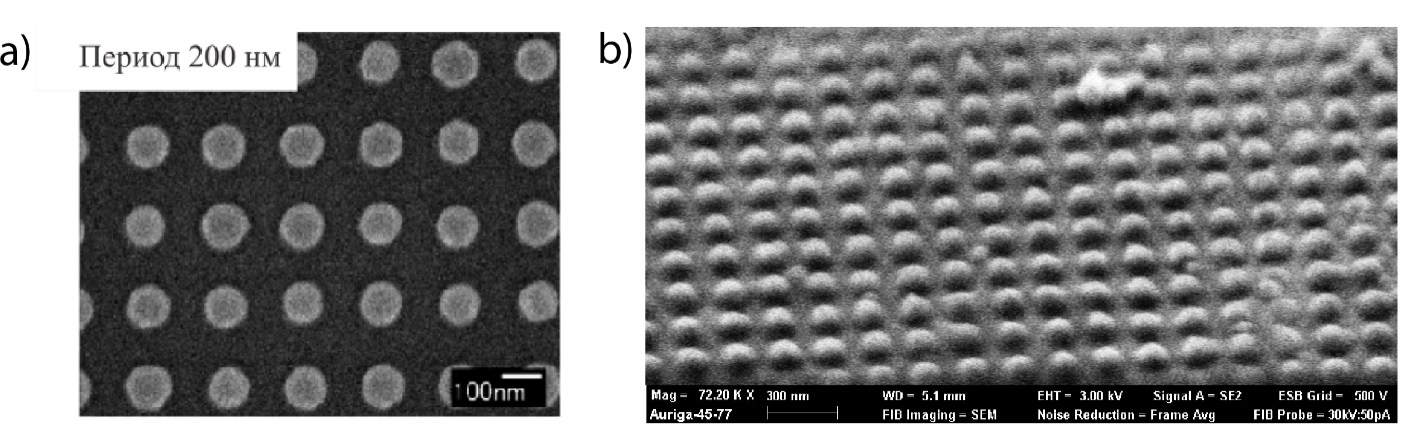
**Глава 2: Исследование свойств магнитооптических плазмонныхнаноструктур**

2.1. Технология изготовления, методики и геометрии эксперимента, модели для численного анализа спектров

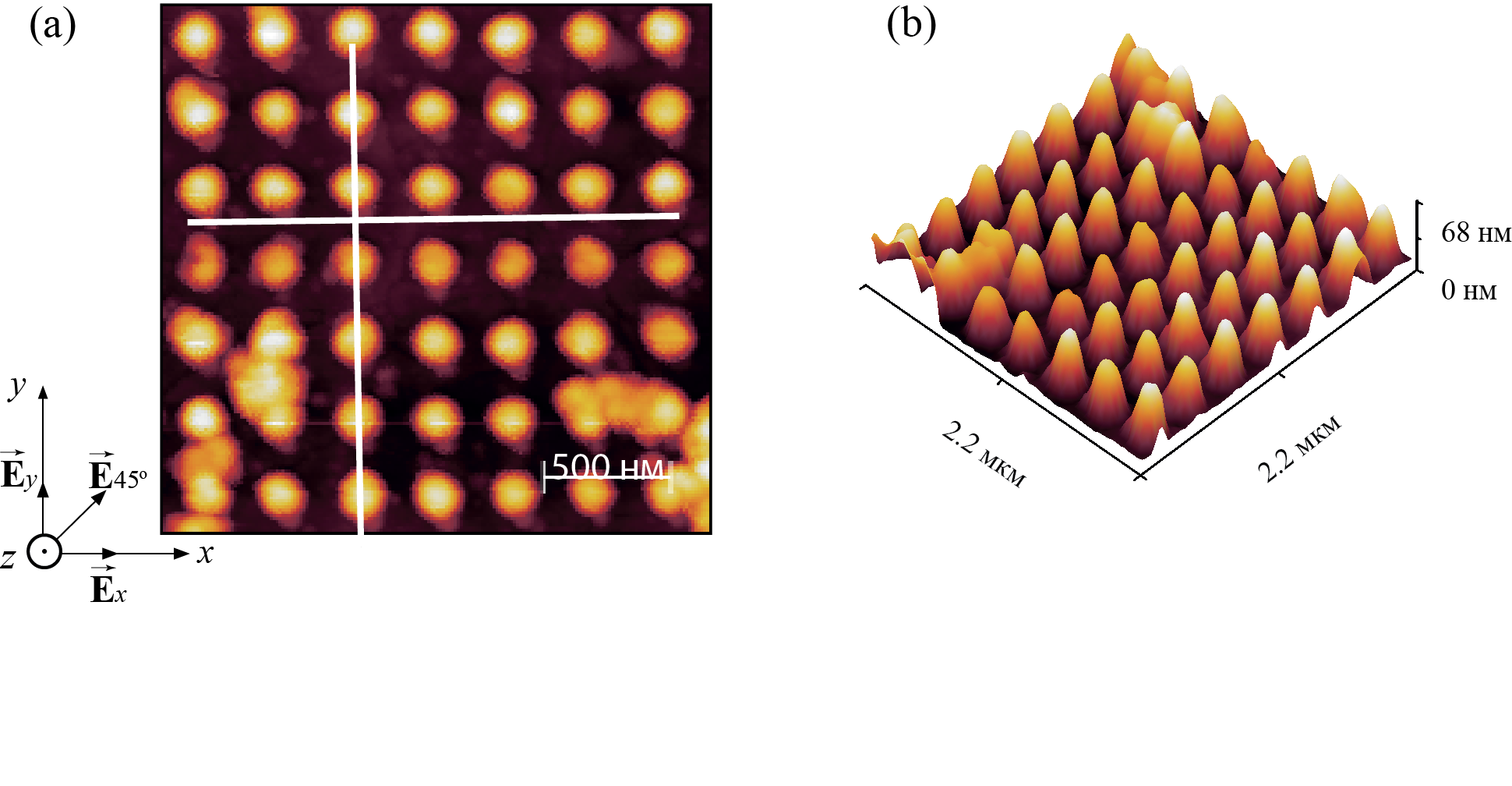
2.1.1. Магнитооптический отклик 2D решетки из золотых наночастиц в слое Bi:YIG в фарадеевской геометрии

Для исследования магнитооптических эффектов были изготовлены следующие структуры, изготовленные в Тоехаском технологическом университете. На пластинку плавленого кварца толщиной 1 мм методом электронной литографии наносилась двумерная квадратная решетка золотых нанодисков толщиной 30 нм и диаметром 100 нм. Решетка золотых нанодисков подвергалась нагреву до температуры выше, чем температура кристаллизации граната. Далее с помощью ионного напыления наносился слой Bi1.5Y1.5Fe5O12(Bi:YIG)толщиной 100 нм и производилась кристаллизация граната. Экспериментально исследовались три структуры с периодом **D** = 200 нм, 300 нм и 400 нм. Изображения образцов в РЭМ до кристаллизации граната и после представлены на рис. 2.1.



**Рис. 2.1: РЭМ изображения для структуры a) до кристаллизации пленки Bi:YIG и b) после кристаллизации пленки Bi:YIGс периодом 200 нм.**

Изготовленные структуры дальше исследовались с помощью атомно-силового микроскопа (АСМ) для определения периодов решетки вдоль ортогональных направлений 2Dрешетки (**D1, D2**). Сканирование было проведено для двух положений образца, повернутых относительно друг друга на 90 градусов для определения структурной анизотропии образца. Изображения с АСМ показаны на рис. 2.2.



