

## ОТЗЫВ

официального оппонента о диссертационной работе

Колмычек Ирины Алексеевны

«Линейные и нелинейные оптические эффекты в наноструктурах и тонких магнитных пленках», представленной на соискание ученой степени доктора физико-математических наук по специальности 1.3.6. Оптика

Диссертационная работа И.А. Колмычек посвящена исследованию линейных оптических и магнитооптических эффектов, нелинейных эффектов, связанных с генерацией второй оптической гармоники (ВГ), в наноструктурированных материалах на основе ферромагнитных и благородных металлов. В работе дается подробный анализ поляризационных зависимостей и оптических спектров, микроскопических изображений, что способствует установлению различных механизмов взаимодействия оптического излучения с наноматериалами и метаповерхностями. В диссертации представлены оптические исследования для широкого спектра различных наноматериалов - тонких магнитных пленок, ферромагнитных наноструктурированных пленок, наночастиц и наностержней, 2D массивов хиральных наноструктур и гиперболических метаматериалов. Практический интерес к исследованиям данного типа связан с перспективами применения использованных наноматериалов для создания интегральных функциональных устройств для нанофотоники, оптоэлектроники и сенсорики, что определяет большую актуальность проведенного исследования и значимость результатов диссертации как для научных приложений, так и практического использования.

Важно отметить новизну проведенного исследования, определяемую обнаружением магнитоиндуцированной анизотропии квадратичного нелинейно-оптического отклика в изотропных нанопленках; детектированием макроскопического тороидного момента намагниченности в наноструктурах; выявлением роли локального оптического поля на поляризационную анизотропию интенсивности ВГ в металлических наноструктурах; обнаружением одновременного усиления пропускания и магнитооптического отклика при возбуждении поверхностного плазмон-поляритона в гетероструктуре на основе искусственного опала и пленки ферромагнитного металла; усиления поперечного магнитооптического эффекта в геометрии Фохта при возбуждении решеточного резонанса в массивах плазмонных наночастиц в магнитном диэлектрике; усиления интенсивности и изменения фазы ВГ при возбуждении магнитодипольного резонанса в массивах трехслойных нанодисков; выявления эффекта циркулярного дихроизма ВГ в метаповерхностях, состоящих из ферромагнитных наноэлементов с зеркальной симметрией; установлением роли асимметрии и анизотропии

формы хиральных металлических наночастиц и винтообразных наноотверстий в металлической пленке в возникновении эффектов циркулярного дихроизма ВГ; экспериментальной демонстрацией аномального двулучепреломления, а также усиления магнитооптического и нелинейно-оптического откликов гиперболических метаматериалов в спектральной области особых дисперсионных точек; разработкой метода визуализации состояний намагниченности на границах раздела ферромагнетика с тяжелыми немагнитными металлами.

В диссертационной работе использован новаторский комплексный подход в оптических исследованиях, заключающийся в применении различных взаимодополняющих методов, таких как оптическая, атомно-силовая и сканирующая электронная микроскопия, оптическая спектроскопия линейного и нелинейного отклика наноструктур, оптическая эллипсометрия в линейных эффектах и при измерении поляризационных характеристик ВГ, и др.

Диссертация состоит из введения, шести глав, заключения, списка публикаций автора по теме диссертации, списка литературы, включающего 252 источника. Объем диссертации составляет 293 страницы и включает в себя 104 рисунка и 4 таблицы.

Анализ диссертации по главам.

Во **введении** рассматриваются актуальность и разработанность темы исследования данной диссертационной работы, её новизна, а также научная и практическая значимость, формулируются ее цели и задачи, определяются предмет и методология исследования, формулируются выносимые на защиту положения.

В **первой главе** диссертации представлен обзор литературы, посвященной основным аспектам нелинейной оптики, рассмотрены особенности оптического, магнитооптического и квадратичного нелинейно-оптического отклика для различных наноматериалов – метаматериалов и метаповерхностей, плазмонных, хиральных структур и искусственных сред с режимом гиперболической дисперсии. В этой главе приведено описание экспериментальных схем и оптических методик.

Во **второй главе** диссертации представлены исследования магнитоиндуцированной ВГ в тонких ферромагнитных пленках. Дано феноменологическое описание ВГ и сопутствующих эффектов, приводятся ненулевые компоненты тензоров нелинейной восприимчивости второго порядка тонких магнитных пленок для кристаллографического, четного и нечетного по намагниченности вкладов. Приведены результаты исследования поляризационных зависимостей и интерферограммам интенсивности ВГ для мультислойных пленок металл/диэлектрик/металл на стеклянной подложке.

Изучены свойства границ раздела пленок ферромагнитного металла и тяжелых металлов с большим значением величины спин-орбитального взаимодействия.

