $I_{2\omega} \sim |E_{2\omega}^{emm}|^2 \sim L_{\omega,magn}^4$ , она возрастает в спектральной окрестности магнитодипольного резонанса (рис. 4.25 (б), заполненные символы). Фаза  $L_{\omega,magn}$  изменяется на  $180^\circ$  при прохождении длины волны накачки через резонанс, поэтому фаза  $E_{2\omega}^{emm}$  меня-

ется на  $360^\circ$ . Это соответствует данным интерферометрии (рис. 4.25 (д)) и подтверждает резонансную природу наблюдаемых явлений.

Для ортогональных поляризаций излучения накачки и ВГ регистрируется  $x$ -поляризованная компонента ВГ. Ненулевые компоненты  $\hat{\chi}^{emm}$ , которые играют роль в формировании нелинейно-оптического отклика в такой геометрии, отсутствуют (нужна компонента  $\chi_{xxx}^{emm}$ ). Поэтому не наблюдается резонансный отклик на рис. 4.25 (б), (выколотые точки). Небольшой нерезонансный отклик может быть связан с гиперрелеевским рассеянием.

При наклонном падении лазерного излучения играют роль различные компоненты тензора квадратичной восприимчивости (4.20), а также,  $\hat{\chi}^{eem}$  и  $\hat{\chi}^{eee}$ . Суперпозиция различных резонансных и нерезонансных вкладов, приводит, во-первых, к спектральному сдвигу кривых  $I_{2\omega}(\lambda)$  (рис. 4.25 (в)), а во-вторых, к тому, что изменение фазы при прохождении длины волны накачки через резонанс оказывается меньше  $360^\circ$ . Аналогичные эффекты наблюдались при возбуждении ППП и решеточного плазмонного резонанса.

В завершении обсуждения следует отметить, что по симметрии электроквадрупольный вклад в генерацию ВГ дает такие же компоненты тензора квадратичной восприимчивости, что и магнитодипольный. Экспериментально их разделить затруднительно - это предмет для дальнейшего исследования вкладов в квадратичный оптический отклик от разных мультиполей (4.17) расчетными методиками.

## Выводы по Главе 4

Подводя итог, можно сказать, что плазмонные эффекты играют ключевую роль в формировании оптического, магнитооптического и нелинейно-оптического отклика. Конкретное проявление резонансных эффектов при взаимодействии металлических наноструктур с электромагнитным излучением зависит от дизайна метаповерхности, геометрии эксперимента и механизма усиления локального электрического или магнитного поля.

1. В резонансных наноструктурах анизотропия интенсивности ВГ определяется не симметрией метаповерхности, а картиной распределения

локального поля в наноэлементах, потому что именно локальное поле определяет амплитудные и фазовые соотношения между компонентами тензора квадратичной восприимчивости.

2. В массивах никелевых наностержней обнаружено увеличение магнитного контраста интенсивности ВГ вблизи длины волны накачки 760 нм при  $s$ -поляризации лазерного излучения, что обусловлено усилением локального оптического поля на частоте ВГ при возбуждении поверхностных плазмонов. Максимальное значение магнитного контраста интенсивности ВГ достигает 15%. В кристаллографическом отклике ВГ резонансных особенностей в том же спектральном диапазоне не выявлено, что, по видимому, связано с низкой добротностью плазмонного резонанса на фоне многолучевой интерференции в эффективной пленке. Таким образом, экспериментально показано, что метод генерации магнитоиндуцированной ВГ позволяет исследовать низкодобротные плазмонные резонансы в магнитных материалах, наблюдение которых при исследовании кристаллографического квадратичного оптического отклика затруднено.

3. Обнаружено усиление и смена знака магнитного контраста в геометрии Фохта в 2D массивах золотых наночастиц в пленке граната при возбуждении решеточного плазмонного резонанса и волноводной моды. Величина  $\rho_\omega$  максимальна в структурах с наименьшим периодом (200 нм) и достигает  $3 \cdot 10^{-3}$ .

4. Методами спектроскопии и интерферометрии магнитоиндуцированной ВГ в 2D массивах золотых наночастиц в пленке граната показано, что спектральные положения максимумов резонансных кривых интенсивности ВГ различаются примерно на 8 нм в насыщающих магнитных полях  $+\mathbf{H}$  и  $-\mathbf{H}$ . Предложено феноменологическое объяснение наблюдаемого эффекта, связанное с различными фазовыми соотношениями между резонансными и нерезонансными вкладками в отклик ВГ при возбуждении решеточного плазмонного резонанса.

5. Исследована серия гетероструктур, представляющих собой тонкие пленки кобальта на поверхности опала и сочетающих в себе магнитные, фотоннокристаллические и плазмонные свойства. Показано, что существуют частотно-угловые области, где наблюдаются одновременно и аномальное пропускание, и усиление поперечного магнитооптического эффекта, обусловленные возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов.

Обнаружена смена знака и усиление магнитного контраста ВГ при возбуждении ППП в гетероструктурах опал/кобальт. Величина  $\rho_{2\omega}$  достигает 20% в окрестности резонанса.

6. Проведена спектроскопия интенсивности и фазы ВГ в квадратных массивах трехслойных нанодисков Au/MgF<sub>2</sub>/Au. Обнаружено усиление интенсивности квадратичного нелинейно-оптического сигнала примерно на порядок и изменение фазы ВГ на 360° при возбуждении магнитодипольного плазмонного резонанса. Предложена интерпретация наблюдаемых эффектов в терминах магнитодипольных компонент тензора квадратичной восприимчивости.

*Результаты, приведенные в Главе 4, опубликованы в работах [A5, A6, A11-A13, A15, A25, A36-A38, A40].*

---

## ГЛАВА 5

# Эффекты анизотропии циркулярного дихроизма в отклике второй гармоники 2D массивов хиральных наноструктур

---

В Главе рассмотрены эффекты анизотропии и хиральности в формировании нелинейно-оптического отклика четырех типов структур, демонстрирующих различные свойства при взаимодействии с лазерным излучением.

### § 5.1. Массивы золотых наночастиц в форме запятых на стеклянной подложке

В данном разделе исследованы массивы планарных хиральных наночастиц, которые одинаково ориентированы и хаотически расположены на подложке. Интерес представляет исследование влияния эффектов анизотропии и хиральности на спектральные зависимости оптического и нелинейно-оптического отклика при перестройке длины волны лазерного излучения между спектральным положением двух локальных поверхностных плазмонов с разным пространственным распределением электромагнитного поля в нанoelementах.

#### 5.1.1. Исследуемые структуры

Структуры представляют собой массивы золотых планарных наночастиц в форме запятых с латеральным размером примерно 200 нм и толщиной около 20 нм. Мета-атомы одинаково ориентированы, но хаотически расположены на стеклянной подложке (рис. 5.1 (а)). Метаповерхности были изготовлены в.н.с. Химического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова к.х.н. Боченковым В.Е. методом коллоидной литографии (рис. 4.1), подробное описание которого приведено в работах [206, 231, 232].

### 5.1.2. Линейный оптический отклик

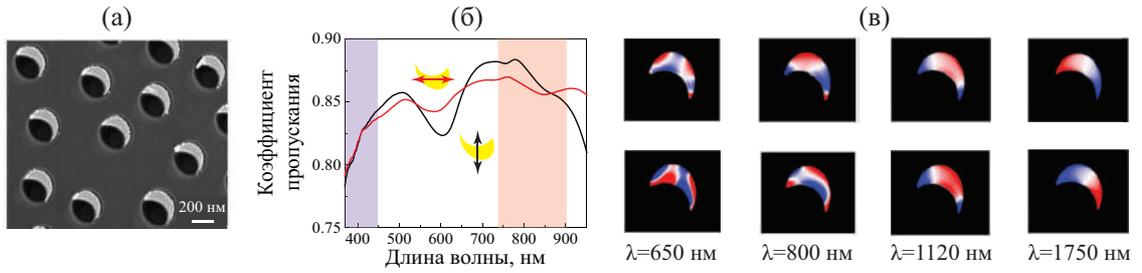
Спектры пропускания метаповерхности, измеренные на установке (1.19) при нормальном падении линейно поляризованного излучения накачки на структуру при двух ее ориентациях, представлены на рис. 5.1 (б). Наблюдаются минимумы пропускания в области длин волн 600 и 840 нм, их добротность и спектральное положение немного меняются при изменении ориентации плоскости поляризации зондирующего излучения относительно структуры.

В работе [232] методом FDTD в программном пакете Lumerical Solutions были рассчитаны спектры поглощения изолированной золотой частицы в форме запятой. В расчетной спектральной области было обнаружено четыре локальных плазмонных резонанса на длинах волн примерно 650, 800, 1120 и 1750 нм. Расчеты показали, что распределения плотности заряда при возбуждении указанных резонансов имеют качественно разную картину (рис. 5.1 (в)). Самый длинноволновый резонанс соответствует электродипольному плазмону, как видно из полярности зарядов на остриях частицы, остальные - мультиполям более высоких порядков.

В работе [232] были также измерены спектры циркулярного дихроизма структуры в ближнем ИК диапазоне, обнаружено, что максимальное значение  $CD$  составляет 15% и наблюдается при возбуждении электродипольного плазмонного резонанса. При этом величина  $CD$  меняет знак, в зависимости от того, облучается метаповерхность со стороны подложки или со стороны золотых элементов, т.е. при инверсии структуры. Расчеты показали, что величина циркулярного дихроизма возрастает на два порядка возрастает вблизи острых концов нанoeлементa, по сравнению с остальной его площадью.

### 5.1.3. Генерация ВГ

Эксперименты были проведены при нормальном падении лазерного излучения, в геометрии “на пропускание”, мощность волны накачки на образце составляла около 100 мВт. Свет фокусировался на структуре в пятно диаметром 50 мкм, так что облучалось около 10000 нанoeлементов. При измерении азимутальных зависимостей интенсивности ВГ при линейно поляризованной накачке плоскость поляризации лазерного излучения уста-

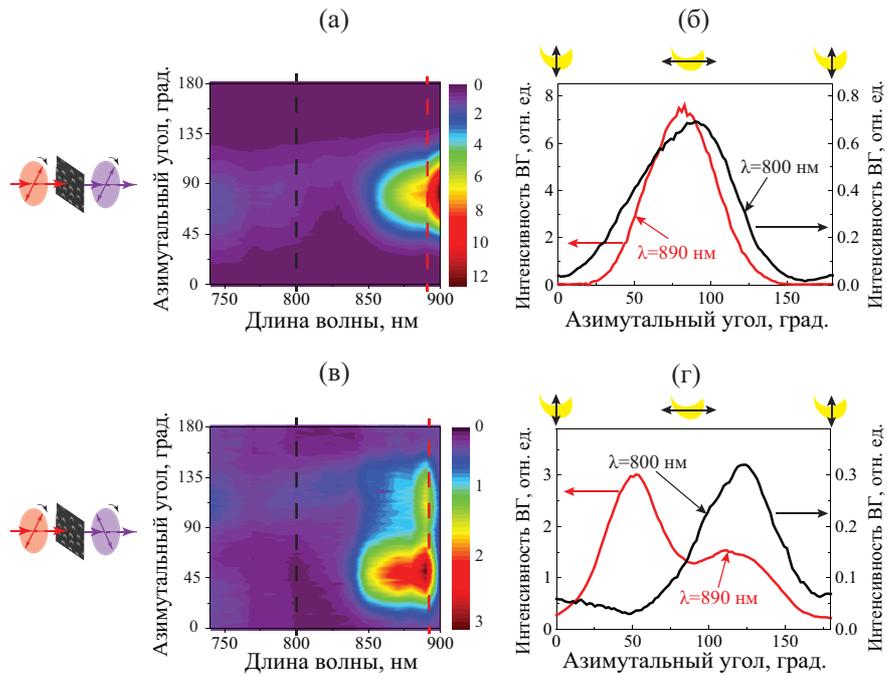


**Рис. 5.1.** (а) СЭМ-изображение поверхности массива наночастиц в форме запятых; (б) спектры коэффициента пропускания структуры при нормальном падении света и двух ориентациях метаповерхности относительно плоскости поляризации света (диапазон перестройки Ti:Sa лазера на частоте накачки и ВГ выделен красным и фиолетовым цветом, соответственно); (в) рассчитанные распределения плотности электрического заряда на указанной резонансной длине волны, когда поляризация падающего света ориентирована поперек (верхний ряд) и вдоль нанoeлементa (нижний ряд) [232].

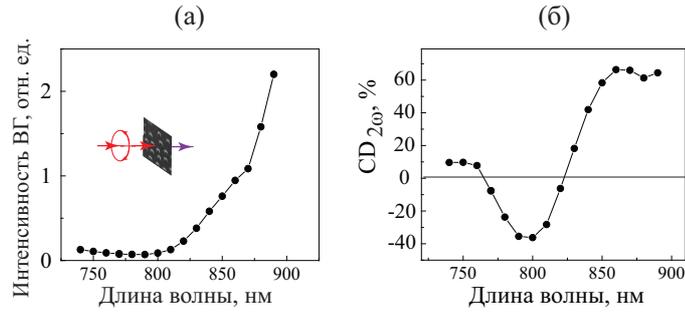
навливалась с помощью полуволновой пластинки, а плоскость поляризации регистрируемой ВГ выделялась с помощью анализатора. При изучении азимутальных зависимостей интенсивности ВГ исследуемая структура была неподвижна, а пластинка  $\lambda/2$  и анализатор вращались синхронно. При этом облучалась одна и та же область на образце. Измерения были проведены при параллельных и скрещенных поляризациях зондирующего излучения и ВГ.

Азимутальные зависимости при вращении плоскости поляризации падающего света на  $2\pi$  демонстрируют повторяемость с периодом  $\pi$ , для краткости результаты на рис. 5.2 представлены только для  $\psi \in [0, \pi]$ . Оказалось, форма азимутальных зависимостей интенсивности ВГ существенно меняется при перестройке длины волны зондирующего излучения, особенно это заметно в скрещенных поляризациях падающего и детектируемого света. Так, на коротковолновом краю перестройки диапазона лазера наблюдается два максимума ВГ на азимутальный оборот, а на длинноволновом – четыре разновеликих максимума (рис. 5.2 (б,г)). Средняя по азимутальному углу интенсивность ВГ возрастает на порядок при увеличении длины волны. В минимумах зависимости  $I_{2\omega}(\psi)$  интенсивность квадратичного нелинейно-оптического сигнала пренебрежимо мала, что говорит об отсутствии некогерентного отклика, обусловленного нелинейным рассеянием на шероховатостях структуры.

Для данной метаповерхности, образованной асимметричными нано-



**Рис. 5.2.** Анизотропия интенсивности ВГ в массиве наночастиц в форме запятыx: (а) интенсивность ВГ (цветовая шкала) при различных азимутальных ориентациях структуры в случае, когда плоскости поляризации излучения накачки и регистрируемой ВГ параллельны; (б) срезы рисунка (а) при  $\lambda = 800$  нм (черная линия, правая ось) и  $\lambda = 890$  нм (красная линия, левая ось); (в) интенсивность ВГ (цветовая шкала) при различных азимутальных ориентациях структуры в случае, когда плоскости поляризации излучения накачки и регистрируемой ВГ перпендикулярны; (г) срезы рисунка (в) при  $\lambda = 800$  нм (черная линия, правая ось) и  $\lambda = 890$  нм (красная линия, левая ось). Ориентации плоскости поляризации излучения накачки относительно элементов структуры при  $\psi = 0, 90$  и  $180^\circ$  схематически показаны над панелями.



**Рис. 5.3.** (а) Спектр полной интенсивности ВГ при циркулярной поляризации излучения накачки; (б) спектр циркулярного дихроизма ВГ.

структурами, был исследован эффект циркулярного дихроизма. Для этого были измерены спектры интенсивности ВГ при *левой* и *правой* циркулярной поляризации излучении накачки. Затем был вычислен спектр  $I_{2\omega} = (I_{2\omega}^{left} + I_{2\omega}^{right})/2$ , что позволило исключить влияние анизотропии структуры на эффективность квадратичного нелинейно-оптического отклика. Рассчитанный таким образом спектр интенсивности ВГ (рис. 5.3 (а)) демонстрирует рост сигнала при увеличении длины волны излучения накачки.

Спектр циркулярного дихроизма ВГ, вычисленный по формуле (1.30), представлен на рис. 5.3 (б). Зависимость  $CD_{2\omega}(\lambda)$  дважды демонстрирует смену знака, при этом максимальное значение дихроизма ВГ достигает 70% в длинноволновом диапазоне. Это значение весьма велико для массива планарных нанозлементов в нерезонансных условиях и почти в 5 раз превосходит аналогичную величину в линейном отклике при возбуждении электродипольного плазмонного резонанса [232].

#### 5.1.4. Обсуждение результатов

Сравнение экспериментального спектра пропускания (рис. 5.1 (б)) и расчетного спектра поглощения [232] позволяет сделать вывод о том, что наблюдаемые минимумы пропускания на длинах волн 600 нм и 840 нм связаны с возбуждением локальных поверхностных плазмонов в золотых нанозлементах. Небольшое отличие экспериментальных и расчетных спектров может быть связано, например, с неточным заданием формы элемента модели. Уменьшение пропускания на длинноволновом крае спектрального экспериментального диапазона, по-видимому, связано с приближением к области возбуждения локального плазмона на длине волны около 1120 нм.

При этом еще раз подчеркнем, что распределение электрического заряда, а следовательно, и электрического поля в наноэлементах имеет качественно разный вид при возбуждении различных мультипольных плазмонных мод (рис. 5.1 (в)).

Азимутальная анизотропия квадратичного нелинейно-оптического отклика определяется симметрией структуры. Однако изменение азимутальных зависимостей интенсивности ВГ при перестройке длины волны излучения накачки (рис. 5.2) указывает на то, что большое влияние на формирование сигнала ВГ также оказывает распределение электрического поля в мета-атомах. Именно перераспределение областей локализации электрического поля при перестройке длины волны между различными мультипольными резонансами и определяет изменение формы  $I_{2\omega}(\psi)$ . Аналогичная картина наблюдалась в массивах наночастиц в форме полумесяцев (параграф 4.1.). В ансамбле наноэлементов в форме запятых из-за еще более низкой симметрии процесс генерации ВГ определяется вкладом шести ненулевых комплексных компонент тензора квадратичной восприимчивости, поэтому выделить их из имеющихся экспериментальных данных невозможно. Однако механизм формирования нелинейно-оптического отклика в наночастицах в форме запятых, очевидно, такой же, как и в симметричных наночастицах в форме полумесяцев.

Рост интенсивности квадратичного нелинейно-оптического отклика на длинноволновом крае исследуемой спектральной области (рис. 5.3 (а)) обусловлен, по-видимому, приближением к высокочастотному резонансу на длине волны 1120 нм и связанным с ним усилением интенсивности генерации ВГ. При этом низкочастотный резонанс на длине волны 840 нм незаметен в спектре  $I_{2\omega}$ .

Двойная смена знака в спектре циркулярного дихроизма ВГ (рис. 5.3 (б)) также является следствием перестройки длины волны излучения накачки между различными мультипольными резонансами.

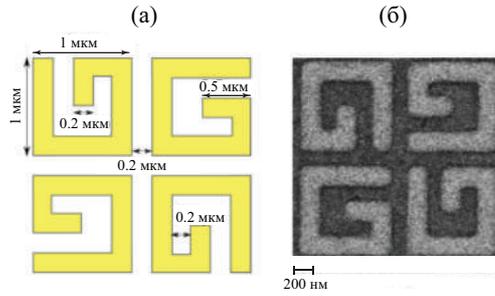
Таким образом, формирование квадратичного нелинейно-оптического отклика, в том числе циркулярный дихроизм ВГ в массивах асимметричных наночастиц определяется, преимущественно распределением поля накачки в структурах.

## § 5.2. Эффекты локализации электромагнитного поля в планарных массивах наноструктур в форме буквы “G”

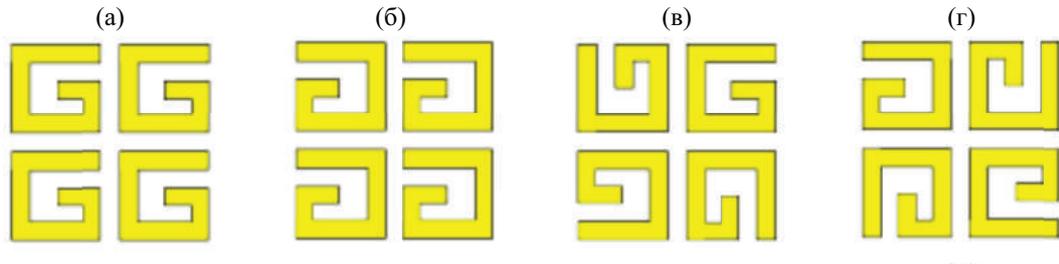
### 5.2.1. Исследуемые структуры

Структуры представляют собой массив золотых “G”-образных (или их зеркальных отображений, mirror-“G”-образных) элементов толщиной 25 нм, изготовленных на подложке из Si(100)/SiO<sub>2</sub> или стекла (рис. 5.4 (а)). Дизайн “G”-наноэлементов был выбран как наиболее близкий к плоской спирали, ассоциирующей с хиральностью. Образцы были изготовлены А. В. Шилханеком (A.V. Silhanek) в Католическом университете г. Левен (Бельгия). Изображения структур в сканирующем электронном микроскопе приведены на рис. 5.4 (б). Для изготовления образца подложка сначала покрывалась двойным слоем полиметилметакрилата, где маска из массива “G”-образных структур была сделана методом электронно-лучевой литографии, на нее потом напылялся слой золота толщиной 25 нм. После осаждения золота слой ПММА удалялся [233]. Латеральный размер каждого мета-атома - 1 мкм, а ширина “полосок” золота - 200 нм (рис. 5.4 (а)), расстояние между элементами различно в разных образцах - 200 нм или 400 нм. Вся структура занимает площадь 2.5x2.5 мм и состоит из примерно 3000x3000 мета-атомов. Для выявления роли симметрии расположения наноэлементов в массиве были сделаны два типа структур. Элементарная ячейка первого из них, упоминаемого ниже как однопериодные структуры, состоит из одного “G”-образного наноэлемента (рис. 5.5 (а, б)). Второй тип образцов далее называется двухпериодными массивами, элементарная ячейка которых образована четырьмя “G”-элементами, повернутыми на 90° друг относительно друга (рис. 5.5 (в,г)). Важно, что симметрия этих двух видов структур различна, поскольку двухпериодные массивы имеют симметрию 4-го порядка, а однопериодные асимметричны. Это позволяет выделить эффект взаимного расположения хиральных элементов на величину циркулярного дихроизма второй гармоники от всего массива.

В линейном спектре поглощения на частоте накачки в области перестройки Ti:Sa лазера есть небольшой пик на длине волны примерно 810 нм, что, вероятно, связано с возбуждением плазмонных мод в планарных наноблоках, из которых состоят “G”-образные элементы. На частоте ВГ в области перестройки Ti:Sa лазера спектральные особенности не обнаруже-



**Рис. 5.4.** (а) Схема элемента исследуемых массивов; (б) изображение одного из исследуемых образцов в сканирующем электронном микроскопе.



**Рис. 5.5.** Исследуемые образцы: (а), (б) - однопериодные, (в), (г) - двухпериодные

ны. Поглощение структуры в окрестности  $\lambda \sim 800$  нм составляет около 10%.

В аналогичных образцах уже проводились нелинейно-оптические эксперименты коллегами из Католического университета г. Левен. В работе [234] представлены результаты микроскопии ВГ при накачке циркулярно поляризованным светом на длине волны 800 нм, угол падения  $45^\circ$ . В двухпериодных образцах обнаружены области наноэлементов, где генерация ВГ происходит наиболее эффективно (“hotspots”). Их распределение изображено на рис. 5.6 и определяется направлением “закручивания” элементов структуры. То есть, распределения нелинейных источников при одной и той же поляризации зондирующего излучения в разных энантиомерах представляют собой зеркальные отображения друг друга. Следует также заметить, что среднее по исследуемой площади массива “G”-образных элементов значение интенсивности ВГ при накачке светом с *правой* циркулярной поляризацией (рис. 5.6 (а)) превосходит аналогичную величину для накачки светом с *левой* циркулярной поляризацией (рис. 5.6 (в)) в той же структуре. Это, по-видимому, приведет к наблюдению циркулярного дихроизма ВГ при детектировании квадратичного отклика в дальней зоне, что до сих пор

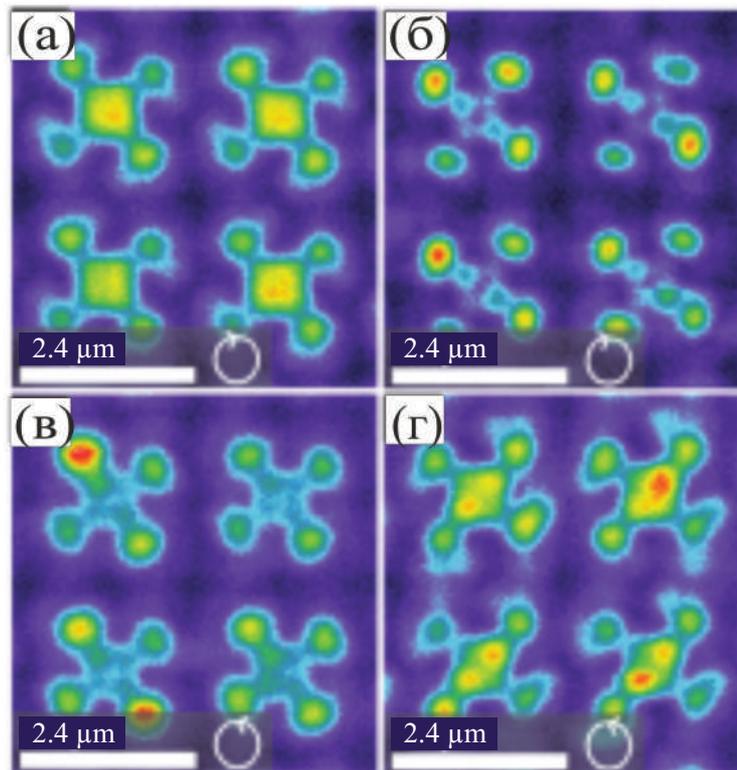
проверено не было. Такой эффект не обнаружен в однопериодных образцах, т.е., дихроизм ВГ чувствителен не только к форме элементов массива, но и к их взаимному расположению.

В работе [233] проведены аналогичные исследования при накачке линейно поляризованным светом. В таком случае образуются “hotspots” в виде буквы “N” для массивов “G”-образных образцов и “I” для массивов mirror-“G”-образных образцов. Кроме того, форма “hotspots” сохраняется при азимутальном повороте образцов. При этом можно различать энантиомеры лишь по распределению нелинейных источников, т.е., без анализа состояния и направления поляризации волны ВГ.

Анализ квадратичного отклика в дальней зоне был впервые проведен в работе [235], где представлены результаты исследования азимутальной анизотропии ВГ в двухпериодных образцах при  $p - \omega$ ,  $s - 2\omega$  комбинации излучения накачки и ВГ, соответственно. Полученные азимутальные зависимости демонстрируют симметрию четвертого порядка, причем положения максимумов различаются в разных энантиомерах. При феноменологическом объяснении экспериментальных результатов показано, что в формировании квадратичного отклика играют роль не только электродипольные, но и магнитодипольные, и электроквадрупольные компоненты тензора квадратичной восприимчивости. Для подтверждения в работе [236] были проведены расчеты распределения электрического и магнитного поля в образцах на частоте излучения накачки. Обнаружено, что области с максимальными значениями магнитного поля совпадают с областями локализации нелинейных источников. Таким образом, фактор локального поля представляет собой произведение электродипольного, магнитодипольного и электроквадрупольного вкладов.

### 5.2.2. Однопериодные массивы “G”-образных наноструктур

В этом разделе речь пойдет о результатах исследования квадратичного отклика пары энантиомеров однопериодных массивов “G”- и mirror-“G” наноструктур. Расстояние между наноструктурами в массивах 200 нм. Подложка - кремний.



**Рис. 5.6.** Распределение интенсивности ВГ в двухпериодных массивах “G”- (а, в) и mirrored “G” (б, г) наноструктур при накачке циркулярно поляризованным излучением. Направление циркулярной поляризации зондирующего излучения показано на рисунках стрелками. Каждый рисунок соответствует 4x4 элементам. Данные из работы [234].

## Экспериментальные результаты

Исследования нелинейно-оптического отклика проводились в геометрии “на отражение”, длина волны излучения накачки составляла 780 нм, угол падения  $45^\circ$ . Рабочая длина волны обусловлена устойчивостью генерации титан-сапфирового лазера и оптимальной разностью фаз, вносимой имеющейся пластинкой  $\lambda/2$ . В эксперименте облучалось более тысячи наноструктур.

На рисунке 5.7 (а, б) представлены зависимости интенсивности ВГ от азимутального угла поворота структуры при различных комбинациях поляризаций лазерного излучения и второй гармоники, как указано в подписи к рисунку. Все графики демонстрируют отсутствие симметрии, несмотря на расположение наноструктур в узлах квадратной решетки. Таким образом, в однопериодных массивах роль анизотропии отдельного “G”-наноэлемента является более важной в процессе генерации ВГ, чем взаимная ориентация наноструктур в массиве. Все компоненты тензора квадратичной восприимчивости являются ненулевыми для исследуемой структуры.

Экспериментальные данные демонстрируют ключевую роль геометрического фактора в формировании квадратичного оптического отклика - наблюдается заметное усиление интенсивности ВГ при определенных азимутальных положениях структуры относительно плоскости поляризации накачки. На зависимости  $I_{2\omega}^{pp}(\psi)$  видны четыре максимума, наиболее эффективно генерация ВГ происходит при  $\psi \approx 290^\circ$ . Максимумы интенсивности на графиках для  $p$ - и  $s$ -поляризованного излучения накачки сдвинуты относительно друг друга примерно на  $\pi/4$  по оси абсцисс. Следует также отметить, что ненулевые значения интенсивности  $s$ -поляризованной ВГ в минимумах соответствующих зависимостей свидетельствуют о наличии изотропного  $s$ -поляризованного сигнала, генерация которого запрещена в однородных средах. Такой отклик некогерентен, т.е. происходит в форме гиперрелеевого рассеяния.

Для характеристики состояния поляризации отраженного квадратичного отклика были измерены все параметры Стокса на частоте ВГ:  $S_0, S_1, S_2$  и  $S_3$ . Первый параметр Стокса  $S_0$  соответствует полной интенсивности отраженной ВГ,  $S_1 = I_p - I_s$ ,  $S_2 = I_{+45^\circ} - I_{-45^\circ}$  и  $S_3 = I_{right} - I_{left}$ , где нижние индексы  $p, s, +45^\circ, -45^\circ, left$  и  $right$  обозначают соответствующие

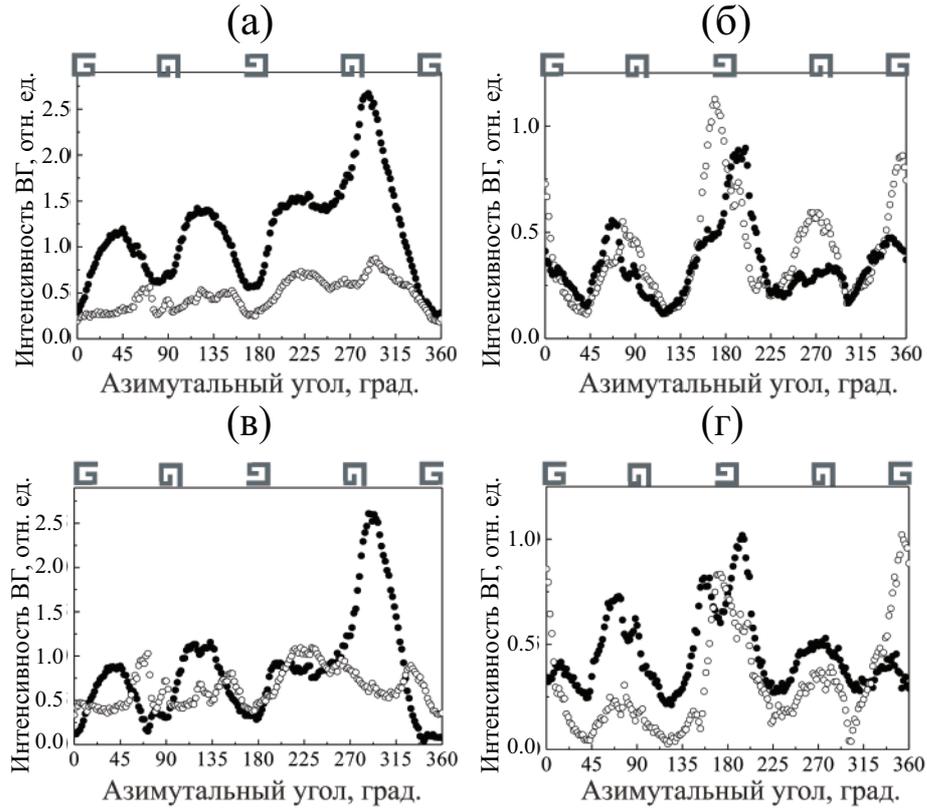
щую поляризацию квадратичного отклика (здесь  $\pm 45^\circ$  - углы, которые составляет плоскость поляризации излучения ВГ с плоскостью падения). Были вычислены азимутальные зависимости поляризованной (когерентной) и деполаризованной ВГ (рис. 5.7 (в, г)) по формулам:  $I_{pol} = \sqrt{S_1^2 + S_2^2 + S_3^2}$  и  $I_{diff} = I_0 - I_{pol}$ . Очевидно, что  $I_{pol}$  и  $I_{diff}$  сравнимы по величине, их азимутальные зависимости аналогичны, а усредненная по азимутальному углу степень поляризации, т.е.  $\langle I_{pol}/I_0 \rangle_\psi$ , составляет около 0.5. Таким образом, впервые показана существенная роль некогерентного сигнала (гиперрелевского рассеяния) в интенсивности второй гармоники отраженной от хиральных наноструктур.

Для подтверждения гипотезы о диффузном сигнале ВГ, наблюдаемом в нелинейно-оптическом отклике хиральных наноструктур, была измерена индикатриса ВГ при  $p$ -поляризованном излучении накачки (рис. 5.8). Виден когерентный зеркальный пик на фоне диффузного сигнала. Угловая ширина максимума индикатрисы ВГ составляет  $5^\circ$ , то есть соответствует угловой апертуре системы регистрации. Диффузный фон - гиперрелевское рассеяние на структурных неоднородностях на поверхности наноэлементов.