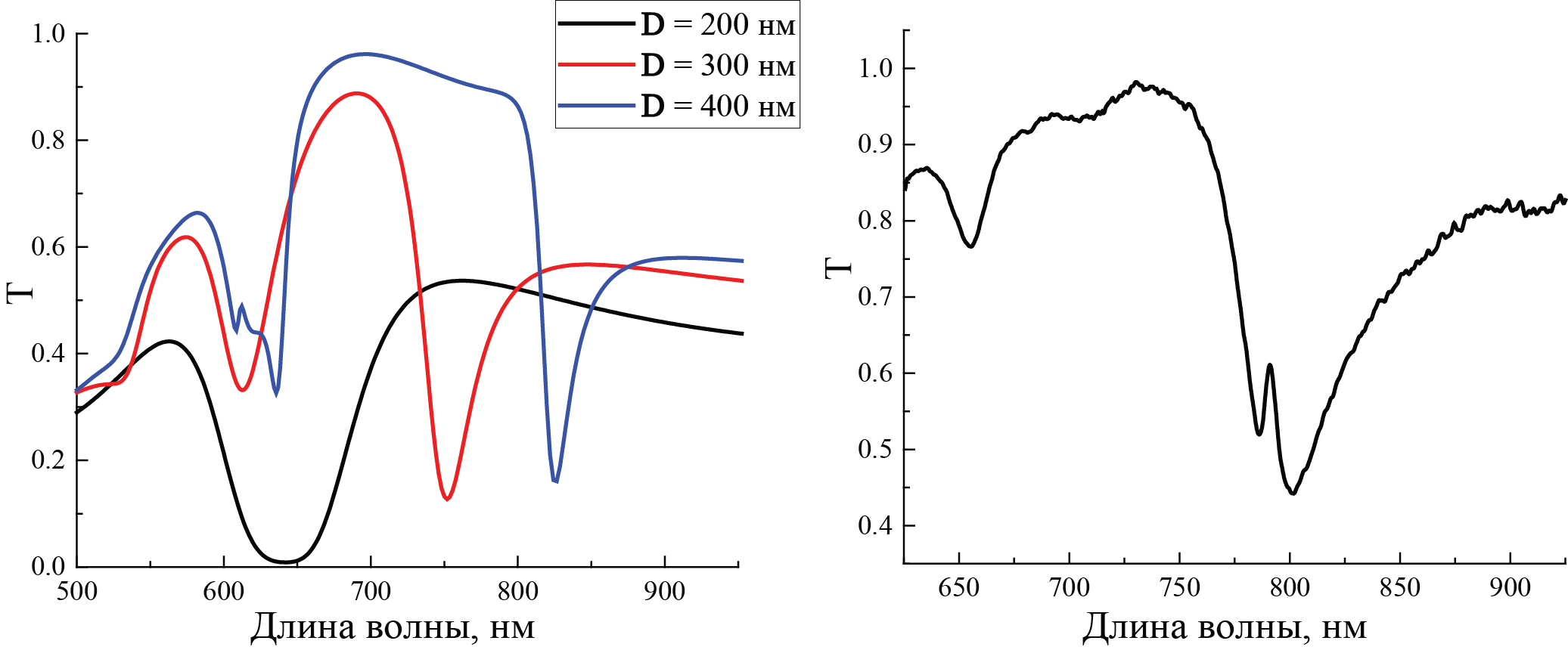
**Рис. 2.2. (а) и (b) Изображения, полученные с помощью АСМ при исследовании образца с периодом D2 ≈ 300нм.**

Согласно тщательной обработки АСМ изображений было показано, что периоды решеток имели следующие параметры:

|  |  |
| --- | --- |
| Структура 1 | **D** = 192.0±2.7 нм |
| Структура 2 | **D** = 305.9 ±2.7 нм |
| Структура 3 | **D** = 383.0±2.7 нм |

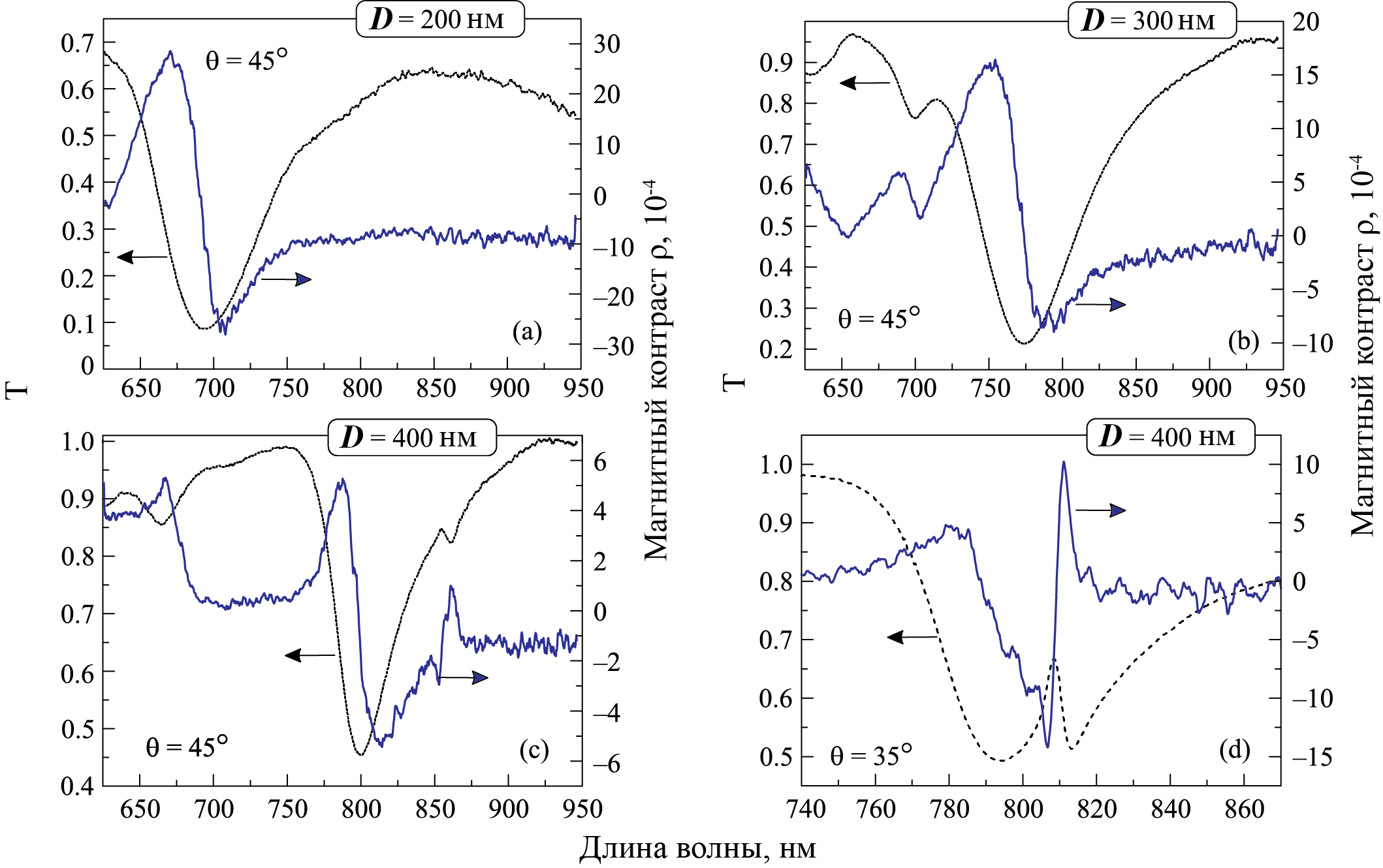
Полученные АСМ изображения позволили убедиться, что изготовленные образцы имели квадратную решетку.

Перейдем к общему обсуждению спектральных особенностей изготовленных структур (более детальное исследование будет дано в главе 2.2). В спектрах пропускания наблюдаются два минимума, положения которых значительно отличается с изменением периода решетки (см. рис. 2.3). Так коротковолновая полоса (КП) не меняет своего положения с изменением периода решетки, а длинноволновая полоса (ЛП) сдвигается в область длинных волн с увеличением периода решетки. Для структуры с периодом**D** = 400 нм в спектрах пропускания наблюдается еще одна полоса, положение которой сильно меняется с изменением угла падения света.



**Рис. 2.3. (а) Спектры пропускания при нормальном падении излучения на структуру с периодом 200б 300 и 400 нми (b)Спектр пропускания при угле падения 35 градусов излучения на структуру с периодом 400 нм; (Рисунок а – поменять )**

Рассмотрение магнитооптического (МО) отклика в экспериментальных образцах начнем с обсуждения экспериментальной установки. Образец помещался на гониометр с точностью позиционирования 1 градус.Детектором прошедшего излучения являлся спектрометр с разрешающей способностью 1нм. Магнитооптические измерения были проведены при приложении внешнего магнитного поля 3 кГс, которое являлась насыщающим для исследуемых структур в геометрии Фохта. Характеристикой МО отклика являлся магнитный контраст  где Т(+) и T(-)– коэффициенты пропускания образца при противоположных направлениях внешнего магнитного поля. На рис. 2.4 a)-c) приведены спектры пропускания и МО отклик для экспериментальных образцов, измеренных при угле падения в 45 градусов. Максимальный МО отклик наблюдается для структуры с периодом **D** = 200 нм. Для структуры с периодом **D** = 400 нм при угле падения 35 градусов в спектрах пропускания в области ЛП присутствуетволноводная мода и в данном случае наблюдается значительный магнитный контраст вплоть до 0.1 %, сопровождающееся дополнительной сменой его знака.(см. рис. 2.4 d)).



**Рис. 2.4. (а) –(с) Спектры пропускания и МО для структур с периодом 200, 300 и 400 нмпри угле падения 45 градусов (d)Спектр пропускания и МО при угле падения 35 градусов излучения на структуру с периодом 400 нм.**

Прежде чем приступим к обсуждению механизма усиления МО отклика, заметим, что линейный по намагниченности интенсивностный эффект в магнитной пленке в проходящем свете наблюдаться не будет если магнитная пленка окружена симметричными границами при намагничивании в геометрии Войта. Появление намагниченности в нашем случае можно объяснить несимметричностью границ раздела пленки Bi:YIG вследствие наличия на границе раздела Bi:YIG/кварц золотых нанодисков.С уменьшением периода решетки D происходит увеличение поверхностной плотности золота, что увеличивает разницу эффективной проницаемости приграничных слоев Bi:YIG и, следовательно, приводит к возрастанию ρ. И магнитный контраст увеличивается от значения 0.5 \*10 -3 до 3 \* 10 -3 с уменьшением периода решетки D = 400 нм до 200 нм.

