

На правах рукописи

Мурзина Татьяна Владимировна

**НЕЛИНЕЙНО-ОПТИЧЕСКИЕ ЭФФЕКТЫ  
В СЕГНЕТОЭЛЕКТРИЧЕСКИХ И  
МАГНИТНЫХ НАНОСТРУКТУРАХ**

Специальность **01.04.05** – оптика

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени

доктора физико-математических наук

Москва – 2010

Работа выполнена на кафедре квантовой электроники Физического факультета Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова.

**Официальные оппоненты:**

доктор физико-математических наук,  
профессор Емельянов Владимир Ильич  
Московский государственный университет  
имени М.В. Ломоносова, Физический факультет

доктор физико-математических наук,  
профессор Красильник Захарий Фишелевич  
Институт физики микроструктур РАН  
(г. Нижний Новгород)

доктор физико-математических наук,  
профессор Очкин Владимир Николаевич  
Физический институт им. П.Н. Лебедева РАН  
(г. Москва)

**Ведущая организация:**

РАН  
Институт общей физики имени А.М. Прохорова  
(г. Москва)

Защита состоится 17 февраля 2010 г. в 15 часов на заседании совета по защите докторских и кандидатских диссертаций Д 501.001.45 при Московском государственном университете имени М.В. Ломоносова по адресу: Россия, 119991, Москва, Ленинские горы, дом 1, строение 5 (19 корпус НИИ ядерной физики МГУ) в ауд. 2-15.

С диссертацией можно ознакомиться в научной библиотеке НИИ ядерной физики имени Д.В. Скобельцына МГУ имени М.В. Ломоносова.

Автореферат разослан 14 января 2010 г.

Ученый секретарь совета по защите  
докторских и кандидатских диссертаций Д 501.001.45,  
кандидат физико-математических наук

О.М. Вохник

## Общая характеристика работы

Диссертационная работа посвящена исследованию квадратичных и кубических нелинейно-оптических эффектов в наноструктурах сегнетоэлектрических и магнитных материалов - наноструктурированных пленках сегнетоэлектриков и сегнетомагнетиков, наночастицах и нанослоях магнетиков, магнитофотонных кристаллах. Изучение данного класса объектов представляет интерес как с точки зрения наблюдения в них новых фундаментальных эффектов, не проявляющихся в объемных материалах, так и с точки зрения их практического использования, прежде всего в устройствах оптоэлектроники.

Вопросы взаимодействия света с веществом привлекают внимание исследователей в течение длительного времени. Изобретение лазерных источников света привело к значительному расширению круга явлений, доступных для экспериментального изучения, в частности, бурное развитие получила нелинейная оптика [1]. Наиболее простым нелинейно - оптическим эффектом является генерация оптических гармоник. В нелинейной среде, взаимодействующей с интенсивным световым полем, всегда присутствуют эффекты самовоздействия света - нелинейной рефракции и поглощения. Присутствие внешних воздействий, таких как статические магнитное или электрическое поле, механическое напряжение, дополнительная подсветка, также может приводить к модификации взаимодействия света с нелинейной средой. Круг нелинейно - оптических эффектов очень широк и представляет как самостоятельный интерес для исследования, так и является мощным инструментом для изучения основных свойств материалов.

Преимуществами нелинейно - оптических методов исследования являются их высокая чувствительность к основным свойствам твердотельных систем - морфологическим, электронным, симметричным, магнитным, сегнетоэлектрическим и др. [2]. Особый интерес представляют нелинейно - оптические эффекты четного порядка, в первую очередь генерация второй оптической гармоники (ВГ). Основной особенностью процесса генерации ВГ является его высокая чувствительность к состоянию поверхностей, границ раздела и наноструктур, что обусловлено существованием симметричного запрета на генерацию ВГ в объеме centrosymmetric сред в электродипольном приближении. Таким

образом, источники генерации ВГ пространственно локализованы в областях, где центр инверсии отсутствует, т.е. на границах раздела centrosимметричных сред и в наноструктурах. В то же время, генерация третьей оптической гармоники (ТГ) разрешена в среде любого класса симметрии. Поэтому сравнительный анализ этих нелинейно - оптических явлений носит взаимодополняющий характер, отражая свойства поверхности и объема среды.

Нелинейная магнитооптика является относительно новой областью исследования. Первые эксперименты по генерации магнитоиндуцированной ВГ в пленках железо - иттриевого граната были выполнены в конце прошлого века [3]. Тогда же было показано теоретически и экспериментально, что магнитные эффекты при генерации ВГ могут значительно превосходить величины соответствующих линейных магнитооптических аналогов [4]. В магнитных средах одновременное нарушение симметрии по отношению к инверсии времени и пространственной инверсионной симметрии на поверхностях и границах раздела, обусловленное разрывом кристаллической структуры, приводит к появлению дополнительных, магнитоиндуцированных, компонент тензора квадратичной восприимчивости, что обуславливает появление поверхностной (интерфейсной) магнитоиндуцированной второй гармоники. Следует заметить, что до настоящего времени практически вся нелинейная магнитооптика концентрировалась на исследовании квадратичных нелинейно - оптических эффектов, а то обстоятельство, что для магнитных наноструктур генерация и третьей оптической гармоники (ТГ) может быть весьма информативна, обходилось вниманием и генерация магнитоиндуцированной ТГ ранее практически не наблюдалась.

В наноструктурах возможно наблюдение новых явлений, отсутствующих в случае объемных материалов. К их числу относятся в первую очередь эффекты размерного квантования, играющие наиболее заметную роль в полупроводниковых структурах. Для наноструктурированных материалов становится важной, если не определяющей, роль поверхностей и скрытых границ раздела, вклад которых в формировании основных свойств материала оказывается сравнимым с вкладом "объема" вещества и может приводить к появлению таких эффектов, как изменение точечной группы симметрии поверхности кристалла, сегнетоэлектрической и магнитной температуры Кюри, типа фазовых

переходов и другим эффектам. Для магнитных наноструктур можно отметить появление таких эффектов, как осцилляции обменного взаимодействия между магнитными слоями, разделенными немагнитной прослойкой, спин - зависящие рассеяние и туннелирование, гигантское магнитосопротивление. Появление как нового круга явлений, так и объектов исследования стимулировало развитие новых, в том числе нелинейно - оптических, методов их диагностики.

Целью диссертационной работы является экспериментальное исследование нелинейно - оптических эффектов второго и третьего порядков в наноструктурах на основе магнитных и сегнетоэлектрических материалов: генерации второй и третьей, в том числе магнитоиндуцированных оптических гармоник, кубичных эффектов самовоздействия света, усиления нелинейно - оптического отклика в плазмонных и пространственно - периодических структурах.

Актуальность работы обусловлена возросшим интересом физики функциональных материалов, таких как сегнетоэлектрики и магнетики, к изучению нано- и микроструктур этих материалов, имеющих широкие перспективы по практическому использованию в твердотельной электронике и в которых возможно наблюдение новых физических эффектов. В диссертационной работе развиты нелинейно - оптические методы, основанные на явлениях генерации второй и третьей оптических гармоник, а также эффектов светового самовоздействия, для изучения магнитных и сегнетоэлектрических нано- и микроструктур. Продемонстрированы уникальные возможности этих методов по невозмущающей диагностике сверхтонких поверхностных слоев и наноструктур, связанные с особенностями нелинейно - оптического взаимодействия лазерного излучения с сегнетоэлектриками и магнетиками и открывающие новые перспективы в их диагностике.

Научная новизна результатов, представленных в диссертационной работе, состоит в обнаружении и исследовании ряда новых эффектов в нелинейно - оптическом отклике магнитных и сегнетоэлектрических нано- и микроструктур, а именно:

- В напряженных эпитаксиальных пленках сегнетомагнетика феррита висмута наблюдается значительное снижение сегнетоэлектрической температуры Кюри; развита нелинейно - оптическая методика комплексной диагностики структурных, магнитных и сегнетоэлектрических свойств сегнетомагнетиков.

- Методом генерации второй оптической гармоники обнаружены сегнетоэлектрические свойства в предельно тонкой одномерной планарной структуре – мономолекулярном ленгмюровском слое сегнетоэлектрического полимера поливинилиденфторида с трифторэтиленом; разработана методика диагностики сегнетоэлектрических свойств неупорядоченных сегнетоэлектрических наноструктур.

- Магнитные нелинейно - оптические эффекты второго и третьего порядков в наноструктурах на основе магнитных материалов существенно, на один - два порядка по величине, превосходят соответствующие линейные магнитооптические аналоги.

- Продемонстрировано, что нелинейно - оптический отклик пространственно - неупорядоченных ансамблей магнитных наночастиц наблюдается в форме магнитоиндуцированного гиперрелеевого рассеяния; предложена методика диагностики магнитных свойств таких структур, основанная на магнитном нелинейно - оптическом эффекте Керра.

- Исследованы эффекты усиления квадратичного и кубического нелинейно - оптического отклика металлических наночастиц в спектральной окрестности резонанса локальных поверхностных плазмонов; обнаружено возрастание интенсивности второй и третьей оптических гармоник более чем на два порядка величины в этом спектральном диапазоне.