Проведен симметричный анализ различных вкладов в ВГ для линейно- и циркулярно-поляризованного излучения накачки. На основе экспериментальных данных и симметричного анализа делается вывод, что наблюдаемые нечетные по намагниченности эффекты в квадратичном р-поляризованном нелинейно-оптическом отклике связаны с формированием нетривиальных магнитных состояний, характеризующихся сильным градиентом нормальной составляющей намагниченности вследствие индуцированного взаимодействия Дзялошинского–Мория на интерфейсах ферромагнитного и тяжелого металлов.

**В третьей главе** диссертации представлены исследования ферромагнитных наноструктур, в которых реализуется неоднородное распределение намагниченности. Наноструктура представляла собой массив наночастиц ферромагнитного металла в форме треугольников, а частицы расположены в узлах квадратной решетки. С помощью метода магнитно-силовой микроскопии, а также с помощью теоретического моделирования показано, что в таких наночастицах возможно возникновение вихревой намагниченности с возникновением макроскопического тороидного момента.

Предложен нелинейно-оптический метод визуализации вихревого состояния намагниченности в системе кобальтовых треугольников. Показано, что наиболее сильно вклад в ВГ от макроскопического магнитного тороидного момента проявляется при циркулярно поляризованном лазерном излучении и достигает одной пятой от величины немагнитной составляющей ВГ.

Представлены результаты исследования наноперфорированных пленок пермаллоя с системой круглых отверстий. Исследованы их магнитные, магнитооптические, магнитные и нелинейно-оптические свойства. Показано, что в насыщающем магнитном поле величина магнитного контраста в линейном отклике изотропна, а в квадратичном магнитном отклике ВГ наблюдается симметрия четвертого порядка, кристаллографический вклад в ВГ изотропен.

**Четвертая глава** диссертации посвящена исследованиям плазмонных структур – неупорядоченных массивов металлических наночастиц в форме цилиндров и полумесяцев, двумерных квадратных решеток из золота и слоя висмут-замещенного железиттриевого граната, гетероструктур опал-кобальт, упорядоченных массивов трехслойных нанодисков металл/диэлектрик/металл на поверхности кварца.

Показано, что в резонансных структурах анизотропия ВГ определяется не только формой наноэлементов, но и распределением поля волны возбуждения

в структуре, которое существенно зависит от длины волны.

Установлено, что при возбуждении плазмонного резонанса метод генерации магнитоиндуцированной второй гармоники является более чувствительным к резонансным свойствам структуры, чем исследование кристаллографического квадратичного нелинейно-оптического вклада.

Экспериментально продемонстрировано усиление магнитооптического, нелинейно-оптического и магнитного нелинейно-оптического сигналов при возбуждении решеточного плазмонного резонанса в двумерном массиве золотых нанодисков. Установлены механизмы усиления.

В плазмонных структурах опал/Co, для изготовления которых не требуются методы литографии, обнаружено аномальное пропускание, превышающее 110%, а также, усиление магнитооптических эффектов.

Исследован магнитодипольный плазмонный резонанс в упорядоченных массивах трехслойных нанодисков металл/диэлектрик/металл. Рассмотрены возможные вклады в линейный и нелинейный оптический отклик на основе мультипольного приближения.

**В пятой главе** диссертации приведены результаты по экспериментальному исследованию эффектов анизотропии и хиральности в формировании нелинейно-оптического сигнала четырех различных типов хиральных двумерных и квазидвумерных наноструктур. Выявлена роль формы наноэлементов, а также их симметрии расположения в массиве в формировании квадратичного оптического сигнала метаповерхностей.

Продемонстрирована чувствительность нелинейно-оптического метода генерации второй гармоники к хиральности планарных плазмонных структур.

Экспериментально показана возможность возникновения эффектов магнитоиндуцированной хиральности в квадратичном нелинейно-оптическом отклике нехиральной метаповерхности.

**Шестая глава** диссертации посвящена экспериментальному исследованию оптического, магнитооптических эффектов и ВГ в гиперболических метаматериалах – массивах золотых наностержней в матрице из оксида алюминия, массивах металлических наностержней / пленка никеля, бисегментированных наностержней Au+Ni, серебряных наностержней в матрице из оксида алюминия. Выявлен эффект гигантского двулучепреломления, показано резонансное усиление магнитооптического отклика вблизи особых спектральных точек, наблюдалось резонансное усиление генерации второй гармоники на один-два порядка по величине.

**В заключении** сформулированы основные результаты и выводы диссертационной работы. В конце диссертации приведены списки публикаций автора по теме диссертации и использованной цитируемой литературы.