В случае, когда в области ЛП появляется волноводная мода (рис. 2.4 d)), то магнитный контраст увеличивается на один порядок до значения 1\*10-3. Это увеличение связано с зависимостью дисперсии волноводной моды от намагниченности. (добавить в лит обзор формулу).

2.1.2. Магнитооптический отклик 1D решетки из золотых полосок, покрытых слоем пермаллоя в фарадеевской геометрии

-----

2.2. Плазмонные резонансы двумерной решетки из металлических частиц внутри диэлектрического слоя: поляризационные особенности

Структуры, описанные в 2.1.1 имеют ряд особенностей. В спектрах пропускания при нормальном падении наблюдаются два минимума (см. рис.2.3 а) – с)). Положениям этих минимумов соответствует ЛПР в коротковолновой области и РППР в длинноволновой области.

Как видно из графиков, положение ЛПР слабо меняется с изменением периода решетки **D.** Условие для возбуждения данного вида резонанса описывается теорией Ми и для  
сферической наночастицы определяется следующимвыражением:

, где *ε*Au и *ε*Bi:YIG- диэлектрические проницаемости Au и Bi : YIG. Действительно, например, Re*{ε*Au(*λ* = 597 нм)*} ≈ -*10*.*5 и2*ε*Bi : YIG(*λ* = 597 нм) *≈* 10*.*5 для образца с *D*1 *≈* 200 нм. Отметим, что различие в спектральныхположениях полосы ЛПРдля исследованных образцов может быть объяснено неодинаковым размером наночастиц для разных периодов решетки, а также конечностью толщины слоя Bi:YIG, в котором золотые частицы чувствуют не только окружение Bi:YIG, но и границу Bi : YIG/воздух.

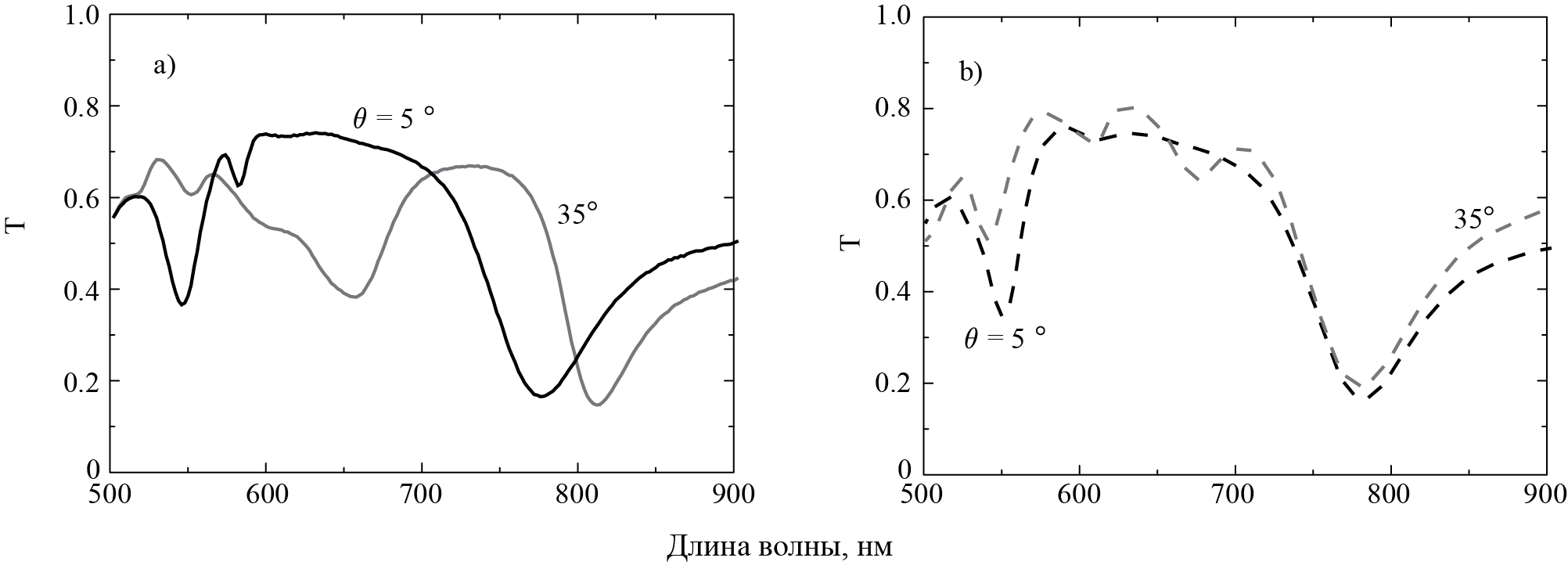
Перейдем к рассмотрению длинноволновой особенности, связанной с возбуждением РППР. В соответствии с работами [Maier] спектральное положение длинноволновой полосы определяется диполь-дипольным взаимодействием наночастиц, когда период решетки **D** является определяющим параметром. Действительно, для образцов, исследованных в геометрии нормального падения, оказалось, что спектральное положение длинноволновой полосы хорошо описывается дифракционным условием:

 (1)

, где m=1, D – период решетки, neff-эффективный показатель преломления, вычисленный по формуле Максвелла- Гарнетта для сферических наночастиц в слое Bi:YIG: (2)

,где V- объемная доля золотых наночастиц, nBi:YIG–показатель преломления слоя Bi:YIG.

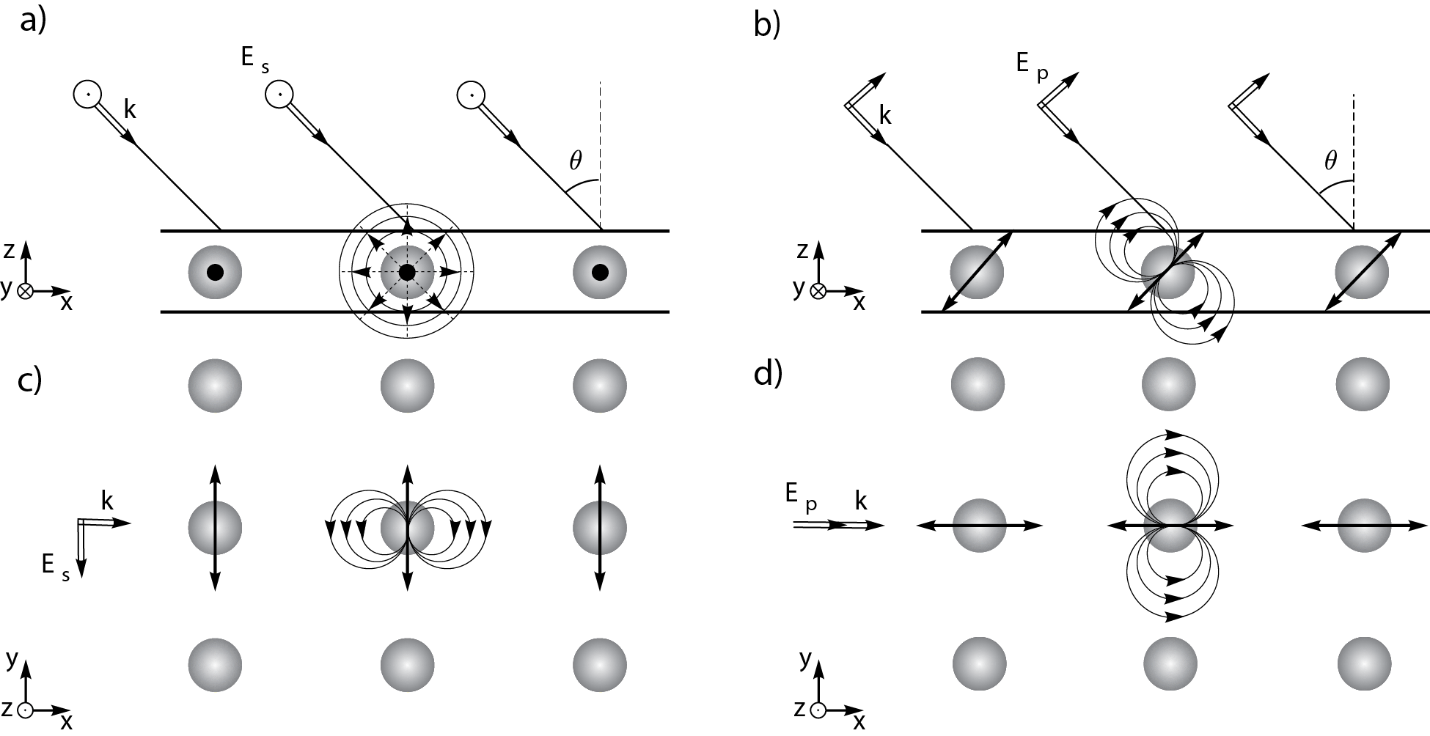
Перейдем к рассмотрению поляризационных особенностей исследованных структур. На рис. 2.5 представлены спектрально-угловые спектры для структуры с периодом 400 нм для s – и p–поляризаций. Для p-поляризованного света в длинноволновой области происходит незначительное смещение РППР, в то время как для s-поляризованного света РППР значительно смещается с изменением угла падения.