- Обнаружено многократное усиление магнитного нелинейно - оптического отклика магнитофотонных кристаллов и микрорезонаторов в спектральной окрестности края фотонной запрещенной зоны и микрорезонаторной моды, связанное с выполнением условий фазового синхронизма для генерации гармоник и эффектами пространственной локализации оптического поля в фотонно-кристаллической структуре.

Практическая ценность работы состоит в возможности применения развитых нелинейно - оптических методов, основанных на эффектах генерации второй и третьей оптических гармоник и светового самовоздействия, для комплексной диагностики структурных, морфологических, оптических, магнитных, сегнетоэлектрических свойств наноструктур. Разработанная методика генерации магнитоиндуцированной второй гармоники в наноструктурах является уникальной для изучения свойств скрытых границ раздела магнетиков и

неупорядоченных магнитных наноструктур ввиду селективной локализации квадратичных нелинейно-оптических источников в областях с нарушенной пространственной симметрией, в первую очередь - на границах раздела в случае centrosимметричных сред. Применение метода генерации ВГ для исследования фазовых переходов в сегнетоэлектрических материалах основана на прямой пропорциональной зависимости квадратичной восприимчивости и спонтанной поляризации, что позволяет проводить изучение сегнетоэлектрических структур, в том числе неоднородных и наноструктурированных, без нанесения на их поверхность электродов. Обнаруженные эффекты усиления магнитного и нелинейно-оптического отклика в магнитофотонных и плазмонных структурах могут найти применение при разработке оптических сенсоров и переключателей на их основе.

На защиту выносятся следующие основные положения:

- Механические напряжения и наноструктурированность тонких пленок сегнетоэлектриков приводят к снижению температуры Кюри сегнетоэлектрического фазового перехода.

- Метод генерации второй оптической гармоники позволяет наблюдать сегнетоэлектрические свойства в предельно тонкой двумерной планарной структуре - мономолекулярном слое сегнетоэлектрического полимера.

- В тонких планарных ячейках сегнетоэлектрического жидкого кристалла наблюдается электроклинный эффект, заключающийся в существовании тонкого слоя молекул, не испытывающих сегнетоэлектрического переключения под действием температуры или внешнего электростатического поля.

- Магнитоиндуцированные нелинейно - оптические эффекты второго и третьего порядков в магнитных наноструктурах значительно превышают величину соответствующего линейного магнитооптического отклика.

- Возбуждение локальных поверхностных плазмонов в металлических наночастицах приводит к усилению эффективности генерации второй и третьей оптических гармоник, гиперрэлеевского рассеяния и магнитного нелинейно - оптического эффекта Керра.

- В магнитофотонных кристаллах и микрорезонаторах достигается многократное усиление квадратичных и кубических, в том числе магнитоиндуцированных, нелинейно - оптических эффектов.

Апробация работы: Основные результаты исследований, вошедшие в диссертацию, докладывались на 43 международных и всероссийских конференциях и симпозиумах по теме работы.

Личный вклад автора заключается в формулировке целей и задач представленных в работе исследований, в выборе объектов исследований, выдвижении основных идей проводившихся экспериментов и развиваемых в работе нелинейно - оптических методик изучения свойств сегнетоэлектрических и магнитных нано- и микроструктур, в проведении всех представленных в работе экспериментальных исследований, систематизации и обобщении полученных данных эксперимента, в выявлении механизмов обнаруженных и изученных нелинейно - оптических эффектов.

Структура и объем диссертации. Работа состоит из введения, 6 глав, заключения и списка литературы.

Публикации. Всего опубликовано 82 работы, из них 53 статьи по теме диссертации опубликованы в реферируемых научных журналах. Список основных публикаций (26 работ) приведен в конце автореферата.

## **Содержание работы**

Во **Введении** обоснована актуальность диссертационной работы, сформулирована цель и аргументирована научная новизна представленных исследований, показана практическая значимость полученных результатов, приведены выносимые на защиту научные положения.

### **Глава 1. Некоторые аспекты теории генерации второй и третьей оптических гармоник**

В первой главе, имеющей преимущественно обзорный и справочный характер, представлено феноменологическое описание процессов генерации второй и третьей оптических гармоник в полубесконечной среде, микро- и наноструктурах. Рассмотрен механизм нелинейно - оптического отклика пространственно - неоднородных субмикроструктур и показано, что в этом случае генерация ВГ и ТГ может наблюдаться в форме гиперрелеевского рассеяния, т.е. диффузного и деполяризованного излучения соответствующего порядка, при этом

угловая ширина индикатрис рассеяния соответствует характерным размерам кристаллитов, а положение максимума интенсивности рассеяния определяется типом нелинейно - оптического взаимодействия. Приведено феноменологическое описание генерации ВГ в сегнетоэлектриках и обоснована возможность использования метода для диагностики сегнетоэлектрических фазовых переходов, основанная на прямой пропорциональной зависимости интенсивности ВГ и спонтанной поляризации собственных сегнетоэлектриков, из которой следует  $I_{2\omega} \propto (T_C - T)$ , где  $T_C$  - температура Кюри фазового перехода. Рассмотрены процессы генерации магнитоиндуцированных ВГ и ТГ в магнитных средах, симметричные свойства четных и нечетных по намагниченности компонент тензоров нелинейных восприимчивостей. Показана роль эффекта внутреннего гомодинирования в усилении магнитных нелинейно - оптических эффектов, основанного на интерференции кристаллографической и магнитоиндуцированной составляющих полей второй и третьей гармоник. Рассмотрены механизмы усиления нелинейно - оптического отклика фотонно кристаллических структур - фотонных кристаллов и микрорезонаторов, связанные с эффектами локализации оптического поля в структуре и выполнением условий фазового синхронизма вблизи края фотонной запрещенной зоны. Описан метод нелинейной интерферометрии, примененный в работе для изучения фазы отклика волн на частотах второй и третьей гармоник. Приведены описание и схемы экспериментальных установок, использованных при выполнении работы, в которых источником излучения накачки являлись фемтосекундный лазер на титанате сапфира (диапазон перестройки длин волн 710÷840 нм, длительность импульса 100 фс) и наносекундный параметрический генератор света с диапазоном перестройки длин волн 440÷1200 нм.

## **Глава 2. Генерация второй гармоники в микроструктурированных сегнетоэлектриках в окрестности фазовых переходов**

Вторая глава посвящена исследованию структурных и сегнетоэлектрических свойств тонких пленок сегнетоэлектриков ниобата калия  $KNbO_3$  и феррита висмута  $BiFeO_3$ , а также тонких ячеек сегнетоэлектрического жидкого кристалла. Основное внимание уделено изучению нелинейно - оптических свойств этих наноструктурированных материалов в окрестности фазовых переходов и

развитию на основе эффекта генерации ВГ метода характеристики их сегнетоэлектрических и структурных свойств.

В первом параграфе приведены результаты исследования квадратичного нелинейно-оптического отклика наноструктурированных пленок ниобата калия. Ниобат калия относится к классу перовскитов и отличается уникальными пьезоэлектрическими и оптическими характеристиками, что определяет интерес к исследованию наноструктур на его основе. Были исследованы эпитаксиальные пленки  $KNbO_3$  нанесенные на подложку  $MgO(001)$  методом химического осаждения металл-органических составляющих из паровой фазы, массовая толщина пленок составляла  $100\div 400$  нм. Образцы  $KNbO_3$  и  $BiFeO_3$  изготовлены на химическом факультете МГУ в лаборатории проф. А.Р. Кауля.

Согласно результатам структурных исследований, пленки состоят из нанокристаллитов с характерными латеральными размерами около 200 нм при их средней высоте  $40\div 60$  нм. Изучение анизотропии, поляризации и направленности излучения ВГ в пленках  $KNbO_3$  показывает, что генерация ВГ наблюдается в виде гиперрелеевого рассеяния. Из температурных зависимостей интенсивности ВГ для монокристалла и пленок  $KNbO_3$  была установлена сегнетоэлектрическая температура Кюри, составившая для монокристалла  $425\pm 5$  °С, что хорошо согласуется с известными из литературы данными, и  $405\pm 15$  °С - для пленок. В обоих случаях наблюдалось два температурных гистерезиса, соответствующие фазовым переходам I рода  $mm2 \rightarrow tm4$  и  $tm4 \rightarrow m3m$ . Таким образом, для наноструктурированных пленок зарегистрировано уменьшение температуры Кюри на  $10\div 15$  °С по сравнению со значением  $T_C$  для монокристалла  $KNbO_3$ . Этот эффект обусловлен наногранулярностью структуры пленок и может быть связан с ростом деполяризующего поля или поверхностной энергии в кристаллитах ниобата калия, а также искажением кристаллической структуры. Слабое различие температуры фазового перехода для всех пленок можно объяснить одинаковым средним размером кристаллитов.