Диссертационная работа выполнена на высоком научном уровне, текст диссертации написан понятным языком, проиллюстрирован многочисленными цветными зависимостями, 3D картами, а также схемами установок и образцов. Диссертация прошла апробацию посредством публикаций в авторитетных журналах и докладов на известных международных конференциях. По теме диссертации опубликовано 45 работ, из которых 37 опубликованы в рецензируемых научных журналах, удовлетворяющих Положению о присуждении ученых степеней в Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова.

Достоверность и обоснованность представленных в работе результатов, научных положений, выносимых на защиту, и выводов подтверждается логичностью и обоснованностью используемых математических выкладок и физических моделей, а также согласованностью результатов расчетов с результатами экспериментов и теоретических расчетами, полученными в работах других авторов.

Все изложенные в диссертационной работе И.А. Колмычек оригинальные результаты соответствуют направлению деятельности «Лаборатории нелинейной оптики наноструктур и фотонных кристаллов» Московского государственного университета им. М.В. Ломоносова. Результаты по диссертации могут использоваться в практической работе, а также в учебном процессе на кафедрах физического факультета МГУ им. М.В. Ломоносова.

При всей высокой оценке диссертации необходимо отметить, что она не лишена недостатков.

#### Вопросы по тексту диссертационной работы:

Глава 2. Стр. 81. В структуре Au/Co/Si есть два разных интерфейса, Au/Co и Co/Si, как они учитывались?

Стр. 109. На каком основании для трехслойных структур Ta/Co/Ta, Pt/Co/Pt и Ta/Co/Pt делается вывод, что «основной вклад в генерацию магнитоиндуцированной р-поляризованной ВГ дает предпоследнее слагаемое в (2.27)», а вклад от второго слагаемого в (2.27) игнорируется?

Глава 3. Стр. 119. Почему для симметрии  $3m$  в уравнении (3.2) не учтена ненулевая компонента  $u_{yy} = -yzz = -xxy = -xxy$ ?

Глава 4. Стр. 185. При обсуждении нелинейного вклада во ВГ от массивов трехслойных нанодисков предлагается вклад вида  $\chi^{emm} B_{\omega}^2$ . Однако, величина этого вклада должна быть чрезвычайно низкой в силу очень малой величины тензора  $\chi^{emm}$ , описывающего двухфотонный магнитодипольный переход на входе и электродипольный однофотонный на выходе. Почему не рассмотрен вклад вида  $\chi^{mcc} E_{\omega}^2$ ? Эффективность этого процесса должна быть значительно

выше, т.к. есть двухфотонный электродипольный переход на входе и резонансный магнитодипольный на выходе.

Глава 5. Обсуждается эффект магнитоиндуцированной хиральности при измерении ВГ. Однако четкого определения и математического выражения для данного эффекта не дано.

Глава 6. Стр. 243. Отмечено, «что в силу оптического дихроизма гиперболического метаматериала вблизи точки ENZ необыкновенная волна поглощается сильнее, чем обыкновенная, в результате гиперболический метаматериал эффективно “дворачивает” плоскость поляризации света, усиливая эффект Фарадея». Хорошо известно, что в одноосных материалах, эффект Фарадея подавляется, если свет распространяется не вдоль оптической оси. Почему в данном случае эффект Фарадея усиливается?

Общий вопрос: с точки зрения практической значимости, если сравнить результаты для исследованных наноструктур, какие из них будут обладать наибольшим потенциалом для возможных устройств нанофотоники и сенсорики?

#### Замечания по поводу положений, выносимых на защиту:

1. Пункт 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».

Усиление магнитооптических эффектов поверхностными плазмонами уже было продемонстрировано в металлических многослойных пленках, см., например, работу – V.I. Safarov, et al., «Magneto-optical effects enhanced by surface plasmons in metallic multilayer films», Phys. Rev. Lett. **73**, 3584 (1994). Усиление магнитного нелинейно-оптического отклика поверхностными плазмонами было продемонстрировано в металлических многослойных пленках, см., например, работу – V. V. Pavlov, et al., «Observation of magneto-optical second-harmonic generation with surface plasmon excitation in ultrathin Au/Co/Au films», Appl. Phys. Lett. **75**, 190 (1999).

2. Пункт 4. «В гиперболических метаматериалах наблюдается гигантское двулучепреломление, ...».

Сильная оптическая анизотропия в метаматериалах является известным фактом, см., например, работу – V.V. Pavlov, et al., «Ellipsometric and magneto-optical study of nanosized ferromagnetic metal-dielectric structures [Co/TiO<sub>2</sub>]<sub>n</sub>/Si», Thin Solid Films **619**, 359 (2016).