**Рис.2.5Спектры пропускания для структуры с периодом *D* = 400 нм для падающего a) p-поляризованного света b) s-поляризованного света**

Для объяснения данной особенности мы представим наночастицу как излучающий электрический диполь. В случае s-поляризованного света, взаимодействие между наночастицами происходит вдоль оси kx и наночастицы излучают с фазовой задержкой, так как есть разность хода ***D***sinθ. Поэтому в спектрах пропускания положение РППР смещается с изменением угла падения. Такого смещения не наблюдается в случае p-поляризованного излучения, так взаимодействуют наночастицы вдоль оси OY, а излучение происходит вдоль оси OX (см. рис. 2.6).

Проанализируем данное смещение РППР для s-поляризованной волны.



**Рис.2.6. Иллюстрация к объяснению спектрального смещения РППР в случае наклонного падения *s*-поляризованного (а,c) и *p*-поляризованного (b,d) света на исследуемую структуру: a,b— вид сбоку; c,d— вид сверху**

Проанализируем данное смещение РППР для s-поляризованной волны. Мы выяснили, что при наклонном падении света на наноструктуры, наночастицы начинают излучать с задержкой фаз из-за наличия разности хода BC. Взаимодействие между наночастицами происходит вдоль оси OX, поэтому проекция BC на ось OX и будет ответственна за сдвиг РППР (рис.2.8 a)), т.е.

Таким образом, мы можем аппроксимировать смещение резонанса как

 (3)

, где λ0-спектральное положение РППР при θ=0. На рис.2.7b) представлена зависимость положения РППР для структур с периодом D 200, 300и 400 нм в зависимости от угла падения, полученная экспериментально, на основании модели и на основании формулы (1).

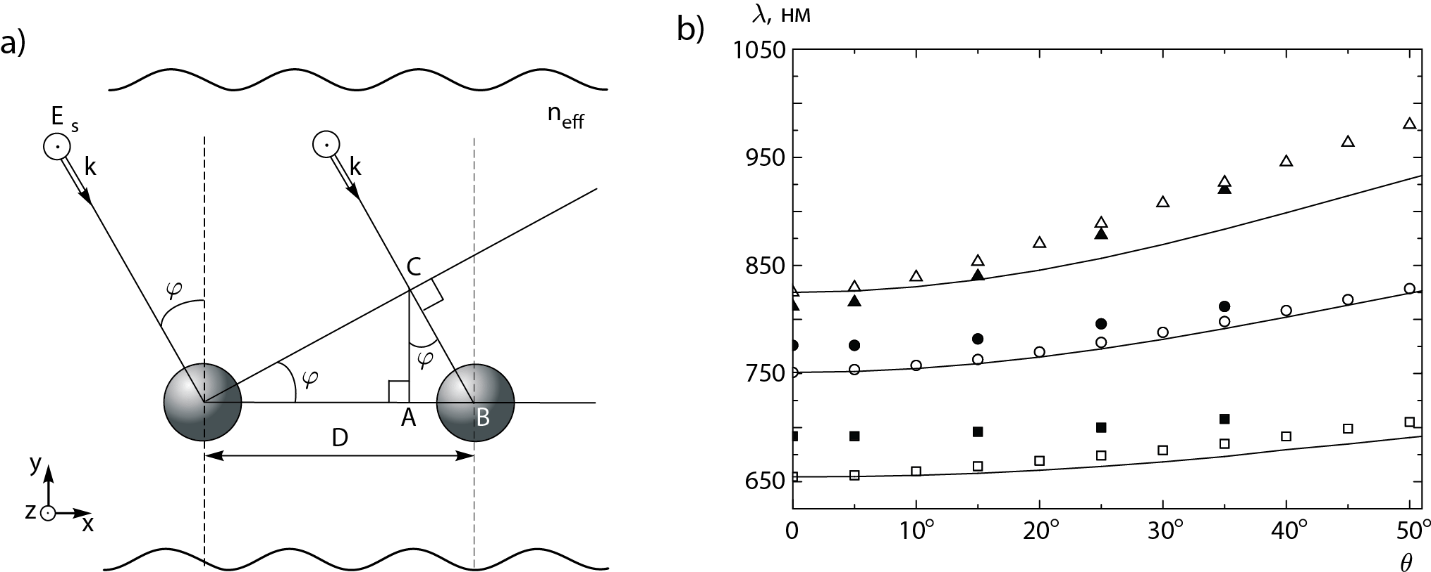
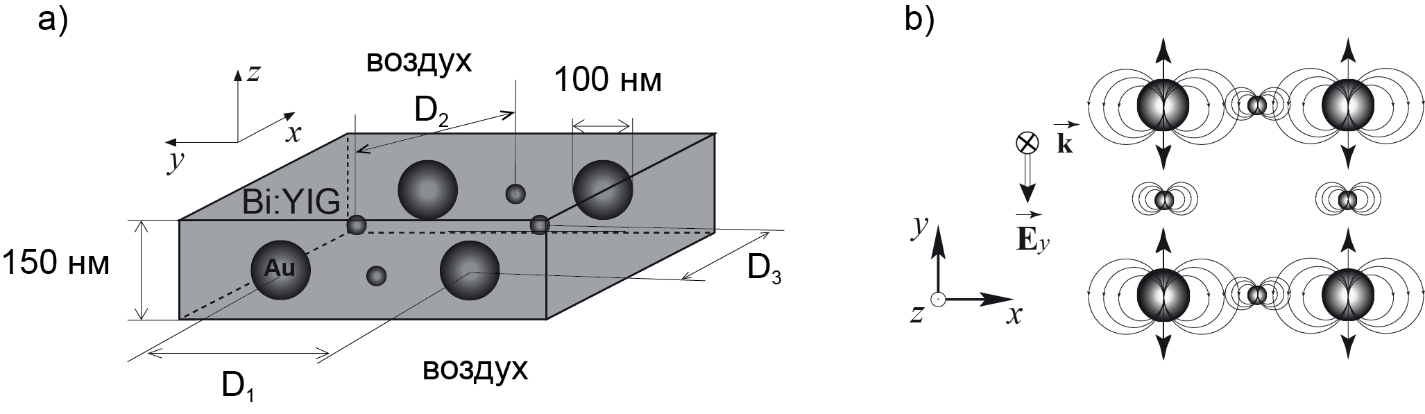


Рис. 2.7a) Иллюстрация к объяснению спектрального смещения РППР в случае наклонного падения *s*-поляризованного света. b) Зависимости спектрального положения РППР от угла падения *θ* для структур с *D*= 200 нм (квадраты), *D* = 300 нм(кружки) и *D* = 400 нм (треугольники): расчет — светлые символы; эксперимент — темные символы; сплошные линии — спектральное положение РППР согласно зависимости

2.3. Магнитооптический отклик 2Dвложенных решеток при изменения эффективного показателя преломления

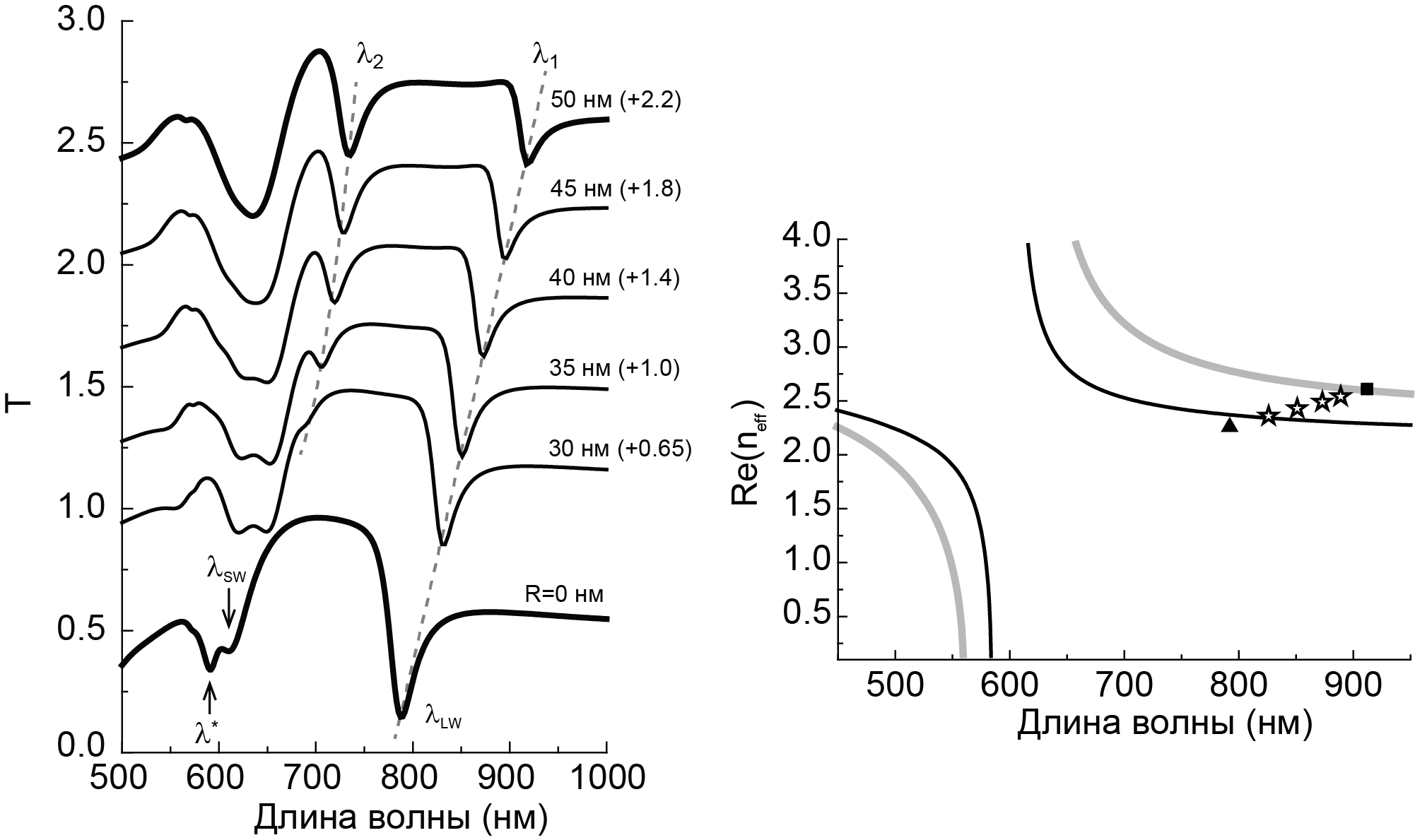
Согласно формуле (1) спектральное положение РППР зависит от эффективного показателя преломления neffи от периода решетки**D**. В предыдущей части были рассмотрены структуры с разными периодами решетки, тем самым мы рассмотрели один из способов управлять спектральным положением РППР. Другой способ может быть реализован за счет изменения эффективного показателя преломления, а точнее за счет изменения объемной доли наночастиц в решетке.