Во втором параграфе представлены результаты исследования нелинейно-оптического отклика напряженных эпитаксиальных пленок феррита висмута  $BiFeO_3$ . Феррит висмута является сегнетомагнетиком, поскольку одновременно может находиться в антиферромагнитном и сегнетоэлектрическом состоянии, с уникально высокими температурами сегнетоэлектрического ( $T_c=810$  °С)

и магнитного ( $T_N=370$  °C) упорядочения. Была исследована серия эпитаксиальных пленок  $BiFeO_3$  на подложках  $SrTiO_3(001)$ , изготовленных методом МОСVD. Толщина пленок составляла от 100 нм до 250 нм, при этом величина механического эпитаксиально-ростового напряжения,  $\sigma$ , варьировалась в интервале от 0.27 ГПа до 1.64 ГПа. Основной задачей являлось изучение зависимости сегнетоэлектрических свойств пленок феррита висмута от величины механического напряжения в структуре.

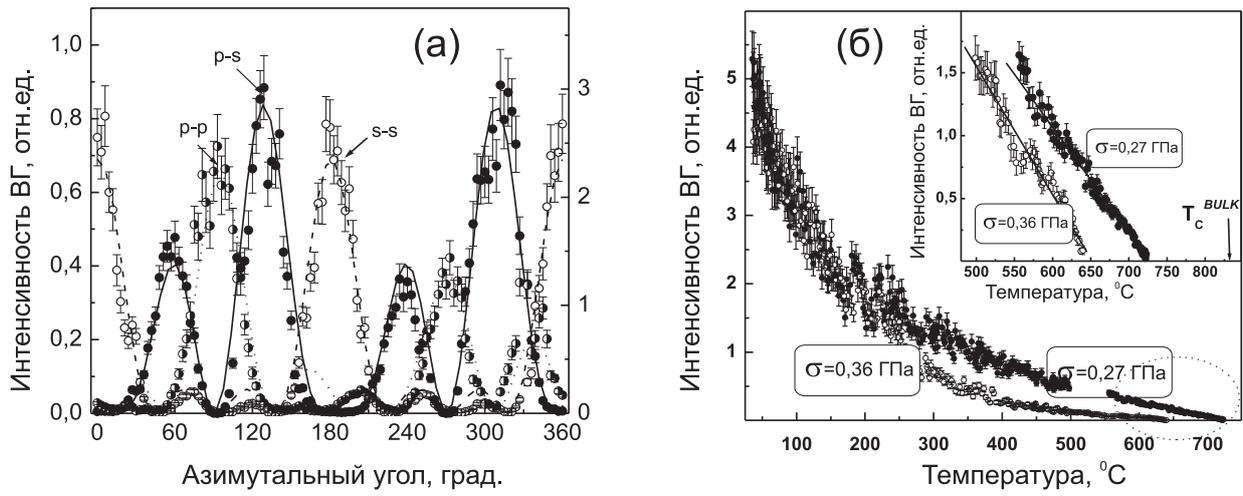


Рис. 1. а) Азимутальные зависимости интенсивности ВГ, отраженной от пленки  $BiFeO_3$  ( $\sigma=0.36$  ГПа), при разных комбинациях поляризаций излучения накачки и ВГ; б) зависимости интенсивности ВГ для пленок  $BiFeO_3$  с величиной механического напряжения  $\sigma=0.27$  ГПа (заполненные символы) и  $\sigma=0.36$  ГПа (открытые символы); на вставке - та же зависимость в увеличенном масштабе для диапазона температуры  $500 \div 800$  °C.

Кристаллографическая симметрия эпитаксиальных пленок  $BiFeO_3$  была исследована методом генерации анизотропной отраженной ВГ. Полученные зависимости интенсивности ВГ для разных комбинаций поляризаций излучения накачки и ВГ (рис. 1,а) соответствуют моноклинной точечной группе симметрии  $2$ , при этом отклик на удвоенной частоте является преимущественно зеркальным и когерентным. Температурные зависимости интенсивности ВГ в пленках  $BiFeO_3$  с величиной механического напряжения  $\sigma=0.27$  ГПа и  $\sigma=0.36$  ГПа, представлены на рис. 1,б. Отсутствие гистерезиса в зависимостях  $I_{2\omega}(T)$  указывает на второй тип фазового перехода в данных структурах.

Можно отметить две особенности представленных зависимостей: (i) резкое уменьшение интенсивности ВГ в диапазоне температуры от комнатной до  $T_N$ , т.е. в области сосуществования сегнетоэлектрического и антиферромагнитного упорядочения; (ii) практически линейный характер зависимости  $I_{2\omega}(T)$  при  $T > 500^\circ\text{C}$ . Сегнетоэлектрическая температура Кюри, определяемая линейной аппроксимацией температурной зависимости интенсивности ВГ в этом диапазоне,  $I_{2\omega}(T) \propto (T_C - T)$ , составила  $T_C(0.27\text{ГПа}) = 745 \pm 20^\circ\text{C}$  и  $T_C(0.36\text{ГПа}) = 675 \pm 15^\circ\text{C}$ , соответственно. Эти значения существенно ниже величины  $T_C$  для монокристаллического феррита висмута. При дальнейшем росте механического напряжения  $\sigma = 0.60 \div 1.6$  ГПа температура Кюри пленок  $BiFeO_3$  продолжает уменьшаться, ее минимальное значение составляет  $T_C(1.6\text{ГПа}) = 530 \pm 30^\circ\text{C}$ .

Зависимости интенсивности ВГ от температуры (рис. 1,б) можно описать в рамках подхода, развитого в [7]. Согласно этому рассмотрению, в антиферромагнитных средах появляется дополнительная составляющая квадратичной поляризации, индуцированная вектором антиферромагнетизма,  $\mathbf{L}$ , поэтому при  $T < T_N$  интенсивность ВГ описывается выражением:  $I_{2\omega} \propto (\mathbf{P}_{2\omega}^{sp} + \mathbf{P}_{2\omega}(\mathbf{L}, T))^2$ , где  $\mathbf{P}_{2\omega}^{sp}$  и  $P_{2\omega}(\mathbf{L}, T)$  - составляющие нелинейной поляризации на частоте ВГ, индуцированные спонтанной поляризацией и вектором  $\mathbf{L}$ , соответственно. Таким образом, в выражении для интенсивности ВГ при  $T < T_N$  появляется дополнительное слагаемое, пропорциональное  $|\mathbf{L}|^2$ , которое, согласно теории среднего поля, пропорционально  $|T_N - T|$ . Такой вид зависимости  $I_{2\omega}(T)$  качественно соответствует наблюдаемой в эксперименте и отражает взаимосвязь между магнитным моментом, спонтанной поляризацией и нелинейно-оптическим откликом сегнетомагнетика в диапазоне температуры  $T < T_N$ .

В третьем параграфе рассмотрены особенности квадратичного нелинейно-оптического отклика тонких ( $1.5 \div 5.0$  мкм) планарных ячеек сегнетоэлектрического жидкого кристалла (ЖК). Исследованные структуры были образованы смесью ЖК молекул IGS97 и DF1, помещенных между двумя стеклянными пластинами с нанесенными на них полупрозрачными электродами. Температура сегнетоэлектрического перехода между смектическими фазами  $SmC^* \rightarrow SmC_A$  для макроскопического образца ЖК составляет  $\approx 42^\circ\text{C}$ .

Анизотропные зависимости интенсивности ВГ, измеренные для различных комбинаций поляризаций излучения накачки и ВГ, соответствуют наличию

полярной оси, параллельной плоскости ЖК ячеек. Направление оси определяется ориентацией ЖК молекул в смектическом конусе и может изменяться под действием внешнего электростатического поля или температуры. Методом генерации анизотропной ВГ в геометрии на пропускание и отражение изучено индуцированное электростатическим полем (или температурой) сегнетоэлектрическое переключение жидкого кристалла при фазовом переходе между полярной смектической  $C$  и неполярной смектической  $A$  фазами,  $SmC^* \rightarrow SmC_A$ . Обнаружен непереключающийся, граничащий со стенкой ЖК ячейки слой, ориентация молекул в котором и спонтанная поляризация сохраняются при изменении температуры и наложении электростатического поля вплоть до 8 МВ/м. Из аппроксимации зависимостей  $I_{2\omega}(T)$  в диапазоне  $20 \div 55^\circ\text{C}$  получено значение критического индекса  $\beta \approx 0.31$  перехода  $SmC^* \rightarrow SmC_A$ .

### **Глава 3. Нелинейно-оптические свойства ленгмюровских пленок сегнетоэлектрических материалов**

Третья глава посвящена исследованию нелинейно - оптического отклика ленгмюровских пленок (пленок Ленгмюра-Блоджетт, (ЛБ)) сегнетоэлектрического полимера и жидкого кристалла. Основной целью исследований являлось изучение сегнетоэлектрических свойств сверхтонких, с толщиной вплоть до одного мономолекулярного слоя, пленок полимера, что стало возможным благодаря использованию метода генерации ВГ и ленгмюровской технологии изготовления полимерных пленок.