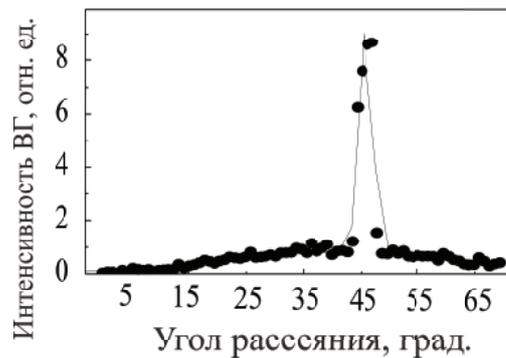
Анализ состояния поляризации излучения ВГ при  $s$ -поляризованном излучении накачки в однопериодных массивах наноструктур в форме буквы “G” и mirror-“G” показал, что эффективность генерации *правого* и *левого* циркулярно поляризованного излучения ВГ различна и зависит от азимутального положения и направления “закручивания” структуры (рис. 5.9). Данный эффект может рассматриваться как обратный эффект циркулярного дихроизма ВГ. В то же время, усреднение по всем азимутальным положениям образца дает нулевое значение  $\langle S_3 \rangle_\psi$  в обоих образцах. Усреднение проводилось путем вычисления площади под кривой  $S_3(\psi)$ . Для  $p$ -поляризованного зондирующего излучения ситуация аналогична. Анализируя вышесказанное, можно сделать вывод о том, что в однопериодных массивах, не обладающих осевой симметрией 4-го порядка, влияние хиральности на генерацию ВГ намного слабее, чем влияние анизотропии формы элементов и соответствующего распределения поля в них.

## Обсуждение

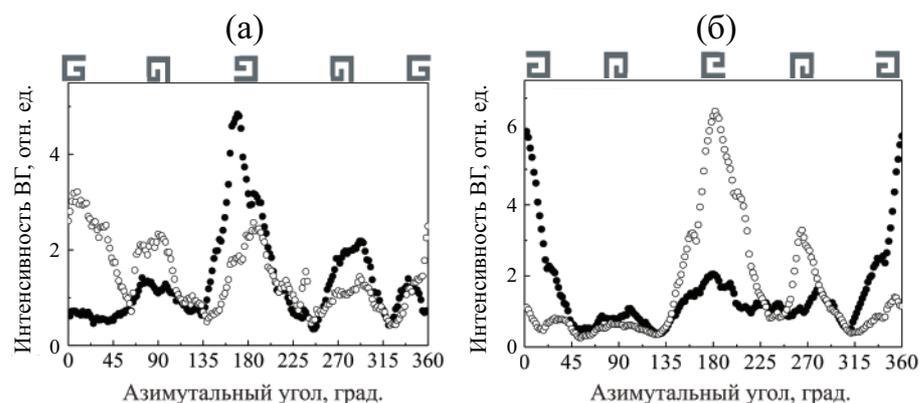
Для выявления роли распределения локальных полей в анизотропии генерации ВГ к.ф.-м.н. м.н.с. Мамоновым Е.А. были проведены расчеты



**Рис. 5.7.** Азимутальная анизотропия интенсивности  $p$ - (закрашенные символы) и  $s$ -поляризованной (незакрашенные символы) ВГ в однопериодных массивах “G”-образных наноструктур при: (а)  $p$ -поляризованном излучении накачки, (б)  $s$ -поляризованном излучении накачки. Над графиками показаны соответствующие азимутальные ориентации исследуемой структуры. Азимутальная анизотропия поляризованной (закрашенные символы) и деполаризованной (незакрашенные символы) ВГ при: (в)  $p$ -поляризованном излучении накачки, (г)  $s$ -поляризованном излучении накачки.



**Рис. 5.8.** Индикатриса рассеяния ВГ в однопериодных массивах “G”-образных наноструктур при  $p$ -поляризованном излучении накачки и  $\psi = 0^\circ$ .

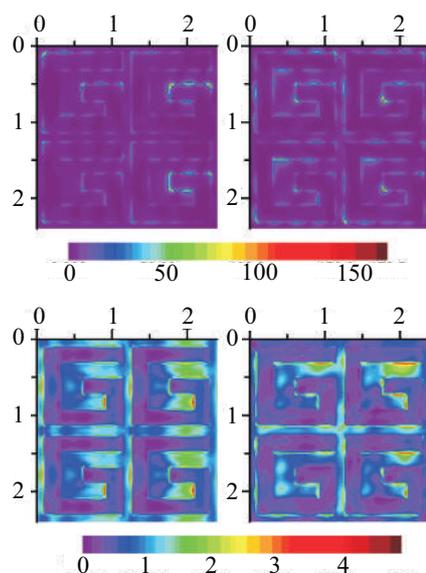


**Рис. 5.9.** Азимутальная анизотропия *правой* (закрашенные символы) и *левой* (незакрашенные символы) циркулярно поляризованной ВГ в однопериодных массивах (а) *G*-образных (б) и mirror-“*G*”-образных наноструктур при *s*-поляризованном излучении накачки.

распределения поля в исследуемых структурах методом конечных разностей во временной области в пакете FDTD Solutions (Lumerical Solutions, Inc., Канада). Параметры структуры и геометрия облучения были заданы такими же, как и в эксперименте. Заданы периодические граничные условия. Подложка при расчетах не учитывалась, хотя дальнейшие вычисления показали, что наличие подложки никак не сказывается на распределении электромагнитных полей в структурах. Распределения локальных оптических полей на частотах зондирующего излучения и ВГ определяют квадратичный отклик, т.к.  $I_{2\omega} \propto (\chi^{(2)})^2 \langle L_{2\omega}^2(\psi) \rangle \langle L_{\omega}^4(\psi) \rangle I_{\omega}$ , где  $L_{\omega}, L_{2\omega}$  - факторы локального поля на соответствующих частотах,  $I_{\omega}$  - интенсивность излучения накачки, угловые скобки обозначают статистическое усреднение по области структуры, облучаемой лазером.

На рисунке 5.10 показано рассчитанное распределение локальных полей  $L_{\omega}$  и  $L_{2\omega}$  в “*G*”-образных элементах. Рассматривалось две азимутальные ориентации образца  $\psi = 0^\circ$  и  $45^\circ$ . Легко видеть, что  $L_{\omega}$  существенно неоднороден и меняется при изменении  $\psi$ . Неоднородности  $L_{2\omega}$  в пределах структуры менее заметны, что может быть связано с более сильным поглощением в золоте на частоте ВГ 390 нм [235]. Следует подчеркнуть, что шкала на нижних панелях, как минимум, в 30 раз меньше, чем на верхних.

Принимая во внимание существенную разницу в степени локализации полей накачки и ВГ, а также, четвертую степень зависимости  $I_{2\omega}$  от  $L_{\omega}$ , можно заключить, что основная роль в анизотропии квадратичного отклика принадлежит анизотропии фактора локального поля на частоте зондирующего излучения. Была проведена оценка изменения интенсивно-



**Рис. 5.10.** Рассчитанное распределение квадрата амплитуды напряженности электрического поля (цветовая шкала, относительные единицы) в массиве однопериодных “G”-образных структур при  $p$ -поляризованном лазерном излучении. Размер каждого изображения  $2.4 \times 2.4$  мкм. Верхние рисунки соответствуют распределению электрического поля на частоте накачки, нижние – на частоте ВГ. Азимутальные положения образца соответствуют  $\psi = 0^\circ$  (левые рисунки) и  $45^\circ$  (правые рисунки). Плоскость падения излучения накачки горизонтальна.

сти квадратичного сигнала при повороте образца на углы  $180^\circ$  и  $290^\circ$ . Экспериментальное значение  $I_{2\omega}(290^\circ)/I_{2\omega}(180^\circ) \approx 4.5$ , в то время как вычисленное значение отношения усредненных по структуре локальных полей  $\langle L_\omega(290^\circ) \rangle / \langle L_\omega(180^\circ) \rangle^4 \approx 5$ , т.е. хорошо соответствует эксперименту.

Полученные результаты свидетельствуют о том, что азимутальная анизотропия квадратичного отклика однопериодных массивов “G”-образных наноструктур определяется анизотропией распределения локальных полей. В таком случае и когерентная, и некогерентная составляющие квадратичного отклика усиливаются для определенной ориентации образца по отношению к плоскости поляризации излучения накачки.

### 5.2.3. Двухпериодные массивы “G”-образных наноструктур

В данном разделе представлены результаты экспериментов по изучению оптического отклика двухпериодных массивов “G”- и mirror-“G”-образных наноструктур для определения роли хиральности в формировании квадратичного нелинейно-оптического отклика. Такое расположение эле-

ментов в массиве имеет более высокую симметрию, чем в однопериодных образцах, метаповерхность обладает осью симметрии 4-го порядка.

## Экспериментальные результаты

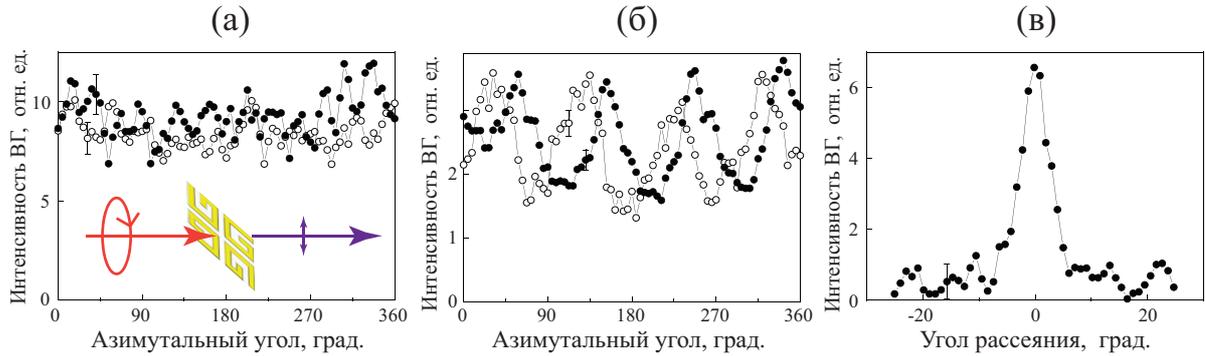
Эксперименты, описанные в этом разделе, проведены на длине волны 795 нм. Для исследования была выбрана пара образцов энантиомеров на стеклянной подложке с расстоянием между элементами 400 нм. В эксперименте облучалось более тысячи “G”- или *mirror*-“G”-образных наноструктур (диаметр сфокусированного светового пучка 50 мкм). Геометрия эксперимента выбрана “на пропускание”, что удобно при варьировании угла падения. Падающее излучение циркулярно поляризовано (для этого на выходе из лазера ставилась четверть-волновая пластинка), в прошедшем отклике выделялись *p*- и *s*-поляризованные компоненты (схема на рис. 5.11 (а)).

Для изучения эффектов циркулярного дихроизма и анизотропии на нелинейно-оптический отклик были измерены азимутальные зависимости квадратичного отклика энантиомеров при различных углах падения излучения накачки. На рис. 5.11 (а,б) представлены азимутальные зависимости для *p*-поляризованной ВГ при  $\theta = 0^\circ$  и  $\theta = 10^\circ$ . Видно, что при нормальном падении света зависимости  $I_{2\omega}(\psi)$  изотропны, в то время как при наклонном падении анизотропия демонстрирует симметрию четвертого порядка.

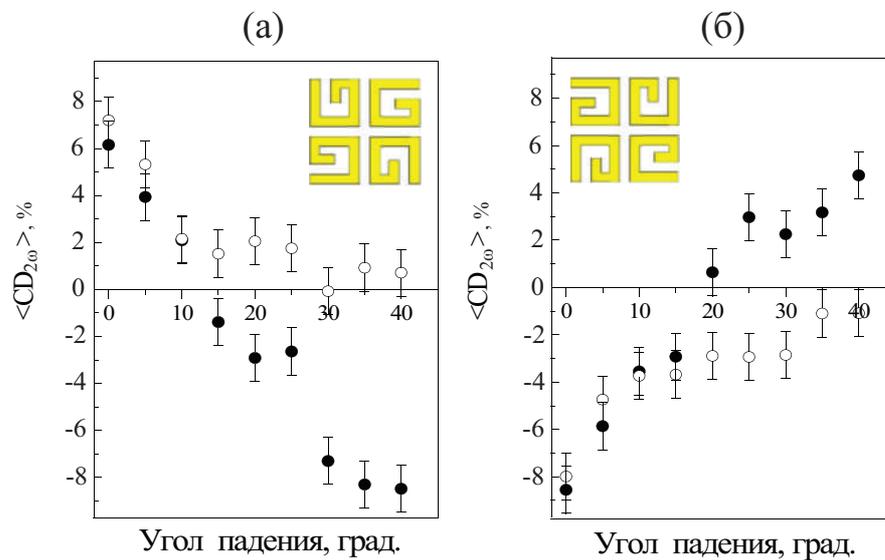
На рисунке 5.11 (в) показана индикатриса рассеяния ВГ, измеренная при циркулярно поляризованном излучении накачки. Зеркальный пик шириной примерно  $5^\circ$  (что соответствует угловой апертуре системы регистрации) и малость диффузного квадратичного отклика указывают на преимущественную когерентность регистрируемого сигнала.

Из азимутальных зависимостей интенсивности ВГ при различных комбинациях циркулярной поляризации излучения накачки и линейной поляризации ВГ были вычислены зависимости циркулярного дихроизма ВГ от  $\psi$  по формуле (1.30). Для исключения влияния анизотропии на оптическую активность метаповерхностей вычислялась средняя величина интенсивности ВГ путем интегрирования азимутальных зависимостей  $CD_{2\omega}$  по углу  $\psi$ . Получалась средняя величина циркулярного дихроизма  $\langle CD_{2\omega,p} \rangle$ ,  $\langle CD_{2\omega,s} \rangle$ . Угол падения варьировался в интервале  $\theta = 0^\circ \div 40^\circ$ .

Зависимости  $\langle CD_{2\omega} \rangle$  от угла падения для массивов “G” и *mirror*-“G” наноструктур представлены на рис. 5.12. Очевидно, что графики ка-



**Рис. 5.11.** Азимутальные зависимости интенсивности  $p$ -поляризованной ВГ в массиве “G”-образных наноструктур при *правой* (закрашенные точки) и *левой* (выколотые точки) циркулярной поляризации зондирующего излучения: (а)  $\theta = 0^\circ$  и (б)  $\theta = 10^\circ$ . (в) Индикатриса рассеяния ВГ, измеренная при нормальном падении циркулярно поляризованного зондирующего излучения.



**Рис. 5.12.** Зависимости усредненного по азимутальному углу циркулярного дихроизма от угла падения для  $p$ - (закрашенные символы) и  $s$ - (незакрашенные символы) поляризованной ВГ в массивах (а) “G”-образных и (б) mirror-“G”-образных наноструктур.

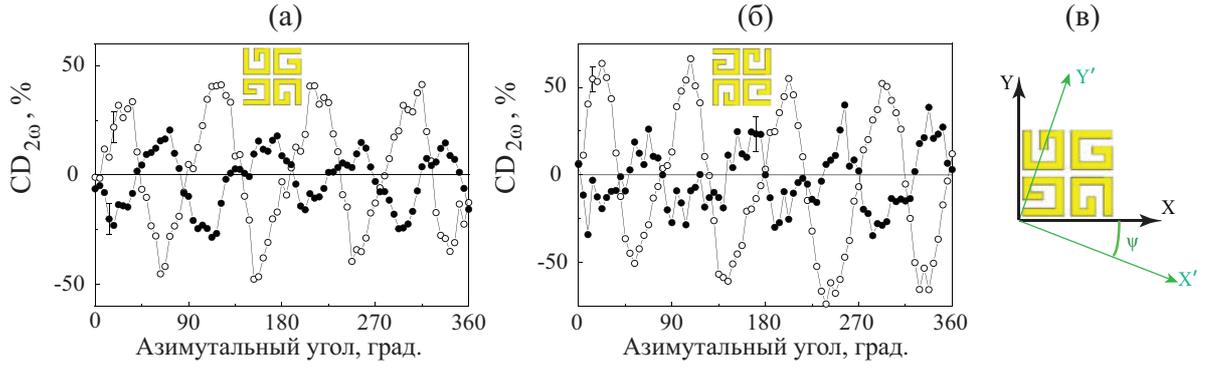
чественно идентичны, но знаки циркулярного дихроизма противоположны для энантиомеров. Для массива “G”-образных наноструктур величина  $\langle CD_{2\omega,s} \rangle$  уменьшается практически до нуля с увеличением  $\theta$ , составляя 8% при нормальном падении излучения накачки, в то время как для  $p$ -поляризованного отклика  $\langle CD_{2\omega,p} \rangle$  уменьшается до нуля и меняет знак примерно при  $\theta = 15 \div 20^\circ$ . Зеркально симметричные зависимости наблюдаются для массива mirror-“G” наноструктур, как видно на рис. 5.12 (б). Таким образом, знак  $\langle CD_{2\omega} \rangle$ , усредненного по всем азимутальным углам, определяется типом энантиомера и существенно зависит от угла падения.

На рисунке 5.13 представлены азимутальные зависимости  $CD_{2\omega,s}$  и  $CD_{2\omega,p}$  для массивов “G”- и mirror-“G”-образных наноструктур при  $\theta = 15^\circ$ , т.е. когда  $\langle CD_{2\omega,p} \rangle \approx 0$ . Будучи нулевым в среднем,  $CD_{2\omega,p}$  меняет знак при азимутальных углах  $\psi = n \cdot \pi/4, n = 0, 1, 2, \dots$ . Азимутальные зависимости  $CD_{2\omega,p}$  и  $CD_{2\omega,s}$  сдвинуты относительно друг друга по оси  $\psi$ , так что максимум одной из них наблюдается при минимуме другой. Стоит также отметить, что  $CD_{2\omega}$  в максимумах достигает довольно больших значений 40÷60% для  $p$ -поляризации ВГ. Интересен также тот факт, что азимутальные зависимости  $CD_{2\omega}$  двух энантиомеров выглядят как зеркальные отображения друг друга. Таким образом,  $CD_{2\omega}$  может достигать различных значений и даже менять знак, просто при повороте образца вокруг его нормали, что свидетельствует о сильном влиянии и анизотропии, и хиральности в формировании квадратичного нелинейно-оптического отклика. Более того, различный знак  $CD_{2\omega}$  в одинаково ориентированных энантиомерах позволяет применять описанный метод для их различения.

Следует отметить, что азимутальные зависимости циркулярного дихроизма были также измерены в линейном отклике. Оказалось, что величина  $CD$  не превышает 5%, а усредненная по азимутальному углу  $\langle CD \rangle$  не превышает 1%. Таким образом, большие значения  $CD_{2\omega}$  в генерации ВГ обусловлены чувствительностью метода к симметрии исследуемой метаповерхности.

## Обсуждение результатов

Для объяснения наблюдаемых эффектов необходимо проанализировать симметрию тензора  $\hat{\chi}^{(2)}$  для исследуемых хиральных метаповерхностей, определяемую как формой элементов, так и их расположением и



**Рис. 5.13.** Азимутальные зависимости циркулярного дихроизма интенсивности  $p$ - (закрашенные символы) и  $s$ -поляризованной (незакрашенные символы) ВГ при угле падения зондирующего излучения  $15^\circ$  в массиве “G”-образных (а) и mirror-“G”-образных (б) наноструктур. (в) лабораторная система координат (черные оси) и система координат, связанная с образцом (зеленые оси).

ориентацией на подложке. Симметрия четвертого порядка обуславливает следующие ненулевые электродипольные компоненты:  $\chi_{zzz}$ ,  $\chi_{zxx} = \chi_{zyy}$ ,  $\chi_{xxz} = \chi_{yyz} = \chi_{xzx} = \chi_{yzy}$ ,  $\chi_{xyz} = \chi_{xzy} = -\chi_{yxz} = -\chi_{yzx}$  [230, 237] (система координат показана на рис. 5.13 (в), плоскость падения -  $XOZ$ ). Причем, последние четыре компоненты отличны от нуля только в хиральных средах. Проведя вычисления, аналогичные приведенным ранее, можно показать, что в электродипольном приближении интенсивность  $p$ - и  $s$ -поляризованной ВГ при циркулярной поляризации излучения накачки могут быть записаны как [230]:

$$I_p^{right,left} \propto \sin^2 \theta | -\chi_{zxx} \sin^2 \theta + \chi_{zzz} \sin^2 \theta + 2\chi_{xxz} \cos^2 \theta \pm i2\chi_{xyz} \cos \theta |^2 E_0^2. \quad (5.1)$$

$$I_s^{right,left} \propto \sin^2 \theta | \chi_{xyz} \cos \theta \pm i\chi_{xxz} |^2 E_0^2, \quad (5.2)$$

где  $+i$  и  $-i$  соответствуют *правой* и *левой* циркулярной поляризации накачки. Из выражений (5.1) и (5.2) следует, что, во-первых, интенсивность ВГ должна быть нулевой при нормальном падении излучения накачки ( $\theta = 0$ ),  $I_{p,s}^{right,left} = 0$ , а во-вторых, в электродипольном приближении ВГ должна быть изотропна. Это противоречит экспериментальным данным, приведенным выше, где видно наличие ненулевого когерентного сигнала ВГ при нормальном падении лазерного излучения (рис. 5.11 (а)) и анизотропии интенсивности ВГ, демонстрирующей симметрию 4-го порядка, для наклонного падения зондирующего излучения (рис. 5.11 (б)). Таким образом

очевидно, что рассмотрения в электродипольном приближении недостаточно, требуется учет нелинейностей высших порядков - магнито-дипольных и электро-квадрупольных компоненты квадратичной поляризации [13]. Симметричный анализ [230, 237] показывает, что эти вклады действительно имеют необходимую симметрию для объяснения наблюдаемых эффектов.

Формулы для  $CD_{2\omega}$  второй гармоники в дипольном приближении в зависимости от угла падения  $\theta$  можно получить, подставляя (5.1) и (5.2) в формулу (1.30). Тогда для случая  $s$ -поляризованной ВГ  $CD_{2\omega}$  имеет вид:

$$\langle CD_{2\omega,s} \rangle = 2 \cos \theta \frac{Im \chi_{xyz} Re \chi_{xxz} - Re \chi_{xyz} Im \chi_{xxz}}{|\chi_{xxz}|^2 + |\chi_{xyz}|^2 \cos^2 \theta} \quad (5.3)$$

в то время как для  $p$ -поляризованной ВГ формула более сложная:

$$\begin{aligned} \langle CD_{2\omega,p} \rangle = & \\ = & (4(Im \chi_{xxz} Re \chi_{xyz} - Re \chi_{xxz} Im \chi_{xyz}) \cos^3 \theta + \\ & + 2(Im(\chi_{zzz} - \chi_{zxx}) Re \chi_{xyz} + \\ & + Re(\chi_{zzz} - \chi_{zxx}) Im \chi_{xyz}) \sin \theta \sin 2\theta) \\ & (4|\chi_{xxz}|^2 \cos^4 \theta + \\ & + (|\chi_{zxx}|^2 + |\chi_{zzz}|^2 - 2(Re \chi_{zxx} Re \chi_{zzz} + Im \chi_{zxx} Im \chi_{zzz})) \sin^4 \theta + \\ & + 4(\chi_{xyz}^2 + (Re(\chi_{zxx} - \chi_{zzz}) Re \chi_{xxz} + Im(\chi_{zzz} - \chi_{zxx}) Im \chi_{xxz}) \sin^2 \theta) \cos^2 \theta)^{-1} \end{aligned} \quad (5.4)$$

Из выражений (5.3) и (5.4) следует, что  $\langle CD_{2\omega,s} \rangle(\theta)$  монотонно уменьшается с увеличением угла падения, а  $\langle CD_{2\omega,p} \rangle(\theta)$  может менять знак при некотором значении  $\theta$ . Более того, и  $\langle CD_{2\omega,p} \rangle(\theta)$ , и  $\langle CD_{2\omega,s} \rangle(\theta)$  имеют противоположные знаки для разных энантиомеров. Направление “закручивания” формы элемента (т.е. “G”- или mirror-“G”) определяется знаком хиральной электродипольной компоненты  $\chi_{xyz}$ . Поэтому зависимости на рисунках 5.12 (а) и 5.12 (б) выглядят как зеркальные изображения друг друга.

С феноменологической точки зрения наблюдается конкуренция двух вкладов в круговой дихроизм: эффект хиральности формы самого “G” –образного элемента, который максимален при нормальном падении и уменьшается при увеличении угла падения, и наведенной хиральности, возникающей при наклонном падении из-за несимметричности структуры относительно плоскости падения. Противодействие упомянутых эффектов может приводить к различным формам зависимостей усредненного зна-

чения кругового дихроизма. Кроме того, значительную роль в формировании нелинейно-оптического отклика играют распределения “hotspots” в наноэлементах.

### § 5.3. Массивы хиральных наноотверстий в серебряной пленке

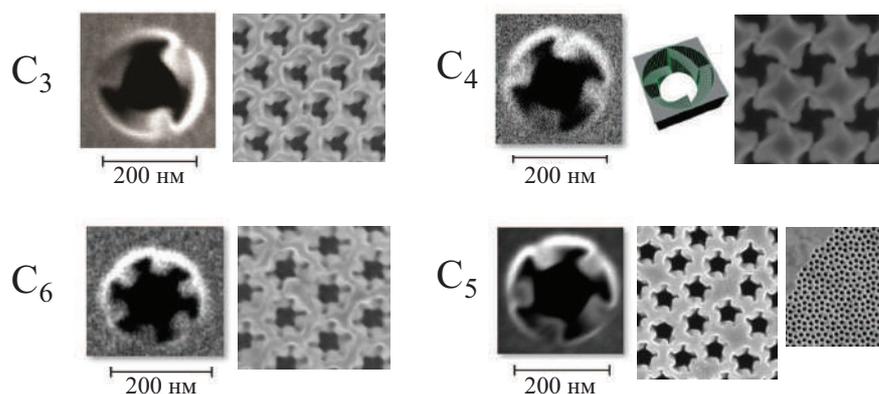
В данном разделе приведены результаты исследований “инвертированных” хиральных метаповерхностей - массивов квазидвумерных винтообразных отверстий различной симметрии в серебряной пленке субмикронной толщины. Такие структуры интересны тем, что сочетают в себе высокое (аномальное) пропускание и оптическую активность. Приведено детальное экспериментальное исследование линейного оптического отклика, а также, изучение эффектов анизотропии и хиральности в генерации ВГ.

Массивы планарных хиральных наноотверстий ранее были мало исследованы. Так, например, в массиве отверстий в форме гаммадиона в металлической пленке показано, что разная локализация электрического поля в структуре при *правой* и *левой* циркулярной поляризации зондирующего излучения приводит к изменению состояния поляризации прошедшего через структуру света [238]. При этом авторы ограничились рассмотрением линейного оптического отклика.

Следует также упомянуть имеющиеся в литературе исследования квазидвумерных винтообразных наноструктур. Так, большие значения угла поворота плоскости поляризации излучения ВГ, вплоть до  $45^\circ$ , были обнаружены в металлических наноспиральных [239, 240]. В то же время, в инвертированной структуре, т.е. в массиве хиральных винтообразных наноотверстий, подобных экспериментов проведено не было.

#### 5.3.1. Исследуемые структуры

Массивы наноотверстий были изготовлены О.Ю. Роговым в Институте Кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН с помощью фокусированного ионного пучка (ФИП) с использованием ионов галлия  $Ga^+$  под контролем двулучевого микроскопа FEI Scios DualBeam [241]. Структуры сформированы в серебряной пленке толщиной 250 нм, нанесенной методом термического испарения в вакууме на поддерживающую мембрану из оксида кремния толщиной 80 нм. Сложная трехмерная форма наноотвер-

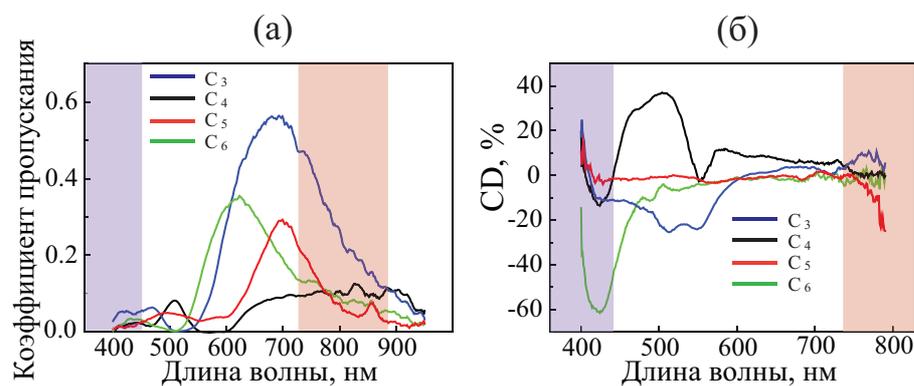


**Рис. 5.14.** СЭМ-изображения массивов хиральных наноотверстий в серебряной пленке. Для структуры  $C_4$  также представлена схема одного отверстия.

стей обеспечивалась контролируемым движением ФИП в соответствии с заданными цифровыми шаблонами. Исследовано четыре массива хиральных отверстий (см. рис. 5.14): массивы с вращательной симметрией 3-го и 6-го порядков (точечные группы симметрии  $C_3$  и  $C_6$ , соответственно), состоящие из отверстий симметрии  $C_3$  и  $C_6$ , расположенных в узлах треугольной решетки; массива с вращательной симметрией 4-го порядка (точечная группа симметрии  $C_4$ ), состоящего из отверстий симметрии  $C_4$ , расположенных в узлах квадратной решетки; и массива отверстий симметрии  $C_5$ , расположенных в узлах мозаики Пенроуза, и обладающего, как целое, вращательной симметрией 5-го порядка (точечная группа  $C_5$ ). Далее будем обозначать массивы по типу их точечной группы симметрии как  $C_3$ ,  $C_4$ ,  $C_5$  и  $C_6$ , соответственно. Сквозные части всех винтообразных наноотверстий имеют диаметр около 200 нм. Субволновая периодичность образцов  $C_3$ ,  $C_4$  и  $C_6$  позволила исключить дифракцию на них видимого света. В квазипериодическом массиве  $C_5$  среднее расстояние между отверстиями также является субволновым.

### 5.3.2. Линейный оптический отклик

Спектроскопия коэффициента пропускания и линейного циркулярного дихроизма образцов проводилась с помощью модифицированного конфокального лазерного сканирующего микроскопа с.н.с. к.ф.-м.н. Ежовым А.А. Спектры нормировались на пропускание отверстия диаметром 33.7 мкм (равным диаметру самих исследуемых массивов), специально изготовленного рядом с массивами хиральных наноотверстий.



**Рис. 5.15.** Результаты экспериментального исследования линейного оптического отклика массивов хиральных нанотверстий в серебряной пленке: (а) спектры пропускания, (б) спектры циркулярного дихроизма. Красным и фиолетовым цветом выделены области перестройки длины волны Ti:Sa лазера и соответствующей ВГ.

Полученные спектры пропускания (рис. 5.15 (а)) демонстрируют области аномально большого пропускания света в исследуемом диапазоне длин волн, причем добротность и спектральное положение пика  $T(\lambda)$  существенно зависят от симметрии массива. Наиболее сильно эффект аномального пропускания проявляется для образца  $C_3$ , для которого  $T(\lambda)$  достигает 60% в диапазоне  $\lambda \sim 680\text{-}690$  нм. В образце  $C_4$  аномальное пропускание значительно менее выражено.

Спектры пропускания структур были измерены при обеих циркулярных поляризациях излучения накачки, далее по формуле (1.29) были вычислены спектры циркулярного дихроизма (рис. 5.15 (б)). Оказалось, что и величина, и знак  $CD$  существенно зависят от симметрии нанотверстий и их упаковки в массиве. В образце  $C_5$  с расположением элементов в узлах мозаики Пенроуза циркулярный дихроизм практически отсутствует во всем исследуемом спектральном диапазоне. В других массивах наблюдается усиление циркулярного дихроизма вплоть до 60%, что в разы превосходит традиционно наблюдаемые значения в планарных массивах металлических хиральных наноструктур [6].

### 5.3.3. Генерация ВГ

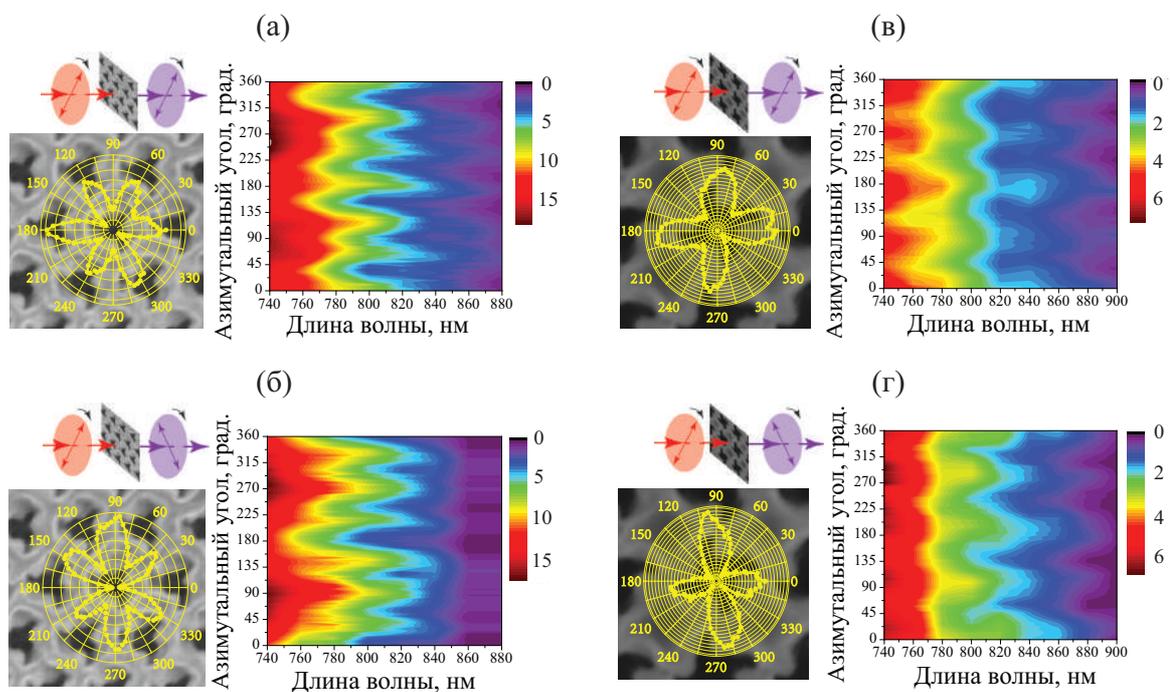
Нелинейно-оптические эксперименты были проведены на установке, представленной на рис. 1.21, в геометрии “на пропускание”, при нормальном падении излучения накачки. Ввиду малой радиационной стойкости

структур средняя мощность лазерного излучения была ослаблена аттенуатором до 20 мВт. Электромагнитное излучение линзой фокусировалось на поверхности структуры в область диаметром около 30 мкм, таким образом освещая более 10000 наноотверстий.