Рассмотрим простую квадратную решетку из металлических наночастиц (Au) и поместим в нее дополнительные наночастицы такого же материала (дополнительная решетка), формирующие вложенную двумерную (2D) решетку, расположенную в магнитной матрице висмут-замещенного железоиттриевого граната (Bi:YIG). Структура для которой проведены численные расчеты представлена на рис. 2.8.Такая модель была выбрана для простоты: ближние поля в окрестности золотых наносфер одинаково проникают в граничащие диэлектрические среды. Радиусынаносфер (**r**) простойквадратнойрешеткисоставляли 50 нм. Периоды решеток (**D1**) и радиусы дополнительных наносфер (**R**) являлись варьируемыми параметрами. Период дополнительной решетки, а координаты узлов дополнительной решеткисоставляли, **D3** = **D1/**2 . Как видно изрис. 2.8вложенная 2D решетка обладает четырехкратной вращательной симметрией – это значит, что для вложенной 2D решетки нет оптической анизотропии падающего линейно-поляризованного излучения в геометрии нормального падения.



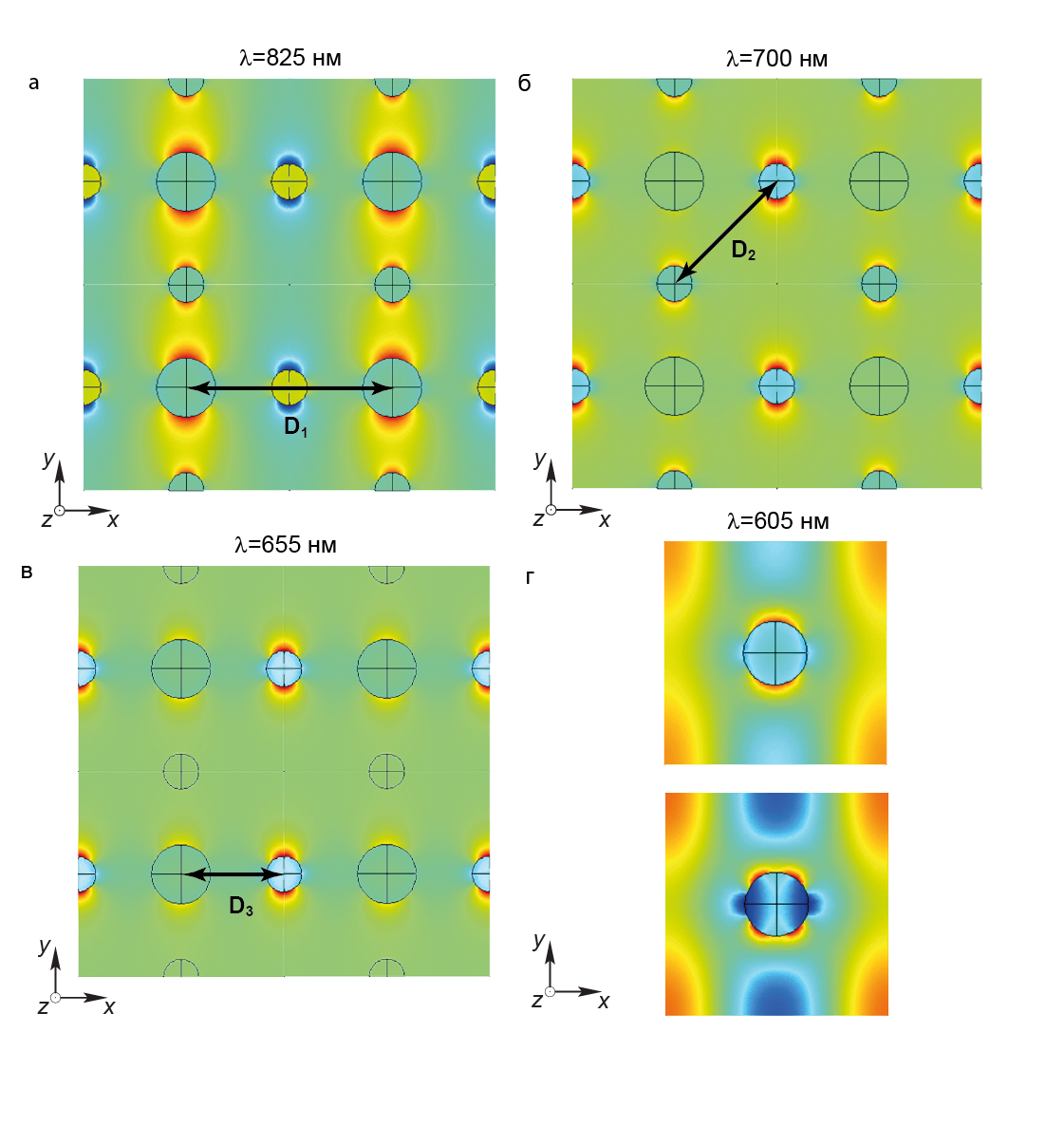
**Рис. 2.8. (a) Расчетная модель для вложенной 2D решетки из золотых наносфер. b)Диполи, наведенные E*y*-волной на наночастицах в решетках.**

На рисунке 2.9 приведены расчетные спектры пропускания наноструктурAu-Bi: YIG с вложенными двумерными решетками. Видно, что спектры пропускания имеют несколько полос поглощения. Спектральные положения двух LW-сдвинутых полос ЛППР (λ1 и λ2) определяются периодами **D1** и **D2**, их спектральные позиции сдвигаются по мере изменения R (показаны серыми пунктирными линиями) и находятся в хорошем согласии с уравнениями (1) и (2) (см. квадратные и треугольные символы на рис.2.9 b)).



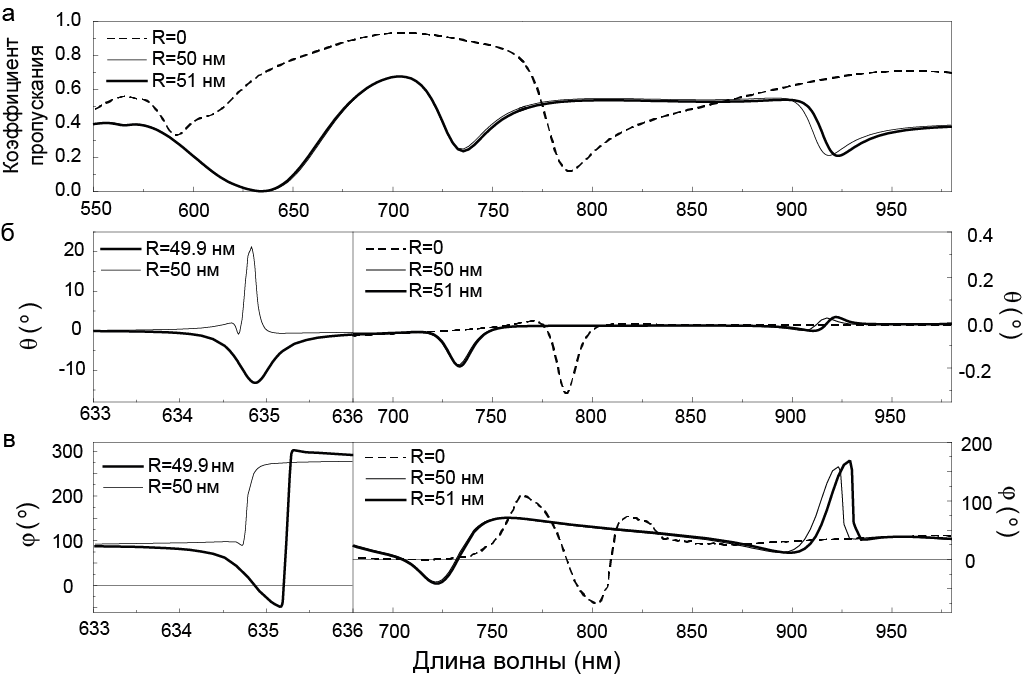
**Рис. 2.9. (a) Расчетные спектры пропускания для вложенной 2D решетки Au-Bi:YIGнаноструктуры. Спектры пропускания имеют вертикальный сдвиг; радиус наносферR и сдвиг по вертикальной оси (+) приведены на правой части графикаb) Зависимости эффективного показателя преломления (*neff*), вычисленные по формуле Максвелла Гарнетта для простой квадратной 2D решетки (черная линия) и для вложенной 2D решетки (серая линия). Для обеих структур был выбран параметр D1 = 350 нм, при этом для вложенной решетки R = 50 нм и D2 ≈ 247 нм. Черные символы представляют *n*eff, полученное из расчетных спектров: простая квадратная 2D решетка (черный треугольник), вложенная 2D решетка с R = 50 нм (черные квадраты), вложенная решетка с R = 30, 35, 40, 45 нм – полые звезды и полые ромбы для ЛППР(D1) и ЛППР(D2) соответственно.**