Ленгмюровские пленки (пленки Ленгмюра-Блоджетт, (ЛБ)) сегнетоэлектрического сополимера поли(винилиденфторида с трифторэтиленом), П(ВДФ:ТФЭ), были изготовлены методом Ленгмюра-Шеффера в институте кристаллографии им. А.В. Шубникова РАН. Метод основан на формировании на поверхности воды твердых монослоев молекул и последующем их переносе на твердую подложку (рис. 2,а). Его отличительной особенностью является возможность изготовления тонких органических пленок строго контролируемой толщины, с точностью до одного мономолекулярного слоя. Основной полимер, поливинилиденфторид, является сегнетоэлектриком, состоит из углеродных цепей с расстоянием между соседними группами  $CH_2 - CF_2$  0.26 нм (рис. 2,б);

дипольный момент молекулы перпендикулен ее длинной оси. Сегнетоэлектрическое переключение обусловлено вращением диполей  $H - F$  вокруг углеродной цепи. Температура сегнетоэлектрического фазового перехода ПВДФ лежит выше точки плавления, поэтому для исследования сегнетоэлектрических свойств был использован его сополимер с трифторэтиленом, П(ВДФ:ТФЭ), структурная формула которого  $(CH_2 - CF_2)_n - (CHF - CF_2)_m$ . Известно, что П(ВДФ:ТФЭ) является сегнетоэлектриком при содержании в нем трифторэтилена менее 50% и претерпевает фазовый переход I рода из сегнето- в параэлектрическую фазу при  $T_C \approx 80 \div 100^\circ\text{C}$ . Было показано [5], что величина  $T_C$ , а также коэрцитивная сила для ЛБ пленок с числом слоев менее 100 не зависит от толщины пленки, что указывает на двумерный характер сегнетоэлектрических свойств таких структур. В многослойных ЛБ пленках П(ВДФ:ТФЭ) был обнаружен второй, поверхностный фазовый переход, наблюдающийся при  $T \approx 20^\circ\text{C}$  и соответствующий переходу в параэлектрическое состояние приповерхностного слоя молекул полимера. Отметим, что все исследования, в том числе и проведенные для тонких полимерных ЛБ пленок, требовали нанесения верхнего электрода, что (i) не позволяло изучать свойства предельно тонких (мономолекулярных) пленок сегнетоэлектрического полимера и (ii) вероятно, изменяло свойства их верхних слоев.

В данной работе были исследованы ЛБ пленки П(ВДФ:ТФЭ) с объемным отношением 70:30 и с толщиной  $1 \div 30$  мономолекулярных слоев ( $0.5 \div 30$  нм). Для изучения сегнетоэлектрических свойств ЛБ пленок П(ВДФ:ТФЭ) был использован безэлектродный метод генерации ВГ, что дало возможность исследовать монослойную структуру, а также свободную поверхность многослойных полимерных пленок.

Зависимость интенсивности ВГ от температуры,  $I_{2\omega}(T)$ , для 60-слойной ЛБ пленки П (ВДФ :ТФЭ), измеренная в направлении зеркального отражения, приведена на рис. 2,в. В температурном интервале  $40 \div 90^\circ\text{C}$ , а также в окрестности  $T = 20^\circ\text{C}$ ,  $I_{2\omega}(T)$  является неоднозначной функцией температуры. Сравнение температурных зависимостей ВГ и статической диэлектрической проницаемости,  $\varepsilon(T)$ , ЛБ пленок П(ВДФ:ТФЭ) [6] (вставка к рис. 2,в) указывает на их качественное соответствие. Аналогично были измерены температурные зависимости интенсивности ВГ в ЛБ пленках толщиной  $5 \div 15$  монослоев

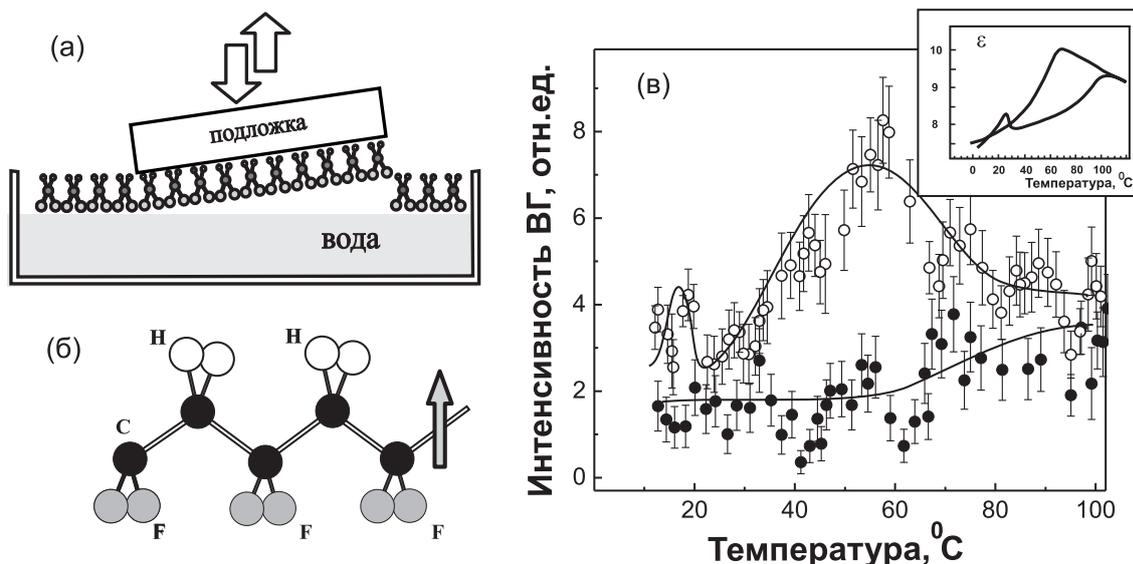


Рис. 2. Схематичное изображение а) метода Ленгмюра-Шеффера переноса твердого моно-слоя молекул с поверхности воды на подложку, б) структуры молекулы ПВДФ; в) температурные зависимости интенсивности ВГ и (на вставке) диэлектрической проницаемости (из работы [5]) для ЛБ пленки П(ВДФ:ТФЭ) с толщиной 60 монослоев.

и обнаружено, что качественно схожий вид зависимостей  $I_{2\omega}(T)$  и  $\varepsilon(T)$  наблюдается и в этих случаях. Поэтому можно предположить, что наблюдаемые особенности зависимостей  $I_{2\omega}(T)$  связаны с проявлением сегнетоэлектрических свойств пленок П(ВДФ:ТФЭ) и отражают происходящие в них "объемный" и "поверхностный" сегнетоэлектрические фазовые переходы.

На рис. 3,а представлена зависимость интенсивности ВГ от температуры для *монослойной* пленки П(ВДФ:ТФЭ). В этом случае, как и для многослойных пленок полимера, можно выделить два диапазона, в которых  $I_{2\omega}$  является неоднозначной функцией температуры:  $0 \div 50^\circ\text{C}$  и  $60 \div 90^\circ\text{C}$ . При этом гистерезис интенсивности ВГ, наблюдавшийся при меньших температурах, смещен в область более низких температур и уширен по сравнению со случаем более толстых ЛБ пленок П(ВДФ:ТФЭ). В силу сделанного выше для случая многослойных полимерных пленок утверждения о проявлении в их квадратичном отклике сегнетоэлектрических свойств можно предположить, что наблюдаемые зависимости  $I_{2\omega}(T)$  для монослойной пленки П(ВДФ:ТФЭ) также отражают наличие сегнетоэлектрических фазовых переходов I рода. Для сравнения, на рис. 3,б приведена зависимость  $\varepsilon(T)$  для *двухслойной* ЛБ пленки

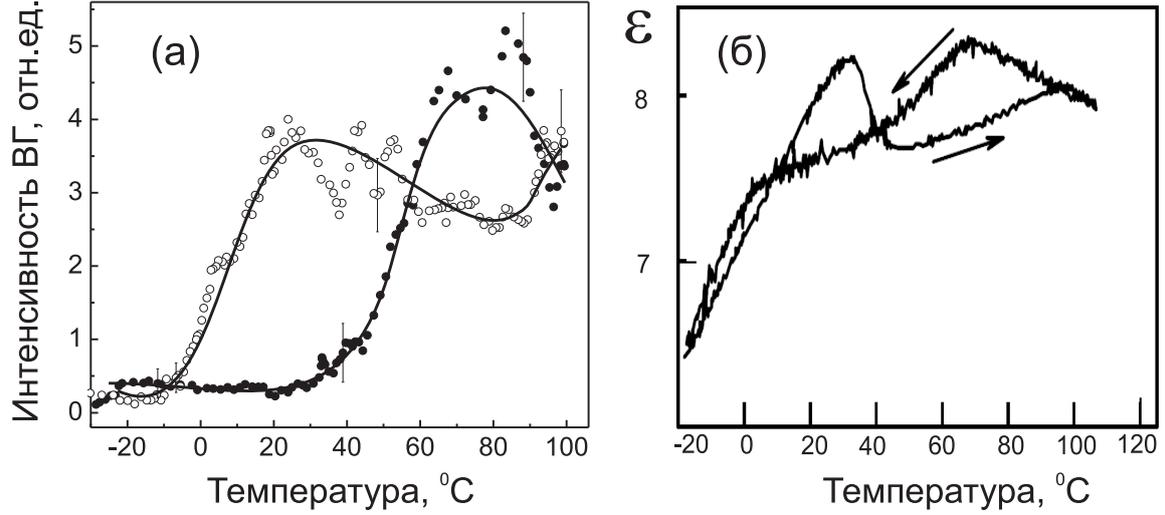


Рис. 3. Температурные зависимости (а) интенсивности ВГ для монослойной ЛБ пленки П(ВДФ:ТФЭ); б) диэлектрической проницаемости двуслойной ЛБ пленки (из [6]).