Было проведено исследование анизотропии генерации квадратично-нелинейно-оптического отклика образцов  $C_3$  и  $C_4$  при параллельных и скрещенных поляризациях лазерного излучения и регистрируемой ВГ. В процессе измерения образец оставался неподвижен при синхронном вращении плоскости поляризации зондирующего излучения (вращении полуволновой пластинки перед структурой) и ВГ (вращении анализатора перед ФЭУ).

Как следует из экспериментальных данных, при линейной поляризации излучения накачки, сигнал ВГ от обоих исследуемых образцов является анизотропным. Спектры интенсивности ВГ в образце  $C_3$  при различных азимутальных ориентациях структуры относительно плоскости поляризации падающего излучения представлены на рисунке **5.16** (а,б). Как для параллельных, так и для скрещенных поляризаций лазерного излучения и ВГ в азимутальных зависимостях интенсивности ВГ наблюдается 6 максимумов, причем угловое положение максимумов на рис. **5.16** (а) совпадает с положением минимумов на рис. **5.16** (б). Для наглядности на левых панелях экспериментальные азимутальные зависимости интенсивности ВГ в полярных координатах на одной из длин волн совмещены с положением образца. Заметим также, что средняя по азимутальному положению образца интенсивность ВГ возрастает при уменьшении длины волны лазерного излучения.

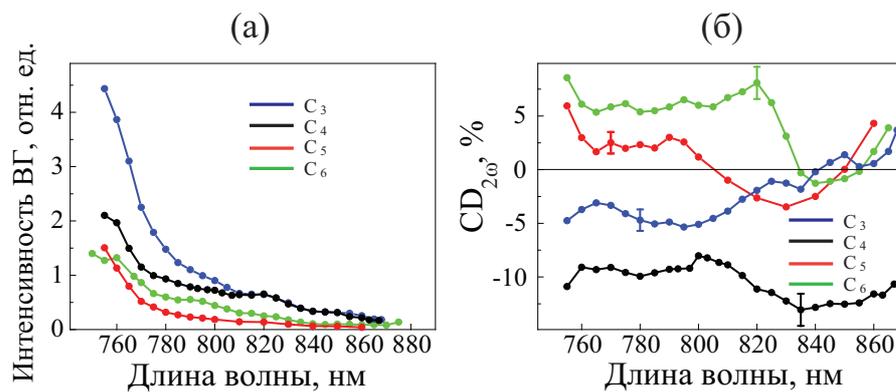
Результаты исследования анизотропии интенсивности ВГ в образце  $C_4$  представлены на рис. **5.16** (в,г). И при параллельных, и при скрещенных ориентациях поляризаций падающего на структуру и регистрируемого излучения в зависимостях  $I_{2\omega}(\psi)$  наблюдается 4 максимума. На левых панелях приведены экспериментальные азимутальные зависимости интенсивности ВГ в полярных координатах, совмещенные с положением образца, откуда видно, что угловое положение максимумов в первом случае (рис. **5.16** (в)) смещено относительно ребра решетки отверстий примерно на  $5-10^\circ$  по часовой стрелке, а во втором случае - в противоположную сторону (рис. **5.16** (г)). Следует также отметить, что средняя по азимутальному



**Рис. 5.16.** Спектры интенсивности генерации второй гармоники (цветовая шкала) при различных азимутальных положениях образца  $C_3$ : (а) при параллельных и (б) ортогональных линейных поляризациях зондирующего излучения и ВГ. На левых панелях представлены схемы эксперимента и ориентации азимутальных положений максимумов ВГ относительно структуры на длине волны лазерного излучения 820 нм. Спектры интенсивности генерации второй гармоники (цветовая шкала) при различных азимутальных положениях образца  $C_4$ : (в) при параллельных и (г) ортогональных поляризациях зондирующего излучения и ВГ. На левых панелях представлены схемы эксперимента и ориентации азимутальных положений максимумов ВГ относительно структуры на длине волны лазерного излучения 800 нм.

положению образца интенсивность ВГ возрастает при уменьшении длины волны лазерного излучения.

Затем были экспериментально измерены спектры интенсивности квадратичного нелинейно-оптического отклика при циркулярно поляризованном излучении накачки и детектировании полной интенсивности ВГ. По полученным данным были вычислены спектры  $I_{2\omega} = (I_{2\omega}^{right} + I_{2\omega}^{left})/2$  и циркулярного дихроизма ВГ по формуле (1.30). Соответствующие результаты приведены на рис. 5.17 (а). Видно, что спектральные зависимости интенсивности ВГ в структурах разной симметрии качественно похожи - наблюдается уменьшение сигнала в длинноволновой области. Наиболее эффективно генерация ВГ происходит в образце  $C_3$ .



**Рис. 5.17.** Результаты экспериментального исследования генерации ВГ в массивах хиральных наноотверстий в серебряной пленке при циркулярно поляризованном излучении накачки: (а) спектры интенсивности ВГ, (б) спектры циркулярного дихроизма ВГ.

Знак и величина циркулярного дихроизма ВГ существенно зависят от симметрии структуры (рис. 5.17 (б)). Максимальное значение дихроизма (около 10-12%) наблюдается в образце С<sub>4</sub>. Для остальных структур в исследуемом спектральном диапазоне циркулярный дихроизм ВГ один или два раза меняет знак.

#### 5.3.4. Обсуждение результатов

Прежде всего, следует отметить, что в исследуемых массивах расстояния между наноотверстиями сравнимы с их латеральным размером, следовательно, формирование оптического и нелинейно-оптического отклика массивов обусловлено коллективными эффектами. При взаимодействии металлических наноструктур с электромагнитным излучением определяющее значение имеет возбуждение плазмонных резонансов, спектральное положение и добротность которых определяется профилем поверхности. Указанный аспект приводит к качественным различиям линейных и нелинейных оптических свойств массивов наноотверстий схожей формы в одной и той же серебряной плёнке, отличающихся порядком вращательной симметрии.

Как и в других наноперфорированных структурах, плазмоны ответственны за аномальное пропускание света массивами хиральных наноотверстий. Интерференция слабого фонового и сильного резонансного вкладов придаёт спектрам пропускания асимметричную форму типа резонанса Фано [44], поэтому спектральные положения максимумов поглощения и

пропускания в разных массивах незначительно смещены как относительно друг друга, так и резонансной частоты плазмона (рис. 5.15 (а)), как было показано ранее в аналогичных структурах [242]. Спектральное положение области аномального пропускания и максимальное значение величины  $T(\lambda)$  существенно зависят от формы отверстий и симметрии их массивов. Хотя для массива симметрии  $C_4$  эффект усиления пропускания проявляется слабее, его характерная форма свидетельствует о существенном вкладе плазмонного резонанса и в этом случае.

В образце  $C_3$  удельная площадь отверстий составляет примерно  $T_{eff} \sim 20\%$ , в то время как коэффициент пропускания в этой структуре достигает почти  $T_{abs} \sim 60\%$ . Таким образом, структуризация пленки серебра на субмикромасштабах приводит к значительному усилению пропускания в окрестности резонанса. Поскольку сплошная 250-нанометровая пленка серебра непрозрачна, то можно оценить величину аномального пропускания как  $T_{abs}/T_{eff} \sim 300\%$ . Аналогичные оценки произведены в остальных структурах и оказалось, что во всех исследуемых массивах хиральных наноотверстий действительно наблюдается аномально высокое пропускание.

Хиральность в линейном оптическом отклике массивов наноотверстий также имеет, по-видимому, плазмонную природу [242, 243]. В области плазмонного резонанса (600-800 нм) в условиях аномально высокого пропускания наблюдается уменьшение величины  $CD$  вследствие увеличения знаменателя в формуле (1.29). При этом на коротковолновом крае области аномального пропускания наблюдается усиление циркулярного дихроизма, обусловленное заметной разницей в поглощении *левого* и *правого* циркулярно поляризованного излучения (во всех структурах, кроме квазипериодического массива  $C_5$ ), что обусловлено именно хиральностью структуры. Интересен также тот факт, что знак циркулярного дихроизма зависит от симметрии массива, в то время как в двумерных хиральных структурах (например, “G”-образных) его знак определяется направлением “закручивания” планарных элементов и противоположен для энантиомеров [6].

Как было неоднократно отмечено в Главе 4, возбуждение плазмонных резонансов различной природы существенно увеличивает амплитуды электрических полей вблизи поверхности металла, что заметно усиливает генерацию ВГ [16, 59]. Очевидно, аналогичные эффекты наблюдаются и в рассматриваемых массивах субволновых отверстий в металлической плен-

ке - интенсивность ВГ возрастает более чем на порядок на коротковолновом крае перестройки Ti:Sa лазера, то есть, при приближении длины волны излучения накачки к плазмонным резонансам на длинах волн 600-700 нм (рис. 5.17 (а)).

В структуре  $C_3$  интенсивность ВГ в несколько раз превосходит аналогичные значения в остальных образцах (рис. 5.17 (а)). Дело в том, что при нормальном падении плоской волны лазерного излучения на массив наноструктур только образец  $C_3$  (точечная группа симметрии  $C_3$ ) способен излучать ВГ в электродипольном приближении [25], т.е. имеет отличные от нуля компоненты нелинейной восприимчивости второго порядка, тогда как для массивов другой симметрии такие компоненты отсутствуют.

Действительно, в отсутствие нормальной компоненты электрического поля лазерного излучения, в генерацию квадратичного оптического отклика дают вклад следующие плоскостные компоненты тензора квадратичной восприимчивости:  $\chi_{xxx}^{(2)} = -\chi_{xyy}^{(2)} = -\chi_{yxy}^{(2)} = -\chi_{yyx}^{(2)}$  и  $\chi_{yyy}^{(2)} = -\chi_{yxx}^{(2)} = -\chi_{xxy}^{(2)} = -\chi_{xyx}^{(2)}$  [25]. При параллельных ориентациях плоскостей поляризации зондирующего излучения и ВГ зависимость  $I_{2\omega}(\psi)$  ( $\psi$  отсчитывается от оси  $OX$ ) имеет вид  $I_{2\omega}(\psi) \propto |\chi_{xxx}^{(2)} \cos 3\psi - \chi_{yyy}^{(2)} \sin 3\psi|^2$ . Для скрещенных поляризаций падающей волны и ВГ аналогичная зависимость описывается выражением:  $I_{2\omega}(\psi) \propto |\chi_{xxx}^{(2)} \sin 3\psi + \chi_{yyy}^{(2)} \sin 3\psi|^2$ . Экспериментальные данные на рис. 5.16 хорошо соответствуют данным зависимостям. При этом азимутальные зависимости интенсивности ВГ на рис. 5.16 (а) и (б) приблизительно совпадают по амплитуде и сдвинуты друг относительно друга на  $30^\circ$ , что свидетельствует о равенстве компонент  $\chi_{xxx}^{(2)} = \chi_{yyy}^{(2)}$ . Небольшой изотропный фон соответствует некогерентному гиперрелеевскому рассеянию ВГ в массивах субволновых отверстий.

В массиве  $C_4$  (точечная группа симметрии  $C_4$ ) ненулевые латеральные (не имеющие индекса  $z$ ) компоненты тензора квадратичной восприимчивости, в электродипольном приближении отсутствуют [25]. Однако, экспериментальные данные свидетельствуют о наличии заметного когерентного сигнала ВГ, который, согласно азимутальным зависимостям, соответствует структуре, обладающей вращательной симметрией 4-го порядка (рис. 5.16 (в,г)). Возможны разные механизмы генерации ВГ в таком случае. Во-первых, как пространственная неоднородность лазерного пучка, так и наличие в структурах наклонных к плоскости образца поверхностей

(“резьба” в винтообразных отверстиях) могут приводить к локально ненулевым значениям нормальной к поверхности компоненты поля накачки, в таком случае в формировании нелинейно-оптического отклика будут играть роль электродипольные компоненты тензора квадратичной восприимчивости  $\chi_{xxz}^{(2)} = \chi_{zxx}^{(2)} = \chi_{yyz}^{(2)} = \chi_{zyz}^{(2)}$ ,  $\chi_{zxx}^{(2)} = \chi_{zyy}^{(2)}$ ,  $\chi_{xyz}^{(2)} = \chi_{xzy}^{(2)} = -\chi_{yxz}^{(2)} = -\chi_{yzx}^{(2)}$ ,  $\chi_{zzz}^{(2)}$  [25]. Во-вторых, возможен электрический квадрупольный вклад в генерацию ВГ, обусловленный наведенной в структуре нелинейной поляризацией вида  $P_i^Q = \chi_{ijkl}^{(2)Q} E_j \nabla_k E_l + \nabla_k \chi_{ijkl}^{(2)Q} E_j E_l$  [184, 244], тензор 4-го ранга  $\chi_{ijkl}^{(2)Q}$  для структуры, обладающей симметрией 4-го порядка имеет достаточно много ненулевых компонент  $\chi_{xxxx}^{(2)Q}$ ,  $\chi_{xxxu}$ ,  $\chi_{xxuu}$ ,  $\chi_{xuuu}$ ,  $\chi_{xxyy}$ ,  $\chi_{xyyy}$ ,  $\chi_{xyuu}$ ,  $\chi_{yxxx}$ ,  $\chi_{yxyy}$ ,  $\chi_{yxyu}$ ,  $\chi_{yuyy}$ ,  $\chi_{yuyx}$ ,  $\chi_{yuyx}$ ,  $\chi_{yuyx}$ ,  $\chi_{yuyx}$ . Оба указанных механизма предусматривают наличие градиента поля лазерного излучения в плоскости структуры [244], что, безусловно, имеет место в реальном эксперименте, где неизбежна неоднородность распределения интенсивности зондирующего излучения в пределах сфокусированного пятна. Небольшой размер массивов отверстий также делает значительным вклад от краевых участков, к которым простые симметричные соотношения неприменимы. Также, градиент напряженности поля падающей волны в плоскости структуры присутствует ввиду наличия субволновых отверстий в пленке металла. Симметрия 4-го порядка также может быть объяснена аналогичной симметрией распределения локального поля зондирующего излучения в структуре [242].

Что касается циркулярного дихроизма ВГ, то наименее заметно он проявляется в квазипериодическом массиве  $C_5$ , который демонстрирует и самую слабую линейную оптическую хиральность (рис. 5.15(б) и 5.17(б)). Предположительно, это связано с самой малой поверхностной плотностью хиральных наноотверстий в образце  $C_5$ . Самая большая поверхностная плотность винтообразных наноотверстий в образце  $C_3$ , однако, в нем наблюдается и наибольшая интенсивность ВГ, что уменьшает величину циркулярного дихроизма (см. формулу 1.30). Массив  $C_4$  демонстрирует самые большие значения  $CD_{2\omega}$  в квадратичном нелинейно-оптическом отклике, причем уровень дихроизма сохраняется в длинноволновой области диапазона перестройки лазера. Важно отметить, что, хотя направления “закручивания” винтообразных отверстий во всех образцах одинаковы, знак циркулярного дихроизма ВГ в них оказывается разным в спектральном диапазоне 750-830 нм. Таким образом, в исследуемой серии структур знак

$CD_{2\omega}$  определяется не направлением “закручивания” энантиомера, как в планарных метаповерхностях (например, состоящих из “G”-образных элементов), а симметрией массива. По-видимому, это важная отличительная особенность именно квазидвумерных хиральных структур.

#### § 5.4. Массивы магнитных “U”-образных наноэлементов

В этом параграфе впервые представлено исследование магнитоиндуцированного нелинейно-оптического отклика зеркально-симметричных массивов наноэлементов и исследуется влияние намагниченности в геометрии наблюдения наведенной хиральности на генерацию ВГ.

Ранее одновременное влияние эффектов хиральности и намагниченности было исследовано лишь в двухпериодных массивах никелевых хиральных “G”-образных наноструктур авторами работы [245]. Обнаружено, что вид азимутальных зависимостей интенсивности ВГ существенно меняется при изменении направления приложенного меридионального магнитного поля. Эффект был связан плазмонными механизмами и свойствами симметрии тензора магнитоиндуцированной квадратичной восприимчивости. Авторы предположили, что наблюдаемый магнито-хиральный отклик позволит менять знак показателя преломления хиральной среды путем приложения внешнего магнитного поля.

##### 5.4.1. Исследуемые структуры

Метаповерхности представляли собой массивы “U”-образных наноэлементов, изготовленных из пермаллоя ( $Ni_{80}Fe_{20}$ ). Наноэлементы размером 0.5 мкм x 0.8 мкм, толщиной 50 нм расположены в узлах прямоугольной решетки с периодом около 1 мкм на кремниевой (100) подложке (рис. 5.18). Структуры изготовлены в Национальном Университете Сингапура методом ультрафиолетовой литографии и техники “lift-off” [246].

Элементы метаповерхности, как и массив в целом, обладают зеркальной симметрией, то есть в структуре возможно только наблюдение эффектов наведенной хиральности. Однако намагниченность может понижать симметрию поверхности, а, следовательно, в таких структурах возможно проявление магнитоиндуцированной хиральности, что до сих пор исследовано не было.

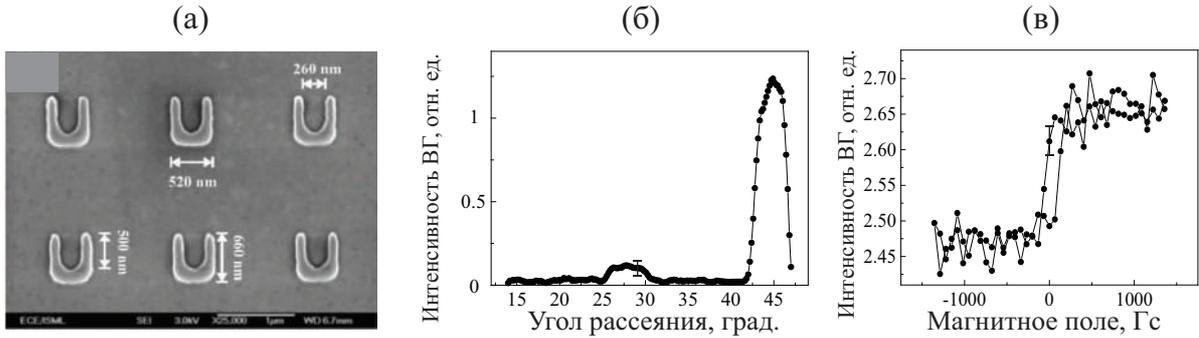
### 5.4.2. Линейный оптический отклик

Непрозрачная кремниевая подложка позволяет работать со структурой только в геометрии “на отражение”. В линейном спектре отражения в видимой области не обнаружено резонансных особенностей, коэффициент отражения метаповерхности в области перестройки Ti:Sa лазера составляет около 0.5. Спектр линейного экваториального МО эффекта Керра в видимом диапазоне также монотонен, а величина магнитного контраста составляет около 0.2%.

### 5.4.3. Генерация ВГ

Для нелинейно-оптических экспериментов была выбрана длина волны 790 нм. Индикатриса рассеяния интенсивности ВГ (рис. 5.18 (б)) была измерена при  $\theta = 45^\circ$  и такой азимутальной ориентации структуры, что ее ось симметрии параллельна плоскости падения. Виден зеркальный максимум при угле рассеяния  $45^\circ$ , ширина которого около  $5^\circ$  соответствует угловой апертуре регистрации, а также, 1-й дифракционный максимум под углом примерно  $28^\circ$ , что соответствует расчетам в рамках простейшей теории дифракции. Интенсивность ВГ в первом дифракционном максимуме примерно на порядок меньше, чем в нулевом (при зеркальном отражении). Аналогичная индикатриса рассеяния ВГ была получена при другой ориентации образца – когда ось симметрии перпендикулярна плоскости падения, дифракционный максимум наблюдается при угле рассеяния примерно  $26^\circ$ , так как период структуры в этом направлении меньше, чем в ортогональном.

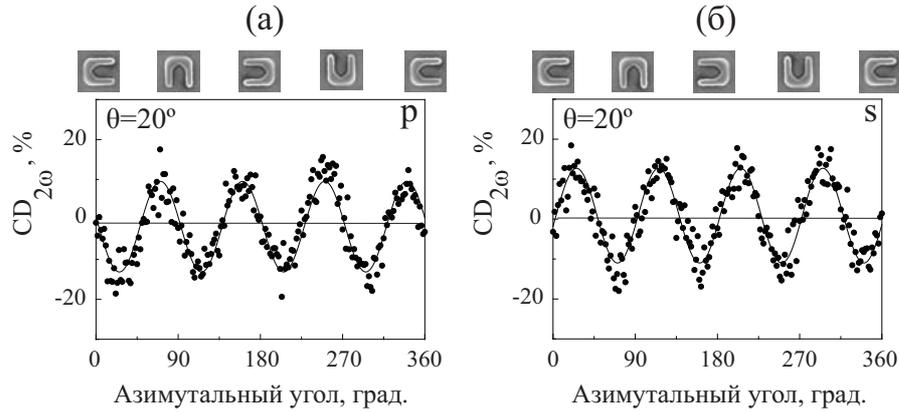
Исследован магнитный нелинейно-оптический отклик “U”-образных структур в геометрии экваториального эффекта Керра, т.е. при приложении статического магнитного поля перпендикулярно плоскости падения. Гистерезис интенсивности ВГ, измеренный при ориентации структуры таким образом, что ось симметрии параллельна плоскости падения, представлен на рис. 5.18 (в). Магнитный контраст ВГ составляет примерно 3%, а коэрцитивное поле – около 100 Гс. При ортогональной ориентации метаповерхности петля гистерезиса выглядит аналогично. Следует отметить, что для сплошной пленки пермаллоя толщиной 50 нм также был измерен гистерезис интенсивности ВГ, магнитный контраст составляет около



**Рис. 5.18.** (а) СЭМ-изображение массива “U”-образных нанозаэментов; (б) индикатриса рассеяния ВГ при  $\theta = 45^\circ$ ; (в) гистерезис интенсивности ВГ в экваториальной геометрии при  $\theta = 45^\circ$ .

10%. Значения магнитного контраста ВГ были также измерены в массивах “U”-образных наноструктур при детектировании ВГ в направлении 1-го дифракционного максимума и составили около 5%, что связано с уменьшением регистрируемого немагнитного сигнала (при детектировании в зеркальном направлении регистрируется также отклик ВГ от кремниевой подложки). Отметим, что провести измерения магнитоиндуцированной хиральности при регистрации сигнала ВГ в дифракционном максимуме с целью исключения роли кремниевой подложки невозможно в силу смещения дифрагирующего луча при азимутальном вращении структуры. Измерения циркулярного дихроизма ВГ при одном конкретном азимутальном положении образца не имеют смысла в силу высокой роли анизотропии структуры в формировании нелинейно-оптического отклика, как было показано для массивов “G”-образных нанозаэментов и как будет показано ниже для массива “U”-образных мета-атомов.

Были измерены азимутальные зависимости интенсивности зеркально отраженной  $p$ - и  $s$ -поляризованной ВГ при *правой* и *левой* циркулярной поляризации зондирующего излучения при  $\theta = 20^\circ$ , из которых вычислены азимутальные зависимости циркулярного дихроизма ВГ  $CD_{2\omega,p}$  и  $CD_{2\omega,s}$ . Из полученных графиков видно (рис. 5.19), что величина циркулярного дихроизма ВГ существенно зависит от азимутальной ориентации метаповерхности и достигает 10-20% при  $\psi \approx \pi/8 + \pi n/4$ ,  $n = 0, 1, 2, \dots$ . Такое азимутальное положение структуры соответствует ситуации, когда элемент наиболее “асимметричен” относительно плоскости падения, так что наведенная хиральность наиболее сильно проявляется в квадратичном нелинейно-оптическом отклике. Наблюдаемая симметрия 4-го порядка



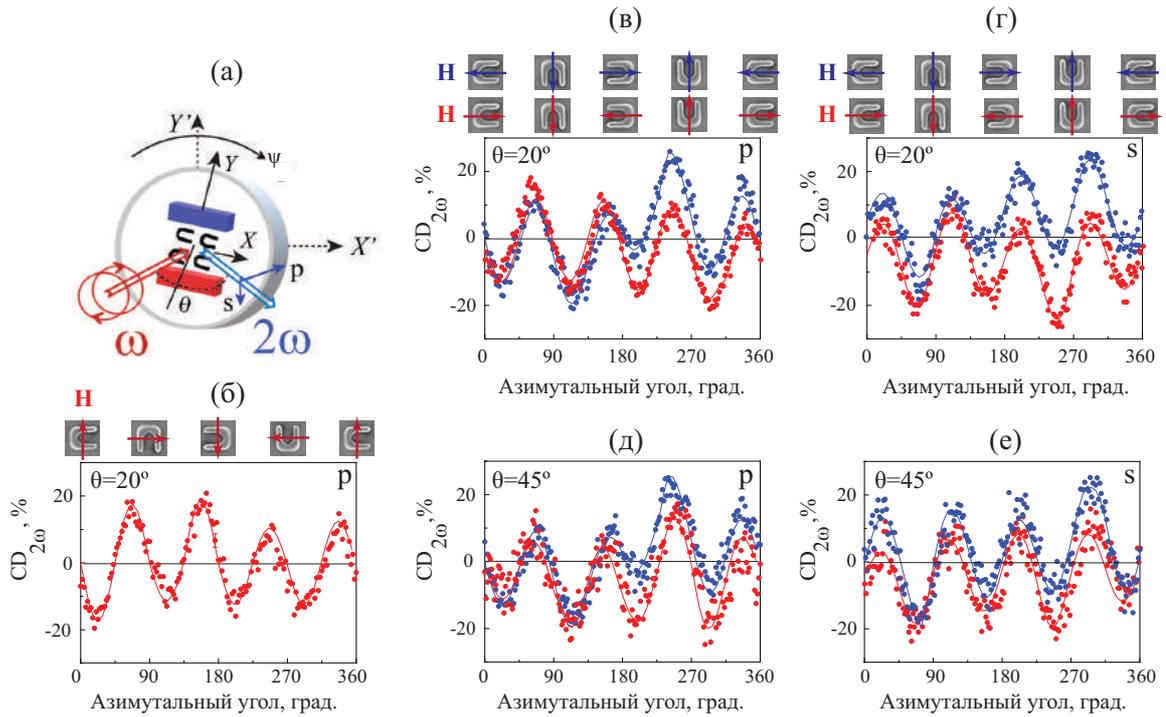
**Рис. 5.19.** Азимутальные зависимости циркулярного дихроизма массива “U”-образных наноэлементов без приложения магнитного поля: (а)  $\theta = 20^\circ$ ,  $p$ -отклик; (б)  $\theta = 20^\circ$ ,  $s$ -отклик.

- это следствие как кристаллической структуры кремниевой подложки, так и  $4m$ -симметрии массива “U”-образных наноэлементов. Отклонения от симметрии четвертого порядка связаны с зеркальной симметрией мета-атомов, размеры которых сравнимы с длиной волны лазерного излучения. Сдвиг  $CD_{2\omega, s}$  относительно  $CD_{2\omega, p}$  вдоль оси абсцисс типичен для азимутальных зависимостей и связан с тем, что в формировании  $p$ - и  $s$ -поляризованного квадратичного нелинейно-оптического отклика участвуют различные компоненты  $\hat{\chi}^{(2)}$ . Аналогичные зависимости были получены при угле падения зондирующего излучения  $\theta = 45^\circ$ .

Тем не менее, усредненные по азимутальному углу значения  $\langle CD_{2\omega, s} \rangle$  и  $\langle CD_{2\omega, p} \rangle$  равны нулю, с точностью до экспериментальной погрешности, что указывает на то, что механизм наблюдаемого циркулярного дихроизма ВГ обусловлен наведенной хиральностью [98].

Для исследования магнитоиндуцированной ВГ структура была помещена в статическое поле около 2 кГс, созданное постоянными NdFeB магнитами, и измерены азимутальные зависимости  $I_{2\omega, p, s}^{left, right}$ . Следует подчеркнуть, что магниты, как и образец, были установлены на вращающийся столик. Таким образом, при изменении азимутального угла  $\psi$  направление насыщающего магнитного поля было фиксировано относительно структуры (рис. 5.20 (а)).

Сначала эксперименты были проведены при ориентации структуры относительно магнитного поля таким образом, что намагниченность не понижает симметрию метаповерхности (как показано на схеме на рис. 5.20 (а)). Азимутальная зависимость для  $CD_{2\omega, p}$  представлена на рис. 5.20 (б).



**Рис. 5.20.** (а) Схема исследования магнитоиндуцированной наведенной хиральности; (б–е) азимутальные зависимости циркулярного дихроизма ВГ при различных фиксированных относительно структуры направлениях внешнего магнитного поля. (б)  $\theta = 20^\circ$ ,  $p$ -отклик; (в)  $\theta = 20^\circ$ ,  $p$ -отклик; (г)  $\theta = 20^\circ$ ,  $s$ -отклик; (д)  $\theta = 45^\circ$ ,  $p$ -отклик; (е)  $\theta = 45^\circ$ ,  $s$ -отклик. Зависимости, показанные синими и красными точками, измерены при приложении магнитного поля вдоль синей и красной стрелок, соответственно (см. схемы над панелями (в) и (г)).

Также наблюдается симметрия 4-го порядка, но среднее по азимутальному углу значение дихроизма равно нулю. Аналогичная ситуация наблюдается для  $s$ -отклика и для противоположной ориентации магнитного поля относительно нанозаполнителей.

Затем были измерены  $I_{2\omega,p,s}^{left,right}(\psi)$  при ориентации магнитного поля относительно структуры, когда намагниченность редуцирует симметрию метаповерхности. На рис. 5.20 (в-е) представлены графики циркулярного дихроизма ВГ при двух противоположных ориентациях магнитного поля относительно структуры, параллельных оси ее зеркальной симметрии (синяя и красная стрелки на схемах над панелями соответствуют синим и красным экспериментальным точкам). Оказалось, что при  $\theta = 20^\circ$  средние значения циркулярного дихроизма ВГ составляют  $\langle CD_{2\omega,p}(+H) \rangle = (2 \pm 1)\%$ ,  $\langle CD_{2\omega,s}(+H) \rangle = (6 \pm 1)\%$  при номинальном положительном магнитном поле вдоль синей стрелки и  $\langle CD_{2\omega,p}(-H) \rangle = (-3 \pm 1)\%$ ,  $\langle CD_{2\omega,s}(-H) \rangle = (-6 \pm 1)\%$  для ориентации магнитного поля вдоль красной стрелки. При  $\theta = 45^\circ$  соответствующие значения:  $\langle CD_{2\omega,p}(+H) \rangle = (2 \pm 1)\%$ ,  $\langle CD_{2\omega,s}(+H) \rangle = (3 \pm 1)\%$  и  $\langle CD_{2\omega,p}(-H) \rangle = (-3 \pm 1)\%$ ,  $\langle CD_{2\omega,s}(-H) \rangle = (-4 \pm 1)\%$ . Ненулевые средние значения циркулярного дихроизма ВГ указывают на проявление хиральности в нелинейно-оптическом отклике анизотропной намагниченной метаповерхности, состоящей из нехиральных нанозаполнителей.

#### 5.4.4. Обсуждение результатов

Вышеприведенные эксперименты демонстрируют, что наличие статической намагниченности определенной ориентации относительно элементов симметрии структуры приводит к наблюдению эффектов хиральности в нелинейно-оптическом отклике. Таким образом, впервые показано возникновение магнитоиндуцированной хиральности в отклике нехиральной метаповерхности. Обсудим феноменологическое описание этого эффекта.

Хорошо известно, что намагниченность понижает симметрию поверхности структуры. Таким образом, структура, обладающая зеркальной симметрией, при приложении магнитного поля вдоль плоскости симметрии становится хиральной, что и приводит к ненулевому среднему циркулярному дихроизму ВГ, присущему только хиральным структурам.

В отсутствие намагниченности следующие кристаллографические

компоненты отличны от нуля (плоскости симметрии -  $XOZ$ ):  $\chi_{xxx}$ ,  $\chi_{xyy}$ ,  $\chi_{yxy} = \chi_{yyx}$ ,  $\chi_{xzz}$ ,  $\chi_{xxz} = \chi_{zxx}$ ,  $\chi_{yyz} = \chi_{zyy}$ ,  $\chi_{zxx}$ ,  $\chi_{zyy}$ ,  $\chi_{zzz}$ ,  $\chi_{zzx} = \chi_{xzz}$  [25]. При этом следует отметить, что здесь играют роль два вклада с различной симметрией: “U” - образные элементы с зеркальной симметрией и подложка Si(100) с точечной группой симметрии  $4m$ , причем их вклады неразличимы. В то же время, все эти компоненты нехиральные, поэтому при усреднении циркулярного дихроизма по азимутальному углу исключается роль анизотропии и оказывается, что  $\langle CD_{2\omega} \rangle = 0$  (рис. 5.19). Аналогичные результаты были получены в золотых симметрично изогнутых нанопроволоках [98], где авторы варьировали угол падения зондирующего излучения  $\theta$  от положительных до отрицательных значений (что эквивалентно изменению азимутального угла с  $\psi$  на  $\psi + \pi$  в нашем случае), при этом наблюдаемые значения циркулярного дихроизма ВГ были одинаковы по величине и противоположны по знаку (рис. 1.13 (б)).

Наличие намагниченности вдоль оси  $OX$  понижает симметрию [128, 131], поэтому возникают нечетные по намагниченности компоненты тензора  $\hat{\chi}^{(2)mag}$ :  $\chi_{xyz}^{mag} = \chi_{xzy}^{mag}$ ,  $\chi_{yxz}^{mag} = \chi_{yzx}^{mag}$ ,  $\chi_{zxy}^{mag} = \chi_{zyx}^{mag}$ ,  $\chi_{xyx}^{mag} = \chi_{xxy}^{mag}$ ,  $\chi_{zyz}^{mag} = \chi_{zzy}^{mag}$ ,  $\chi_{yyy}^{mag}$ ,  $\chi_{yxx}^{mag}$ ,  $\chi_{yzz}^{mag}$ , которые меняют знак при изменении направления намагниченности. При этом первые шесть из указанных магнитоиндуцированных компонент описывают хироптические эффекты [230]. Именно поэтому средние значения  $\langle CD_{2\omega,p,s} \rangle$  в массив “U”-образных наноэлементов отличны от нуля в присутствии намагниченности. Знак  $\langle CD_{2\omega,p} \rangle$  и  $\langle CD_{2\omega,s} \rangle$  определяется хиральными компонентами тензора  $\hat{\chi}^{(2)mag}$ , которые, в свою очередь, зависят от направления внешнего магнитного поля, ориентированного вдоль оси  $OX$ . Таким образом, изменение направления магнитного поля изменяет знак среднего циркулярного дихроизма (рис. 5.20 (в-е)).