Полезно визуализировать распределение напряженности **Ey** для этих резонансов; изображения, показывающие такие распределения, представлены на рис. 2.10. Диполь-дипольное взаимодействие между наночастицами, разделенными периодом **D1**и находящимися в противофазе с рассеивателем дополнительной решетки, является причиной полосы ЛППР (**D1**) при λ1 (см. рис a). Но для λ2, все наночастицы вложенной двумерной структуры взаимодействуют синфазно и отвечают за полосу ЛППР (**D2**)при λ2 (см. рис. b). Наконец, можно выделить пик на длине волны 630 нм (R = 50 нм), который также описывается уравнением (1) для наночастиц, взаимодействующих синфазно для частиц на расстоянии **D3** = **D1** / 2 (см. рис.c). В этом спектральном диапазоне (550-650 нм) ЛППР (**D3**), дипольный и квадрупольный резонансы перекрываются, а распространение света уменьшается с ростом R.



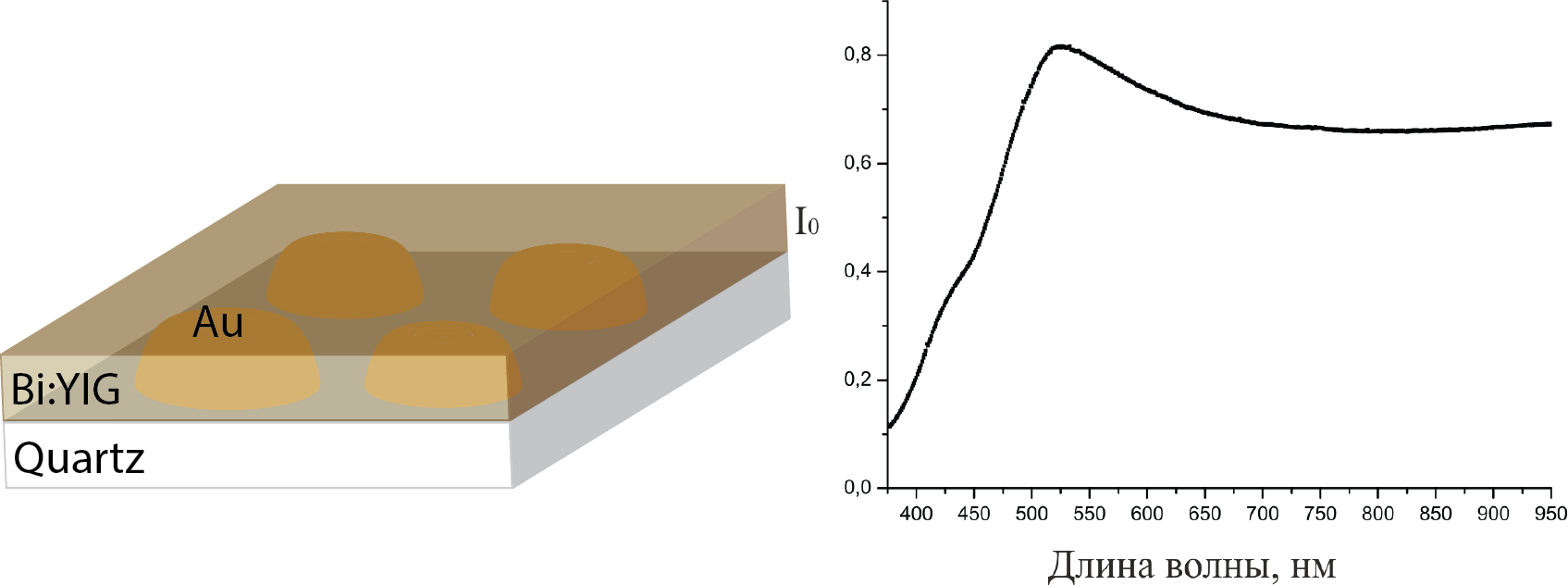
**Рис. 2.10. Распределение Ey компоненты поля для вложенной решетки из золотых наносфер с значениями r = 50 нм и R = 30 нм для λ1 = 825 нм (a), λ2 = 655 нм (б), λ3 = 700 нм (в) и λSW = 605 нм (г), соответственно. На изображении (г) представлены дипольное и квадрупольное распределения поля в окрестности наночастиц для r = 50 нм и R = 0, полученные при разных значениях фазы падающей волны. Для (а)-(в) изображения представлены для одинакового значения фазы, при которой достигается максимум поля.**

Прежде чем обсуждать МО отклик вложенной 2DAu-Bi: YIG наноструктуры (рис .2.11), важно указать, что ненамагниченная структура не имеет оптической активности: нет поворота плоскости поляризации. По аналогии с результатами, приведенными в [BaryshevJOSAB], отклик МО увеличивается в области ЛППР. Коэффициент пропускания выбранной вложенной двумерной структуры (**D1** = 350 нм, R = 50 нм) близок к нулю в диапазоне SW. Интересно, что знак θ(λ) в окрестности λ1 такой же, как знак θ(λ) в окрестности длины волны λ2. Более того, для SW диапазона незначительное изменение радиуса R приводит к резкому изменению знака МО отклика при λ3= 630 нм (см. левый график на рис. 2.11 (b), (c)). Еще одна интересная особенность в спектрах, которая заключается в том, что наличие дополнительных рассеивателей, имеющих координаты (i**D3**x, j**D3**y), не только изменяют знак поворота плоскости поляризации Bi: YIG в окрестности λ1, но также сильно влияют на спектральное положение LSPR (**D1**). Небольшое изменение радиуса R приводит к следующим спектральным сдвигам: Δλ1 ≈ 5 нм и Δλ2 ≈ 1 нм при ΔR = 1 нм. Наблюдаемые особенности, как видно на рис. 5 (а), возникает из-за несинфазного колебания поля на соседних наночастицах, расположенных вдоль оси х. Напротив, синфазное диполь-дипольное взаимодействие соседних наночастиц в случае ЛППР (**D2**) - вероятная причина, по которой реакция МО не меняет знак вблизи λ2. Стоит отметить, что в области усиленного вращения плоскости поляризации выходящий из слоя Au-BiYIG свет в основном эллиптически поляризованный (см. рис. 2.11 (b) и (с)); а свет с длиной волны 635нм и 733нм линейно поляризованный.



**Рис. 2.11. (а) Расчетный спектр пропускания, (б) угла поворота плоскости поляризации и (в) и сдвиг фаз между E*x* и E*y* компонентами падающей волны для вложенной 2D решетки из золотых наносфер с D1 = 350 нм. Спектры обладают сильной чувствительностью к малым изменениям R. Оптические спектры простой квадратной решетки из золотых наносфер с D1 = 350 нм приведены для сравнения.**

2.4. Магнитоиндуцированный нелинейный отклик при возбуждении решеточного плазмонного резонанса