П(ВДФ:ТФЭ) (из [6]), качественно соответствующая полученной температурной зависимости интенсивности ВГ. Таким образом, метод генерации ВГ отражает наличие сегнетоэлектрических свойств в предельно тонкой планарной двумерной структуре сегнетоэлектрического полимера.

Отметим, что вид зависимостей  $I_{2\omega}(T)$  необычен для фазовых переходов сегнетоэлектрик-центросимметричный параэлектрик. В большинстве работ рост температуры образца приводит к уменьшению интенсивности ВГ и обращению ее в нуль при достижении сегнетоэлектрической температуры Кюри. В случае ЛБ пленок П(ВДФ:ТФЭ) при повышении  $T$  наблюдался рост сигнала ВГ в доступном для измерений диапазоне температур.

Для объяснения наблюдавшихся особенностей нелинейно - оптического отклика был исследован механизм генерации ВГ в пленках П(ВДФ:ТФЭ). Было показано, что излучение на удвоенной частоте диффузно и деполаризовано, т.е. является гиперрелеевским рассеянием. В этом случае зависимость интенсивности ВГ от полярного угла рассеяния,  $\theta$ , можно описать выражением:

$$I_{2\omega} \propto K(\vartheta)F_{2\omega}(\vartheta) \propto K(\vartheta) \int \Phi(\mathbf{r}) \exp[\Delta(\theta)x] d^3r \quad (1)$$

где  $\Delta(\theta) = k_{2\omega}(\theta) - k_{2\omega}(\theta_0) = 2\omega(\sin\theta - \sin\theta_0)/c$ ,  $k_{2\omega}$  - волновой вектор рассеяния

ной волны ВГ,  $\theta_0$  угол падения излучения накачки,  $\Phi(\mathbf{r}'-\mathbf{r}) = \langle P_{2\omega}(\mathbf{r}), P_{2\omega}(\mathbf{r}') \rangle$  - корреляционная функция нелинейной поляризации, генерируемой участками нелинейной среды с координатами  $\mathbf{r}$  и  $\mathbf{r}'$ , угловыми скобками обозначено статистическое усреднение по области нелинейного взаимодействия; функция  $K(\vartheta)$  определяется параметрами распространения излучения ВГ в среде.

В случае ЛБ пленок П(ВДФ:ТФЭ) флуктуации нелинейной поляризации могут быть связаны с пространственной неоднородностью их структуры, обусловленной методикой изготовления. Известно, что при переносе твердых ленгмюровских мономолекулярных слоев с поверхности воды на подложку образуются двумерные микрокристаллиты, характерный размер которых может составлять от десятков нанометров до единиц микрон. Флуктуирующими величинами в такой структуре будут являться неоднородность формы и размеров кристаллитов и, соответственно, их квадратичная восприимчивость, пропорциональная величине спонтанной поляризации. Рост интенсивности гиперрелеевского рассеяния в окрестности фазовых переходов обусловлено увеличением флуктуаций квадратичной поляризации, связанных с сосуществованием областей (кристаллитов) П(ВДФ:ТФЭ), находящихся в сегнетоэлектрической и параэлектрической фазах. Оценка характерных латеральных размеров кристаллитов П(ВДФ:ТФЭ), полученная из аппроксимации индикатрис рассеяния ВГ, составила около 150 нм.

Четвертый параграф главы посвящен изучению квадратичного нелинейно-оптического отклика ленгмюровских пленок сегнетоэлектрического кирального жидкого кристалла (ЖК) 12OF1M7. При комнатной температуре данный ЖК находится в кристаллической, *cryst*, нецентросимметричной фазе и с ростом температуры испытывает переход вначале в антисегнетоэлектрическую (центросимметричную)  $SmC_A^*$  ЖК фазу, затем последовательность неполярных фаз, при  $T=93^\circ\text{C}$  переходит в сегнетоэлектрическую  $SmC^*$  фазу и затем - в состояние изотропной жидкости. Из всей последовательности фазовых превращений метод ВГ позволяет диагностировать переходы  $cryst \rightarrow SmC_A^*$  и наличие  $SmC^*$  фазы, в которых объемные образцы жидкого кристалла обладают спонтанной поляризацией.

Комплексное изучение анизотропии, направленности и поляризации излучения ВГ, отраженного от ЛБ-ЖК пленок, показало, что, как и в случае ЛБ

пленок П(ВДФ:ТФЭ), генерация ВГ для всего диапазона толщин наблюдается в форме гиперрелеевого рассеяния. Температурные зависимости интенсивности ВГ были измерены в диапазоне  $20 \div 100^\circ\text{C}$ , охватывающем области существования кристаллической и ЖК фаз 12OF1M7, вплоть до перехода в состояние изотропной жидкости. Для пленок с толщиной  $5 \div 40$  слоев наблюдался температурный гистерезис интенсивности ВГ, соответствующий сегнетоэлектрическому фазовому переходу I рода  $cryst \rightarrow SmC_A^*$  и имеющим место в объемном ЖК при  $T \approx 55^\circ\text{C}$ . Показано, что температурная ширина гистерезиса и интенсивность ВГ определяется скоростью изменения температуры пленки при охлаждении. Для ЛБ пленок с толщиной 1 и 3 монослоя гистерезис зависимости  $I_{2\omega}(T)$  в этом температурном диапазоне не наблюдался. По-видимому, малое число мономолекулярных слоев оказывается недостаточным для реализации сегнетоэлектрического переключения, которое в ЖК структурах связано с переориентацией молекул в соседних смектических слоях.

Для всех исследованных ленгмюровских пленок жидкого кристалла не наблюдалось изменения интенсивности ВГ в окрестности температуры  $T \approx 93^\circ\text{C}$ , соответствующей сегнетоэлектрической фазе  $SmC^*$  в макроскопических структурах ЖК 12OF1M7. Это свидетельствует о подавлении смектической фазы  $SmC^*$  в фазовой последовательности ЛБ-ЖК пленок. Причиной этого может являться как значительная неоднородность их структуры, так и стабилизирующее влияние подложки.

#### **Глава 4. Нелинейно-оптические эффекты в магнитных наноструктурах**

В четвертой главе приведены результаты исследования квадратичных и кубичных нелинейно-оптических эффектов в различных типах наноструктур - наночастицах и нанослоях магнитных материалов, магниторезистивных гранулярных пленках. Магнитоиндуцированные эффекты изучались в схеме магнитного нелинейно-оптического эффекта Керра на удвоенной и утроенной частоте зондирующего излучения, при этом эффект генерации магнитоиндуцированной ТГ в наноструктурах магнетиков наблюдался впервые.

Магнитоиндуцированные эффекты в нелинейно-оптическом отклике магнитных сред возникают главным образом благодаря появлению новых, нечет-

ных (*odd*) по намагниченности  $\mathbf{M}$  компонент нелинейной восприимчивости, обращающихся в нуль при  $M = 0$ . Относительная величина соответствующих составляющих поля на частоте ВГ (ТГ), нечетных и четных (в первом приближении не зависящих от намагниченности) по  $\mathbf{M}$ ,  $E_{2\omega}^{odd}$  и  $E_{2\omega}^{even}$ , опеределает величину магнитоиндуцированных эффектов на частоте ВГ (ТГ): поворот плоскости поляризации и изменение интенсивности излучения гармоник. Для наиболее простого случая поверхности изотропной магнитной среды угол поворота плоскости поляризации определен выражением:  $\varphi_K \approx \arctan(E_{2\omega}^{s,odd}(\mathbf{M})/E_{2\omega}^{p,even})$ , где индексами  $s$  и  $p$  обозначены поляризации компонент поля волны ВГ. Появление  $s$ -поляризованной ВГ в этом случае возможно только при наличии магнитоиндуцированной компоненты восприимчивости,  $E_{2\omega}^{s,odd} \propto \chi^{(2)odd}(\mathbf{M}) \propto M$ . Мерой магнитоиндуцированного изменения интенсивности ВГ и ТГ, наблюдаемого в экваториальном эффекте Керра, является магнитный контраст:

$$\varrho_{2\omega,3\omega} = \frac{I_{2\omega,3\omega}(\uparrow) - I_{2\omega,3\omega}(\downarrow)}{I_{2\omega,3\omega}(\uparrow) + I_{2\omega,3\omega}(\downarrow)}, \quad (2)$$