Нелинейно-оптический отклик массива “U”-образных структур, намагниченных в противоположных направлениях, аналогичен отклику двух хиральных энантиомеров, например, “G” и mirror-“G”. Резюмируя все вышесказанное, в представленных экспериментальных результатах наблюдается магнитоиндуцированная хиральность квадратичного нелинейно-оптического отклика в симметричных наноструктурах. Следует отметить, что наблюдаемое значение  $\langle CD_{2\omega,s} \rangle$  при  $\theta = 20^\circ$  достигает 6%, что довольно много, в то время как, например, в массивах хиральных “G”-образных

структур это значение достигает 8%.

В случае, когда магнитное поле направлено НЕ вдоль плоскости симметрии “U”-образных наноэлементов, оно не понижает симметрию метаповерхности, поэтому хиральные магнитоиндуцированные компоненты  $\hat{\chi}^{(2)mag}$  не появляются (рис. 5.20 (а,б)). В таком случае усредненный по азимутальному углу дихроизм ВГ равен нулю.

Следует также отметить, что значения  $\langle CD_{2\omega,p} \rangle$  и  $\langle CD_{2\omega,s} \rangle$  для намагниченной вдоль оси  $OX$  структуры уменьшаются с ростом угла падения излучения накачки от 20 до 45°. Это происходит из-за того, что с ростом угла падения уменьшается вклад плоскостных магнитоиндуцированных компонент  $\hat{\chi}^{(2)}$  и увеличивается вклад немагнитных компонент, как было показано для многослойных магнитных структур.

Разные значения циркулярного дихроизма для  $p$ - и  $s$ -поляризованного отклика обусловлены тем, что разные компоненты тензора квадратичной восприимчивости участвуют в его формировании. Конкретные оценки этих компонент затруднительно провести, т.к. их слишком много и у них, в общем случае, есть действительная и мнимая часть.

## Выводы по Главе 5

Анализируя экспериментальные результаты, полученные для рассмотренных четырех типов структур, можно сделать следующие выводы:

1. Во всех исследованных асимметричных структурах эффекты хиральности в нелинейно-оптическом отклике, как и ожидалось, на порядки превышают свои аналоги в линейном отклике.

2. Оптический и нелинейно-оптический отклик хиральной метаповерхности определяется как формой наноэлементов, так и их расположением на подложке.

3. Для выделения эффектов хиральности метаповерхности в нелинейно-оптическом отклике при наклонном падении зондирующего излучения необходимо исследовать анизотропию интенсивности генерации ВГ.

4. В планарных массивах золотых наноэлементов в форме запятых азимутальная анизотропия генерации ВГ определяется распределением ло-

кального поля в структуре. Величина циркулярного дихроизма ВГ вблизи ЛПП достигает 70%.

5. В массивах “G”-образных наноэлементов обнаружена анизотропия интенсивности поляризованной и деполаризованной ВГ, что связано с анизотропией факторов локального поля.

6. В однопериодных массивах “G”-образных наноэлементов при определенных азимутальных положениях образца эффективность генерации *левой* и *правой* циркулярно поляризованной ВГ при линейно поляризованном лазерном излучении определяется энантиомером, но при усреднении по  $\psi$  эффективность оказывается одинаковой.

7. В двухпериодных массивах “G”-образных наноэлементов  $\langle CD_{2\omega} \rangle_{\psi}$  имеет разный знак для энантиомеров и существенно зависит от угла падения света на структуру. При  $p$ -поляризованном лазерном излучении среднее значение  $\langle CD_{2\omega} \rangle_{\psi}$  при увеличении  $\theta$  уменьшается по модулю, меняет знак, а затем снова увеличивается по абсолютной величине. При  $s$ -поляризованном лазерном излучении  $\langle CD_{2\omega} \rangle_{\psi}$  уменьшается по модулю до нуля при увеличении угла падения. Такой результат феноменологически интерпретирован с помощью анализа симметрии компонент тензора квадратичной восприимчивости.

8. Экспериментально исследованы особенности оптического и нелинейно-оптического отклика в различных массивах квазидвумерных хиральных наноотверстий в серебряной мембране субволновой толщины. Обнаружена сильная анизотропия ВГ, существенно зависящая от симметрии структуры. Знак и величина циркулярного дихроизма как в линейном отклике, так и в нелинейно-оптическом, определяется вращательной симметрией массива и на частоте ВГ достигает примерно 13% в образце с осью симметрии четвертого порядка (точечная группа симметрии  $4$ ).

9. В зеркально симметричных массивах “U”-образных ферромагнитных наноэлементов обнаружен эффект магнитоиндуцированной хиральности. Величина  $\langle CD_{2\omega} \rangle_{\psi}$  меняет знак при изменении направления магнитного поля и достигает 6%.

*Результаты, приведенные в Главе 5, опубликованы в работах [A2-A4, A8, A17, A18, A24, A25, A27, A39, A41].*

---

## ГЛАВА 6

# Оптика и нелинейная оптика гиперболических метаматериалов

---

В данной Главе представлены результаты исследования в области оптики и нелинейной оптики гиперболических метаматериалов на основе массивов металлических наностержней в диэлектрической матрице. Также приведены результаты изучения композитных ГММ, содержащих ферромагнетик. Такие композитные среды являются перспективным объектом исследований, т.к. в них можно управлять дисперсионными свойствами структуры путем приложения статического магнитного поля. Ранее в магнитоплазмонных наноматериалах различного дизайна, содержащих благородный металл и ферромагнетик, было продемонстрировано многократное резонансное усиление магнитооптических эффектов, что позволяет ожидать в структурах, сочетающих и плазмонные, и магнитные свойства, и гиперболическую дисперсию, наблюдение новых эффектов, которые могут найти применение в нанофотонике и сенсорике.

Здесь также следует упомянуть, что существуют гиперболические среды, в которых за счет резонансного возбуждения *магнитного* диполя меняется знак компонент *магнитной проницаемости* (в системе наностержней, изготовленных из материала с высоким показателем преломления [247]) или знаки компонент  $\hat{\epsilon}$ , и  $\hat{\mu}$  (в мультислойных структурах типа “fishnet” [248]). Зачастую в литературе именно к таким средам применяют термин “магнитные гиперболические метаматериалы”. Однако, мы рассмотрим те композитные магнитные гиперболические метаматериалы, в которых наличие *статической* намагниченности в гиротропной среде меняет ее диэлектрическую проницаемость, а, следовательно, дисперсионные свойства всей структуры, что дает возможность для управления оптическим откликом путем приложения внешнего магнитного поля.

## § 6.1. Изучаемые структуры

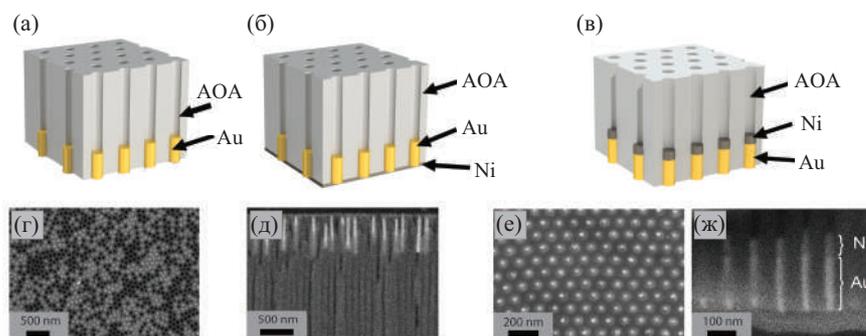
Коллегами с Химического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова методом электрохимического травления пористого анодного оксида алюминия (АОА) с последующим электроосаждением металла в поры были изготовлены четыре типа структур:

**1.** Массивы золотых наностержней в матрице анодного оксида алюминия (схема на рис. **6.1** (а)). Длина наностержней составляла  $580 \pm 40$  нм, их диаметр -  $40 \pm 4$  нм, расстояние между осями пор темплата -  $100 \pm 8$  нм. Полная толщина пленки - около 50 мкм. Структура пористой матрицы АОА при анодировании алюминия была изготовлена с частичной блокировкой пор, методика которой подробно описана в работе [А37]. Этот подход позволил снизить объемную долю золота при его последующем электроосаждении до 8% вместо 20% пористости исходной матрицы АОА. Рисунки **6.1** (г,д) демонстрируют поверхность и скол полученной структуры на которых видно, что не все поры заполнены золотом. Параметры структуры были подобраны таким образом, чтобы особенность ENZ находилась в диапазоне перестройки Ti:Sa лазера.

**2.** Образцы, аналогичные ГММ **1**, на которые методом магнетронного напыления нанесена сплошная пленка никеля толщиной  $15 \pm 3$  нм (рис. **6.1** (б,д)).

**3.** Массивы бисегментированных наностержней Au+Ni (рис. **6.1** (в)). Диаметр наностержней и расстояние между их осями составляют около  $27 \pm 6$  нм и  $102 \pm 5$  нм, соответственно. Пористость АОА составляет около 7%, что в этой серии структур совпадает с объемной долей металла (рис. **6.1** (е)). Средняя длина сегментов Au и Ni -  $188 \pm 8$  нм и  $70 \pm 3$  нм (рис. **6.1** ж)), соответственно, а их диаметры одинаковые. Процесс изготовления подробно приведен в работах [А34, А43].

**4.** Массив серебряных наностержней в матрице АОА; длина наностержней составляла  $430 \pm 160$  нм, диаметр -  $40 \pm 9$  нм, расстояние между порами -  $105 \pm 14$  нм, все поры заполнены серебром, что соответствует объемной доле металла 14%. Процесс изготовления структур представлен в статье [А42].



**Рис. 6.1.** Схемы образцов: (а) массив золотых наностержней в матрице анодного оксида алюминия, (б) такой же образец, дополненный сплошной пленкой никеля; (в) массив бисегментированных наностержней Au/Ni. РЭМ-изображения: (г) поверхности образца (а); (д) поперечного скола образца (б); (е), (ж) поверхности и поперечного скола образца (в), соответственно.

## § 6.2. Оптические свойства ГММ

### 6.2.1. Расчет

В общем случае расчет оптических свойств массива наностержней в диэлектрической матрице довольно сложен. В рамках точного анализа необходимо рассматривать систему как совокупность частиц с известной поляризуемостью, находящихся в электромагнитном поле, являющемся суперпозицией поля падающей волны и полей, рассеянных остальными частицами. Существенно упростить задачу можно, используя модели эффективной среды. Это приближение справедливо, когда длина волны света много больше размеров “включений”, в то же время в гиперболическом режиме и при больших углах падения, когда неограниченно возрастает волновой вектор света в ГММ, а длина волны уменьшается, данное условие не выполняется. Тем не менее, в большом количестве работ по ГММ расчеты в рамках различных моделей эффективной среды достаточно хорошо согласуются с экспериментальными данными [7, 8, 99, 112].

Модели эффективной среды (Максвелла-Гарнетта, Бруггемана и др.) предполагают, что композитный изотропный материал характеризуется эффективной диэлектрической проницаемостью  $\epsilon_{eff}$ , для анизотропных сред эта величина является тензором. Рассчитаны спектры составляющих тензора эффективной диэлектрической проницаемости  $\epsilon_{\perp,eff}$  и  $\epsilon_{\parallel,eff}$  (далее индекс  $eff$  опущен для краткости) для двухкомпонентного ГММ “мас-

сив золотых наностержней в матрице АОА” в рамках модели Максвелла-Гарнетта, обобщенной на случай анизотропной среды по формулам (4.5) и (4.6) с заменой Ni на Au. Значения диэлектрической проницаемости золота и АОА,  $\epsilon_{Au}$  и  $\epsilon_{АОА}$ , были взяты из [210] (хотя, вообще говоря,  $\epsilon_{Au}$  электроосажденного золота может немного отличаться от приведенных в этой книге значений для объемного Au). Диаметр  $d$  и длина  $l$  наностержней были взяты из статистического анализа РЭМ изображений (рис. 6.1 (г, д)).

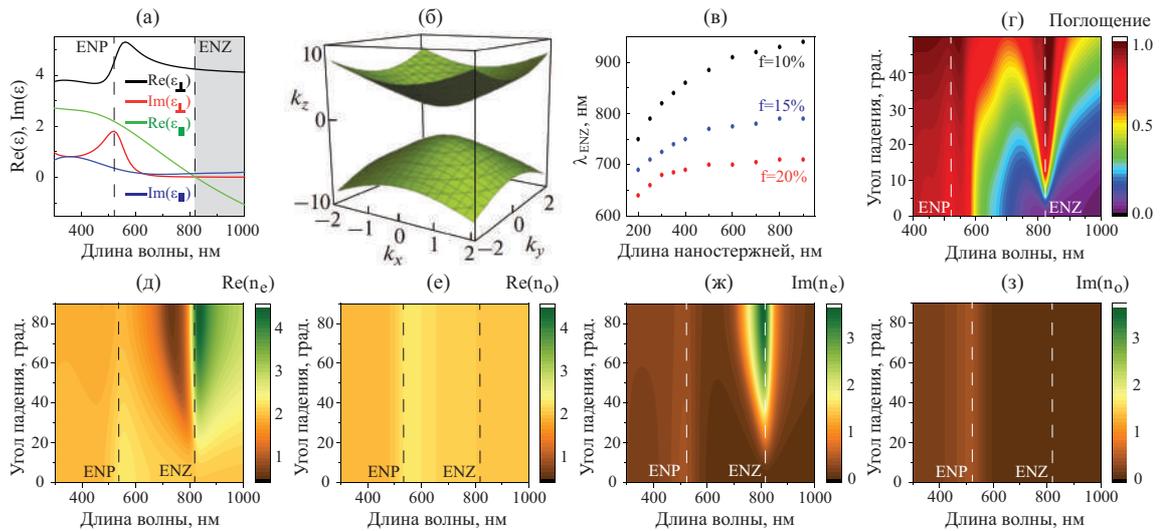
Рассчитанные спектры компонент тензора эффективной диэлектрической проницаемости ГММ представлены на рис. 6.2 (а) - это типичный вид компонент для ГММ на основе металлических наностержней в диэлектрической матрице. Резонансное поведение действительной и мнимой частей  $\epsilon_{\perp}$  в окрестности длины волны 540 нм соответствует полюсу (ENP). Величина  $Re(\epsilon_{\parallel}(\lambda))$  обращается в ноль и меняет знак при  $\lambda = 820$  нм (ENZ). В результате в длинноволновой области спектра при  $\lambda > 820$  нм имеет место гиперболический закон дисперсии света (ГММ диэлектрического типа), соответствующая изочастотная поверхность приведена на рис. 6.2 (б) для излучения с  $\lambda = 900$  нм.

В случаях, когда пористость пленки АОА не совпадает с объемной долей металла (когда заполнены не все поры), были также проведены расчеты в рамках модели трехкомпонентной среды по формуле Бругемана:

$$\sum_{j=1}^3 f_j \frac{\epsilon_i - \epsilon_j}{\epsilon_i + L_i(\epsilon_i - \epsilon_j)} = 0, i = \perp, \parallel, \quad (6.1)$$

где  $j = 1, 2, 3$  для воздуха металла и АОА, соответственно. Проводилось численное решение уравнения (6.1) в пакете Wolfram Mathematica и получены спектры эффективных компонент  $\epsilon_{\perp}$  и  $\epsilon_{\parallel}$  [A37]. Качественно результаты получаются аналогичные тем, что представлены на рис. 6.2 (а).

Рассчитано и экспериментально подтверждено [112], [A37], что спектральное положение ENZ определяется длиной наностержней  $l$  и объемной долей металла  $f$ . Для одиночного золотого эллипсоида диаметром 20-40 нм и длиной несколько сотен нанометров длинноволновый резонанс находится в ближнем ИК диапазоне [112]. Однако, с ростом  $f$  существенно увеличивается роль коллективных эффектов в формировании оптического отклика, что приводит к сдвигу спектрального положения продольного плазмона и, соответственно, ENZ в коротковолновую область (рис. 6.2 (в)).



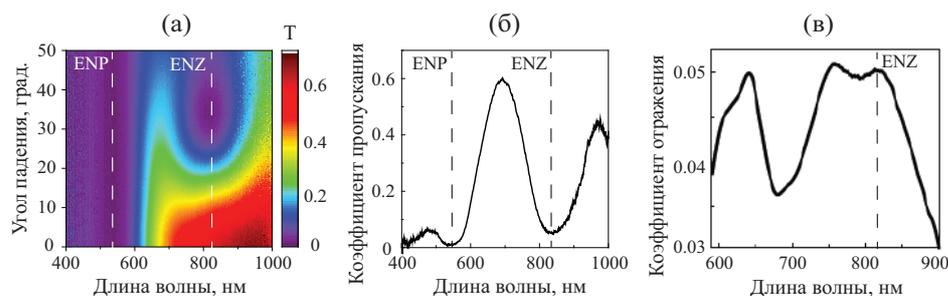
**Рис. 6.2.** Расчеты оптических свойств массива золотых наностержней диаметром 40 нм в модели двухкомпонентной анизотропной эффективной среды: (а) спектры компонент эффективной диэлектрической проницаемости, область гиперболической дисперсии выделена серым; (б) изочастотная поверхность при  $\lambda = 900$  нм, компоненты волнового вектора указаны в единицах  $2\pi/\lambda$ ; (в) зависимости спектрального положения ENZ от длины наностержней при различных значениях объемной доли металла  $f$ ; (г), (д), (е), (ж), (з) - частотно-угловые спектры поглощения,  $\text{Re}(n_e)$ ,  $\text{Re}(n_o)$ ,  $\text{Im}(n_e)$ ,  $\text{Im}(n_o)$ , соответственно. Во всех расчетах, кроме (в), длина наностержней 580 нм, объемная доля золота  $f = 12\%$ .

С ростом  $l$  величина  $\lambda_{ENZ}$  смещается в красную область, так как, фактически увеличивается длина “резонатора”. Положение ENP слабо зависит от геометрических параметров образца и определяется выбором металла - например, в массиве серебряных наностержней ENP наблюдается на длине волны около 400-420 нм, а в висмутовых - в ультрафиолетовом диапазоне.

Обе особенности ГММ, ENZ и ENP, характеризуются резонансным поглощением света, что связано с диссипацией энергии падающей световой волны при резонансном возбуждении колебаний электронного газа. Действительно, спектр поглощения, рассчитанный методом матриц распространения с использованием полученных спектров компонент эффективной диэлектрической проницаемости, приведенных на рис. 6.2 (а), демонстрирует два максимума на длинах волн ENZ и ENP (рис. 6.2 (г)).

Сильная анизотропия оптических свойств ГММ приводит к существенному различию коэффициентов преломления и поглощения для обыкновенной ( $s$ -поляризованной) и необыкновенной ( $p$ -поляризованной) волны. Для расчетов использованы формулы  $n_o = \sqrt{\epsilon_{\perp}}$  и  $n_e = \sqrt{\epsilon_{\perp} + \sin^2 \theta (1 - \epsilon_{\perp}/\epsilon_{\parallel})}$ , где  $\theta$  - угол падения [112], результаты представлены на рис. 6.2 (д-з). На частотно-угловых спектрах  $Re(n_o)$  и  $Im(n_o)$  наблюдается только особенность вблизи ENP, а в спектрах  $Re(n_e)$  и  $Im(n_e)$  - вблизи обеих особых точек. Важно отметить, что при  $\lambda > \lambda_{ENZ}$  величина  $Re(n_e) - Re(n_o)$  положительна, а при  $\lambda < \lambda_{ENZ}$  - отрицательна, а по абсолютному значению разность показателей преломления обыкновенного и необыкновенного луча достигает 2 (вблизи  $\lambda = 820$  нм), что нереализуемо в природных материалах в оптическом диапазоне. Так, к примеру, в кварце, широко используемом для изготовления полуволновых и четвертьволновых пластинок,  $Re(n_e) - Re(n_o) \sim 0.01$  при  $\lambda = 820$  нм [210]. Такое гигантское двулучепреломление в ГММ обусловлено их сильной анизотропией.

Что касается разницы  $Im(n_e)$  и  $Im(n_o)$ , дело в том, что вблизи ENZ  $p$ -поляризованное излучение (необыкновенная волна) возбуждает плазмон в направлении вдоль наностержней, следовательно, поглощается сильнее, чем  $s$ -поляризованное (обыкновенная волна), при котором резонанс не наблюдается; это приводит к большой разнице коэффициентов поглощения (линейный дихроизм) в соответствующем спектральном диапазоне. Сочетание высокой анизотропии и величины дихроизма ГММ обуславливает



**Рис. 6.3.** Экспериментальные данные для массива золотых наностержней (образец 1), полученные при  $p$ -поляризованном излучении накачки: (а) частотно-угловой спектр пропускания; (б) срез спектра (а) при угле падения  $\theta = 45^\circ$ ; (в) спектр отражения при угле падения  $\theta = 45^\circ$ .

перспективы их применения в нанофотонике как сверхтонких преобразователей поляризации.

### 6.2.2. Экспериментальные исследования оптического отклика ГММ

#### Спектроскопия коэффициентов отражения и пропускания

Типичный спектр пропускания ГММ, представленный на рис. 6.3 (а) для массива золотых наностержней, демонстрирует два минимума. Коротковолновый минимум при длине волны 540 нм не зависит от угла падения и поляризации зондирующего излучения и соответствует ENP-резонансу, вызванному возбуждением плазмона в направлении, перпендикулярном оси наностержней (для большей наглядности на рис. 6.3 (б) показан срез частотно-углового спектра при  $\theta = 45^\circ$ ). Второй минимум на длине волны около 820 нм соответствует ENZ спектральной особенности ГММ, возникающей при возбуждении плазмонного резонанса вдоль оси наностержней только при наклонном падении  $p$ -поляризованного излучения, когда есть ненулевая компонента поля накачки вдоль наностержней. При  $s$ -поляризованном излучении накачки наблюдается только коротковолновая резонансная особенность.

Качественно экспериментальные данные для пропускания (рис. 6.3 (а)) и расчетные данные для поглощения (рис. 6.2 (г)) хорошо согласуются. В ГММ с другими геометрическими параметрами и материалами качественный вид частотно-углового спектра пропускания аналогичен, но

спектральное положение резонансов меняется. Так же, как и в расчетах, спектральное положение коротковолнового плазмона определяется, преимущественно, материалом наностержней, а длинноволнового - длиной наностержней и объемной долей металла в композите. Следует также отметить, что в расчетных данных добротность длинноволнового резонанса обычно получается больше, чем в экспериментальных, что связано с дисперсией длин наностержней и расстояния между ними, которая наблюдается в реальных структурах. Было показано, что при объемной доле металла  $f > 20\%$  спектроскопия пропускания не позволяет разрешить два резонанса, что, в свою очередь, и было мотивацией для изготовления структур с частичной блокировкой пор с целью уменьшения  $f$  [A37].

Наличие в структуре ГММ никеля, как в виде сегментов, так и сплошной пленки, обычно качественно не меняет вид спектра пропускания и не приводит к существенному спектральному сдвигу резонансов, вызывая равномерное уменьшение пропускания структуры во всем видимом спектральном диапазоне.

Спектр отражения ГММ (рис. 6.3 (в)), измеренный при  $p$ -поляризованном излучении накачки, демонстрирует типичные для ГММ диэлектрического типа низкие значения отражения (несколько процентов), что связано с отсутствием свободного движения электронов вдоль поверхности структуры.

## Эллипсометрия

Преобразование поляризации в ГММ в геометрии “на пропускание” было экспериментально исследовано в образце **1** с помощью эллипсометрии, измерения проводились при углах падения излучения накачки  $\theta = 0^\circ, 30^\circ, 45^\circ$  на коммерческом эллипсометре WVASE от J.A. Wollam Co., Inc. На каждой длине волны эллипсометром одновременно измерялись три комплексных числа  $T_1, T_2$  и  $T_3$  [249]. Эти величины - отношения трех компонент матрицы Джонса к четвертой, а именно, к комплексному коэффициенту пропускания для  $s$ -поляризованного света,  $T_{ss}$ :

$$J = \begin{pmatrix} T_{pp} & T_{sp} \\ T_{ps} & T_{ss} \end{pmatrix} = T_{ss} \begin{pmatrix} T_1 & T_2 \\ T_3 & 1 \end{pmatrix}, \quad (6.2)$$

где  $T_1 = tg\Psi e^{i\Delta}$  - главный стандартный параметр эллипсометрии, измеря-

емый для характеристики оптических свойств изотропных и многих анизотропных сред. Рис. 6.4 (б) демонстрирует полученный спектр комплексной величины  $T_1$  при угле падения зондирующего излучения  $\theta = 45^\circ$ . Видно, что минимальное значение  $|T_1|$  наблюдается в точке ENZ, что соответствует сильному поглощению  $p$ -поляризованного света в этом спектральном диапазоне. Путем обработки данных эллипсометрии, т.е., используя матрицу Джонса, можно рассчитать состояние поляризации световой волны прошедшего света, задав конкретную поляризацию падающего света:

$$\begin{pmatrix} E_p^{out} \\ E_s^{out} \end{pmatrix} = T_{ss} \begin{pmatrix} T_1 & T_2 \\ T_3 & 1 \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} E_p^{in} \\ E_s^{in} \end{pmatrix} \quad (6.3)$$

Для исследования двулучепреломляющих свойств ГММ рассмотрим случай, когда падающая на структуру волна линейно поляризована в плоскости, наклоненной к плоскости падения под углом  $\varphi = 10^\circ$ , так что есть обе  $p$ - и  $s$ - ненулевые компоненты электрического поля излучения накачки,  $E_p^{in} = E_0 \cos\varphi$ ,  $E_s^{in} = E_0 \sin\varphi$  (см. схему на рис. 6.4 (а)). Тогда в ГММ будут распространяться и обыкновенная, и необыкновенная волны. В общем случае поляризация прошедшего излучения будет эллиптической.

На рис. 6.4 (в) показаны спектры отношения модулей  $p$ - и  $s$ -поляризованных компонент прошедшего через ГММ луча,  $|E_p^{out}|/|E_s^{out}|$  для различных углов падения излучения накачки. При наклонном падении света на структуру наблюдается минимум в районе ENZ ( $\lambda=820$  нм), обусловленный сильным поглощением  $p$ -поляризованного излучения вследствие возбуждения продольного плазмонного резонанса.

Вторая характеристика состояния поляризации прошедшего через ГММ света - это разность фаз его  $p$ - и  $s$ -поляризованных компонент, т.е.  $\delta_p - \delta_s$ ; спектры этой величины при нормальном и наклонном падении зондирующего излучения представлены на рис. 6.4 (г). Как и ожидалось, при нормальном падении  $(\delta_p - \delta_s)(\lambda)$  постоянна, так как только  $\epsilon_\perp$  определяет оптический отклик ГММ в таком случае. При наклонном падении света на ГММ наблюдаются два скачка разности фаз вблизи длин волн 540 нм и 820 нм, причем величина  $\delta_p - \delta_s$  достигает 90 градусов в окрестности точки ENZ.

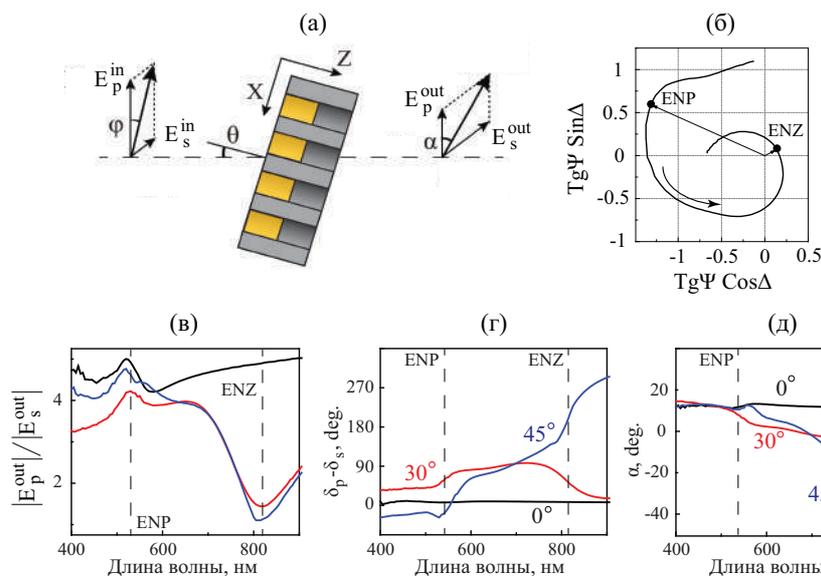
Используя спектры на рис. 6.4 (в,г), были рассчитаны углы поворота поляризационного эллипса  $\alpha = 1/2 \cdot \arctg\left(\frac{2|E_p^{out}|/|E_s^{out}| \cdot \cos(\delta_p - \delta_s)}{(|E_p^{out}|/|E_s^{out}|)^2 - 1}\right)$ , результат

представлен на рис. 6.4 (д). Угол  $\alpha$  отсчитывается от плоскости падения. При  $\theta = 0$  не происходит вращения плоскости поляризации,  $\alpha \approx \varphi = 10^\circ$  во всем исследуемом спектральном диапазоне. При наклонном падении света вблизи точки ENZ величина угла поворота главных осей поляризационного эллипса  $\alpha$  демонстрирует сложное знакопеременное поведение, достигая десятков градусов. Экспериментальные результаты эллипсометрии находятся в соответствии с данными расчетов (рис. 6.2 (д-з)). При нормальном падении света на структуру есть только волна, поляризованная поперек наностержней (обыкновенная) и преобразования поляризации не происходит. Если наклонно падающий на ГММ свет поляризован в плоскости, расположенной под углом к плоскости падения, то в ГММ распространяется и обыкновенная ( $s$ -), и необыкновенная ( $p$ -) волны, у которых, как было показано с помощью расчетов, разные коэффициенты поглощения и показатели преломления, причем наиболее заметно это различие проявляется вблизи точки ENZ. Значительная разница показателей преломления,  $Re(n_e) - Re(n_o)$ , приводит к резким изменениям разности фаз  $p$ - и  $s$ -поляризованного света на выходе из ГММ,  $\delta_p - \delta_s$ , вблизи особых точек (на длинах волн  $\sim 540$  нм и 820 нм) (рис. 6.4 (г)). Доминирующее поглощение необыкновенной волны вызывает поворот плоскости поляризации света, а возникшая после прохождения ГММ разность фаз  $\delta_p - \delta_s$  придает излучению эллиптичность. Отметим также, что похожие результаты были получены для отраженного от ГММ света [250].

Таким образом, экспериментально подтверждена возможность использования ГММ как сверхтонких преобразователей поляризации.

### § 6.3. Магнитооптический отклик ГММ

В этом разделе речь пойдет о композитных структурах ГММ 2 и 3, содержащих никель. Все эксперименты проведены при  $p$ -поляризации падающего света. В геометрии эффекта Фарадея регистрировался магнитный контраст, т.е. относительное изменение интенсивности света, прошедшего через анализатор, ориентированный под углом  $45^\circ$  относительно плоскости падения света. Следует отметить, что в ГММ величина  $\rho_\omega$  характеризует эффект магнитоиндуцированного поворота плоскости поляризации в структуре, однако не дает возможность однозначно сделать вывод о его ве-



**Рис. 6.4.** (а) Схема, поясняющая введенные обозначения и (б-д) результаты обработки данных эллипсометрии; (б) - спектр главной компоненты матрицы Джонса  $T_1 = tg\Psi e^{i\Delta}$  при  $\theta = 45^\circ$ , стрелка указывает направление увеличения длины волны; (в), (г), (д) - спектры  $|E_p^{out}|/|E_s^{out}|$ ,  $\delta_p - \delta_s$  и угла поворота главных осей поляризационного эллипса  $\alpha$ , соответственно.

личине, поскольку, как пояснялось выше, проходящий свет кроме магнитоиндуцированного поворота поляризации, приобретает эллиптичность из-за высокой анизотропии рассматриваемого ГММ. В геометрии Фохта анализировалась полная интенсивность прошедшего через ГММ света при отсутствии анализатора перед спектрометром.

### 6.3.1. Структура “ГММ+сплошная пленка никеля”

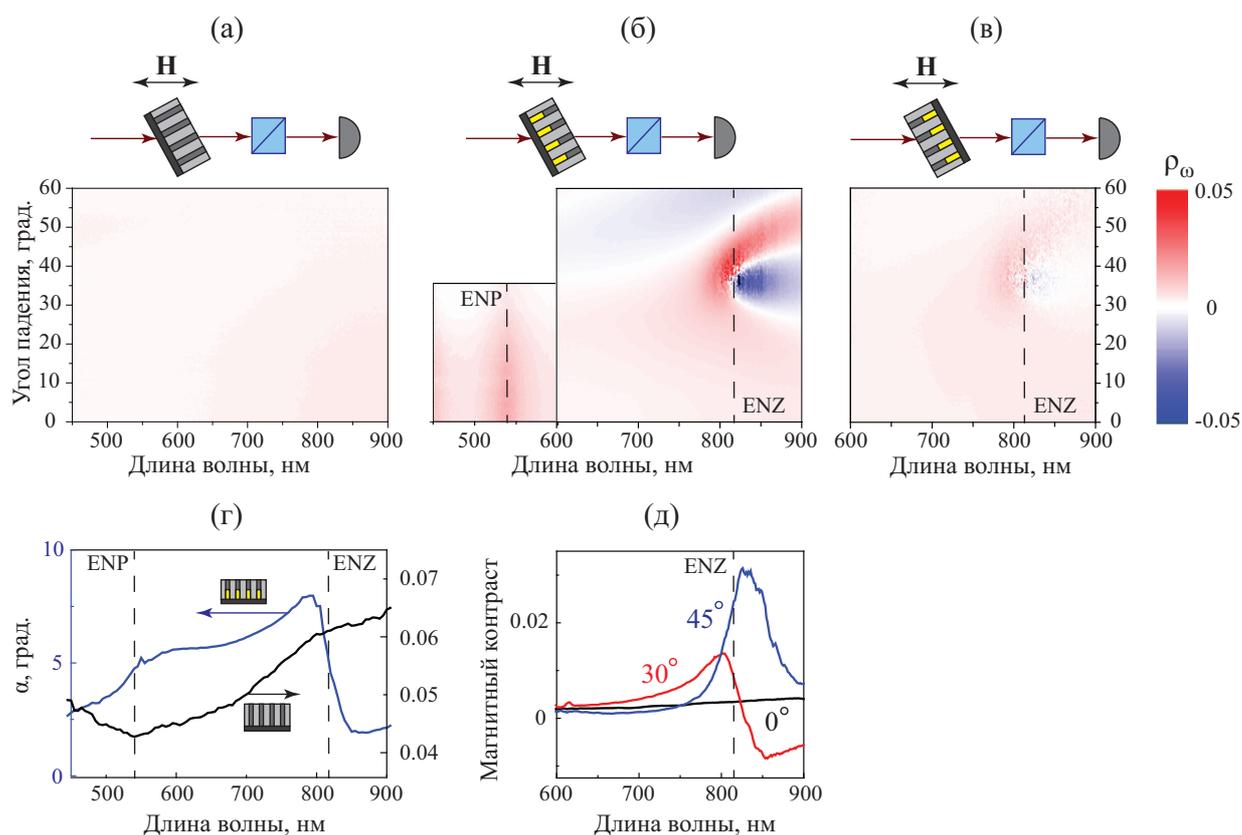
Исследования были проведены при приложении магнитного поля 2 кГс, которое является насыщающим для сплошной пленки никеля. Прежде всего был измерен частотно-угловой спектр магнитного контраста в геометрии Фарадея для реперной структуры, т.е. сплошной пленки никеля на поверхности АОА без наностержней Au. Никаких особенностей  $\rho_\omega(\lambda, \theta)$  в исследуемом диапазоне длин волн не выявлено (рис. 6.5 (а)), следовательно, все нижеприведенные эффекты характерны именно для композитных структур Ni+ГММ.