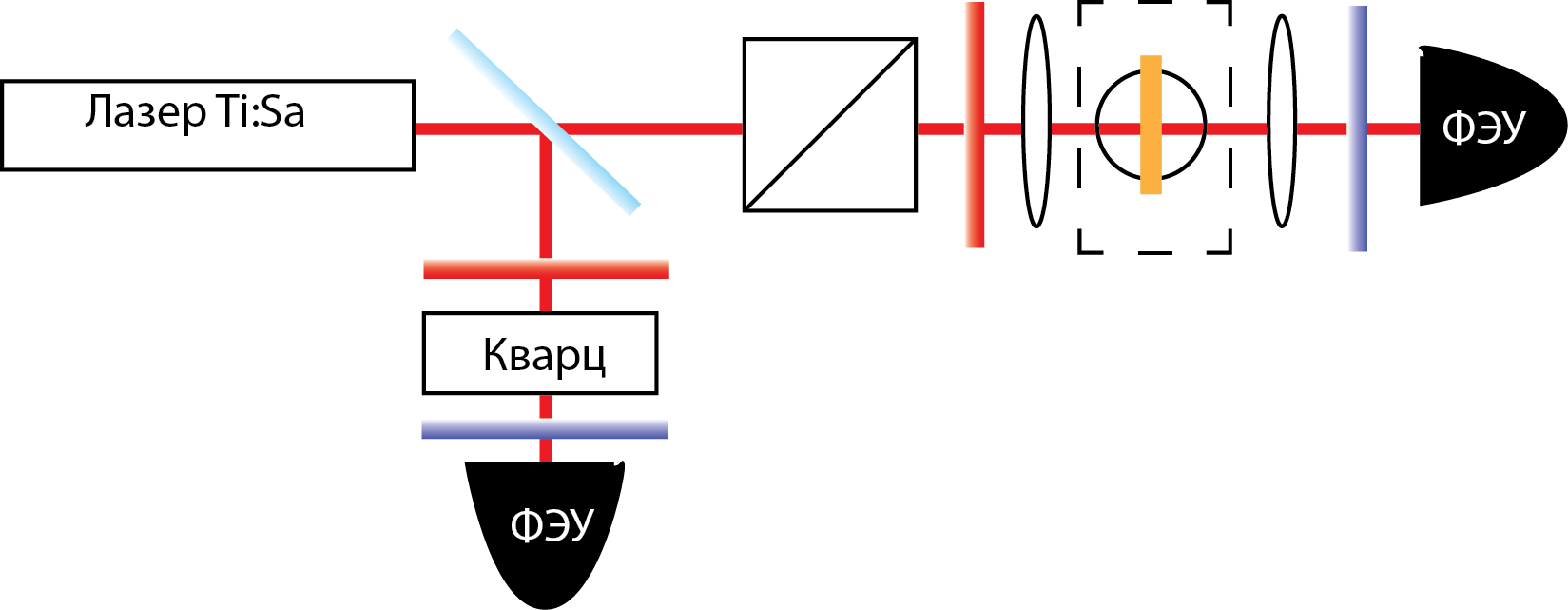
Прежде чем приступить к описанию свойств магнитооптического нелинейного эффекта в 2D решетке из золотых наночастиц и Bi:YIG, определим какие компоненты входят в результирующую вторую гармонику. 

**Рис.2.12. a) Эскиз исследуемой структуры b) Спектр пропускания Bi:YIG.**

На рис. 2 .12 а) приведен эскиз исследуемой структуры на основе атомно – силовой микроскопии и растрового микроскопа. Так как все материалы из которых изготовлен образец (Bi:YIG, Au и плавленый кварц ) – центросимметричны, то основной вклад в результирующую ВГ будет от поверхностей Au/Bi:YIG, воздух/Bi:YIG, кварц/Bi:YIG.

Представляющие интерес поверхности - Au/Bi:YIG и воздух/Bi:YIG поэтому, учитывая сильное поглощение Bi:YIG в диапазоне длин волн 375-425 нм (см. рис.2.12 b)), излучение накачки необходимо направить со стороны подложки из кварца

Для измерения нелинейных эффектов была собрана установка, изображенная на рис. 2.13.

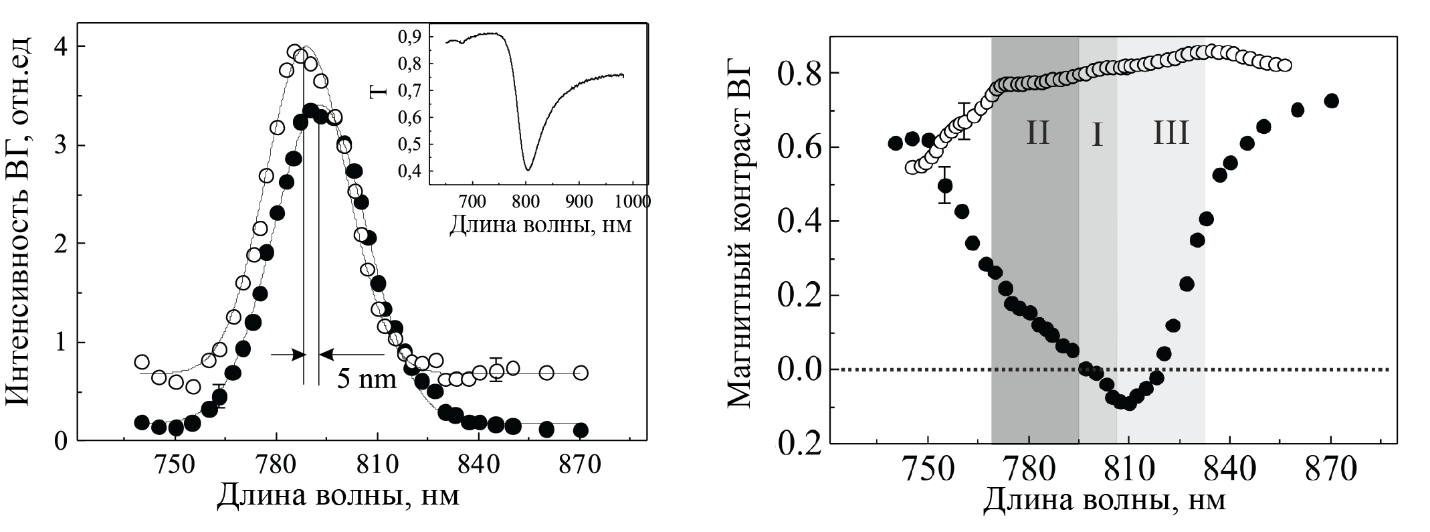


**Рис.2.13 Установка для измерения магнитоиндуцированной ВГ от плазмонного образца.**

Измерение эффектов проводилось с помощью фемтосекудного титан-сапфирового лазера с перестраиваемой длиной накачки от 740 до 855 нм. Длительность импульсов была 100 фс, частота следования - 80 МГц.

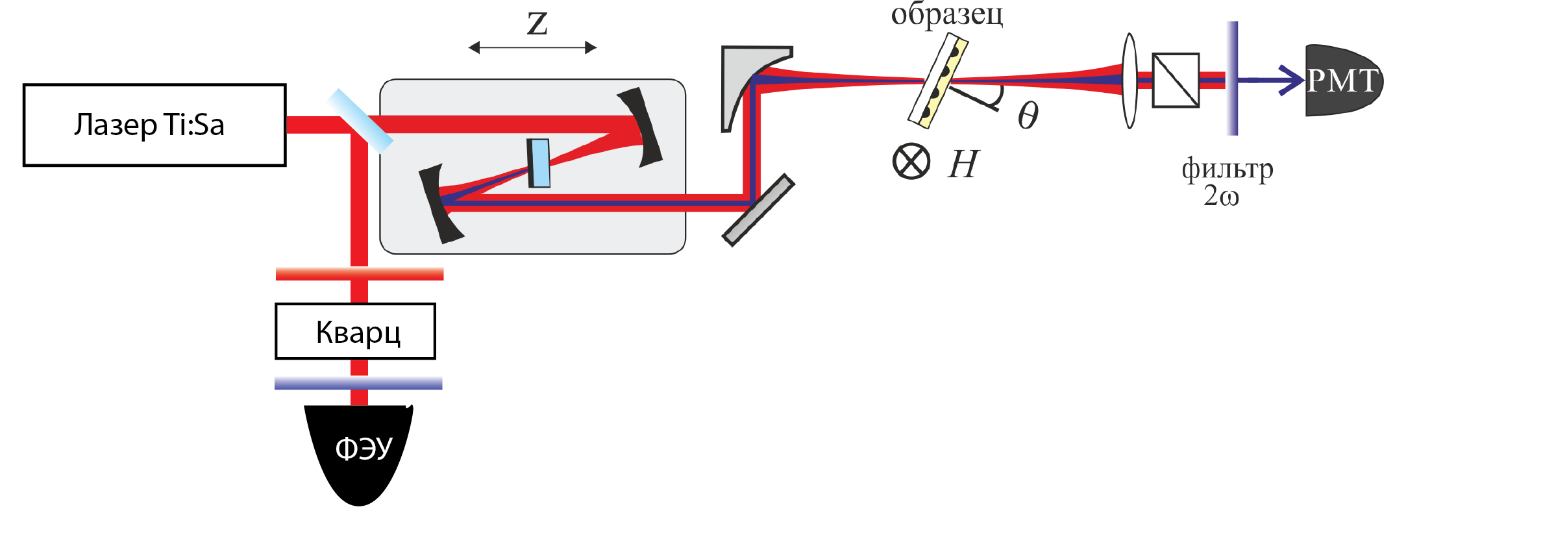
В главе 2.1.1 было продемонстрировано, что в области РППР наблюдается линейный магнитооптический эффект в геометрии Фохта. Этот эффект обусловлен зависимостью спектрального положения РППР от диэлектрической проницаемости Bi:YIG при его намагничивании. Спектральный сдвиг не превышает 0.5 нм.

В случае нелинейно-оптических исследований спектры интенсивности ВГ измеренные при p-поляризованном излучении накачки и угле падения θ = 150 при противоположных значения статического поля сдвинуты относительно друг друга на 5 нм (см. рис. 2.14). На вставке продемонстрирован линейный спектр пропускания при θ = 150 . Усиление ВГ связано с тем, что мы находимся в области РППР.