где стрелками обозначены направления магнитного поля. С учетом того, что поле на частоте гармоники определяется векторной суммой четного и нечетного по намагниченности полей ВГ,  $E_{2\omega}^{odd}$  и  $E_{2\omega}^{even}$ , величина  $\varrho_{2\omega,3\omega}$  определяется соотношением амплитуд этих полей, так и сдвигом фаз между ними,  $\Phi_{2\omega,3\omega}(\mathbf{M})$ , являющимся, в свою очередь, функцией намагниченности. В результате выражение для магнитного контраста принимает вид:

$$\varrho_{2\omega,3\omega} \sim \frac{4E_{2\omega,3\omega}^{even} E_{2\omega,3\omega}^{odd}}{(E_{2\omega,3\omega}^{even})^2 + (E_{2\omega,3\omega}^{odd})^2} \cos[\Phi_{2\omega,3\omega}(\mathbf{M})] \sim \frac{E_{2\omega,3\omega}^{odd}}{E_{2\omega,3\omega}^{even}} \cos[\Phi_{2\omega,3\omega}(\mathbf{M})], \quad (3)$$

Таким образом, для сравнения магнитных нелинейно-оптических свойств разных объектов, т.е. нахождения  $E_{2\omega,3\omega}^{odd}/E_{2\omega,3\omega}^{even}$ , необходима комбинация методов измерения магнитного контраста и магнитной интерферометрии.

Отметим, что намагниченность не приводит к снятию центра инверсии в случае centrosymmetric сред, поэтому источники ВГ, как немагнитные, так и магнитоиндуцированные, в этом случае локализованы по-прежнему в областях с нарушенной симметрией. Таким образом метод генерации магнитоиндуцированной ВГ предоставляет уникальную возможность для исследования магнитных свойств поверхностей и границ раздела магнитных сред.

Описанная методика была применена для изучения магнитных нелинейно - оптических свойств тонких пленок кобальта и железа. Источником излучения накачки являлся наносекундный АИГ: $Nd^{3+}$  лазер с длиной волны генерации 1064 нм; длины волн второй и третьей гармоник составляли 532 нм и 266 нм, соответственно. Для пленок ферромагнитных металлов впервые наблюдался магнитный нелинейно-оптический эффект Керра на частоте ТГ: магнитный контраст интенсивности ТГ составил около 10%, максимальное значение магнитоиндуцированного сдвига фаз  $\Phi_{3\omega}$  наблюдалось для пленки  $Co$  и составило около  $70^\circ$ . Эффекты на частоте ВГ оказались сравнимой величины - максимальное значение магнитного контраста интенсивности наблюдалось для пленки  $Fe$  и составило  $\rho_{2\omega} \approx 45\%$ . Комплексный анализ магнитоиндуцированных эффектов показал, что для поверхности ферромагнитных металлов амплитуды  $E_{2\omega}^{odd}$  и  $E_{2\omega}^{even}$ , а также величины соответствующих четной и нечетной по  $\mathbf{M}$  компонент квадратичной и кубической восприимчивостей, различаются менее чем на порядок.

Во втором параграфе изложены результаты исследования квадратичных и кубических магнитных нелинейно - оптических эффектов в магниторезистивных гранулярных пленках  $Co_xAg_{1-x}$ ,  $Co_x(Al_2O_3)_{1-x}$ , изготовленных в институте магнетизма НАН Украины методом электронно-лучевого испарения - осаждения из двух источников. Атомная концентрация кобальта в пленках,  $x$ , варьировалась от 5 до 80 %, для  $x$  ниже порога перколяции, т.е. при  $x < 0.4$ , средний размер гранул составлял  $3 \div 6$  нм. Пленки проявляют эффект гигантского магнитосопротивления при комнатной температуре, коэффициент магнитосопротивления определен как:  $\rho_{GMR} = -[R(0) - R(M)]/R(0)$ , где  $R(0)$  и  $R(M)$  - омическое сопротивление в отсутствие и при наличии магнитного поля, соответственно. Зависимость магнитосопротивления от концентрации  $Co$  в пленках  $Co_xAg_{1-x}$ ,  $\rho_{GMR}(x)$ , приведена на рис. 4,а.

Магнитоиндуцированные эффекты в нелинейно-оптическом отклике гранулярных пленок были исследованы в геометрии экваториального магнитооптического эффекта Керра. Зависимости магнитного контраста ВГ и ТГ от концентрации кобальта, полученные для пленок  $Co_xAg_{1-x}$  в магнитном поле с напряженностью  $\pm 2$  кГс, приведены на рис. 4,а. Зависимости  $\rho_{2\omega,3\omega}(x)$  немонотонны и демонстрируют наличие локальных максимумов в окрестности

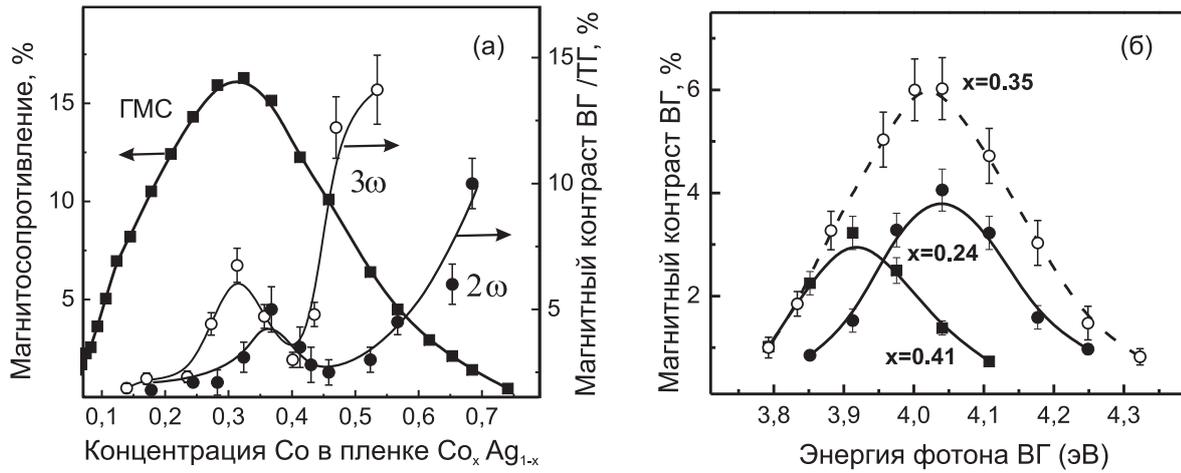


Рис. 4. (а) Зависимости коэффициента магнитосопротивления (квадраты) и магнитного контраста интенсивности ВГ (заполненные символы) и ВГ (открытые символы), измеренные в геометрии экваториального магнитного эффекта Керра для  $p$ - $p$  комбинации поляризаций излучения накачки и гармоники, от концентрации  $Co$  в пленках  $Co_xAg_{1-x}$ ; (б) спектры магнитного контраста интенсивности ВГ в пленках  $Co_xAg_{1-x}$  для  $x = 0.24, 0.35$  и  $0.41$ .

$x = 0.3 \div 0.4$  с последующим ростом при  $x > 0.4$ , т.е. выше порога перколяции, что связано с переходом структуры в ферромагнитное состояние. Заметим, что максимальное значение  $\rho_{GMR}$  также достигается при  $x \approx 0.33$ , что позволяет говорить о корреляции между магнитными нелинейно-оптическими и магнитотранспортными свойствами пленок  $Co_xAg_{1-x}$ . По-видимому, в обоих случаях одинаковым образом проявляется роль внутренних границ раздела между магнитными гранулами и немагнитным материалом матрицы: рост намагниченности границ раздела гранул приводит как к росту магнитного контраста  $\rho_{2\omega, 3\omega}(x)$ , так и к усилению спин-зависимого электронного рассеяния. Среди эффектов, которые могут играть существенную роль в магнитном нелинейно-оптическом эффекте Керра в наногранулярных пленках, следует рассмотреть возможность возбуждения локальных поверхностных плазмонов, что и описано в пятой главе.