Частотно-угловые спектры магнитного контраста образца **2** в геометрии Фарадея (рис. 6.5 (б)), полученные при падении излучения накачки со стороны пленки никеля, демонстрируют усиление МО отклика в спек-

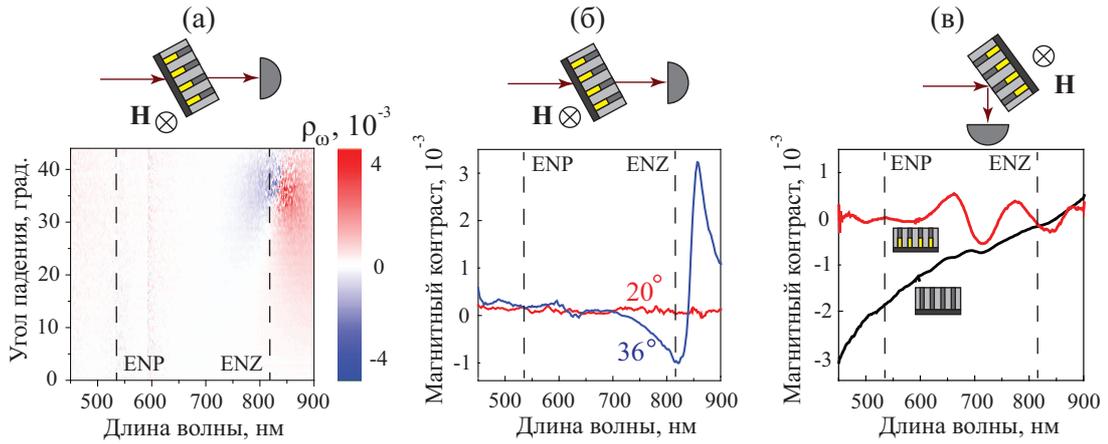
тральной окрестности ENP ( $\lambda = 540$  нм). Максимальное значение  $\rho_\omega$  наблюдается при нормальном падении света на структуру и достигает 1.5%, что в несколько раз превосходит значение контраста для реперной пленки. По-видимому, это связано с сильной локализацией электромагнитного поля в структуре при возбуждении поперечного плазмона и соответствующим увеличением эффективности взаимодействия света с веществом. Вблизи ENZ наблюдается сложное знакопеременное поведение магнитного контраста, достигающего по абсолютной величине нескольких процентов (рис. 6.5 (б)). Для наглядности на рис. 6.5 (д) приведены срезы рис. 6.5 (б) при трех значениях  $\theta$ . При падении зондирующего излучения на структуру с другой стороны, т.е. при его прохождении сначала через ГММ, а затем через никелевую пленку, картина качественно не меняется, однако по абсолютной величине магнитный контраст оказывается примерно в 3 раза меньше (рис. 6.5 (в)).

Для того, чтобы объяснить усиление фарадеевского вращения в композитной структуре 2 “ГММ+пленка Ni”, рассмотрим такую модель:  $p$ -поляризованный свет падает наклонно на пленку никеля, плоскость поляризации поворачивается на некоторый угол, который можно рассчитать из магнитного контраста, представленного на рис. 6.5 (а). Зная этот угол, можно рассчитать компоненты электрического поля, падающего на ГММ и по формуле (6.3) определить компоненты поля прошедшей через композитную структуру волны. Расчеты были проведены для угла падения  $\theta = 45^\circ$ , результаты представлены на рис. 6.5 (г). Фарадеевское вращение реперной пленки, не превосходящее  $0.1^\circ$ , показано черной кривой, именно эти значения были взяты в качестве  $\varphi$  при расчете угла поворота осей поляризационного эллипса в ГММ (синяя кривая на рис. 6.5 (г)) с помощью данных эллипсометрии при  $\theta = 45^\circ$ . Видно, что фарадеевское вращение композитной структуры “ГММ+пленка Ni” на два порядка превосходит аналогичные значения в реперной пленке, причем наиболее заметное усиление МО отклика наблюдается в окрестности ENZ.

Было обнаружено, что в геометрии Фохта ненулевой магнитный контраст наблюдается только в окрестности ENZ (770-900 нм) и исключительно при наклонном падении зондирующего излучения (рис. 6.6 (а, б)). Последнее согласуется с теорией для поперечных магнитооптических эффектов [125]. Важно отметить, что вблизи ENZ-режима величина  $\rho(\lambda, \theta)$  меняет



**Рис. 6.5.** Частотно-угловые спектры магнитного контраста в геометрии Фарадея (цветовая шкала общая): (а) для никелевой пленки на пустом темплате АОА, (б) для образца **2** при падении света со стороны пленки, (в) для образца **2** при падении света со стороны ГММ; (г) спектр угла поворота осей поляризационного эллипса в геометрии Фарадея в образце **2** (синяя кривая) и спектр угла поворота плоскости поляризации для реперной пленки (черная кривая), угол падения  $45^\circ$ ; (д) срезы спектра на рис. (б) при углах падения  $0^\circ$ ,  $30^\circ$  и  $45^\circ$ .



**Рис. 6.6.** Экспериментальные результаты исследования МО отклика образца **2** при поперечном намагничивании: (а) частотно-угловой спектр магнитного контраста в геометрии Фохта, (б) его срезы при углах падения  $20^\circ$  и  $36^\circ$ , (в) спектры магнитного контраста в геометрии экваториального эффекта Керра для реперной никелевой пленки (черная кривая) и для образца (красная кривая),  $\theta = 45^\circ$ .

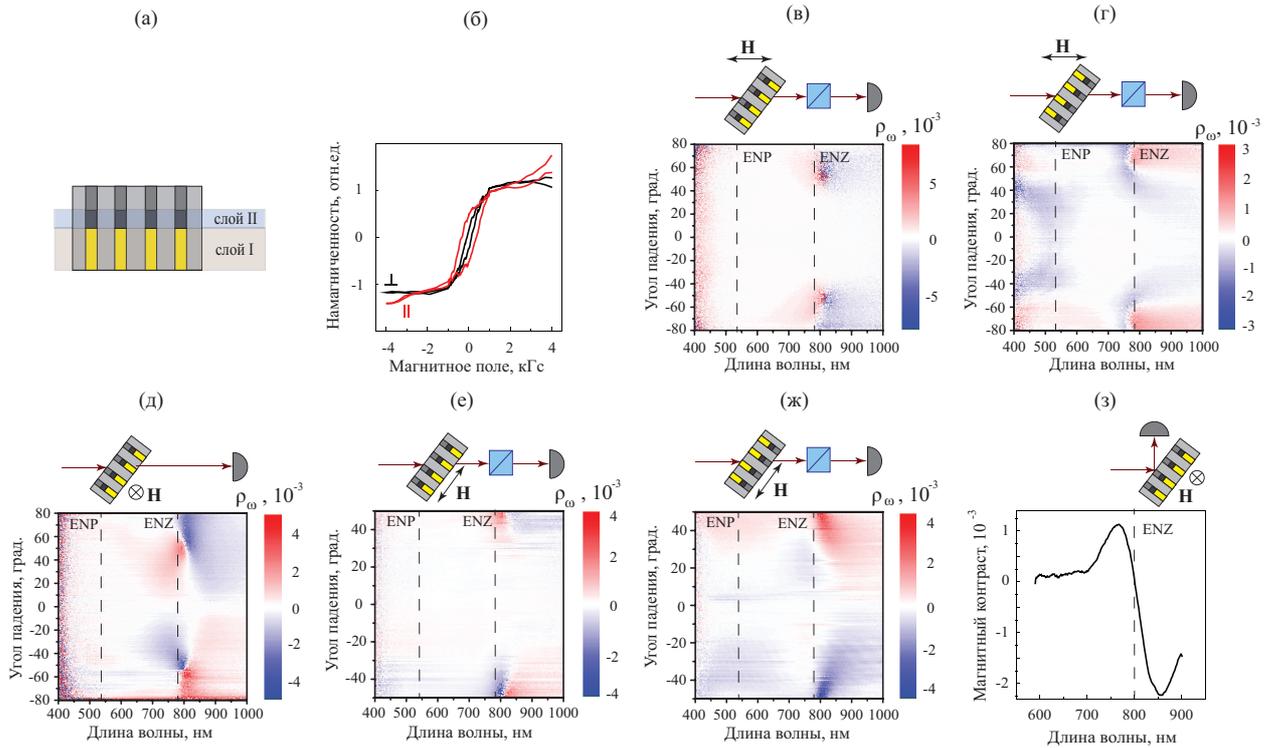
знак и по абсолютной величине достигает  $5 \cdot 10^{-3}$ , тогда как для сплошной никелевой пленки магнитный контраст, по крайней мере, на порядок меньше.

Спектр  $\rho_\omega$  экваториального МО эффекта Керра в композитной структуре “ГММ+пленка Ni” при падении зондирующего излучения под углом  $\theta = 45^\circ$  со стороны ГММ демонстрирует сложное знакопеременное поведение (красная кривая на рис. 6.6 (в)). В то же время в реперной пленке никеля спектр магнитного контраста монотонный (черная кривая на рис. 6.6 (в)).

### 6.3.2. Структура “Массив бисегментированных наностержней Au/Ni”

Рассмотрим магнитооптические свойства массива бисегментированных Au/Ni наностержней в матрице оксида алюминия (образец **3**). Спектр пропускания такой структуры демонстрирует минимумы на длинах волн 540 и 790 нм, что, согласно расчетам, соответствует точкам ENZ и ENP, соответственно [A43].

Для характеристики магнитных свойств структуры были измерены гистерезисы намагниченности при приложении магнитного поля  $\mathbf{H}$  вдоль и поперек наностержней, результат представлен на рис. 6.7 (б). В обеих



**Рис. 6.7.** Экспериментальные данные для массива бисегментированных Au/Ni наностержней (образец **3**): (а) схема образца; (б) гистерезисы намагниченности при приложении магнитного поля вдоль (красная кривая) и поперек (черная кривая) наностержней; (в), (г) - частотно-угловые спектры магнитного контраста в геометрии Фарадея при падении излучения накачки со стороны никелевых сегментов и золотых сегментов, соответственно; (д) - частотно-угловой спектр магнитного контраста в геометрии Фохта; (е), (ж) - частотно-угловые спектры магнитного контраста в меридиональной геометрии при падении излучения накачки со стороны никелевых сегментов и золотых сегментов, соответственно. (з) Спектр магнитного контраста в геометрии экваториального эффекта Керра при  $\theta = 45^\circ$ .

ориентациях  $\mathbf{H}$  поле насыщения не превышает 1.5 кГс, при этом разная ширина петель гистерезиса указывает на наличие слабой магнитной анизотропии. Легкая ось намагничивания параллельна осям наностержней, что соответствует форме магнитных сегментов.

Магнитооптические эксперименты были проведены при приложении к ГММ статического магнитного поля 1.5 кГс. Экспериментальные результаты исследования МО отклика этой структуры в геометрии Фарадея приведены на рис. **6.7** (в, г). Частотно-угловые спектры  $\rho_\omega(\lambda, \theta)$  являются четной функцией угла падения  $\theta$ , что находится в соответствии с теорией МО эффекта Фарадея [125]. При падении света со стороны никелевых сегментов и последующего его прохождения через область с золотыми на-

ностержнями в спектре магнитного контраста наблюдается единственная особенность - изменение знака  $\rho_\omega(\lambda, \theta)$  при  $\lambda \sim 800$  нм (рис. **6.7** (в)), что сопровождается усилением магнитооптического эффекта до  $\rho_\omega = \pm 6 \cdot 10^{-3}$  при угле падения  $\theta \sim 55^\circ$ . Напротив, в случае падения света со стороны золотых наностержней (рис. **6.7** (г)),  $\rho_\omega(\lambda, \theta)$  мал везде, кроме спектральных областей ENP и ENZ. Так, вблизи ENP  $\rho_\omega(\lambda_{ENP}, \pm 45^\circ) \approx \pm 1 \cdot 10^{-3}$ . Вблизи ENZ при  $\theta > 20^\circ$  наблюдается возрастание магнитного контраста, его величина достигает  $\rho_\omega \approx \pm 2 \cdot 10^{-3}$ ; вместе с тем наблюдается смена знака  $\rho_\omega$  при  $\theta = 65^\circ$ .

В геометрии Фохта наблюдается усиление магнитного контраста только в спектральной окрестности точки ENZ безотносительно ориентации образца (на рис. **6.7** (д) представлен результат для одной ориентации, для противоположной спектр  $\rho(\lambda, \theta)$  полностью аналогичен - см. Supplementary в [A43]). Вблизи  $\lambda_{ENZ}$  меняет знак  $\rho_\omega(\lambda, \theta)$ , его максимальное абсолютное значение составляет  $\pm 2.5 \cdot 10^{-3}$  при угле падения  $\theta \approx 50^\circ$ .

Частотно-угловые спектры  $\rho_\omega$  в меридиональной геометрии представлены на рис. **6.7** (е, ж). Магнитное поле было приложено в плоскости образца, т.е. перпендикулярно наностержням. В случае, когда свет проходит сначала через никелевые сегменты (рис. **6.7** (е)), в спектре магнитного контраста наблюдается только особенность вблизи ENZ: величина  $\rho_\omega$  меняет знак и в окрестности  $\lambda_{ENZ}$  достигает  $\pm 4 \cdot 10^{-3}$  при  $\theta \sim 35 - 50^\circ$ . В другой ориентации образца (рис. **6.7** (ж)) спектр магнитного контраста демонстрирует два максимума - вблизи точек ENP и ENZ, величина  $\rho_\omega$  в указанных спектральных диапазонах достигает  $\pm 1 \cdot 10^{-3}$  и  $\pm 4 \cdot 10^{-3}$ , соответственно. В отличие от эффекта Фарадея, магнитный контраст в меридиональной геометрии является нечетным по углу падения, что соответствует теории МО эффектов [125].

На рис. **6.7** представлен спектр магнитного контраста в геометрии экваториального эффекта Керра для образца бисегментированных наностержней, аналогичному образцу **3** с  $\lambda_{ENZ} = 800$  нм. Наблюдается смена знака магнитного контраста в окрестности точки ENZ, при этом величина  $|\rho_\omega|$  достигает  $2.3 \cdot 10^{-3}$ .

### 6.3.3. Обсуждение

В силу разного дизайна, структуры **2** и **3** имеют разные магнитные и МО свойства, однако, на основе анализа вида частотно-угловых спектров магнитного контраста в геометрии Фарадея, можно выделить общие черты: усиление МО эффекта вблизи  $\lambda_{ENZ}$  и смена знака  $\rho_\omega$  в этой области. Рассмотрим возможный механизм этих эффектов.

Будем считать образец **3** состоящим из двух последовательных эффективных оптических слоев: (I) анизотропного ГММ, состоящего из наностержней золота в матрице АОА, и (II) композита никелевых наносегментов в той же диэлектрической матрице (схема на рис. **6.7** (а)). Моделирование спектров пропускания в программе Lumerical Solutions показало, что длины волн, на которых возбуждаются плазмонные резонансы в слое I и во всей структуре (слои I+II) практически совпадают [A43], поэтому, в качестве первого приближения мы можем рассматривать взаимодействие света с двумя слоями последовательно. Кроме того, в рамках модели двухкомпонентной эффективной среды были вычислены частотно-угловые спектры  $Re(n_e) - Re(n_o)$  в слое II, оказалось, что разность показателей преломления обыкновенной и необыкновенной волны не превышает  $5 \cdot 10^{-3}$ , то есть, двулучепреломляющие свойства слоя II пренебрежимо малы [A43]. Таким образом, обе структуры **2** и **3** представимы как последовательность двулучепреломляющего ГММ и изотропного магнитного слоя. В геометрии Фарадея при падении *p*-поляризованного излучения на магнитный слой плоскость поляризации света поворачивается за счет гиротропии никеля, поэтому в следующем слое ГММ распространяются две волны, обыкновенная и необыкновенная. В силу оптического дихроизма ГММ вблизи ENZ необыкновенная волна поглощается сильнее, чем обыкновенная, в результате ГММ эффективно “доворачивает” плоскость поляризации света, усиливая эффект Фарадея. В свою очередь, двулучепреломление в ГММ (рис. **6.2** (д, ж)) обуславливает появление эллиптичности распространяющегося света, приводя к смене знака магнитного контраста вблизи ENZ. Следует отметить, что в отсутствие намагниченности слоя с никелем падающее *p*-поляризованное излучение не будет испытывать изменения поляризации. Направление магнитного поля определяет знак фарадеевского вращения в исследуемых композитных структурах, позволяя управлять поляризационным состоянием света. Этот результат перспективен для при-

менения в нанофотонике при создании магнитоуправляемых преобразователей поляризации.

В меридиональной геометрии механизм усиления магнитного контраста и смены его знака полностью аналогичен, с той лишь разницей, что намагничивание происходит поперек наностержней.

В геометрии Фохта спектры  $\rho_\omega(\lambda, \theta)$  для ГММ **2** и **3** похожи и качественно, и количественно (рис. **6.6** (а), **6.7** (д)). Основным механизмом усиления МО отклика и смены знака  $\rho_\omega(\lambda, \theta)$  вблизи ENZ в этой геометрии заключается в том, что магнитоиндуцированное изменение показателя преломления никеля приводит к изменению граничных условий на концах наностержней, вызывающее спектральный сдвиг продольного плазмонного резонанса. Направление этого сдвига определяется направлением приложенного поперечного магнитного поля, что приводит к наблюдаемой форме спектра  $\rho_\omega(\lambda, \theta)$ . Подобное спектральное поведение магнитного контраста наблюдалось ранее в различных магнито-плазмонных структурах.

Аналогичный эффект, т.е. магнитоиндуцированный сдвиг продольного плазмонного резонанса также играет ключевую роль в МО отклике ГММ в геометрии экваториального эффекта Керра. Знакопеременное поведение спектра  $\rho_\omega$  наблюдается и в структуре “ГММ+ пленка Ni” (красная кривая на рис. **6.6** (в)), и в массивах бисегментированных наностержней (рис. **6.7** (з)) [А34].

Подводя итог, следует отметить, что плазмонные и особые дисперсионные свойства ГММ, а именно, сильное двулучепреломление, в сочетании с ферромагнетиком в составе структуры могут привести к значительному усилению магнитооптических эффектов в спектральной окрестности особых точек ENP и ENZ, что перспективно для управления параметрами света (поляризацией и интенсивностью) путем приложения к среде статического магнитного поля.

## § 6.4. Нелинейно-оптические эффекты в ГММ

Нелинейно-оптические эксперименты были проведены на установке, изображенной на рис. **1.21**. Средняя мощность излучения накачки, падающего на образец, составляла около 50 мВт. Линейно поляризованное лазерное излучение фокусировалось на поверхность структуры в область с диа-

метром около 30 мкм, детектировалась интенсивность  $p$ -поляризованной компоненты второй гармоники (ВГ) в направлении прошедшего через ГММ луча. Предварительно проверено, что интенсивность некогерентного  $s$ -поляризованного квадратичного нелинейно-оптического отклика, по крайней мере, на 2-3 порядка меньше, чем  $p$ -поляризованного. Образец был ориентирован таким образом, что сначала луч проходил через пустой темплат АОА, затем - через ГММ.

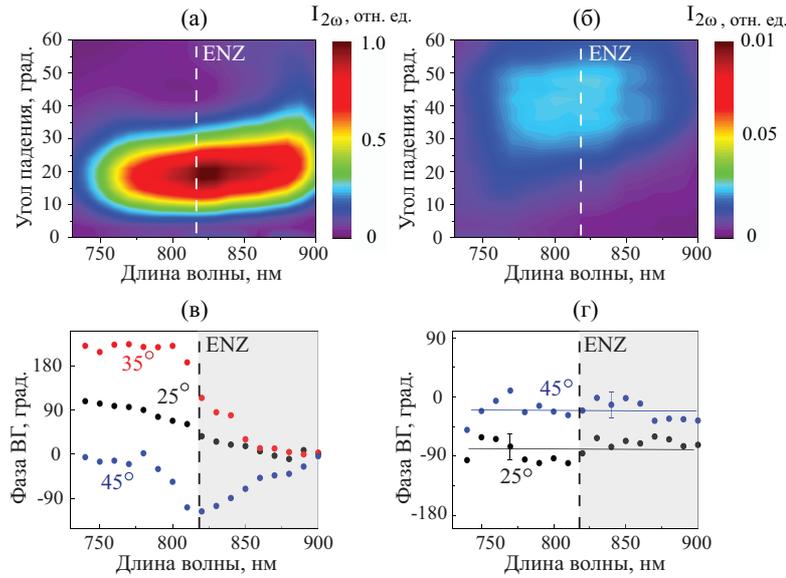
Оценим влияние эффекта нелинейной рефракции в ГММ в указанных экспериментальных условиях на спектральное положение ENZ. Для типичного ENZ-материала (например, ИТО)  $n_2 \sim 10^{-15} \text{ м}^2/\text{Вт}$  [115], тогда для используемого лазерного излучения сдвиг длины волны ENZ  $\delta\lambda \sim 0.3$  нм, что пренебрежимо мало по сравнению со спектральной шириной лазерного импульса (5-10 нм).

#### 6.4.1. ГММ на основе массива золотых наностержней

Для образца **1** экспериментальные частотно-угловые спектры интенсивности ВГ при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки представлены на рис. **6.8** (а, б). В обоих случаях наблюдается максимум  $I_{2\omega}(\lambda, \theta)$  с центром при  $\lambda = 820$  нм (т.е. вблизи ENZ). При  $p$ -поляризованном излучении накачки наиболее эффективная генерация ВГ происходит при  $\theta \sim 15^\circ$ , а при  $s$ -поляризованном зондирующем излучении - при  $\theta \sim 40 - 50^\circ$ , причем в первом случае интенсивность ВГ в максимуме примерно в 40 раз больше, чем во втором (интенсивность ВГ указана в одинаковых относительных единицах на шкалах рис. **6.8** (а) и (б)).

Спектроскопия фазы ВГ была проведена методом однолучевой интерферометрии. В процессе измерения менялось относительное расстояние между гиперболической структурой и референсной пленкой ИТО, т.е. варьировалась разность оптических путей для волн накачки и ВГ, обусловленная дисперсией воздуха. В результате были получены спектры фазы  $\Phi_S(\lambda)$ . Для выделения эффекта, специфичного для ГММ, полученные зависимости сравнивались с эталонными  $\Phi_R(\lambda)$ , измеренными в аналогичной схеме с заменой ГММ на вторую пленку ИТО. Физический смысл имеет не абсолютное значение фазы, а его изменение при варьировании длины волны накачки вблизи особых точек ГММ.

$$\text{Был вычислен спектр } \Delta\Phi(\lambda) = \Phi_S(\lambda) - \Phi_R(\lambda) = \Delta\Phi^{\text{ГММ}} - \Delta\Phi^{\text{ИТО}},$$

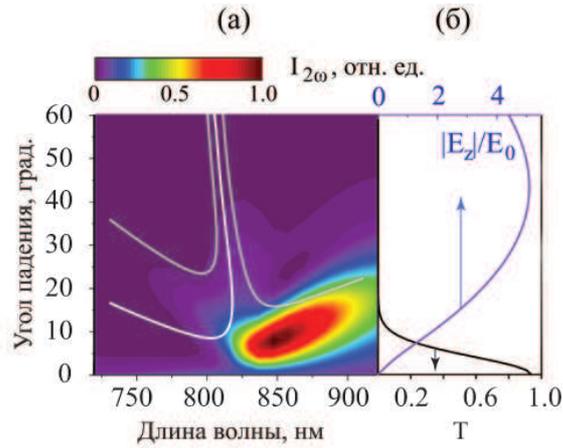


**Рис. 6.8.** Экспериментальные результаты исследования генерации второй гармоники в массиве золотых наностержней (образец ГММ 1): (а,б) частотно-угловые спектры интенсивности ВГ при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки, соответственно; (в,г) спектры фазы ВГ при различных углах падения  $p$ - и  $s$ -поляризованного лазерного излучения, соответственно.

где  $\Delta\Phi^\alpha = \Phi_{2\omega}^\alpha - 2\Phi_\omega^\alpha$ , индексом  $\alpha$  обозначен ГММ (НММ) или ИТО,  $\Phi_\omega^{HMM}$  - фаза волны накачки после ГММ,  $\Phi_{2\omega}^{HMM}$  и  $\Phi_{2\omega}^{ITO}$  фазы волны ВГ от ГММ и пленки ИТО.

Обнаружено, что спектры  $\Delta\Phi(\lambda)$  (рис. 6.8 (в)) при  $p$ -поляризованном излучении накачки демонстрируют скачок фазы вблизи ENZ ( $\lambda = 820$  нм), величина которого зависит от угла падения  $\theta$ . Поскольку у референсной пленки отсутствуют резонансы в исследуемом диапазоне, то спектральные особенности  $\Delta\Phi(\lambda)$  связаны с ГММ. При  $s$ -поляризованном излучении накачки изменения фазы ВГ в ГММ в исследуемом спектральном диапазоне не происходит.

Для анализа механизма формирования нелинейно-оптического отклика ГММ к.ф.-м.н. м.н.с. В.Б. Новиковым были проведены расчеты спектров интенсивности ВГ путем решения уравнений Максвелла с использованием метода матриц распространения, адаптированного для процесса генерации второй гармоники. При моделировании ГММ рассматривался как эффективная среда со спектральными зависимостями компонент тензора диэлектрической проницаемости, приведенными на рис. 6.2 (а), и независимыми от длины волны компонентами тензора квадратичной восприимчивости  $\hat{\chi}^{(2)}$ . Толщина ГММ соответствовала эксперимен-



**Рис. 6.9.** Результаты расчета квадратичного нелинейно-оптического отклика ГММ на основе золотых наностержней (образец **1**) при  $p$ -поляризованном излучении накачки: (а) частотно-угловой спектр интенсивности ВГ, белая кривая соответствует условию  $Re(n_e(\lambda, \theta)) = Re(n_e(\lambda/2, \theta))$ , серые кривые соответствуют условию  $l = L_c = \lambda/4 * (Re(n_e(\lambda, \theta)) - Re(n_e(\lambda/2, \theta)))$ , (б) зависимость пропускания (черная кривая) и нормальной компоненты электрического поля на частоте накачки в структуре (синяя кривая) от угла падения при  $\lambda = 820$  нм.

тальному значению длины наностержней. Рассчитанный спектр интенсивности ВГ (рис. **6.9** (а)) демонстрирует усиление квадратичного нелинейно-оптического отклика вблизи ENZ, что качественно согласуется с экспериментальными данными (рис. **6.8** (а)) для  $p$ -поляризованного излучения накачки. Следует отметить, что в мультислойных металл/диэлектрических ГММ расчеты демонстрируют аналогичное поведение спектра интенсивности ВГ [251, 252].

Усиление нелинейно-оптических эффектов вблизи ENZ в ГММ может быть вызвано рядом механизмов, главным из которых является усиление поля накачки внутри структуры. Это свойство ГММ обусловлено тем, что, согласно граничным условиям, на границе воздух/ГММ нормальная компонента вектора электрической индукции должна быть непрерывна, т.е.  $E_{\omega,z}^{air} = \epsilon_{\parallel} E_{\omega,z}^{HMM}$ , где  $E_{\omega,z}^{air}$  и  $E_{\omega,z}^{HMM}$  - нормальные компоненты поля накачки в воздухе и в ГММ, соответственно (система координат указана на рис. **6.4**). Вблизи точки ENZ  $Re(\epsilon_{\parallel}) \sim 0$ , следовательно, резонансно возрастает  $z$ -компонента поля накачки  $E_{\omega,z}^{HMM}$ . Будем рассматривать ГММ как изотропную в плоскости пленки центросимметричную эффективную среду, в которой генерация ВГ происходит преимущественно на по-

верхности. Тогда, используя ненулевые компоненты тензора квадратичной восприимчивости, можно записать нелинейную поляризацию в ГММ как  $\mathbf{P}^{NL} = \mathbf{e}_x 2\chi_{xxz}^{(2)} E_{\omega,x}^{HMM} E_{\omega,z}^{HMM} + \mathbf{e}_z (\chi_{zzz}^{(2)} E_{\omega,z}^{HMM} E_{\omega,z}^{HMM} + \chi_{zxx}^{(2)} E_{\omega,x}^{HMM} E_{\omega,x}^{HMM})$ . В спектральной окрестности ENZ резонансно возрастает поле  $E_{\omega,z}^{HMM}$ , поэтому наибольший вклад в интенсивность ВГ дает слагаемое, пропорциональное  $\chi_{zzz}^{(2)}$ :

$$I_{2\omega}^p \propto |\mathbf{P}_p^{NL}|^2 (T^p(\lambda, \theta))^2 T^p(\lambda/2, \theta) \propto (T^p(\lambda, \theta))^2 T^p(\lambda/2, \theta) |E_{\omega,z}^{HMM}|^4, \quad (6.4)$$

где  $T$  - коэффициент пропускания света ГММ,  $\lambda$  - длина волны накачки. В рассматриваемом диапазоне длин волн накачки  $T^p(\lambda/2, \theta)$  на частоте ВГ не имеет спектральных особенностей, а наблюдаемая частотно-угловая зависимость интенсивности ВГ является результатом совместного действия двух вкладов: (i) уменьшения пропускания на частоте накачки вблизи ENZ при наклонном падении (черная кривая на рис. 6.9 (б)); (ii) усиления z-компоненты поля внутри ГММ вблизи границы с АОА  $E_{\omega,z}^{HMM}$ , возрастающего в окрестности ENZ и имеющего угловую зависимость, представленную фиолетовой кривой на рис. 6.9 (б).

Кроме того, за счет сильной дисперсии необыкновенного показателя преломления на частоте накачки вблизи ENZ в исследуемом спектральном диапазоне выполняется условие фазового квазисинхронизма типа *eee*. Кривая, вдоль которой выполняется равенство  $Re(n_e(\lambda, \theta)) = Re(n_e(\lambda/2, \theta))$ , была рассчитана из данных на рис. 6.2 (д,ж) и показана белым цветом на рис. 6.9 (а)). Этот дополнительный фактор может оказывать существенное влияние на генерацию ВГ [120, 121, 122, 123, 124]. Границы области усиления ВГ за счет выполнения условия квазисинхронизма определяются соотношением  $l = L_c$ , где когерентная длина  $L_c = \lambda/|4 \cdot [Re(n_e(\lambda, \theta)) - Re(n_e(\lambda/2, \theta))]|$  и  $l$  - длина наностержней, т.е. толщина ГММ (серые кривые на рис. 6.9 (а)). Границы области эффективной генерации ВГ достаточно широкие вследствие малой толщины образца. Суперпозиция перечисленных эффектов определяет форму спектра  $I_{2\omega}(\lambda, \theta)$ .

Спектр фазы  $\Delta\Phi$ , измеренный методом интерферометрии, определяется выражением  $\Delta\Phi^{HMM} = (\Phi_{2\omega}^{HMM} - \Delta\Phi^{ITO}) - 2n_e l$ , причем, выражение в скобках не имеет резонансов в исследуемой спектральной области. Таким образом, скачок фазы, наблюдаемый в эксперименте (рис. 6.8 (в)), отражает значительные спектральные изменения  $Re(n_e)$  при переходе от эл-

эллиптического к гиперболическому режиму дисперсии при увеличении длины волны, как было показано в расчетах на рис. 6.2 (д). Следует также отметить, что экспериментальная величина скачка  $\Delta\Phi^{HMM}(\lambda)$  составляет около  $200^\circ$ . Таким образом, скачок фазы ВГ может играть роль индикатора перехода от эллиптического к гиперболическому режиму дисперсии.

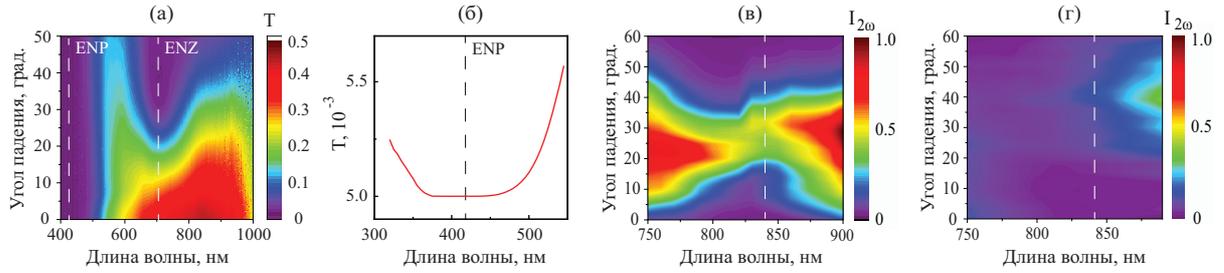
При  $s$ -поляризованном излучении накачки выражение для нелинейной поляризации имеет вид:  $\mathbf{P}_s^{NL} = \mathbf{e}_z \chi_{zyy} (E_{\omega,y}^{HMM})^2$ , то есть не содержит резонансной  $z$ -компоненты поля. Тем не менее, небольшое усиление интенсивности ВГ наблюдается вблизи ENZ при  $\theta \approx 40^\circ$  (рис. 6.8 (б)), предположительно, связанное с резонансным возрастанием некогерентного отклика. Расчеты показали, что в исследуемом частотно-угловом диапазоне выполнение  $eo$ -синхронизма невозможно, т.е. равенство  $Re(n_o(\lambda, \theta)) = Re(n_e(\lambda/2, \theta))$  не выполняется.

Спектр фазы при  $s$ -поляризованном излучении накачки определяется выражением  $\Delta\Phi^{HMM} = (\Phi_{2\omega}^{HMM} - \Delta\Phi^{ITO}) - 2n_o l$ , т.е. не имеет резонансных особенностей, что и наблюдается в эксперименте (на рис. 6.8 (б)  $\Delta\Phi^{HMM}(\lambda) = const$ ). При этом вышеупомянутый некогерентный сигнал, который дает усиление интенсивности ВГ (рис. 6.8 (б)), не дает вклад в интерферометрию.