**Рис. 2.14 Интенсивность ВГ, измеренная при противоположных магнитного поля, p- поляризованная волна, угол падения 150, спектр пропускания для угла падения 150 (на вставке). b) Экспериментальный спектр магнитного контраста ВГ при угле падения 150**

Вычислим магнитный контраст по формуле (1.2.9):. Аналогичные измерения были проведены для однородной пленки Bi:YIG (см. рис. 2.14). Важно, что, несмотря на постоянный знак *ρ*2ω для однородной Bi:YIG пленки, зависимость ρ2ω(λ) для образца (сплошные точки на рис. 2.14, (b)) меняет знак дважды в спектральной окрестности решеточного плазмона. В то же время, в нерезонансной области значения близки к тем, что получены для однородной пленки.



**Рис. 2.15. Установка для измерения интерферометрии ВГ.**

Для получения полной информации о магнитном контрасте ВГ необходимо исследовать вклад фазовых параметров взаимодействующих компонент ВГ, так как согласно формуле 1.2.9 ρ2ω зависит от разности фаз между магнитной и немагнитной компонентой. Данная зависимость может быть получена с помощью интерферометрии ВГ(схематически установка представлена на рис. 2.15).

Пленка оксида индия-олова (Indium Tin Oxide, ITO) была выбрана как эталонный источник ВГ. Чтобы обеспечить постоянную высокую эффективность генерации ВГ от пленки оксида индия-олова, она была помещена в фокальной плоскости пары вогнутых зеркал. Вторая гармоника от пленки оксида индия- олова далее падает вместе с излучением накачки на исследуемый образец. Два зеркала и эталонный образец помещены на транслятор, как показано на рис.2.15. Это позволяло изменять расстояние Z между эталонной пленкой и образцом, таким образом изменяя разность фаз между волной накачки и ВГ вследствие наличия дисперсии воздуха. Важно, что больше в схеме нет никаких элементов между оксидом индия-олова и образцом, вносящих разность фаз.

Данный сдвиг фаз был рассчитан на основании работы [*Murzina T. V., Kolmychek I. A., Nikulin A. A., Gan’shina E. A., Aktsipetrov O. A.* Plasmonic and magnetic effects accompanying opticalsecond-harmonic generation in Au/Co/Au nanodisks // *JETP Letters*.   
2009. — Vol. 90, no. 7. — Pp. 504–508].

Формула (1.2.8) может быть переписана следующим образом:

, где

 и .

Тогда магнитный контраст можем записать следующим образом:

 (1)

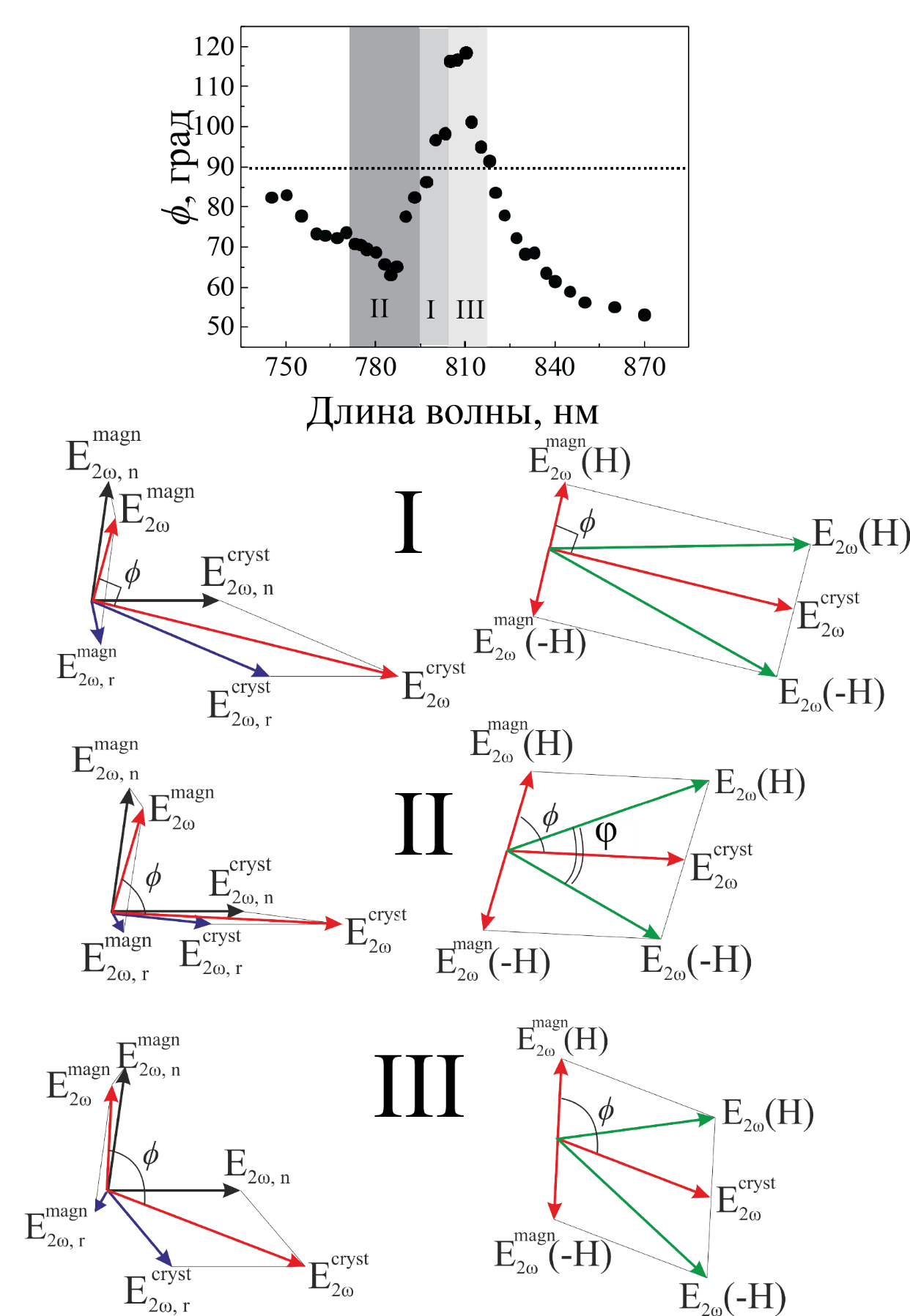
Данные интерферометрии ВГ позволяют получить разность фаз между полями ВГ для противоположных значений намагниченности ***M***, а именно величину: . (2)

Таким образом решая систему из уравнений (1) и (2) можем получить



На основании экспериментальных данных Δφ и ρ была рассчитана величина . Полученная зависимость  изображена на рис. 2.16. Видно, что в диапазоне длин волн 740-870 нм значение φ близко к π/ 2. Кроме того, минимум и максимум наблюдаются на длинах волн вблизи резонанса. Таким образом, спектральный сдвиг максимума ВГ вследствие приложения магнитного поля связан с изменением фазы.

Как было сказано выше, возможные источники кристаллографической и магнитоиндуцированной ВГ в спектральной окрестности РППР – это граница раздела Au/Bi:YIG, воздух/Bi:YIG, кварц/Bi:YIG. Вклад от границы воздух/Bi:YIG, кварц/Bi:YIG нерезонансный (см. рис.2.15 b)), а вклад от границы раздела Au/Bi:YIG является резонансым. Таким образом, регистрируемый сигнал кристаллографической ВГ получается как сумма резонансного  и нерезонансного вкладов. Аналогично, магнитоиндуцированное поле второй гармоники .



**Рис.2.16. Экспериментальный спектр фазы между магнитоиндуцированным и кристаллографическим полями на частоте ВГ и возможные комплексные компоненты, входящие в нелинейную поляризацию.**

Тогда возможные векторные диаграммы взаимодействующих полей ВГ в резонансном случае (область I на рис. 2.16). Черные стрелки означают нерезонансные, синие - резонансные, а красные - результирующие кристаллографическое и магнитоиндуцированное поля. Можно подобрать амплитуды и фазы полей таким образом, что угол *ϕ* между результирующими и  окажется равным π/2. Как видно на схеме  
на рис. 2, (b), в таком случае экспериментально наблюдаемые интенсивности I2ω(H) = I2ω(- H), таким образом, магнитный контраст равен нулю (область (I) на рис. 2.16). Другая ситуация наблюдается в случае, когда длина волны излучения накачки меньше резонансной (область, обозначенная (II) на рис. 2.16. Красные стрелки - результат векторного суммирования  
соответствующих полей  или . Тогда *ϕ* < π/ 2, I2ω(H) > I2ω(- H) и ρ2ω > 0 (область (II) на рис. 2.16). Случай, когда длина волны излучения накачки превосходит резонансную (область (III) на рис. 2.16). В области (III) φ > π/ 2, I2ω(H) < I2ω(- H) и ρ2ω < 0. Таким образом, мы продемонстрировали, что приложение магнитного поля индуцирует спектральные изменения фазы ВГ, что объясняет наблюдаемый спектральный сдвиг интенсивности ВГ.

Выводы по главе 2: …..