Несколько неточностей и опечаток по тексту диссертационной работы:

1. Стр. 18. Отмечено, уравнение (1.2) справедливо для однородной изотропной среды без учета пространственной дисперсии. Однако, это уравнение будет справедливым как для неоднородной, так и неизотропной среды.
2. Стр. 53. В уравнении (1.37) следует ставить мнимую единицу перед вторым членом, т.к. вдали от резонансов есть  $90^\circ$  различие по фазе между кристаллографической и магнитной частями. В (1.37) написана восприимчивость  $\chi^{(2)\text{magn}}$ , но должна быть  $-\chi^{(3)\text{magn}}$ .
3. Стр. 75. Вместо тензоров  $\chi^{(2)}_{ijkl}$  и  $\chi^{(2)}_{ijklm}$  должны быть  $\chi^{(3)}_{ijkl}$  и  $\chi^{(4)}_{ijklm}$ . Тензоры  $\chi^{(3)}_{ijkl}$  и  $\chi^{(4)}_{ijklm}$  – четвертого и пятого рангов, соответственно, а описываемые ими нелинейности – третьего и четвертого порядков.
4. Стр. 76. Нелинейные компоненты в выражении (2.4) записаны следующим образом:  
$$\chi^{\text{even}}_{xzx} = \chi^{\text{even}}_{xxz} = \chi^{\text{even}}_{zyz} = \chi^{\text{even}}_{yyz}, \chi^{\text{even}}_{zxx} = \chi^{\text{even}}_{zyy}, \chi^{\text{even}}_{zzz}.$$
Должно быть так:  
$$\chi^{\text{even}}_{xzx} = \chi^{\text{even}}_{xxz}, \chi^{\text{even}}_{zyz} = \chi^{\text{even}}_{yyz}, \chi^{\text{even}}_{zxx}, \chi^{\text{even}}_{zyy}, \chi^{\text{even}}_{zzz}.$$
Это связано с тем, что при ориентации магнитного поля вдоль оси Оу, компоненты вдоль осей Ох и Оу становятся неэквивалентными, поэтому не равны между собой, см. Ru-Pin Pan, et al., Phys. Rev. B **39**, 1229 (1989).
5. Стр. 78. Не понятна фраза: «Возникновение ненулевого магнитного контраста ВГ связано с тем, что в процессе вращения меняется компонента поперечного (перпендикулярного плоскости падения) магнитного поля.»  
Обычно, возникновение ненулевого магнитного контраста во второй гармонике связывают с интерференцией двух вкладов – магнитоиндуцированного и немагнитного – кристаллографического.
6. Стр. 79. В уравнении (2.5) в третьей строчке стоит  $-\chi^{\text{odd}}_{zxx} E^2_0$ . Должно быть  $-\chi^{\text{cr}}_{zxx} E^2_0$ .
7. Стр. 94. В Табл. 2.2 было бы полезно привести стандартные погрешности для относительных значений компонент тензора квадратичной восприимчивости, полученные при аппроксимации.
8. Стр. 131. Сказано, что компоненты  $\chi^{\text{magn}}_{ijkl}$  нечетны по намагниченности, т.е.  $\chi^{\text{magn}}_{ijkl}(M) = -\chi^{\text{magn}}_{ijkl}(-M)$ . Это неверно, эти компоненты четны по намагниченности.
9. Стр. 162. Фамилия ученого А.Ф. Иоффе должна начинаться с буквы «И», а не с «Й».
10. Стр. 201. Рис. 5.7 – структуры, показанные для азимутального угла  $270^\circ$ , следует повернуть на  $180^\circ$ .

Указанные замечания не отражаются на общем восприятии диссертации и не снижают заслуг соискателя в получении важных и интересных результатов, равно как и их высокой оценки. Автореферат кратко описывает содержание работы, соответствует основным положениям и выводам диссертации.

Общее впечатление о диссертационной работе – весьма положительное, автор работы продемонстрировал хорошее знание темы исследования, способность эффективно использовать необходимый экспериментальный и теоретический базис в применении к достаточно сложному кругу изучаемых явлений. Диссертация «Линейные и нелинейные оптические эффекты в наноструктурах и тонких магнитных пленках» полностью соответствует специальности 1.3.6. «Оптика» и требованиям Положения о присуждении учёных степеней в Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова, предъявляемым к докторским диссертациям, а её автор – Ирина Алексеевна Колмычек заслуживает присуждения искомой степени доктора физико-математических наук по специальности 1.3.6. «Оптика».

Официальный оппонент:

доктор физико-математических наук,  
главный научный сотрудник – заведующий лабораторией  
оптических явлений в сегнетоэлектрических  
и магнитных кристаллах Физико-технического института  
имени А.Ф. Иоффе Российской академии наук

Павлов Виктор Владимирович

Дата: 07.12.2022

194021, г. Санкт-Петербург, ул. Политехническая, д. 26

Телефон: +7 (812) 292-79-63

E-mail: post@mail.ioffe.ru

Подпись В.В. Павлова заверяю:

Учёный секретарь

ФТИ им. А.Ф. Иоффе

М.И. Патров