#### 6.4.2. ГММ на основе серебряных наностержней

Структуры ГММ на основе серебряных наностержней интересны тем, что удвоенная длина волны, соответствующая полюсу диэлектрической проницаемости, определяемая плазменной частотой серебра, находится в области перестройки Ti:Sa лазера. Задача состоит в том, чтобы исследовать нелинейно-оптический отклик структуры в окрестности  $\lambda_{ENZ}$  и  $2\lambda_{ENP}$ , проанализировав роль фазового синхронизма в генерации второй гармоники.

Экспериментальный частотно-угловой спектр пропускания исследуемой структуры, представленный на рис. 6.10 (а), демонстрирует минимумы, соответствующие возбуждению продольного и поперечного плазмонов, на длине волны около 710 нм и в области коротких длин волн. Для более точного определения спектрального положения коротковолнового резонанса был измерен спектр пропускания в коммерческом спектрофотометре Ломо-Спектр СФ-56 при нормальном падении зондирующего излучения (рис.

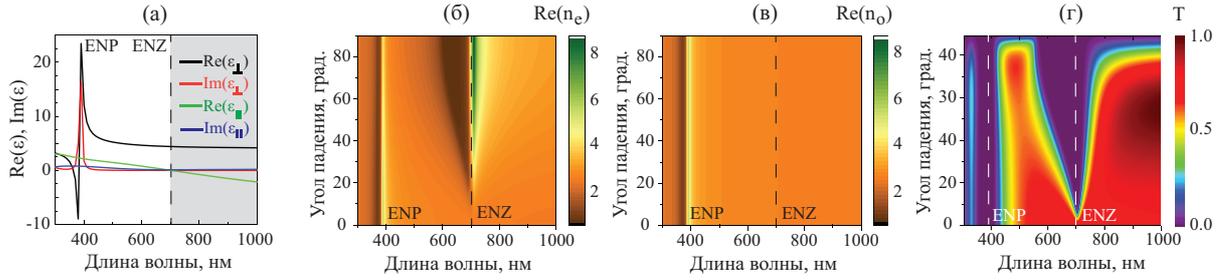


**Рис. 6.10.** Экспериментальные данные для ГММ на основе массива серебряных наностержней (образец 4): (а) частотно-угловой спектр пропускания; (б) спектр пропускания, измеренный под нормалью в коротковолновой области; (в), (г) - частотно-угловые спектры интенсивности ВГ при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки, соответственно.

**6.10 (б).** Выяснено, что минимум пропускания, соответствующий возбуждению поперечного плазмонного резонанса, наблюдается на длине волны 420 нм.

На рис. **6.10 (в)** и **(г)** представлены частотно-угловые спектры интенсивности генерации ВГ при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки. В случае  $p$ -поляризации максимумы  $I_{2\omega}$  наблюдаются на концах исследуемого спектрального диапазона при  $\theta \sim 20\text{-}30^\circ$ , где интенсивность ВГ примерно в 30 раз выше, чем в нерезонансных условиях. При  $s$ -поляризованном излучении накачки средняя интенсивность квадратичного отклика намного меньше (данные на рис. **6.10 (в)** и **(г)** показаны в одинаковых относительных единицах  $I_{2\omega}$ ), а усиление сигнала наблюдается только в длинноволновой области.

Рассчитанные в рамках модели Максвелла-Гарнетта спектры эффективных компонент диэлектрической проницаемости для образца 4 представлены на рис. **6.11 (а)**. Качественно они похожи на аналогичные спектры массива золотых наностержней и демонстрируют ENP и ENZ на длинах волн 390 и 700 нм, соответственно. Для определения областей, где выполняется условие фазового синхронизма, были вычислены частотно-угловые спектры  $Re(n_e)$  и  $Re(n_o)$  (рис. **6.11 (б,в)**). Полученные данные демонстрируют сильную дисперсию оптических свойств в спектральной окрестности точек ENZ и ENP. Стоит отметить, что  $Re(n_e)$  достигает величины 8 вблизи точки ENZ, что недостижимо в естественных средах. Спектр пропускания, рассчитанный методом матриц распространения, демонстрирует минимумы пропускания на длинах волн 390 и 700 нм, что соответ-



**Рис. 6.11.** Результаты расчетов оптических свойств ГММ на основе массива серебряных наностержней (образец 4) в рамках модели эффективной среды: (а) спектры компонент диэлектрической проницаемости, (б),(в),(г) частотно-угловые спектры  $Re(n_e)$ ,  $Re(n_o)$  и пропускания, соответственно. Пунктирные прямые на рисунках (в) и (г) соответствуют длине волны  $2\lambda_{ENP}$ .

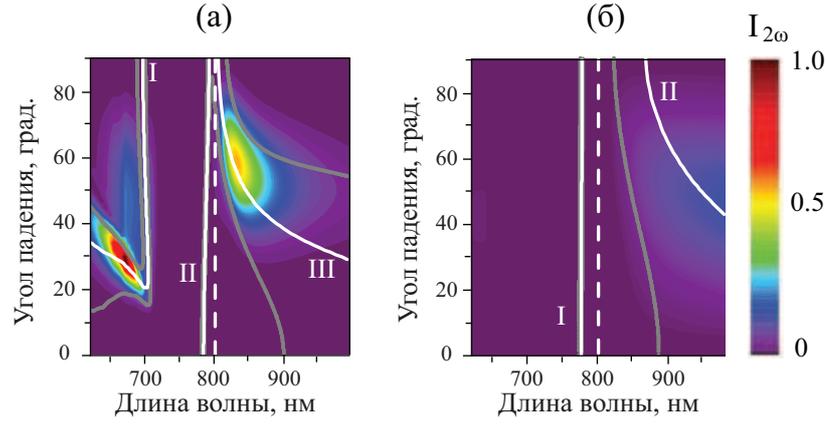
ствует возбуждению поперечного и продольного плазмонного резонанса, соответственно.

Рассчитанные м.н.с. к.ф.-м.н. В.Б. Новиковым спектры интенсивности генерации ВГ при  $p$ - и  $s$ -поляризованном излучении накачки представлены на рис. 6.12. Расчет выполнен методом матриц распространения, адаптированным для нелинейно-оптического отклика.

Для  $p$ -поляризации излучения накачки наблюдаются два максимума интенсивности ВГ: (i) при  $\lambda \sim 700$  нм, т.е., в спектральной окрестности ENZ при  $\theta = 20 - 30^\circ$ , (ii) при  $\lambda \sim 820$  нм при  $\theta \approx 50 - 60^\circ$ . При  $s$ -поляризованном зондирующем излучении наблюдается небольшое усиление сигнала в длинноволновой части спектральной области расчета в угловом диапазоне  $\theta \sim 30 - 70^\circ$ .

Анализ механизма генерации ВГ базируется на двух факторах: (1) выражении для интенсивности ВГ, в которое входят коэффициенты пропускания и свертки компонент нелинейной восприимчивости с соответствующими полями накачки и (2) расчете дисперсионных кривых, вдоль которых выполняются условия фазового синхронизма. Следует особо подчеркнуть, что нижеприведенные результаты расчета синхронизма возможны только в структуре, где в исследуемом спектральном диапазоне наблюдается сильная дисперсия и на частоте накачки, и на частоте ВГ.

При  $p$ -поляризованном излучении накачки интенсивность ВГ определяется выражением (6.4). Области, где замыкается фазовый синхронизм, получены путем решения уравнения  $Re(n_e(\lambda, \theta)) = Re(n_e(\lambda/2, \theta))$  с ис-



**Рис. 6.12.** Рассчитанные частотно-угловые спектры интенсивности ВГ: (а) при  $p$ -поляризованном излучении накачки, белая кривая соответствует условию  $Re(n_e(\lambda, \theta)) = Re(n_e(\lambda/2, \theta))$ , серые кривые соответствуют условию  $l = L_c = \lambda/4 * (Re(n_e(\lambda, \theta)) - Re(n_e)(\lambda/2, \theta))$ ; (б) при  $s$ -поляризованном излучении накачки  $Re(n_o(\lambda, \theta)) = Re(n_e(\lambda/2, \theta))$ , серые кривые соответствуют условию  $l = L_c = \lambda/4 * (Re(n_o(\lambda, \theta)) - Re(n_e)(\lambda/2, \theta))$ . Пунктирные прямые соответствуют длине волны  $2\lambda_{ENP}$ .

пользованием спектра показателя преломления рис. 6.11 (б). Полученные таким образом кривые представлены и пронумерованы на рисунке 6.12 (а). Границы соответствующих областей усиления ВГ, определяемые уравнением  $l = L_c = \lambda/4 * (Re(n_e(\lambda, \theta)) - Re(n_e)(\lambda/2, \theta))$ , показаны серыми линиями ( $l$  - длина наностержней). Вдоль кривой I, кроме выполнения условия  $eee$ -квазисинхронизма, возникает резонансное усиление нормальной компоненты поля накачки в ГММ вблизи  $\lambda_{ENZ}$ , аналогичное рассмотренному в массиве золотых наностержней, что приводит к гигантскому усилению ВГ в расчетном графике (рис. 6.12 (а)). Вдоль кривой II возникает сильное поглощение на частоте ВГ,  $T^p(\lambda/2, \theta)$ , так как соответствующая длина волны близка к  $2\lambda_{ENP}$  (показана на 6.12 (а) пунктирной линией). Такое поглощение квадратичного отклика, обусловленное возбуждением поперечного плазмонного резонанса, приводит к тому, что вдоль кривой фазового синхронизма II не наблюдается усиление  $I_{2\omega}$ . Усиление интенсивности генерации ВГ вдоль кривой III обусловлено только фазовым синхронизмом и относительно небольшим поглощением и на частоте накачки, и частоте ВГ.

При  $s$ -поляризованном излучении накачки интенсивность ВГ определяется выражением  $I_{2\omega}^s \propto |\mathbf{P}_s^{NL}|^2 (T^s(\lambda, \theta))^2 T^s(\lambda/2, \theta) = |\chi_{zyy}(E_{\omega,y}^{HMM})|^2 (T^s(\lambda, \theta))^2 T^s(\lambda/2, \theta)$  и условием фазового синхрониз-

ма  $Re(n_o(\lambda, \theta)) = Re(n_e(\lambda/2, \theta))$ , вычисленным с помощью данных на рис. 6.11 (б,в). Вдоль кривой I на рис. 6.12 (б) не наблюдается усиление интенсивности генерации ВГ вследствие сильного поглощения волны ВГ,  $T^s(\lambda/2, \theta)$ . Небольшое увеличение  $I_{2\omega}$  вдоль кривой II обусловлено только фазовым синхронизмом и небольшим поглощением на частоте накачки и ВГ.

Что касается сравнения результатов расчетов и эксперимента (рис. 6.10 (в,г) и рис. 6.12), то совпадает количество областей наиболее эффективной генерации ВГ - две области при  $p$ -поляризованном излучении накачки, разделенные минимумом  $I_{2\omega}^p$  при  $\lambda = 2\lambda_{ENP}$ , и одна область при  $s$ -поляризованном. При этом величина  $I_{2\omega}^p$  в максимуме на порядки превышает  $I_{2\omega}^s$ . Следует также подчеркнуть, что разброс длин наностержней и расстояния между ними в реальном образце приводит к меньшей добротности экспериментально наблюдаемых резонансных особенностей на частотно-угловых спектрах интенсивности ВГ, чем следует из расчетных данных.

Подводя итог параграфа, можно сказать, что в ГММ с сильной дисперсией и на частоте ВГ, и на частоте накачки в исследуемом спектральном диапазоне ключевую роль в формировании нелинейно-оптического квадратичного отклика играет выполнение условия фазового синхронизма для генерации второй гармоники.

## § 6.5. Выводы по Главе 6

Проведенные экспериментальные и численные исследования ГММ на основе массивов золотых и серебряных наностержней в матрице анодного оксида алюминия демонстрируют их уникальные оптические, магнито- и нелинейно-оптические свойства.

1. Наблюдается гигантское двулучепреломление в ГММ, обусловленное сильной анизотропией оптических свойств и недостижимое в естественных средах. Такой эффект перспективен для создания на базе ГММ миниатюрных преобразователей поляризации электромагнитного излучения.

2. В композитных магнитных ГММ наблюдается резонансное усиление магнитооптического отклика вблизи точек ENP и ENZ, связанное как с возбуждением плазмонных резонансов, так и с особенностями дисперсии

структуры.

3. Наблюдается резонансное усиление генерации второй гармоники на 1-2 порядка, связанное с выполнением условия квазисинхронизма и увеличения нормальной компоненты поля накачки в структуре в области ENZ.

Дальнейшие исследования могут быть связаны с оптимизацией параметров структур, в частности, где подбором объемной доли металла можно добиться выполнения условия  $2\lambda_{ENP} = \lambda_{ENZ}$ , разработкой других дизайнов композитов “ГММ+ферромагнетик”, сочетанием ГММ с фотонными кристаллами и микрорезонаторами и проч.

*Результаты, приведенные в Главе 6, опубликованы в работах [A19-A23, A29-A32, A42, A44, A45].*

---

## Заключение

---

Исследования, проведенные в рамках диссертационной работы, относятся к экспериментальному изучению линейного и квадратичного оптического отклика наноструктур и тонких пленок. Рассмотрен широкий круг особенностей нелинейно-оптического отклика, обусловленных возбуждением в наноструктурах плазменных резонансов, реализацией гиперболической дисперсии, магнитных эффектов и специфической локализацией электромагнитного поля в наноэлементах. Проведено сравнение эффектов в квадратичном оптическом отклике с линейными аналогами. Совокупность полученных в ходе выполнения диссертационной работы результатов вносит существенный вклад в развитие такого научного направления физики как оптика и нелинейная оптика наноструктур. С фундаментальной точки зрения, рассмотрены различные эффекты взаимодействия оптического излучения с субволновыми объектами. С прикладной точки зрения, предложены идеи и разработаны способы управления параметрами света. С методологической точки зрения, разработаны способы диагностики структурных, резонансных, симметричных свойств, а также, визуализации распределения магнитных моментов и детектирования нетривиальных состояний намагниченности с помощью нелинейной оптики. В рамках диссертационной работы получены следующие основные результаты:

1. Экспериментально продемонстрировано, что намагниченность структурно изотропных ферромагнитных пленок приводит к возникновению анизотропии интенсивности второй гармоники.

2. На основе генерации магнитоиндуцированной ВГ развиты нелинейно-оптические методы визуализации тороидного момента намагниченности, нетривиальных магнитных состояний, анизотропии магнитных свойств и низкодобротных плазменных резонансов в субволновых наноструктурах:

- Экспериментально обнаружено, что в структуре  $(\text{NiFe})\text{CoFe}/\text{Al}_2\text{O}_3/\text{CoFe}$  наблюдаются дополнительные источни-

ки генерации ВГ, амплитуда которых пропорциональна скалярному произведению намагниченностей слоев. При использовании циркулярно поляризованного излучения накачки при малых углах падения зондирующего излучения относительная величина указанных эффектов достигает 10-20%.

- В многослойных пленках на основе кобальта и тяжелых металлов выделен нечетный по намагниченности эффект в генерации оптической второй гармоники, запрещенный по симметрии для однородно намагниченных структур. Максимальная величина магнитного контраста интенсивности ВГ наблюдается в асимметричной пленке Pt/Co/Ta, превышает 30% и связана, по-видимому, с градиентами нормальной составляющей намагниченности.
- Исследован квадратичный нелинейно-оптический отклик системы треугольных наночастиц на основе ферромагнитных материалов, в которых реализуется вихревое состояние остаточной намагниченности. Обнаружен вклад в генерацию ВГ, пропорциональный макроскопическому тороидному моменту намагниченности, который наиболее явно проявляется при циркулярно поляризованном лазерном излучении, его величина достигает 20% от немагнитной составляющей ВГ.
- Методами линейной магнитооптики и магнитоиндуцированной ВГ детектирована ориентация осей легкого и трудного намагничивания в наноперфорированной пленке пермаллоя. Структура представляла собой квадратный массив круглых наноотверстий в субволновой пленке NiFe. Показано также, что в насыщающем магнитном поле величина магнитного контраста в линейном отклике изотропна, а в квадратичном наблюдается симметрия 4-го порядка. Таким образом продемонстрирована высокая чувствительность магнитного нелинейно-оптического отклика к симметрии и анизотропии магнитных свойств исследуемых структур.
- В массивах никелевых наностержней обнаружено увеличение магнитного контраста интенсивности ВГ до 15% вблизи длины волны накачки 760 нм при  $s$ -поляризации лазерного излучения, что обусловлено усилением локального оптического поля на частоте ВГ при

возбуждении локальных поверхностных плазмонов. В немагнитном отклике ВГ, как и в оптических спектрах пропускания, резонансных особенностей в том же спектральном диапазоне не выявлено, что, по-видимому, связано с низкой добротностью плазмонного резонанса в ферромагнетике. Таким образом, экспериментально показано, что метод генерации магнитоиндуцированной ВГ позволяет исследовать слабые плазмонные резонансы в магнитных материалах, наблюдение которых другими методами затруднено.

3. Экспериментально показано, что в неупорядоченных массивах золотых планарных наноструктур в форме запятых и полумесяцев анизотропия интенсивности ВГ определяется не только симметрией элементов, но и картиной резонансного распределения оптического локального поля в них. Показано, что распределение локального поля в наноэлементах определяет амплитудные и фазовые соотношения между компонентами тензора квадратичной восприимчивости исследуемой метаповерхности, которые, в свою очередь, определяют азимутальную анизотропию интенсивности квадратичного оптического отклика.

4. Обнаружены усиление и смена знака магнитного контраста линейного пропускания ( $\rho_\omega$ ) в геометрии Фохта при возбуждении решеточного плазмонного резонанса (РПР) и волноводной моды в 2D массивах золотых наночастиц в пленке граната. Величина  $\rho_\omega$  максимальна в структурах с наименьшим периодом и достигает  $3 \cdot 10^{-3}$ . Эффект наблюдается в результате магнитоиндуцированного сдвига спектрального положения решеточного плазмонного резонанса.

5. Методом спектроскопии интенсивности и фазы ВГ обнаружен магнитоиндуцированный сдвиг спектрального положения максимума резонансной кривой интенсивности ВГ примерно на 8 нм при возбуждении решеточного резонанса в 2D массивах золотых наночастиц в пленке граната. Эффект определяется спектральными зависимостями амплитуд и фаз резонансных и нерезонансных вкладов в отклике ВГ при возбуждении РПР.

6. Предложен дизайн и исследована серия гетероструктур, представляющих собой тонкие пленки кобальта на поверхности опала и сочетающих

в себе магнитные, фотоннокристаллические и плазмонные свойства. Показано, что существуют частотно-угловые области, в которых наблюдаются одновременно и аномальное пропускание (достигающее 110-130%), и усиление поперечного магнитооптического эффекта (примерно на порядок, по сравнению с однородной пленкой кобальта той же эффективной толщины), обусловленные возбуждением поверхностных плазмон-поляритонов. Показано, что наличие поверх кобальта тонкой пленки серебра увеличивает резонансный магнитооптический отклик в два раза.

7. Впервые проведена спектроскопия интенсивности и фазы ВГ в метаповерхности, представляющей собой массив трехслойных нанодисков Au/MgF<sub>2</sub>/Au, расположенных в узлах квадратной решетки. Обнаружено усиление интенсивности квадратичного нелинейно-оптического сигнала примерно на порядок и изменение фазы ВГ на 360° в области возбуждения магнитодипольного резонанса.

8. Впервые исследованы эффекты анизотропии и хиральности метаповерхностей в формировании их квадратичного нелинейно-оптического отклика:

- В массивах золотых “G”-образных наноэлементов обнаружена анизотропия циркулярного дихроизма интенсивности ВГ, достигающего десятков процентов, в то время как в линейном отклике дихроизм на 1-2 порядка меньше. Показано, что среднее по азимутальному углу значение циркулярного дихроизма ВГ имеет разный знак для энантиомеров, зависит от угла падения света на структуру и поляризации регистрируемого излучения. Наблюдаемые эффекты объяснены с помощью анализа симметрии компонент тензора квадратичной восприимчивости и обусловлены конкуренцией вкладов наведенной хиральности и асимметрией формы наноэлементов.
- В зеркально симметричных массивах “U”-образных пермаллоевых наноструктур впервые продемонстрирован эффект магнитоиндуцированной хиральности при генерации ВГ. Величина среднего по азимутальному углу циркулярного дихроизма интенсивности ВГ отлична от нуля только при намагничивании метаповерхности вдоль ее плос-

кости симметрии, меняет знак при изменении направления магнитного поля и в насыщающем поле достигает 6%.

9. Впервые экспериментально исследованы особенности оптического и нелинейно-оптического отклика квазидвумерной хиральной метаповерхности. Структуры представляли собой массивы винтообразных отверстий в серебряной мембране субволновой толщины, обладающие, как целое, вращательной симметрией 3-го, 4-го, 5-го и 6-го порядка. Показано, что исследуемые резонансные структуры сочетают в себе аномальное пропускание, достигающее 300%, и высокую оптическую активность, резонансная величина циркулярного дихроизма достигает десятков процентов. Обнаружено, что знак и величина циркулярного дихроизма как в линейном отклике, так и в нелинейно-оптическом, определяется вращательной симметрией массива.

10. Проведено детальное исследование оптических и магнитооптических эффектов в гиперболических метаматериалах на основе массивов металлических наностержней в диэлектрической матрице:

- Наблюдалось гигантское двулучепреломление в ГММ, обусловленное анизотропией оптических свойств и недостижимое в естественных средах. Такой эффект перспективен для создания на базе ГММ миниатюрных преобразователей поляризации электромагнитного излучения. Показано, что с помощью композитных магнитных ГММ такие устройства можно сделать магнитоуправляемыми.
- В ГММ наблюдалось резонансное усиление генерации второй гармоники на 1-2 порядка, обусловленное такими факторами как выполнение условия фазового квазисинхронизма и увеличение нормальной компоненты поля накачки в структуре в области ENZ. В спектральной области перехода от эллиптическому и гиперболическому режиму дисперсии наблюдается скачок фазы ВГ, достигающий 100-200°.

## Благодарности

В заключение хочу выразить глубокую признательность моему научному консультанту д.ф.-м.н. Мурзиной Татьяне Владимировне - за воспитание меня как ученого, за переданные мне опыт и знания, за терпение, понимание и огромную поддержку в преодолении многочисленных трудностей. Выражаю признательность своим коллегам к.ф.-м.н. Е.А. Мамонову, к.ф.-м.н. В.Л. Крутянскому, к.ф.-м.н. А.Н. Шайманову, к.ф.-м.н. В.Б. Новикову, И.В. Малышевой, А.М. Ромашкиной и А.Р. Помозову, результаты совместной работы с которыми вошли в различные разделы диссертационной работы. Благодарю также весь коллектив “Лаборатории нелинейной оптики наноструктур и фотонных кристаллов” за создание замечательной дружелюбной, душевной и практически домашней атмосферы на работе.

Отдельное спасибо моей семье за воспитание во мне необходимых для успешной работы качеств характера и постоянную поддержку во всех сферах моей деятельности.

---

## Список публикаций автора по теме диссертации

---

*Публикации в рецензируемых научных журналах, удовлетворяющих Положению о присуждении учёных степеней в МГУ имени М.В. Ломоносова:*

A1. **Kolmychek I.A.**, Murzina T.V. *Magnetization-induced anisotropy of second harmonic generation in thin cobalt films* // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2011. Vol. 323. Pp. 2973–2976. **IF=3.097 (WoS)**

A2. Mamonov E.A., Murzina E.A., **Kolmychek I.A.**, Maydykovsky A.I., Valev V.K., Silhanek A.V., Ponizovskaya E., Bratkovsky A., Verbiest Th., Moshchalkov V.V., Aktsipetrov O.A. *Coherent and incoherent second harmonic generation in planar G-shaped nanostructures* // Optics Letters. 2011. Vol. 36, no. 18. Pp. 3681–3683. **IF=3.560 (WoS)**

A3. Mamonov E.A., Murzina T.V., **Kolmychek I.A.**, Maydykovsky A.I., Valev V.K., Silhanek A.V., Verbiest T., Moshchalkov V.V., Aktsipetrov O.A. *Chirality in nonlinear-optical response of planar G-shaped nanostructures* // Optics Express. 2012. Vol. 20, no. 8. Pp. 8518–8523. **IF=3.833 (WoS)**

A4. Мамонов Е.А., **Колмычек И.А.**, Майдыковский А.И., Мурзина Т.В. *Генерация второй оптической гармоники в планарных киральных наноструктурах* // Известия РАН. Серия Физическая. 2013. Т. 77, № 1. Стр. 78–81. **IF = 0.665 (РИНЦ)**

A5. Krutyanskiy V.L., **Kolmychek I.A.**, Gan'shina E.A., Murzina T.V., Evans P., Pollard R., Stashkevich A.A., Wurtz G.A., Zayats A.V. *Plasmonic enhancement of nonlinear magneto-optical response in nickel nanorod metamaterials* // Physical Review B. 2013. Vol. 87, no. 3. P. 035116. **IF=3.908 (WoS)**

A6. Крутянский В.Л., **Колмычек И.А.**, Лобанов С.В., Мурзина Т.В. *Спектроскопия квадратичного отклика системы магнитных наностержней* // Известия РАН. Серия физическая. 2013. Т. 77, № 1. Стр. 72–75. **IF = 0.665 (РИНЦ)**

A7. Krutyanskiy V.L., **Kolmychek I.A.**, Gribkov B.A., Karashtin E.A., Skorohodov E.V., Murzina T.V. *Second harmonic generation in magnetic*

*nanoparticles with vortex magnetic state* // Physical Review B. 2013. Vol. 88, no. 9. P. 094424. **IF=3.908 (WoS)**

A8. Mamonov E.A., **Kolmychek I.A.**, Vandendriessche S., Hojeij M., Ekinici Y., Valev V.K., Verbiest T., Murzina T.V. *Anisotropy versus circular dichroism in second harmonic generation from fourfold symmetric arrays of G-shaped nanostructures* // Physical Review B. 2014. Vol. 89, no. 12. P. 121113. **IF=3.908 (WoS)**

A9. **Kolmychek I.A.**, Krutyanskiy V.L., Murzina T.V., Sapozhnikov M.V., Karashtin E.A., Rogov V.V., Fraerman A.A. *First and second order in magnetization effects in optical second-harmonic generation from a trilayer magnetic structure* // Journal of Optical Society of America B. 2015. Vol. 32, no. 2. Pp. 331–338. **IF=2.106 (WoS)**

A10. **Kolmychek I.A.**, Krutyanskiy V.L., Murzina T.V., Karashtin E.A., Sapozhnikov M.V., Fraerman A.A. *Optical second harmonic generation in nanostructures with inhomogeneous magnetization* // Solid State Phenomena. 2015. Vol. 233-234. Pp. 595–598. **IF=0.493 (Scopus)**

A11. **Колмычек И.А.**, Шайманов А.Н., Барышев А.В., Мурзина Т.В. *Исследование магнитооптического отклика двумерных магнитных плазмонных структур на основе золотых нанодисков в слое феррит-граната* // Письма в ЖЭТФ. 2015. Т. 102, №. 1. Стр. 50–55. **IF=1.412 (РИНЦ)**

A12. **Kolmychek I.A.**, Bykov A.Y., Mamonov E.A., Murzina T.V. *Second harmonic generation interferometry in magnetic-dipole nanostructures* // Optics Letters. 2015. Vol. 40, no. 16. Pp. 3758–3761. **IF=3.560 (WoS)**

A13. Kruk S., Weismann M., Bykov A.Y., Mamonov E.A., **Kolmychek I.A.**, Murzina T.V., Panoiu N.C., Neshev D.N., Kivshar Yu.S. *Enhanced magnetic second harmonic generation from resonant metasurfaces* // ACS Photonics. 2015. Vol. 2, no. 8. Pp. 1007–1012. **IF=7.077 (WoS)**

A14. **Kolmychek I.A.**, Krutyanskiy V.L., Gusev K.S., Murzina T.V., Tahir N., Kurant Z., Maziewski A., Ding J., Adeyeye A.O. *Anisotropy of magnetic properties in 2D arrays of permalloy antidots* // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2016. Vol. 420. Pp. 1–6. **IF=3.097 (WoS)**

A15. **Kolmychek I.A.**, Shaymanov A.N., Baryshev A.V., Murzina T.V. *Magnetization-induced effects in second harmonic generation under the lattice plasmon resonance excitation* // Optics Letters. 2016. Vol. 41, no. 23. Pp.

5446–5449. **IF=3.560 (WoS)**

A16. **Колмычек И.А.**, Крутянский В.Л., Maziewski A., Tahir N., Adeyeye A., Мурзина Т.В. *Анизотропия магнитооптического отклика наноперфорированных пленок пермаллоя* // Физика твердого тела. 2016. Т. 58, № 11. Стр. 2153. **IF=0.984 (РИНЦ)**

A17. Mamonov E.A., Maundykovskiy A.I., **Kolmychek I.A.**, Magnitskiy S.A., Murzina T.V. *Polarization-resolved second harmonic generation microscopy of chiral G-shaped metamaterials* // Physical Review B. 2017. Vol. 96, no. 7. P. 075408. **IF=3.908 (WoS)**

A18. **Колмычек И.А.**, Мамонов Е.А., Мурзина Т.В. *Поляризационные эффекты при генерации оптической второй гармоники в киральных наноструктурах* // ЖЭТФ. 2018. Т. 154, №. 2. Стр. 429–444. **IF=1.125 (РИНЦ)**

A19. Помозов А.Р., **Колмычек И.А.**, Ганьшина Е.А., Волкова О.Ю., Леонтьев А.Л., Напольский К.С., Мурзина Т.В. *Оптические эффекты в магнитных гиперболических метаматериалах* // Физика твердого тела. 2018. Т. 60, №. 11. Стр. 2224–2228. **IF=0.984 (РИНЦ)**

A20. **Kolmychek I.A.**, Pomozov A.R., Leontiev A.A., Napolskii K.S., Murzina T.V. *Magneto-optical effects in hyperbolic metamaterials* // Optics Letters. 2018. Vol. 43, no. 16. Pp. 3917–3920. **IF=3.560 (WoS)**

A21. Leontiev A.P., Volkova O.Y., **Kolmychek I.A.**, Venets A.V., Pomozov A.P., Stolyarov V.S., Murzina T.V., Napolskii K.S. *Tuning the optical properties of hyperbolic metamaterials by controlling the volume fraction of metallic nanorods* // Nanomaterials. 2019. Vol. 9, no. 5. P. 739. **IF=5.719 (WoS)**

A22. **Kolmychek I.A.**, Pomozov A.R., Leontiev A.P., Napolskii K.S., Murzina T.V. *Magneto-optical effects in Au/Ni based composite hyperbolic metamaterials* // Physics of Metals and Metallography. 2019. Vol. 120, no. 13. Pp. 1266–1269. **IF=1.319 (WoS)**

A23. **Kolmychek I.A.**, Pomozov A.R., Novikov V.B., Leontiev A.P., Napolskii K.S., Murzina T.V. *Anomalous birefringence and enhanced magneto-optical effects in epsilon-near-zero metamaterials based on nanorods' arrays* // Optics Express. 2019. Vol. 27, no. 22. Pp. 32069–32074. **IF=3.833 (WoS)**

A24. **Kolmychek I.A.**, Dolgikh I.A., Zhou X., Adeyeye A.O., Murzina T.V. *Magnetization-induced chirality in second harmonic generation response*

of *U-shaped permalloy nanostructures* // Physical Review B. 2019. Vol. 99, no. 4. P. 045435. **IF=3.908 (WoS)**

A25. **Kolmychek I.A.**, Mamonov E.A., Bochenkov V.E., Murzina T.V. *Second-harmonic generation in gold crescent- and comma-like nanostructures* // Optics Letters. 2019. Vol. 44, no. 22. Pp. 5473–5476. **IF=3.560 (WoS)**

A26. Мурзина Т.В., **Колмычек И.А.**, Гусев Н.С., Майдыковский А.И. *Гигантские магнитоиндуцированные эффекты при генерации второй гармоники в планарной анизотропной структуре Ta/Co/Pt* // Письма в ЖЭТФ. 2020. Т. 111, № 6. Стр. 333–337. **IF=1.412 (РИНЦ)**

A27. **Колмычек И.А.**, Мамонов Е.А., Ежов А.А., Рогов О.Ю., Артемов В.В., Горкунов М.В., Мурзина Т.В. *Генерация второй гармоники в массивах киральных наноотверстий в серебряной пленке* // ЖЭТФ. 2020. Т. 158, № 4. Стр. 646–644. **IF=1.125 (РИНЦ)**

A28. **Колмычек И.А.**, Радовская В.В., Лазарева К.А., Шалыгина Е.Е., Гусев Н.С., Майдыковский А.И., Мурзина Т.В. *Исследование границ раздела Co/Pt и Co/Ta методом генерации магнитоиндуцированной второй оптической гармоники* // ЖЭТФ. 2020. Т. 157, № 4. Стр. 661–668. **IF=1.125 (РИНЦ)**

A29. **Kolmychek I.A.**, Novikov V.B., Malysheva I.V., Leontiev A.P., Napolskii K.S., Murzina T.V. *Second-harmonic generation spectroscopy in gold nanorod-based epsilon-near-zero metamaterials* // Optics Letters. 2020. Vol. 45, no. 7. Pp. 1866–1869. **IF=3.560 (WoS)**

A30. **Kolmychek I.A.**, Malysheva I.V., Novikov V.B., Leontiev A.P., Napolskii K.S., Murzina T.V. *Phase-matched optical second harmonic generation in a hyperbolic metamaterial based on silver nanorods* // Physical Review B. 2020. Vol. 102, no. 24. P. 241405. **IF=3.908 (WoS)**

A31. Malysheva I.V., **Kolmychek I.A.**, Romashkina A.M., Leontiev A.P., Napolskii K.S., Murzina T.V. *Magneto-optical effects in hyperbolic metamaterials based on ordered arrays of bisegmented gold/nickel nanorods* // Nanotechnology. 2021. Vol. 32, no. 30. P. 305710. **IF=3.353 (WoS)**

A32. **Колмычек И.А.**, Малышева И.В., Новиков В.Б., Майдыковский А.И., Леонтьев А.П., Напольский К.С., Мурзина Т.В. *Оптические свойства гиперболических метаматериалов (Миниобзор)* // Письма в ЖЭТФ. 2021. Т. 114, № 11. Стр. 727–739. **IF=1.412 (РИНЦ)**

A33. Mamonov E., **Kolmychek I.**, Radovskaya V., Pashen'kin I., Gusev N., Maydykovskiy A., Temiryazeva M., Temiryazev A., Murzina T. *Interface driven effects in magnetization-induced optical second harmonic generation in layered films composed of ferromagnetic and heavy metals* // Materials. 2021. Vol. 14, no. 13. P. 3573. **IF=3.748 (WoS)**

A34. **Kolmychek I.A.**, Radovskaya V.V., Mamonov E.A., Maydykovskiy A.I., Sadovnikov A.V., Sheshukova S.E., Nikitov S.A., Temiryazeva M.P., Gusev N.S., Fraerman A.A., Murzina T.V. *Interface-induced optical effects in magnetic two- and three-layer films* // Journal of Magnetism and Magnetic Materials. 2021. Vol. 528. P. 167780. **IF=3.097 (WoS)**

A35. Радовская В.В., Мамонов Е.А., Новиков В.Б., Копылов Д.А., **Колмычек И.А.**, Гусев Н.С., Пашенькин И.Ю., Мурзина Т.В. *Магнитоиндуцированный нелинейно-оптический отклик пленок на основе нанослоев тяжелых и ферромагнитного металлов* // Физика твердого тела. 2021. Т. 69, №. 9. Стр. 1268–1272. **IF=0.984 (РИНЦ)**

A36. **Kolmychek I.A.**, Lazareva K.A., Mamonov E.A., Skorokhodov E.V., Sapozhnikov M.V., Golubev V.G., Murzina T.V. *Size effects in optical and magneto-optical response of opal-cobalt heterostructures* // Materials. 2021. Vol. 14, no. 13. Pp. 3481–3491. **IF=3.748 (WoS)**

A37. **Kolmychek I.A.**, Mamonov E.A., Gusev N.S., Sapozhnikov M.V., Golubev V.G., Murzina T.V. *Resonant optical effects in composite Co/opal-based magnetoplasmonic structures* // Optics Letters. 2021. Vol. 46, no. 13. Pp. 3087–3090. **IF=3.560 (WoS)**

A38. **Колмычек И.А.**, Ромашкина А.М., Майдыковский А.И., Гусев С.А., Гусев Н.С., Сапожников М.В., Голубев В.Г., Мурзина Т.В. *Резонансное усиление поперечного магнитооптического эффекта в плазмонных гетероструктурах опал/кобальт/серебро* // Письма в ЖЭТФ. 2021. Т. 114, №. 8. Стр. 526–532. **IF=1.412 (РИНЦ)**

#### **Публикации в других рецензируемых научных изданиях:**

A39. **Kolmychek I.A.**, Dolgikh I.A., Zhou X., Adeyeye A.O., Murzina T.V. *Second harmonic generation in media with inhomogeneous magnetization* // AIP Conference Proceedings. 2017. Vol. 1874. P. 030019.