Исследованию магнитоиндуцированных эффектов в гиперрелеевском рассеянии на частоте ВГ в магнитных наноструктурах посвящены третий и чет-

вертый параграфы главы. Были исследованы два типа структур: ленгмюровские пленки стеариновой кислоты с ионами гадолиния и наночастицы железо-иттриевого граната (YIG) в полимерной матрице, изготовленные методом самоагрегации на каф. биофизики физического факультета МГУ. В обоих случаях излучение на частоте ВГ было преимущественно диффузным и деполаризованным, т.е. наблюдалось в виде гиперрелеевского рассеяния, что связано с хаотичным расположения наночастиц в пленках. В то же время, для *Gd*-ЛБ пленок оказалось возможным детектировать магнитный нелинейно-оптический эффект Керра на частоте ВГ. При отражении от *Gd*-ЛБ пленок излучение на удвоенной частоте было частично поляризованным, при этом смена направления меридионального магнитного поля приводила к угловому сдвигу максимума поляризационной зависимости ВГ на  $10\div 12^\circ$ . Для геометрии экваториального магнитного нелинейно-оптического эффекта Керра были проведены исследования интерферометрии ВГ. Наблюдалось появление когерентной составляющей излучения ВГ, для которой магнитоиндуцированный сдвиг фазы при смене знака магнитного поля составил  $\Phi_{2\omega}(\mathbf{M}) \approx 110^\circ$ . Большая величина обнаруженного сдвига фаз свидетельствует о том, что генерация когерентной составляющей ВГ определяется преимущественно магнитоиндуцированной (нечетной по  $\mathbf{M}$ ) компонентой квадратичной восприимчивости.

Для структур с наночастицами железо-иттриевого граната когерентной составляющей ВГ в присутствии магнитного поля не наблюдалось, однако был обнаружен магнитный контраст интенсивности рассеянного излучения на удвоенной частоте,  $\varrho_{HRS}$ . Поскольку методика изготовления позволяет строго контролировать количество вещества (числа наночастиц) в пленках, была измерена зависимость магнитного контраста гиперрелеевского рассеяния от числа слоев в структуре,  $\varrho_{HRS}(N)$ . Показано, что величина контраста не зависит от толщины пленок и составляет  $\varrho_{HRS} \approx 8\%$ . Такое поведение  $\varrho_{HRS}(N)$  соответствует феноменологическому описанию магнитоиндуцированных эффектов в ГРР, из которого следует, что в отсутствие корреляций между квадратичными нелинейными источниками магнитный контраст интенсивности ВГ определяется только относительной величиной магнитной составляющей гиперполяризуемости отдельной наночастицы по сравнению с немагнитной (четной по  $\mathbf{M}$ ). Таким образом, предложенный метод магнитного гиперрелеевского рассеяния

позволяет изучать магнитные свойства индивидуальных наночастиц в структуре, если их объемная плотность достаточно мала.

## **Глава 5. Плазмонный механизм усиления нелинейно-оптического отклика металлических наночастиц**

В пятой главе представлены результаты экспериментального исследования особенностей нелинейно - оптического отклика металлических наночастиц и композитных материалов при возбуждении в них локальных поверхностных плазмонов. Исследованными структурами являлись магнитные наногранулярные пленки, островковые пленки серебра и композитные пленки  $Au/Co$  на поверхности кремния.

С целью изучения влияния локальных плазмонов на магнитоиндуцированные нелинейно-оптические эффекты в магнитных наногранулярных пленках  $Co_xAg_{1-x}$  в работе были исследованы спектральные зависимости интенсивности и магнитного контраста ВГ в диапазоне  $3.8 \div 4.4$  эВ для различной концентрации кобальта в структуре:  $x = 0.24, 0.35, 0.41$ . Для всех пленок  $Co_xAg_{1-x}$  был обнаружен спектральный максимум интенсивности ВГ в окрестности энергий фотона на частоте второй гармоники 4 эВ. Поскольку в спектрах объемного кобальта и серебра отсутствуют особенности в исследованном диапазоне длин волн, то наблюдавшиеся особенности в спектрах ВГ пленок  $Co_xAg_{1-x}$  могут быть связаны со спектральной зависимостью факторов локального поля в наногранулярной структуре. Спектры магнитного контраста, измеренные для пленок  $Co_xAg_{1-x}$  в геометрии экваториального эффекта Керра для  $p - p$  комбинации поляризации накачки и ВГ, приведены на рис. 4,б. Наличие спектральных максимумов  $\rho_{2\omega}$  также следует связывать с проявлением плазмонных эффектов в наногранулярных магнитных пленках.

Предположение о роли спектральной зависимости факторной локального поля в спектрах интенсивности и магнитного контраста ВГ в пленках  $Co_xAg_{1-x}$  подтверждается результатами расчетов, проведенных для ансамблей сферических эллипсоидов кобальта в матрице серебра в рамках модели, предложенной в [8]. При аппроксимации спектральной зависимости  $I_{2\omega}$  были рассмотрены продольные и поперечные резонансы локальных плазмонов эллипсоидов, ответственные за спектральное поведение магнитоиндуцированной и немаг-

нитной составляющих квадратичного отклика пленок. Результаты модельного расчета спектров интенсивности ВГ демонстрируют хорошее согласие с экспериментальными данными.

Во втором параграфе представлены результаты исследования магнитных свойств бислоистой планарной структуры  $Au/Co$  на поверхности кремния методами линейной и нелинейной магнитооптики. Образцы представляли собой пленки кобальта с толщиной  $d_{Co}=0.8\div 15$  нм на подложке Si(100), покрытые слоем золота толщиной 0.9 нм; образцы предоставлены проф. А.И. Стогнием (НПЦ НАН Беларуси по материаловедению). Согласно проведенным АСМ исследованиям, практически для всего диапазона значений  $d_{Co}$  поверхность бислоистой пленки является относительно гладкой и однородной, однако в области толщины кобальта  $d_{Co}=1.1\div 1.5$  нм наблюдается образование nanoостровков со средними латеральными размерами 60 нм при их высоте около 3 нм.

Нелинейно-оптические свойства  $Au/Co/Si$  структур были исследованы в геометрии экваториального магнитооптического эффекта Керра. Были измерены зависимости магнитного контраста и магнитоиндуцированного сдвига фаз для структур с разной массовой толщиной ферромагнитного металла. Наблюдалось значительное (в несколько раз) возрастание как полной интенсивности ВГ, так и относительной величины магнитоиндуцированной составляющей второй гармоники,  $E_{2\omega}^{odd}/E_{2\omega}^{even}$ , в области формирования островковой структуры пленок. Данный эффект объяснен резонансным возбуждением локальных поверхностных плазмонов в композитных магнитных островках  $Au/Co$ .

Третий параграф главы посвящен исследованиям эффектов усиления квадратичного и кубического отклика островковых пленок серебра при возбуждении в них локальных поверхностных плазмонов. Выражение для нелинейной поляризации для ВГ имеет вид:  $P_{2\omega} = \chi^{(2)} L_{2\omega}(2\omega) L_{\omega}^2 E_{\omega}^2$  и  $P_{3\omega} = \chi^{(3)} L_{3\omega}(3\omega) L_{\omega}^3 E_{\omega}^3$  - для ТГ;  $L_{\omega}$ ,  $L_{2\omega}$ ,  $L_{3\omega}$  - факторы локального поля на частотах накачки, второй и третьей гармоник, соответственно. Согласно [8], спектральная зависимость фактора локального поля для металлических сферических частиц, помещенных в диэлектрическую матрицу, имеет вид:

$$L(\lambda) = \frac{\varepsilon_d(\lambda)}{\varepsilon_d(\lambda) + [\varepsilon_m(\lambda) - \varepsilon_d(\lambda)](N - q/3)} \quad (4)$$

где  $\varepsilon_d(\lambda)$  и  $\varepsilon_m(\lambda)$  - диэлектрические проницаемости матрицы и металла, соот-

ветственно;  $N$ - фактор деполяризации, зависящий от соотношения осей сфероида;  $q$  - фактор заполнения. Для изолированной сферической серебряной частицы резонансная длина волны  $\lambda_{res} \approx 200$  нм; отклонение формы частицы от сферической, диполь-дипольное взаимодействие между частицами и увеличение диэлектрической восприимчивости материала матрицы приводит к длинноволновому сдвигу  $\lambda_{res}$ .

Островковые пленки серебра были изготовлены методом термического напыления  $Ag$  в вакууме с остаточным давлением  $10^{-5}$  торр. Для изучения плазмонного механизма усиления ТГ островковая пленка была нанесена на специально изготовленную структуру - ступенчатый клин оксида кремния с переменной толщиной на  $Si(001)$ . Такая структура позволяет контролируемым образом изменять влияние диэлектрической проницаемости кремния на факторы локального поля и спектр локальных поверхностных плазмонов, возбуждаемых в серебряных наноструктурах, варьируя расстояние между островковой пленкой и полупроводниковой подложкой.

При исследовании роли локальных поверхностных плазмонов в усилении второй и третьей оптической гармоники были исследованы спектры ВГ и ТГ для идентичных островковых пленок, напыленных на поверхность ступенчатого оксидного клина. Наблюдался частотный сдвиг резонансов гармоник в сторону коротких длин волн и возрастание амплитуды резонансов при увеличении толщины слоя оксида, максимальная величина спектрального сдвига составила около 20 нм. Эти изменения, отражающие роль действительной и мнимой частей эффективной диэлектрической проницаемости в спектральных зависимостях ТГ, подтверждают плазмонный механизм усиления нелинейно-оптического отклика в наночастицах серебра.