A40. Murzina T.V., **Kolmychek I.A.**, Maydykovskiy A.I., Mamonov E.A. *Nonlinear optics of resonant metamaterials* // AIP Conference

Proceedings. 2019. Vol. 2136. Pp. 030006(1–4).

A41. Mamonov E., **Kolmychek I.**, Murzina T., Maydykovskiy A., Aktsipetrov O., Valev V., Verbiest Th., Silhanek A., Moshchalkov V. *Circular dichroism in optical second harmonic generated in reflection from chiral G-shaped metamaterials* // Journal of Physics Conference Series. 2012. Vol. 352. P. 012029.

A42. Pomozov A.R., **Kolmychek I.A.**, Novikov V.B., Leontiev A.P., Napolskii K.S., Murzina T.V. *Second harmonic generation in hyperbolic metamaterials* // Journal of Physics: Conference Series. 2018. Vol. 1092, no. 1. P. 012058.

A43. **Kolmychek I.A.**, Lazareva K.A., Radovskaya V.V., Maydykovskiy A.I., Temiryazeva M.P., Temiryazev A.G., Shalygina E.E., Sadovnikov A.V., Nikitov S.A., Karashtin E.A., Gusev N.S., Fraerman A.A., Murzina T.V. *Nonlinear magneto-optical Kerr effect in Co/Pt and Co/Ta bilayer films* // Journal of Physics: Conference Series. 2019. Vol. 1389. P. 012105.

A44. Novikov V.B., **Kolmychek I.A.**, Pomozov A.R., Leontiev A.P., Napolskii K.S., Murzina T.V. *Magneto-optical properties of plasmonic hyperbolic metamaterials* // Journal of Physics: Conference Series. 2020. Vol. 1461. P. 012120.

A45. Malysheva I.V., **Kolmychek I.A.**, Leontiev A.P., Napolskii K.S., Murzina T.V. *Experimental study of nonlinear absorption in hyperbolic metamaterials based on ordered arrays of nanorods* // Journal of Physics: Conference Series. 2021. Vol. 2015, no. 1. P. 012086.

---

## Литература

---

1. Ремнев М. А., Климов В. В. Метаповерхности: Новый взгляд на уравнения Максвелла и новые методы управления светом // *Успехи физических наук*. — 2018. — Т. 188, № 2. — С. 169–205.
2. Minovich A. E., Miroshnichenko A. E., Bykov A. Y., Murzina T. V., Neshev D. N., Kivshar Y. S. Functional and nonlinear optical metasurfaces // *Laser & Photonics Reviews*. — 2015. — Vol. 9, no. 2. — Pp. 195–213.
3. Kauranen M., Zayats A. Nonlinear plasmonics // *Nature Photonics*. — 2012. — Vol. 6, no. 11. — Pp. 737–748.
4. Yu N., Genevet P., Kats M. A., Aieta F., Tetienne J.-P., Capasso F., Gaburro Z. Light propagation with phase discontinuities: Generalized laws of reflection and refraction // *Science*. — 2011. — Vol. 334, no. 6054. — Pp. 333–337.
5. Aieta F., Genevet P., Kats M. A., Yu N., Blanchard R., Gaburro Z., Capasso F. Aberration-free ultrathin flat lenses and axicons at telecom wavelengths based on plasmonic metasurfaces // *Nano Lett.* — 2012. — Vol. 12, no. 9. — P. 4932–4936.
6. Kuwata-Gonokami M., Saito N., Ino Y., Kauranen M., Jefimovs K., Vallius T., Turunen J., Svirko Y. Giant optical activity in quasi-two-dimensional planar nanostructures // *Phys. Rev. Lett.* — 2005. — Vol. 95. — P. 227401.
7. Poddubny A., Iorsh I., Belov P., Kivshar Y. Hyperbolic metamaterials // *Nature Photonics*. — 2013. — Vol. 7. — Pp. 948–957.
8. Huo P., Zhang S., Liang Y., Lu Y., Xu T. Hyperbolic metamaterials and metasurfaces: Fundamentals and applications // *Adv. Opt. Mat.* — 2019. — Vol. 7, no. 14. — P. 1801616.

9. *Zutic I., Fabian J., Sarma S. D.* Spintronics: fundamentals and applications // *Rev. of Modern Physics.* — 2004. — Vol. 76. — P. 323.
10. *Martin J. I., Nogués J., Liu K., Vicent J. L., Schuller I. K.* Ordered magnetic nanostructures: fabrication and properties // *Journal of Magnetism and Magnetic Materials.* — 2003. — Vol. 256, no. 1. — Pp. 449–501.
11. *Berreman D.* Anomalous reststrahl structure from slight surface roughness // *Phys. Rev.* — 1967. — Vol. 163. — Pp. 855–864.
12. *Бломберген Н.* Нелинейная оптика. — Москва: Мир, 1966.
13. *Шен И.* Принципы нелинейной оптики. — Москва: Наука, 1989.
14. *Gridnev V. N., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Kirilyuk A., Rasing T.* Second harmonic generation in anisotropic magnetic films // *Phys. Rev. B.* — 2001. — Vol. 63. — Pp. 184407–184417.
15. *Petukhov A. V., Lyubchanskii I. L., Rasing T.* Theory of nonlinear magneto-optical imaging of magnetic domains and domain walls // *Phys. Rev. B.* — 1997. — Vol. 56, no. 5. — Pp. 2680–2687.
16. *Wokaun A., Bergman J. G., Heritage J. P., Glass A. M., Liao P. F., Olson D. H.* Surface second-harmonic generation from metal island films and microlithographic structures // *Phys. Rev. B.* — 1981. — Vol. 24. — P. 849.
17. *Клышко Д. Н.* Физические основы квантовой электроники. — Москва: Наука, 1986.
18. *Bloembergen N., Pershan P. S.* Light waves at the boundary of nonlinear media // *Phys. Rev.* — 1962. — Vol. 128. — Pp. 606–622.
19. *Ахманов С., Никитин С.* Физическая оптика. — М.: Изд-во Моск. Ун-та, 1998.
20. *Armstrong J. A., Bloembergen N., Ducuing J., Pershan P. S.* Interactions between light waves in a nonlinear dielectric // *Phys. Rev.* — 1962. — Vol. 127. — Pp. 1918–1939.
21. *A. G. J.* Mixing of light beams in crystals // *Phys. Rev. Lett.* — 1962. — Vol. 8, no. 1. — Pp. 19–21.

22. Долгова Т. В., Майдыковский А. И., Мартемьянов М. Г., Маровский Г., Маттей Г., Шумахер Д., Яковлев В. А., Федянин А. А., Акципетров О. А. Гигантская вторая гармоника в микрорезонаторах на основе фотонных кристаллов пористого кремния // *Письма в ЖЭТФ*. — 2001. — Т. 73. — С. 8–12.
23. Martemyanov M., Gusev D., Soboleva I., Dolgova T., Fedyanin A., Aktsipetrov O., Marowsky G. Nonlinear optics in porous silicon photonic crystals and microcavities. — 2004. — Vol. 14. — P. 677.
24. Tom H. W. K., Heinz T. F., Shen Y. R. Second-harmonic reflection from silicon surfaces and its relation to structural symmetry // *Phys. Rev. Lett.* — 1983. — Vol. 51. — Pp. 1983–1986.
25. Guyot-Sionnest P., Chen W., Shen Y. General considerations on optical second harmonic generation from surfaces and interfaces // *Phys. Rev. B*. — 1986. — Vol. 33, no. 12. — Pp. 8254–8263.
26. Fedyanin A. A., Didenko N. V., Sherstyuk N. E., Nikulin A. A., Aktsipetrov O. A. Interferometry of hyper-Rayleigh scattering by inhomogeneous thin films // *Opt. Lett.* — 1999. — Vol. 24. — P. 1260.
27. Aktsipetrov O., Fedyanin A., Murzina T. Electroinduced and photoinduced effects in optical second-harmonic generation and hyper-Rayleigh scattering from thin films of bacteriorhodopsin // *JOSA*. — 1997. — Vol. 14(4). — Pp. 238–243.
28. Диденко Н. Диссертация на соискание ученой степени кандидата физ.-мат. наук: Гиперрэлеевское рассеяние света в пространственно-неоднородных пленках. — Москва, 2002.
29. Aktsipetrov O., Nikulin A., Murzina T., Khomutov G., Rasing T. Hyper-Rayleigh scattering in Gd-containing Langmuir-Blodgett superstructures // *JOSA*. — 2000. — Vol. 17(1). — P. 562.
30. Борн М., Вольф Э. Основы оптики. — Москва: Наука, 1970.
31. Maier S. Plasmonics: Fundamentals and Applications. — Springer, 2007.
32. Moskovits M. Surface-enhanced spectroscopy // *Rev. Mod. Phys.* — 1985. — Vol. 57. — Pp. 783–826.

33. *Никулин А.* Диссертация на соискание ученой степени кандидата физ.-мат. наук: Генерация второй оптической гармоники в поверхностных микроструктурах. — Москва, 1993.
34. *Yang S. C., Kobori H., He C. L., Lin M. H., Chen H. Y., Li C., Gwo S.* Plasmon hybridization in individual gold nanocrystal dimers: direct observation of bright and dark modes // *Nano Lett.* — 2010. — Vol. 10, no. 2. — Pp. 632–637.
35. *Linden S., Christ A., Kuhl J., Giessen H.* Selective suppression of extinction within the plasmon resonance of gold nanoparticles // *Appl. Phys. B.* — 2001. — Vol. 73, no. 4. — Pp. 311–316.
36. *Shahmansouri A., Rashidian B.* Behavior of plasmonic nanoparticle array in near- and far-field coupling regimes for transverse electric and transverse magnetic polarizations // *J. Opt. Soc. Am. B.* — 2013. — Vol. 30, no. 8. — Pp. 2286–2291.
37. *Lamprecht B., Schidera G., Lechner R. T., Ditlbacher H., Krenn J. R., Leitner A., Aussenegg F. R.* Metal nanoparticle gratings: Influence of dipolar particle interaction on the plasmon resonance // *Phys. Rev. Lett.* — 2000. — Vol. 84, no. 20. — Pp. 4721–4724.
38. *Carron K. T., Fluhr W., Meier M., Wokaun A., Lehmann H. W.* Resonances of two-dimensional particle gratings in surface-enhanced raman scattering // *J. Opt. Soc. Am. B.* — 1986. — Vol. 3, no. 3. — Pp. 430–440.
39. *Chu Y., Schonbrun E., Yang T., Crozier K. B.* Experimental observation of narrow surface plasmon resonances in gold nanoparticle arrays // *Applied Physics Letters.* — 2008. — Vol. 93, no. 18. — P. 181108.
40. *Барышев А. В.* Диссертация на соискание ученой степени доктора физико-математических наук: Магнитооптические эффекты в магнитных и плазмонных наноструктурах. — Санкт-Петербург, 2016.
41. *Zayats A. V., Smolyaninov I. I., Maradudin A. A.* Nano-optics of surface plasmon polaritons // *Phys. Reports.* — 2005. — Vol. 408. — Pp. 131–314.
42. *Fano U.* Effects of configuration interaction on intensities and phase shifts // *Phys. Rev.* — 1961. — Vol. 124. — P. 1866.

43. *Ebbesen T. W., Lezec H. J., Ghaemi H. F., Thio T., Wolff P. A.* Extraordinary optical transmission through sub-wavelength hole arrays // *Nature*. — 1998. — Vol. 391, no. 4. — Pp. 667–669.
44. *Genet C., Ebbesen T. W.* Light in tiny holes // *Nature*. — 2007. — Vol. 445. — Pp. 39–46.
45. *Schwind M., Kasemo B., Zoric I.* Localized and propagating plasmons in metal films with nanoholes // *Nano Lett.* — 2013. — Vol. 13. — Pp. 1743–1750.
46. *van Nieuwstadt J. A. H., Sandtke M., Harmsen R. H., Segerink F. B., Prangma J. C., Enoch S., Kuipers L.* Strong modification of the nonlinear optical response of metallic subwavelength hole arrays // *Phys. Rev. Lett.* — 2006. — Vol. 97. — P. 146102.
47. *Liu Z. M., Li H. J., Xu H. Q., Cao G. T.* Adjustable plasmon resonances through an H-shaped metallic grating // *Opt. Commun.* — 2012. — Vol. 285. — Pp. 3781–3786.
48. *Wang D. Q., Yu X. L., Yu Q. M.* X-shaped quasi-3D plasmonic nanostructure arrays for enhancing electric field and raman scattering // *Nanotechnology*. — 2012. — Vol. 23. — Pp. 405201–405209.
49. *Hu Y., Liu G., Liu Z., Liu X., Zhang X., Cai Z., Liu M., Gao H., Gu G.* Extraordinary optical transmission in metallic nanostructures with a plasmonic nanohole array of two connected slot antennas // *Plasmonics*. — 2014. — Vol. 10. — Pp. 483–488.
50. *Landstrom L., Brodoceanu D., Piglmayer K., Bauerle D.* Extraordinary optical transmission through metal-coated colloidal monolayers // *Appl. Phys. A*. — 2006. — Vol. 84. — Pp. 373–377.
51. *Farcau C., Astilean S.* Probing the unusual optical transmission of silver films deposited on two-dimensional regular arrays of polystyrene microspheres // *J. Opt. A: Pure Appl. Opt.* — 2007. — Vol. 9. — Pp. S345–S349.
52. *Romanov S. G., Korovin A. V., Regensburger A., Peschel U.* Hybrid colloidal plasmonic-photonic crystals // *Adv. Mat.* — 2011. — Vol. 23. — Pp. 2515–2533.

53. *Romanova A. S., Korovin A. V., Romanov S. G.* Effect of dimensionality on the spectra of hybrid plasmonic–photonic crystals // *Physics of the Solid State*. — 2013. — Vol. 55, no. 8. — Pp. 1725–1732.
54. *Chen C. K., de Castro A. R. B., Shen Y. R.* Surface-enhanced second-harmonic generation // *Phys.Rev.Lett.* — 1981. — Vol. 46. — Pp. 145–148.
55. *Walsh G. F., Negro L. D.* Enhanced second harmonic generation by photonic-plasmonic Fano-type coupling in nanoplasmonic arrays // *Nano Lett.* — 2013. — Vol. 13. — Pp. 3111–3117.
56. *Simon H. J., Mitchell D., Watson J. G.* Optical second harmonic generation with surface plasmons in silver films // *Phys. Rev. Lett.* — 1974. — Vol. 33. — Pp. 1531–1534.
57. *Quail J. C., Simon H. J.* Second harmonic generation from a silver grating with surface plasmons // *J. Opt. Soc. Am. B*. — 1988. — Vol. 5, no. 2. — Pp. 325–329.
58. *Reinisch R., Neviere M., Akhouayri H., Coutaz J., Maystre D., Pic E.* Grating enhanced second harmonic generation through electromagnetic resonances // *Opt. Engineering*. — 1988. — Vol. 27, no. 11. — P. 271161.
59. *Drobnyh E., Sukharev M.* Plasmon enhanced second harmonic generation by periodic arrays of triangular nanoholes coupled to quantum emitters // *J. Chem. Phys.* — 2020. — Vol. 152. — P. 094706.
60. *Lu H., Liu X., Zhou R., Gong Y., Mao D.* Second-harmonic generation from metal-film nanohole arrays // *Appl. Opt.* — 2010. — Vol. 49, no. 12. — Pp. 2347–2351.
61. *Kim E., Elovikov S., Murzina T., A. A. N., Aktsipetrov O., Bader M., Marowsky G.* Surface-enhanced optical third-harmonic generation in Ag island films // *Phys. Rev. Lett.* — 2005. — Vol. 95. — P. 227402.
62. *Sutherland J. C., Griffin K. P., Keck P. C., Takacs P. Z.* Z-DNA: vacuum ultraviolet circular dichroism // *Proceedings of the National Academy of Sciences*. — 1981. — Vol. 78, no. 8. — Pp. 4801–4804.
63. *Boeyens J. C. A.* *The Theories of Chemistry*. — Amsterdam: Elsevier, 2003.

64. Foerier S., Kolmychek I. A., Aktsipetrov O. A., Verbiest T., Valev V. K. Optical second harmonic generation chiral spectroscopy // *ChemPhysChem*. — Vol. 10, no. 9-10. — Pp. 1431–1434.
65. Second harmonic generation upon reflection of light from the surface of a solution of mirror-asymmetric molecules: A new tool for studies of molecular chirality / A. A. Angeluts, A. V. Balakin, D. Boucher, I. G. Il'ina, N. I. Koroteev, P. Masselin, O. V. Mikhalev, A. V. Pakulev, E. Fertein, A. P. Shkurinov // *Optics and Spectroscopy*. — 1999. — Vol. 87, no. 1. — Pp. 151–156.
66. Volkov S. N., Konovalov N. I., Koroteev N. I., Makarov V. A. Nonlinear-optical phenomena: Model calculation of the optical susceptibilities taking account of the spatial dispersion of nonlinearity in nonlinear spectroscopy of solutions of chiral molecules // *Quantum Electronics*. — 1995. — Vol. 25, no. 1. — Pp. 62–65.
67. Fedotov V. A., Mladyonov P. L., Prosvirnin S. L., Rogacheva A. V., Chen Y., Zheludev N. I. Asymmetric propagation of electromagnetic waves through a planar chiral structure // *Phys. Rev. Lett.* — 2006. — Vol. 97, no. 16. — P. 167401.
68. Giant nonlinear optical activity of achiral origin in planar metasurfaces with quadratic and cubic nonlinearities / S. Chen, F. Zeuner, M. Weismann, B. Reineke, G. Li, V. K. Valev, K. W. Cheah, N. C. Panoiu, T. Zentgraf, S. Zhang // *Advanced Materials*. — 2016. — Vol. 28, no. 15. — P. 2992.
69. Hopkins B., Poddubny A. N., Miroshnichenko A. E., Kivshar Y. S. Circular dichroism induced by fano resonances in planar chiral oligomers // *Laser & Photonics Reviews*. — 2016. — Vol. 10, no. 1. — Pp. 137–146.
70. Huttunen M. J., Bautista G., Decker M., Linden S., Wegener M., Kauranen M. Nonlinear chiral imaging of subwavelength-sized twisted-cross gold nanodimers // *Opt. Mater. Express*. — 2011. — Vol. 1, no. 1. — Pp. 46–56.
71. Su H., Guo Y., Gao W., Ma J., Zhong Y., Tam W. Y., Chan C. T., Wong K. S. Multipolar effects in the optical active second harmonic generation from sawtooth chiral metamaterials // *Scientific Reports*. — 2016. — Vol. 6. — P. 22061.

72. Papakostas A., Potts A., Bagnall D. M., Prosvirnin S. L., Coles H. J., Zheludev N. I. Optical manifestations of planar chirality // *Phys. Rev. Letters*. — 2003. — Vol. 90, no. 10. — P. 107404.
73. Collins J. T., Kuppe C., Hooper D. C., Sibilica C., Centini M., Valev V. K. Chirality and chiroptical effects in metal nanostructures: Fundamentals and current trends // *Advanced Optical Materials*. — 2017. — Vol. 5, no. 16. — P. 1700182.
74. Valev V. K., Baumberg J., Sibilica C., Denkova D., Verbiest T. Chirality and chiroptical effects in plasmonic nanostructures: fundamentals, recent progress, and outlook // *Advanced Materials*. — 2013. — Vol. 25. — Pp. 2517–2534.
75. Zhukovsky S., Novitsky A., Galynsky V. Elliptical dichroism: operating principle of planar chiral metamaterials // *Opt. Lett.* — 2009. — Vol. 34, no. 13. — Pp. 1988–1990.
76. Potts A., Papakostas A., Bagnall D., Zheludev N. Planar chiral metamaterials for optical applications // *Microelectronic Engineering*. — 2004. — Vol. 73-74. — Pp. 367–371.
77. Fedotov V. A., Schwanecke A. S., Zheludev N., Khardikov V., Prosvirnin S. Asymmetric transmission of light and enantiomerically sensitive plasmon resonance in planar chiral nanostructures // *Nano Letters*. — 2007. — Vol. 7, no. 7. — Pp. 1996–1999.
78. Zhang S., Park Y.-S., Li J., Lu X., Zhang W., Zhang X. Negative refractive index in chiral metamaterials // *Phys. Rev. Lett.* — 2009. — Vol. 102, no. 2. — P. 023901.
79. Kwon D.-H., Werner P. L., Werner D. Optical planar chiral metamaterial designs for strong circular dichroism and polarization rotation // *Optics Express*. — 2008. — Vol. 16. — Pp. 11802–11807.
80. Czaplicki R., Husu H., Siikanen R., Mäkitalo J., Kauranen M., Laukkanen J., Lehtolahti J., Kuittinen M. Enhancement of second-harmonic generation from metal nanoparticles by passive elements // *Phys. Rev. Lett.* — 2013. — Vol. 110. — P. 093902.

81. *Pendry J. B.* A chiral route to negative refraction // *Science*. — 2004. — Vol. 306, no. 5700. — Pp. 1353–1355.
82. *Zheludev N. I., Kivshar Y. S.* From metamaterials to metadevices // *Nature Materials*. — 2012. — Vol. 11. — Pp. 917–924.
83. *Tang Y., Cohen A. E.* Enhanced enantioselectivity in excitation of chiral molecules by superchiral light // *Science*. — 2011. — Vol. 332, no. 6027. — Pp. 333–336.
84. Nonlinear superchiral meta-surfaces: Tuning chirality and disentangling non-reciprocity at the nanoscale / V. K. Valev, J. Baumberg, B. de Clercq, N. Braz, X. Zheng, E. Osley, S. Vandendriessche, M. Hojeij, C. Blejean et al. // *Advanced Materials*. — 2014. — Vol. 26. — Pp. 4074–4081.
85. *von Cube F., Irsen S., Niegemann J., Matyssek C., Hergert W., Busch K., Linden S.* Spatio-spectral characterization of photonic meta-atoms with electron energy-loss spectroscopy // *Opt. Mater. Express*. — 2011. — Vol. 1, no. 5. — Pp. 1009–1018.
86. Hotspot decorations map plasmonic patterns with the resolution of scanning probe techniques / V. K. Valev, A. Silhanek, Y. Jeyaram, D. Denkova, B. D. Clercq, V. Petkov, X. Zheng, V. Volskiy, W. Gillijns et al. // *Phys. Rev. L.* — 2011. — Vol. 106. — Pp. 226803 (1–4).
87. *Decker M., Klein M. W., Wegener M., Linden S.* Circular dichroism of planar chiral magnetic metamaterials // *Optics Letters*. — 2007. — Vol. 32. — Pp. 856–858.
88. *Plum E., Fedotov V., Zheludev N.* Extrinsic electromagnetic chirality in metamaterials // *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics*. — 2009. — Vol. 11, no. 7. — P. 074009.
89. *Plum E., Liu X.-X., Fedotov V. A., Chen Y., Tsai D. P., Zheludev N. I.* Metamaterials: Optical activity without chirality // *Phys. Rev. Lett.* — 2009. — Vol. 102. — P. 113902.
90. *Popov S. V., Svirko Y. P., Zhelyudev N. I.* Susceptibility tensors for non-linear optics. — Bristol and Philadelphia: IOP publishing Ltd., 1995.

91. *Byers J. D., Yee H. I., Petralli-Mallow T., Hicks J. M.* Second-harmonic generation circular-dichroism spectroscopy from chiral monolayers // *Phys. Rev. B.* — 1994. — Vol. 49. — Pp. 14643–14647.
92. *Byers J. D., Yee H. I., Hicks J. M.* A second harmonic generation analog of optical rotatory dispersion for the study of chiral monolayers // *The Journal of Chemical Physics.* — 1994. — Vol. 101, no. 7. — Pp. 6233–6241.
93. *Canfield B. K., Kujala S., Jefimovs K., Turunen J., Kauranen M.* Linear and nonlinear optical responses influenced by broken symmetry in an array of gold nanoparticles // *Opt. Express.* — 2004. — Vol. 12, no. 22. — Pp. 5418–5423.
94. *Canfield B. K., Kujala S., Laiho K., Jefimovs K., Turunen J., Kauranen M.* Chirality arising from small defects in gold nanoparticle arrays // *Opt. Express.* — 2006. — Vol. 14, no. 2. — Pp. 950–955.
95. *Husu H., Canfield B. K., Laukkanen J., Bai B., Kuittinen M., Turunen J., Kauranen M.* Chiral coupling in gold nanodimers // *Appl. Phys. Lett.* — 2008. — Vol. 93. — P. 183115.
96. *Husu H., Siikanen R., Makitalo J., Lehtolahti J., Laukkanen J., Kuittinen M., Kauranen M.* Metamaterials with tailored nonlinear optical response // *Nano Lett.* — 2012. — Vol. 12, no. 2. — Pp. 673–677.
97. *Kolkowski R., Petti L., Rippa M., Lafargue C., Zyss J.* Octupolar plasmonic meta-molecules for nonlinear chiral watermarking at subwavelength scale // *ACS Photonics.* — 2015. — Vol. 2, no. 7. — Pp. 899–906.
98. Circular dichroism in the optical second-harmonic emission of curved gold metal nanowires / A. Belardini, M. C. Larciprete, M. Centini, E. Fazio, C. Sibilia, D. Chiappe, C. Martella, A. Toma, M. Giordano, F. B. de Mongeot // *Phys. Rev. Lett.* — 2011. — Vol. 107, no. 25. — P. 257401.
99. *Guo Z., Jiang H., Chen H.* Hyperbolic metamaterials: From dispersion manipulation to applications // *Journal of Applied Physics.* — 2020. — Vol. 127, no. 7. — P. 071101.
100. *Ferrari L., Stephen J., Smalley T., Fainman Y., Liu Z.* Hyperbolic metamaterials for dispersion-assisted directional light emission // *Nanoscale.* — 2017. — Vol. 9. — Pp. 9034–9048.

101. *Ferrari L., Wu C., Lepage D., Zhang X., Liu Z.* Hyperbolic metamaterials and their applications // *Progress in Quantum Electronics.* — 2015. — Vol. 40. — Pp. 1–40.
102. *Li T., Nagal V., Gracias D., Khurgin J.* Limits of imaging with multilayer hyperbolic metamaterials // *Optics Express.* — 2017. — Vol. 25, no. 12. — Pp. 13588–13601.
103. Realization of wafer-scale hyperlens device for sub-diffractive biomolecular imaging / D. Lee, Y. D. Kim, M. Kim, S. So, H. J. Choi, J. Mun, D. M. Nguyen, T. Badloe et al. // *ACS Photonics.* — 2018. — Vol. 5, no. 7. — P. 2549.
104. *Ni X., Naik G. V., Kildishev A. V., Barnakov Y., Boltasseva A., Shalaev V. M.* Effect of metallic and hyperbolic metamaterial surfaces on electric and magnetic dipole emission transitions // *Applied Physics B.* — 2011. — Vol. 103. — Pp. 553–558.
105. *Cortes A. L., Newman W., Molesky S., Jacob Z.* Quantum nanophotonics using hyperbolic metamaterials // *J. of Optics.* — 2014. — Vol. 14, no. 6. — P. 129501.
106. *Sreekanth K. V., ElKabbash M., Alapan Y., Ilker E., Hinczewski M., Gurkan U. A., Strangi G.* Hyperbolic metamaterials-based plasmonic biosensor for fluid biopsy with single molecule sensitivity // *EPJ Appl. Metamat.* — 2017. — Vol. 4, no. 1. — P. 1.
107. *Kabashin A. V., Evans P., Pastkovsky S., Hendren W., Wurtz G. A., Atkinson R., Pollard R., Podolskiy V. A., Zayats A. V.* Plasmonic nanorod metamaterials for biosensing // *Nature Materials.* — 2009. — Vol. 8. — Pp. 867–871.
108. *Vasilantonakis N., Nasir M. E., Dickson W., Wurtz G. A., Zayats A. V.* Bulk plasmon-polaritons in hyperbolic nanorod metamaterial waveguides // *Laser Photonics Rev.* — 2015. — Vol. 9, no. 3. — Pp. 345–353.
109. *Neira A. D., Wurtz G. A., Zayats A. V.* Superluminal and stopped light due to mode coupling in confined hyperbolic metamaterial waveguides // *Scientific reports.* — 2015. — Vol. 5, no. 1. — Pp. 1–7.

110. *Novikov V. B., Leontiev A. P., Napolskii K. S., Murzina T. V.* Superluminal and slow femtosecond laser pulses in hyperbolic metamaterials in epsilon-near-zero regime // *Optics Letters*. — 2015. — Vol. 46, no. 10. — Pp. 2276–2279.
111. *Shekhar P., Atkinson J., Jacob Z.* Hyperbolic metamaterials: fundamentals and applications // *Nanoconvergence*. — 2014. — Vol. 1, no. 14. — Pp. 1–17.
112. *Atkinson R., Hendren W. R., Wurtz G. A., Dickson W., Zayats A. V., Evans P., Pollard R. J.* Anisotropic optical properties of arrays of gold nanorods embedded in alumina // *Phys. Rev. B*. — 2006. — Vol. 73. — P. 235402.
113. *Evans P., Hendren W. R., Atkinson R., Wurtz G. A., Dickson W., Zayats A. V., Pollard R. J.* Growth and properties of gold and nickel nanorods in thin film alumina // *Nanotechnology*. — 2006. — Vol. 17. — Pp. 5746–5753.
114. *Reshef O., de Leon I., Alam M. Z., Boyd R. W.* Nonlinear optical effects in epsilon-near-zero media // *Nat. Rev. Mater.* — 2019. — Vol. 4, no. 535. — Pp. 535–551.
115. *Alam M. Z., Leon I. D., Boyd R. W.* Large optical nonlinearity of indium tin oxide in its epsilon-near-zero region // *Science*. — 2016. — Vol. 352, no. 6287. — Pp. 795–797.
116. *Vincenti M., de Ceglia D., Ciattoni A., Scalora M.* Singularity-driven second- and third-harmonic generation at  $\epsilon$ -nearZero crossing points // *Phys. Rev. A*. — 2011. — Vol. 84. — P. 063826.
117. *Wen X., Li G., Gu C., Zhao J., Wang S., Jiang C., Palomba S., de Sterke C. M., Xiong Q.* Doubly enhanced second harmonic generation through structural and epsilon-near-zero resonances in TiN nanostructures // *ACS Photonics*. — 2018. — Vol. 5, no. 6. — Pp. 2087–2093.
118. *Capretti A., Wang Y., Engheta N., Negro L. D.* Comparative study of second-harmonic generation from epsilon-near-zero indium tin oxide and titanium nitride nanolayers excited in the Near-Infrared spectral range // *ACS Photonics*. — 2015. — Vol. 2. — Pp. 1584–1591.

119. Enhanced nonlinear refractive index in epsilon-near-zero materials / L. Caspani, R. Kaipurath, M. Clerici, M. Ferrera, T. Roger, J. Kim, N. Kinsey, M. Pietrzyk, A. D. Falco et al. // *Phys. Rev. Lett.* — 2016. — Vol. 116. — P. 233901.
120. *Duncan B., Perret L., Palomba S., Lapine M., Kuhlmeiy B. T., de Sterke C. M.* New avenues for phase matching in nonlinear hyperbolic metamaterials // *Scientific Reports.* — 2015. — Vol. 5. — P. 8983.
121. *Sun Y., Zheng Z., Cheng J., Sun G., Qiao G.* Highly efficient second harmonic generation in hyperbolic metamaterial slot waveguides with large phase matching tolerance // *Optics Express.* — 2015. — Vol. 23, no. 5. — Pp. 6370–6378.
122. *Wicharn S., Plaipichita S., Seesanb T., Buranasiri P.* A birefringent phase-matching method in multilayered hyperbolic metamaterials // *Proc. of SPIE.* — 2018. — Vol. 10516. — P. 105161M.
123. *Wicharn S., Buranasiri P.* Third-harmonic generation in tunable nonlinear hyperbolic metamaterial // *Proc. of SPIE.* — 2018. — Vol. 10714. — P. 107140H.
124. *Buranasiri P., Nuansri R., Wicharn S.* A numerical investigation of difference frequency generation in nonlinear multilayered metamaterials // *Proc. of SPIE.* — 2017. — Vol. 10343. — P. 103432W.
125. *Звездин А., Котов В.* Магнитооптика тонких пленок. — Москва: Наука, 1988. — С. 191.
126. *Aktsipetrov O. A., Dolgova T. V., Fedyanin A. A., Kapra R., Murzina T. V., Nishimura K., Uchida H., Inoue M.* Nonlinear magneto-optics in magnetophotonic crystals and microcavities // *Laser Physics.* — 2004. — Vol. 14, no. 5. — Pp. 685–691.
127. *Ахмедиев Н. Н., Борисов С. Б., Звездин А. К., Любчанский И. Л., Мелихов Ю. В.* Нелинейная оптическая восприимчивость магнитоупорядоченных кристаллов // *Физика твердого тела.* — 1985. — Т. 27, № 4. — С. 1075–1078.

128. *Pan R. P., Wei H. D., Shen Y. R.* Optical second-harmonic generation from magnetized surfaces // *Phys. Rev. B.* — 1989. — Vol. 39. — Pp. 1229–1234.
129. *Bennemann H. K.* Theory of nonlinear magneto-optics in metals // *J. Magn. Magn. Mater.* — 1999. — Vol. 200. — Pp. 679–705.
130. *Pavlov V. V., Pisarev R. V., Kirilyuk A., Rasing T.* Observation of a transversal nonlinear magneto-optical effect in thin magnetic garnet films // *Phys. Rev. Lett.* — 1997. — Vol. 78. — Pp. 2004–2007.
131. *Kirilyuk A.* Nonlinear optics in application to magnetic surface and thin films // *Journal of Magn. and Mag. Materials.* — 2002. — Vol. 35. — Pp. 189–207.
132. *Kirilyuk A., Pavlov V. V., Pisarev R. V., Rasing T.* Asymmetry of second harmonic generation in magnetic thin films under circular optical excitation // *Phys. Rev. B.* — 2000. — Vol. 61. — Pp. R3796–R3799.
133. *Wierenga H., Prins M., Abraham D., Rasing T.* Magnetization-induced optical second-harmonic generation: A probe for interface magnetism // *Phys. Rev. B.* — 1994. — Vol. 50. — P. 1282.
134. *Wierenga H., de Jong W., Prins M., Rasing T., Vollmer R., Kirilyuk A., Schwabe H., Kirshner J.* Interface magnetism and possible quantum well oscillations in ultrathin Co/Cu films observed by magnetization-induced second harmonic generation // *Phys. Rev. Lett.* — 1995. — Vol. 74, no. 8. — P. 1462.
135. *Valev V. K., Gruyters M., Kirilyuk A., Rasing T.* Direct observation of exchange bias related uncompensated spins at the CoO/Cu interface // *Phys. Rev. Lett.* — 2006. — Vol. 96. — P. 067206.
136. *Rzhevsky A. A., Krichevtsov B. B., Burgler D. E., Schneider C. M.* Interfacial magnetization in exchange-coupled Fe/Cr/Fe structures investigated by second harmonic generation // *Phys. Rev. B.* — 2007. — Vol. 75. — P. 144416.
137. *Wu Y. Z., Vollmer R., Regensburger H., Jin X.-F., Kirschner J.* Magnetization-induced second harmonic generation from the Ni/Cu in-

- interface in multilayers on Cu(001) // *Phys. Rev. B.* — 2000. — Vol. 63. — P. 054401.
138. *Sampaio L. C., Hamrle J., Pavlov V. V., Ferre J., Georges P., Brun A., Gall H. L., Youssef J. B.* Magnetization-induced second-harmonic generation of light by exchange-coupled magnetic layers // *J. Opt. Soc. Am. B.* — 2005. — Vol. 22, no. 1. — Pp. 119–127.
139. *Kosevich A. M., Voronov V. P., Manzhos I. V.* Nonlinear collective excitations in an easy plane magnet // *Sov. Phys. JETP.* — 1983. — Vol. 57, no. 1. — Pp. 86–92.
140. *Cowburn P., Welland M. E.* Phase transitions in planar magnetic nanostructures // *Applied Physics Letters.* — 1998. — Vol. 72, no. 16. — Pp. 2041–2043.
141. *Im M.-Y., Fischer P., Yamada K., Sato T., Kasai S., Nakatani Y., Ono T.* Symmetry breaking in the formation of magnetic vortex states in a permalloy nanodisk // *Nature Communications.* — Vol. 3. — Pp. 983–988.
142. *Choe S.-B., Acremann Y., Scholl A., Bauer A., Doran A., Stohr J., Padmore H. A.* Vortex core-driven magnetization dynamics // *Science.* — 2004. — Vol. 304, no. 5669. — Pp. 420–422.
143. *Гусев С. А., Мазо Л. А., Неведов И. М., Ноздрин Ю. Н., Сапожников М. В., Суходоев Л. В., Фраерман А. А.* Коллективные эффекты при намагничивании двумерных решеток магнитных наночастиц // *Письма в ЖЭТФ.* — 1998. — Т. 58, № 6. — С. 475–479.
144. *Fraerman A., Gusev S., Mazo L., Nefedov I., Nozdrin Y., Karetnikova I., Sapozhnikov M., Shereshevskii I., Sukhodoev L. V.* Rectangular lattices of permalloy nanoparticles: Interplay of single-particle magnetization distribution and interparticle interaction // *Phys. Rev. B.* — 2002. — Vol. 65. — Pp. 064424 (1–5).
145. *Сапожников М. В.* Диссертация на соискание ученой степени доктора физ.-мат. наук: Эффекты магнито- и электростатического взаимодействия в коллективном поведении микро и наносистем. — Нижний Новгород, 2018.

146. *Schneider M., Hoffmann H., Zweck J.* Magnetic switching of single vortex permalloy elements // *Applied Physics Letters*. — 2001. — Vol. 79, no. 19. — Pp. 3113–3115.
147. *Sapozhnikov M. V., Ermolaeva O. L., Gribkov B. G., Nefedov I. M., Karetnikova I. R., Gusev S. A., Rogov V. V., Troitskii B. B., Khokhlova L. V.* Frustrated magnetic vortices in hexagonal lattice of magnetic nanocaps // *Phys. Rev. B*. — 2012. — Vol. 85. — Pp. 054402 (1–6).
148. *Chien C. L., Zhu F. Q., Zhu J.-G.* Patterned nanomagnets // *Physics Today*. — 2007. — Vol. 60, no. 6. — Pp. 40–46.
149. *van Aken B. B., Rivera J.-P., Schmid H., Fiebig M.* Observation of ferrotoroidic domains // *Nature*. — 2007. — Vol. 449. — Pp. 702–705.
150. *Prosandeev S., Ponomareva I., Kornev I., Bellaiche L.* Control of vortices by homogeneous fields in asymmetric ferroelectric and ferromagnetic rings // *Phys. Rev. Lett.* — 2008. — Vol. 100. — Pp. 047201 (1–4).
151. *Yakata S., Miyata M., Nonoguchi S., Wada H., Kimura T.* Control of vortex chirality in regular polygonal nanomagnets using in-plane magnetic field // *Appl. Phys. Lett.* — 2010. — Vol. 97. — P. 222503.
152. *Tripathy D., Vavassori P., Porro J. M., Adeyeye A. O., Singh N.* Magnetization reversal and anisotropic magnetoresistance behavior in bicomponent antidot nanostructures // *Applied Physics Letters*. — 2010. — Vol. 97, no. 4. — P. 042512.
153. *Wang C. C., Adeyeye A. O., Singh N.* Magnetic antidot nanostructures: effect of lattice geometry // *Nanotechnology*. — 2006. — Vol. 17. — Pp. 1629–1636.
154. *Cowburn R. P., Adeyeye A. O., Bland J. A. C.* Magnetic domain formation in lithographically defined antidot permalloy arrays // *Appl. Phys. Lett.* — 1997. — Vol. 70, no. 17. — P. 2309.
155. *Silva A. S., Hierro-Rodriguez A., Bunyayev S. A., Kakazei G. N., Dobrovolskiy O. V., Redondo C., Morales R., Crespo H., Navas D.* Magnetic properties of permalloy antidot array fabricated by interference lithography // *AIP Advances*. — 2019. — Vol. 9, no. 3. — P. 035136.

156. *Krupinski M., Sobieszczyk P., Zielinski P., Marszalek M.* Magnetic reversal in perpendicularly magnetized antidot arrays with intrinsic and extrinsic defects // *Scientific Reports*. — 2019. — Vol. 9. — P. 13276.
157. *Beron F., Kaidatzis A., Velo M. F., Arzuza L. C. C., Palmero E. M., del Real R. P., Niarchos D., Pirola K. R., Garcia-Martin J. M.* Nanometer scale hard/soft bilayer magnetic antidots // *Nanoscale Research Lett.* — 2016. — Vol. 11, no. 86. — P. 1.
158. *Grunin A. A., Sapoletova N. A., Napolskii K. S., Eliseev A. A., Fedyanin A. A.* Magnetoplasmonic nanostructures based on nickel inverse opal slabs // *J. Appl. Phys.* — 2012. — Vol. 111, no. 7. — P. 07A948.
159. *Grunin A. A., Zhdanov A. G., Ezhov A. A., Ganshina, A. E., A. F. A.* Surface-plasmon-induced enhancement of magneto-optical Kerr effect in all-nickel subwavelength nanogratings // *Appl. Phys. Lett.* — 2010. — Vol. 97, no. 26. — P. 261908.
160. *Tomita S., Kato T., Tsunashima S., Iwata S., Fujii M., Hayashi S.* Magneto-optical Kerr effects of yttrium-iron garnet thin films incorporating gold nanoparticles // *Phys. Rev. Lett.* — 2006. — Vol. 96. — P. 167402.
161. Enhanced magneto-optical effects in magnetoplasmonic crystals / V. I. Belotelov, I. A. Akimov, M. Pohl, V. A. Kotov, S. Kasture, A. S. Vengurlekar, A. V. Gopal, D. R. Yakovlev, A. K. Zvezdin, M. Bayer // *Nature Nanotechnology*. — 2011. — Vol. 6. — Pp. 370–376.
162. *Sapozhnikov M. V., Gusev S. A., Troitskii B. B., Khokhlova L. V.* Optical and magneto-optical resonances in nanocorrugated ferromagnetic films // *Opt. Lett.* — 2011. — Vol. 36, no. 21. — Pp. 4197–4199.
163. *Armelles G., Cebollada A., Garcia-Martin A., Garcia-Martin J. M., Gonzales M. U., Gonzalez-Diaz J. B., Ferreira-Vila E., Torrado J. F.* Magnetoplasmonic nanostructures: systems supporting both plasmonic and magnetic properties // *J. Opt. A.: Pure Appl. Opt.* — 2009. — Vol. 11. — P. 114023.
164. *Abe M., Suwa T.* Surface plasma resonance and magneto-optical enhancement in composites containing multicore-shell structured nanoparticles // *Phys. Rev. B*. — 2004. — Vol. 70. — P. 235103.

165. *Fan B., Nasir M. E., Nicholls L. H., Zayats A. V., Podolskiy V. A.* Magneto-optical metamaterials: Nonreciprocal transmission and Faraday effect enhancement // *Adv. Opt. Mat.* — 2019. — P. 1801420.
166. *Murzina T. V., Kolmychek I. A., Nikulin A. A., Gan'shina E. A., Aktsipetrov O. A.* Plasmonic and magnetic effects accompanying optical second harmonic generation in Au/Co/Au nanodisks // *JETP Lett.* — 2009. — Vol. 90, no. 7. — Pp. 552–556.
167. *Gonzalez-Diaz J. B., Garcia-Martin A., Garcia-Martin J. M., Cebollada A., Armelles G., Sepulveda B., Alaverdyan Y., Kall M.* Plasmonic Au/Co/Au nanosandwiches with enhanced magneto-optical activity // *Small.* — 2008. — Vol. 4, no. 2. — P. 202.
168. *Banthi J. C., Meneses-Rodriguez D., Garcia F., Gonzalez M. U., Garcia-Martin A., Cebollada A., Armelles G.* High magneto-optical activity and low optical losses in metal-dielectric Au/Co/Au-SiO<sub>2</sub> magnetoplasmonic nanodisks // *Advanced Materials.* — 2012. — Vol. 24. — Pp. OP36–OP41.
169. *Новиков В. Б., Ромашикина А. М., Езенкова Д. А., Родионов И. А., Афанасьев К. Н., Барышев А. В., Мурзина Т. В.* Оптические эффекты в магнитоплазмонных кристаллах на основе 1D металл-диэлектрической решетки // *Оптика и спектроскопия.* — 2020. — Vol. 128, no. 9. — Pp. 1369–1374.
170. *Potomozov A. R., Chekhov A. L., Rodionov I. A., Baburin A. S., Lotkov E. S., Temiryazeva M. P., Afanasyev K. N., Baryshev A. V., Murzina T. V.* Two-dimensional high-quality Ag/Py magnetoplasmonic crystals // *Appl. Phys. Lett.* — 2020. — Vol. 116. — P. 013106.
171. *Белотелов В. И.* Диссертация на соискание ученой степени доктора физ.-мат. наук: Плазмонные гетероструктуры и фотонные кристаллы с перестраиваемыми оптическими свойствами. — Москва, 2012.
172. *Мурзина Т. В., Шебаршин А. В., Колмычек И. А., Ганьшина Е. А., Акципетров О. А., Стогний А. И., Новицкий Н. Н., Сташкевич А.* Магнетизм планарных наноструктур кобальт-золото на поверхности кремния // *ЖЭТФ.* — 2009. — Т. 136, № 1 (7). — С. 123–134.

173. *Belotelov V., Bykov D., Doskolovich L., Kalish A., Zvezdin A.* Extraordinary transmission and giant magneto-optical transverse Kerr effect in plasmonic nanostructured films // *J. Opt. Soc. Am. B.* — 2009. — Vol. 26, no. 8. — Pp. 1594–1598.
174. *Pohl M., Kreilkamp L. E., Belotelov V. I., Akimov I. A., Kalish A. N.* Tuning of the transverse magneto-optical Kerr effect in magneto-plasmonic crystals // *New J. Phys.* — 2013. — Vol. 15. — P. 075024.
175. *Ignatyeva D. O., Knyazev G. A., Kapralov P. O., Dietler G., Sekatskii S. K., Belotelov V. I.* Magneto-optical plasmonic heterostructure with ultranarrow resonance for sensing applications // *Scientific Reports.* — 2016. — Vol. 6. — P. 28077.
176. *Gonzalez-Diaz J., Garcia-Martin A., Armelles G., Navas D., Vazquez M., Nielsch K., Wehrspohn R., Gosele U.* Enhanced magneto-optics and size effects in ferromagnetic nanowire arrays // *Advanced Materials.* — 2007. — Vol. 19. — P. 2643–2647.
177. *Baryshev A. V., Uchida H., Inoue M.* Peculiarities of plasmon-modified magneto-optical response of gold–garnet structures // *J. Opt. Soc. of Am. B.* — 2013. — Vol. 30, no. 9. — Pp. 2371–2376.
178. *Murzina T. V., Kim E. M., Matskevich S. E., Aktsipetrov O. A., Kravets A. F., Vovk A. Y.* Magnetization-induced third harmonic generation in magnetic nanogranular films: Correlation with giant magnetoresistance // *JETP Lett.* — 2004. — Vol. 79. — P. 155.
179. *Kolmychek I., Murzina T., Fourier S., Wouters J., Valev V., Verbiest T., Aktsipetrov O.* Second harmonic generation in core (shell)  $\gamma$ -Fe<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (Au) nanoparticles // *Solid State Phenomena.* — 2009. — Vol. 152-153. — Pp. 508–511.
180. *Krut'yanskiy V. L., Chekhov A. L., Ketsko V. A., Stognij A. I., Murzina T.* Giant nonlinear magneto-optical response of magnetoplasmonic crystals // *Phys. Rev. B.* — 2015. — Vol. 91. — P. 121411.
181. *Chang R., Ducuing J., Bloembergen N.* Relative phase measurement between fundamental and second-harmonic light // *Phys. Rev. Lett.* — 1965. — Vol. 15. — Pp. 6–8.

182. *Kemnitz K., Bhattacharyya K., Hicks J. M., Pinto G. R., Eisenthal B., Heinz T. F.* The phase of second-harmonic light generated at an interface and its relation to absolute molecular orientation // *Chemical Physics Letters*. — 1986. — Vol. 131, no. 4. — Pp. 285–290.
183. *Stolle R., Marowsky G., Schwarzberg E., Berkovic G.* Phase measurements in nonlinear optics // *Appl. Phys. B*. — 1996. — Vol. 63. — P. 491.
184. *Акцунетров О. А., Баранова И. М., Евтюхов К.* Нелинейная оптика кремния и кремниевых наноструктур. — М.: ФИЗМАТЛИТ, 2012.
185. *Kim K.-W., Lee H.-W., Lee K.-J., Stiles M. D.* Chirality from interfacial spin-orbit coupling effects in magnetic bilayers // *Phys. Rev. Lett.* — 2013. — Vol. 111. — P. 216601.
186. Thickness dependence of the interfacial Dzyaloshinskii–Moriya interaction in inversion symmetry broken systems / J. Cho, N.-H. Kim, S. Lee, J.-S. Kim, R. Lavrijsen, A. Solignac, Y. Yin, D.-S. Han, N. J. J. van Hoof et al. // *Nature Communications*. — 2015. — Vol. 6. — P. 7635.
187. *Heinze S., von Bergmann K., Menzel M., Brede J., Kubetzka A., Wiesendanger R., Bihlmayer G., Blugel S.* Spontaneous atomic-scale magnetic skyrmion lattice in two dimensions // *Nature physics*. — 2011. — Vol. 7, no. 9. — Pp. 713–718.
188. *Hellman F.* Interface-induced phenomena in magnetism // *Review of Modern Physics*. — 2017. — Vol. 89, no. 2. — P. 025006.
189. Additive interfacial chiral interaction in multilayers for stabilization of small individual skyrmions at room temperature / C. Moreau-Luchaire, C. Mouta, N. Reyren, J. Sampaio, C. A. F. Vaz, N. van Horne, K. Bouzehouane, K. Garcia, C. Deranlot et al. // *Nature Nanotechnology*. — 2016. — Vol. 11. — P. 444.
190. *Fert A., Reyrenand N., Cros V.* Magnetic skyrmions: advances in physics and potential applications // *Nat. Rev. Mater.* — 2017. — Vol. 2. — P. 17031.
191. *Karashtin E. A., Fraerman A. A.* Spin current and second harmonic generation in non-collinear magnetic systems: the hydrodynamic model // *J. Phys.: Condens. Matter*. — 2018. — Vol. 30, no. 2. — P. 165801.

192. *Sebastian T., Schultheiss K., Obry B., Hillebrands B., Schultheiss H.* Micro-focused brillouin light scattering: imaging spin waves at the nanoscale // *Frontiers in Physics*. — 2015. — Vol. 3. — P. 35.
193. *Sato K., Kodama A., Miyamoto M., Petukhov A. V., Takanashi K., Mitani S., Fujimori H., Kirilyuk A., Rasing T.* Anisotropic magnetization-induced second harmonic generation in Fe/Au superlattices // *Phys. Rev. B*. — 2001. — Vol. 64. — P. 184427.
194. *Fert.* Nobel lecture: Origin, development, and future of spintronics. // *Rev. Mod. Phys.* — 2008. — Vol. 80. — Pp. 1517–1530.
195. *Razdolski I., Krutyanskiy V. L., Murzina T. V., Rasing T., Kimel A. V.* Femtosecond laser-induced optical anisotropy in a two-dimensional lattice of magnetic dots // *Phys. Rev. B*. — 2014. — Vol. 89. — Pp. 064306 (1–9).
196. *Krauss P. R., Chou S. Y.* Nano-compact disks with 400 Gbit/in<sup>2</sup> storage density fabricated using nanoimprint lithography and read with proximal probe // *Applied Physics Letters*. — 1997. — Vol. 71, no. 21. — Pp. 3174–3176.
197. *Gomez R. D., Shih M. C., New R. M. H., Pease R. F. W., White R. L.* Switching characteristics of submicron cobalt islands // *Journal of Applied Physics*. — 1996. — Vol. 80, no. 1. — Pp. 342–346.
198. *Fernandez A., Gibbons M. R., Wall M. A., Cerjan C. J.* Magnetic domain structure and magnetization reversal in submicron-scale Co dots // *J. Magn. Magn. Mat.* — 1998. — Vol. 190. — P. 71.
199. *Albrecht M., Hu G., Moser A., Hellwig O., Terris B. D.* Magnetic dot arrays with multiple storage layers // *J. of Appl. Phys.* — 2005. — Vol. 97. — P. 103910.
200. *Udalov O., Sapozhnikov M., Karashtin E. A., Gribkov B. A., Gusev S. A., Skorohodov E. V., Rogov V. V., Klimov A. Y., Fraerman A. A.* Nonreciprocal light diffraction by a lattice of magnetic vortices // *Phys. Rev. B*. — 2012. — Vol. 86. — Pp. 094416 (1–4).
201. *Donahue M., Porter D., Lau J., McMichael R.* OOMMF User's Guide. — <https://math.nist.gov/oommf/>, 2021.

202. *Guyot-Sionnest P., Shen Y.* General considerations on optical second-harmonic generation from surfaces and interfaces // *Phys. Rev. B.* — 1986. — Vol. 33. — Pp. 8254–8263.
203. *Spaldin N., Fiebig M., Mostovoy M.* The toroidal moment in condensed-matter physics and its relation to the magnetoelectric effect // *J. of Physics: Condensed Matter.* — 2008. — Vol. 20, no. 43. — P. 434203.
204. *Singh N., Goolaup S., Adeyeye A. O.* Fabrication of large area nanomagnets // *Nanotechnology.* — 2004. — Vol. 15, no. 11. — Pp. 1539–1544.
205. *Bochenkov V. E., Klos G., Sutherland D. S.* Extrinsic chirality of non-concentric plasmonic nanorings // *Opt. Mat. Express.* — 2017. — Vol. 7, no. 10. — Pp. 3715–3721.
206. *Bochenkov V. E., Sutherland D. S.* From rings to crescents: A novel fabrication technique uncovers the transition details // *Nano Letters.* — 2013. — Vol. 13, no. 3. — Pp. 1216–1220.
207. *Hanarp P., Sutherland D. S., Gold J., Kasemo B.* Control of nanoparticle film structure for colloidal lithography // *Colloids and Surfaces A: Physicochemical and Engineering Aspects.* — 2003. — Vol. 214, no. 1-3. — Pp. 23–36.
208. Coupled semiconductor microcavities / A. A. Stashkevich, Y. Roussigne, P. Djemia, S. M. Cherif, P. R. Evans, A. P. Murphy, W. R. Hendren, R. Atkinson, R. J. Pollard et al. // *Phys. Rev. B.* — 2009. — Vol. 80. — Pp. 144406(1–13).
209. *Виноградов А. П.* Электродинамика композитных материалов. — М.: Эдиториал УРСС, 2001.
210. *Palik E. D.* Handbook of Optical Constants of Solids. — Academic, 2012.
211. *Melle S., Menendez J. L., Armeltes G., Navas D., Vazquez M., Nielsch K., Wehrspohn R. B., Gosele U.* Magneto-optical properties of nickel nanowire arrays // *Appl. Phys. Lett.* — 2003. — Vol. 83, no. 22. — Pp. 4547–4549.
212. *Quinten M., Leitner A., Krenn J. R., Aussenegg F. R.* Electromagnetic energy transport via linear chains of silver nanoparticles // *Opt. Lett.* — 1998. — Vol. 23, no. 17. — Pp. 1331–1333.

213. *Meier M., Wokaun A., Liao P. F.* Enhanced fields on rough surfaces: dipolar interactions among particles of sizes exceeding the Rayleigh limit // *J. Opt. Soc. Am. B.* — 1985. — Vol. 2, no. 6. — Pp. 931–949.
214. *Шайманов А. Н., Хабаров К. М., Мерзликун А. М., Быков И. В., Барышев А. В.* Плазмонные резонансы 2D из металлических частиц внутри диэлектрического слоя: структурные и поляризационные особенности // *Журнал экспериментальной и теоретической физики.* — 2017. — Vol. 151, no. 4. — Pp. 686–694.
215. *Herminghaus S., Klopffleisch M., Schmidt H. J.* Attenuated total reflectance as a quantum interference phenomenon // *Opt. Lett.* — 1994. — Vol. 19, no. 4. — Pp. 293–295.
216. *Chekhov A. L., Naydenov P. N., Smirnova M. N., Ketsko V. A., Stognij A. I., Murzina T. V.* Magnetoplasmonic crystal waveguide // *Physics of the Solid State.* — 2013. — Vol. 55, no. 8. — P. 1725–1732.
217. *Певцов А. Б., Грудинкина С. А., Поддубный А. Н., Каплан С. Ф., Курдюков Д. А., Голубев В. Г.* Переключение фотонной запрещенной зоны в трехмерных пленочных фотонных кристаллах на основе композитов опал-VO<sub>2</sub> в спектральной области 1.3-1.6 мкм // *ФТП.* — 2010. — Vol. 44, no. 12. — Pp. 1585–1590.
218. *Трофимова Е. Ю., Алексенский А. Е., Грудинкин С. А., Коркин И. В., Курдюков Д. А., Голубев В. Г.* Влияние предварительной обработки тетраэтоксисилана на синтез коллоидных частиц аморфного диоксида кремния // *Коллоидный журнал.* — 2011. — Т. 73, № 4. — С. 535–539.
219. *Sapozhnikov M. V., Gusev S. A., Rogov V. V., Ermolaeva O. L., Troitskii B. B., Khokhlova L. V., Smirnov D. A.* Magnetic and optical properties of nanocorrugated Co films // *Appl. Phys. Lett.* — 2010. — Vol. 96, no. 12. — P. 122507.
220. *Sapozhnikov M. V., Ermolaeva O. L., Gribkov B. G., Nefedov I. M., Karetnikova I. R., Gusev S. A., Rogov V. V., Troitskii B. B., Khokhlova L. V.* Frustrated magnetic vortices in hexagonal lattice of magnetic nanocaps // *Phys. Rev. B.* — 2012. — Vol. 85, no. 5. — P. 054402.

221. Degiron A., Lezec H. J., Barnes W. L., Ebbesen T. Effects of hole depth on enhanced light transmission through subwavelength hole arrays // *Appl. Phys. Lett.* — 2002. — Vol. 81, no. 23. — Pp. 4327–4329.
222. Kavtreva O. A., Ankudinov A. V., Bazhenova A. G., Kumzerov Y. A., Limonov M. F., Samusev K. B., Sel'kin A. V. Optical characterization of natural and synthetic opals by bragg reflection spectroscopy // *Physics of the Solid State.* — 2007. — Vol. 49. — Pp. 708–714.
223. Landstrom L., Brodoceanu D., Bauerle D., Garcia-Vidal F. J., Rodrigo S. G., Martin-Moreno L. Extraordinary transmission through metal-coated monolayers of microspheres // *Optics Express.* — 2009. — Vol. 17, no. 2. — Pp. 761–772.
224. Salomon L., Grillot F., Zayats A. V., de Fornel F. Near-field distribution of optical transmission of periodic subwavelength holes in a metal film // *Phys. Rev. Lett.* — 2001. — Vol. 86, no. 6. — Pp. 1110–1113.
225. Martin-Moreno L., Garcia-Vidal F. J., Lezec H. J., Pellerin K. M., Thio T., Pendry J. B., Ebbesen T. W. Theory of extraordinary optical transmission through subwavelength hole arrays // *Phys. Rev. Lett.* — 2001. — Vol. 86, no. 6. — Pp. 1114–1117.
226. Surface-magnetoplasmon nonreciprocity effects in noble-metal/ferromagnetic heterostructures / J. B. Gonzalez-Diaz, A. Garcia-Martin, G. Armelles, J. M. Garcia-Martin, C. Clavero, A. Cebollada, R. A. Lukaszew, J. R. Skuza, D. P. Kumah, R. Clarke // *Phys. Rev. B.* — 2007. — Vol. 76. — P. 153402.
227. Wide-band enhancement of the transverse magneto-optical Kerr effect in magnetite-based plasmonic crystals / S. A. Dyakov, I. M. Fradkin, N. A. Gippius, L. Klompmaker, F. Spitzer, E. Yalcin, I. A. Akimov, M. Bayer, D. A. Yavsin et al. // *Phys. Rev. B.* — 2019. — Vol. 100. — P. 214411.
228. Resonant metasurfaces at oblique incidence: interplay of order and disorder / M. Albooyeh, S. Kruk, C. Menzel, C. Helgert, M. Kroll, A. Krysinski, M. Decker, D. N. Neshev, T. Pertsch et al. // *Scientific Reports.* — 2014. — Vol. 4. — P. 4484.

229. Optical metamaterials with quasicrystalline symmetry: Symmetry-induced optical isotropy / S. S. Kruk, C. Helgert, M. Decker, I. Staude, C. Menzel, C. Etrich, C. Rockstuhl, C. Jagadish, T. Pertsch et al. // *Phys. Rev. B*. — 2013. — Vol. 88. — P. 201404.
230. *Sioncke S., Verbiest T., Persoons A.* Second-order nonlinear optical properties of chiral materials // *Materials Science and Engineering*. — 2003. — Vol. R 42. — P. 115–155.
231. *Bochenkov V. E., Klös G., Sutherland D. S.* Extrinsic chirality of non-concentric plasmonic nanorings // *Opt. Mater. Express*. — 2017. — Vol. 7, no. 10. — Pp. 3715–3721.
232. *Bochenkov V. E., Sutherland D. S.* Chiral plasmonic nanocrescents: large-area fabrication and optical properties // *Opt. Express*. — 2018. — Vol. 26, no. 21. — Pp. 27101–27108.
233. *Valev V. K., Silhanek A., Smisdom N., Clercq B. D., Gillijns W., Aktsipetrov O. A., Ameloot M., Moshchalkov V. V., Verbiest T.* Linearly polarized second harmonic generation microscopy reveals chirality // *Optics Express*. — 2010. — Vol. 8, no. 18. — Pp. 8286–8293.
234. *Valev V. K., Smisdom N., Silhanek A., Clercq B. D., Gillijns W., Ameloot M., Moshchalkov V., Verbiest T.* Plasmonic ratchet wheels: Switching circular dichroism by arranging chiral nanostructures // *Nano Letters*. — 2009. — Vol. 9, no. 11. — Pp. 3945–3948.
235. *Valev V., Silhanek A., Verellen N., Gillijns W., Dorpe P. V., Aktsipetrov O., Vandenbosch G., Moshchalkov V., Verbiest T.* Asymmetric optical second-harmonic generation from chiral G-shaped gold nanostructures // *Phys. Rev. L*. — 2010. — Vol. 104, no. 12. — Pp. 127401 (1–4).
236. The origin of second harmonic generation hotspots in chiral optical metamaterials / V. Valev, X. Zheng, C. Biris, A. Silhanek, V. Volskiy, B. de Clercq, O. Aktsipetrov, M. Ameloot, N. Panoiu et al. // *Optical Materials Express*. — 2011. — Vol. 1 (1). — Pp. 36–45.
237. *Акцупетров О. А., Баранова И. М., Ильинский Ю. А.* Вклад поверхности в генерацию отраженной второй гармоники для центросимметричных полупроводников // *ЖЭТФ*. — 1986. — Т. 91. — С. 287–297.

238. *Krasavin A. V., Schwanecke A. S., Zheludev N. I., Reichelt M., Stroucken T., Koch S. W., Wright E.* Polarization conversion and “focusing” of light propagating through a small chiral hole in a metallic screen // *Appl. Phys. Lett.* — 2005. — Vol. 86. — P. 201105.
239. *Collins J. T., Hooper D. C., Mark A. G., Kuppe C., Valev V. K.* Second-harmonic generation optical rotation solely attributable to chirality in plasmonic metasurfaces // *ACS Nano.* — 2018. — Vol. 12. — Pp. 5445–5451.
240. *Hooper D. C., Mark A. G., Kuppe C., Collins J. T., Fischer P., Valev V. K.* Strong rotational anisotropies affect nonlinear chiral metamaterials // *Adv. Mat.* — 2017. — Vol. 29. — P. 1605110.
241. *Rogov O. Y., Artemov V. V., Gorkunov M. V., Ezhov A. A., Palto S. P.* Fabrication of complex shape 3D photonic nanostructures by FIB lithography // *Proceedings of the 15th IEEE International Conference on Nanotechnology.* — 2015. — Pp. 136–139.
242. *Kondratov A. V., Gorkunov M. V., Darinskii A. N., Gainutdinov R. V., Rogov O. Y., Ezhov A. A., Artemov V. V.* Extreme optical chirality of plasmonic nanohole arrays due to chiral Fano resonance // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 93. — P. 195418.
243. *Gorkunov M. V., Darinskii A. N., Kondratov A. V.* Enhanced sensing of molecular optical activity with plasmonic nanohole arrays // *J. Opt. Soc. Am. B.* — 2017. — Vol. 34, no. 2. — Pp. 315–320.
244. *Kauranen M., Verbiest T., Persoons A.* General considerations on optical second harmonic generation from surfaces and interfaces // *J. Modern Optics.* — 1998. — Vol. 45. — Pp. 403–423.
245. Plasmons reveal the direction of magnetization in nickel nanostructures / V. K. Valev, A. V. Silhanek, W. Gillijns, Y. Jeyaram, H. Paddubrouskaya, A. Volodin, C. G. Biris, N. C. Panoiu, B. D. Clercq et al. // *ACS Nano.* — 2011. — Vol. 5. — Pp. 91–96.
246. *Adeyeye A. O., Singh N.* Large area patterned magnetic nanostructures // *Journal of Physics D: Applied Physics.* — 2008. — Vol. 41, no. 15. — P. 153001.

247. *Mirmoosa M. S., Kosulnikov S. Y., Simovski C. R.* Magnetic hyperbolic metamaterial of high-index nanowires // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Vol. 94. — P. 075138.
248. *Kruk S., Wong Z., Pshenay-Severin E., O'Brien K., Neshev D., Kivshar Y., Zhang X.* Magnetic hyperbolic optical metamaterials // *Nature Commun.* — 2015. — Vol. 7. — P. 11329.
249. Guide to Using WVASE Spectroscopic Ellipsometry Data Acquisition and Analyses Software. — J.A. Woollam Co., Inc., 2012.
250. Manipulating polarization of light with ultrathin epsilon-near-zero metamaterials / P. Ginzburg, F. J. R. Fortuno, G. A. Wurtz, W. Dickson, A. Murphy, F. Morgan, R. J. Pollard, I. Iorsh, A. Atrashchenko et al. // *Optics Express.* — 2013. — Vol. 21, no. 12. — Pp. 14907–14917.
251. *Vincenti M. A., Kamandi M., de Ceglia D., Guclu C., Scalora M., Capolino F.* Second-harmonic generation in longitudinal epsilon-near-zero materials // *Phys. Rev. B.* — 2017. — Vol. 96, no. 4. — P. 045438.
252. *Vincenti M. A., de Ceglia D., Scalora M.* Nonlinear dynamics in low permittivity media: the impact of losses // *Optics Express.* — 2013. — Vol. 21, no. 24. — Pp. 29949–29954.