## **Глава 6. Квадратичные и кубичные нелинейно-оптические эффекты в магнитофотонных кристаллах**

Шестая глава посвящена исследованию квадратичных и кубичных нелинейно-оптических эффектов в магнитофотонных структурах. Пространственно - периодические микроструктуры – фотонные кристаллы и микрорезонаторы – привлекают внимание исследователей благодаря ряду уникальных свойств, отсутствующих в традиционных материалах и связанных с наличием в их спектре

фотонной запрещенной зоны (ФЗЗ) и микрорезонаторной моды. В таких структурах наблюдается ряд интересных эффектов, которые могут быть использованы для управления световыми потоками - модификация закона дисперсии, оптическое переключение, усиление люминесценции и др. С точки зрения нелинейной оптики такие структуры представляют большой интерес, поскольку в них оказывается возможным реализовать условия для значительного повышения эффективности нелинейно-оптического преобразования при выполнении условий фазового синхронизма, а также за счет эффектов пространственной локализации электромагнитного поля в структуре.

Для фотонных кристаллов выполнение условия фазового синхронизма может быть реализовано для волн одинаковой поляризации за счет измененного закона дисперсии в спектральной окрестности края ФЗЗ. В этом случае замыкание треугольника синхронизма достигается за счет вектора обратной решетки,  $\mathbf{G}$ , периодической микроструктуры:  $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_{2\omega} - 2\mathbf{k}_\omega + \mathbf{G} = 0$ . В фотоннокристаллических микрорезонаторах (МР) вследствие многопроходности распространения света и многолучевой интерференции оптическое поле концентрируется преимущественно в разделительном МР слое, что также должно приводить к возрастанию эффективности нелинейно - оптических процессов.

В ряде работ было показано, что если хотя бы один из составляющих фотонный кристалл материалов является магнитным, то в такой структуре возможно многократное усиление магнитооптических эффектов Керра и Фарадея по сравнению с наблюдающимися в эквивалентной магнитной среде, расположенной вне фотоннокристаллической структуры [9]. Однако до недавнего времени вопрос о магнитных нелинейно-оптических свойствах таких структур оставался открытым.

Исследованные образцы одномерных магнитофотонных кристаллов (МФК) и микрорезонаторов на кварцевых подложках были изготовлены методом магнетронного распыления соответствующих мишеней в атмосфере аргона в лаборатории проф. М. Иноуэ (Toyahashi Inst. of Technology, Japan). Магнитофотонные кристаллы состояли из пяти пар чередующихся слоев,  $(SiO_2/Bi : YIG)^5$ , оптическая толщина каждого слоя составляла четверть длины волны, соответствующей середине ФЗЗ ( $\lambda_0 = 900$  нм). Магнитофотонные МР были образованы двумя диэлектрическими центросимметричными брэгговскими зеркалами

ми  $(Ta_2O_5/SiO_2)^{5,5}$ , разделенными ферромагнитным слоем железо-иттриевого граната с висмутом ( $Bi:YIG$ ); изображение скола структуры, полученное в сканирующем электронном микроскопе, приведено на рис. 5,а. Оптическая толщина МР слоя соответствовала половине длины волны света при его нормальном падении на образец.

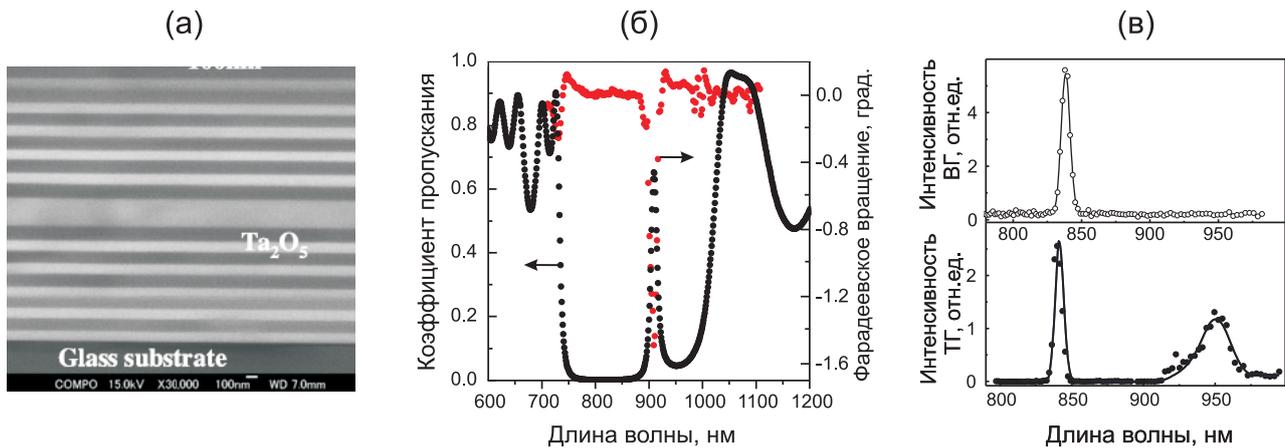


Рис. 5. (а) СЭМ-изображение скола магнитофотонного МР; (б) спектр коэффициента пропускания и угла фарадеевского вращения и (в) частотные спектры интенсивности отраженных ВГ и ТГ в магнитофотонном МР.

На рис. 5,б приведены спектры пропускания и угла фарадеевского вращения для магнитофотонного микрорезонатора. Спектры пропускания демонстрируют наличие фотонной запрещенной зоны в диапазоне  $750 \div 1030$  нм и узкой МР моды вблизи 900 нм. Значительное усиление фарадеевского вращения достигается в спектральном диапазоне, соответствующем МР моде. Аналогичное усиление для МФК наблюдается вблизи краев ФЗЗ.

Спектральные свойства нелинейно-оптического отклика МФК и МР были исследованы методами частотной и угловой спектроскопии второй и третьей гармоник. На рис. 5,в приведены спектры интенсивности ВГ и ТГ, отраженных от магнитофотонного МР при использовании в качестве накачки излучения наносекундного параметрического генератора света. Обнаружено возрастание интенсивности обоих сигналов в окрестности МР моды, обусловленное резонансным усилением поля накачки в этой спектральной области. Источником генерации ВГ в этом случае является, по-видимому, слабая дипольная

восприимчивость слоя  $Bi : YIG$ , в котором centrosymmetric структура железо-иттриевого граната нарушается при легировании висмутом. На краю ФЗЗ генерации ВГ не наблюдается, что связано с отсутствием дипольных источников ВГ в centrosymmetric брэгговских зеркалах. В то же время, в случае генерации третьей оптической гармоники, разрешенной в средах любой симметрии, наличие максимума интенсивности ТГ вблизи края ФЗЗ можно объяснить выполнением условий фазового синхронизма для генерации ТГ в этом спектральном диапазоне. В случае магнитофотонного кристалла наблюдалось усиление интенсивности ВГ и ТГ в окрестности длинноволнового края фотонной запрещенной зоны, связанное с выполнением условий фазового синхронизма для генерации волн гармоник.

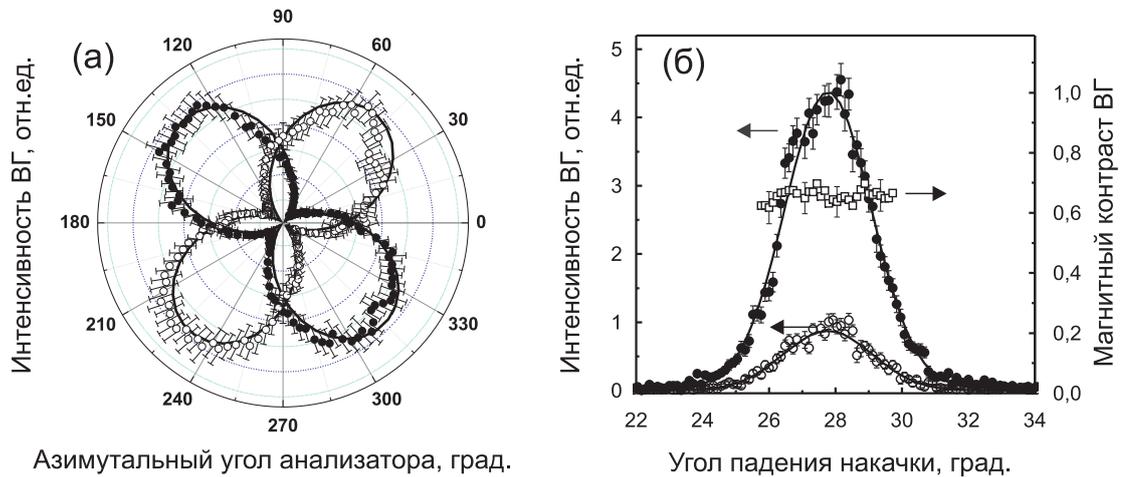


Рис. 6. (а) Поляризационные диаграммы интенсивности ВГ в МФК, измеренные для противоположных направлений меридионального насыщающего магнитного поля; (б) угловые спектры интенсивности ВГ и магнитного контраста ВГ в магнитофотонном МР, полученные для противоположных направлений экваториального магнитного поля.

Магнитоиндуцированные эффекты в магнитофотонных структурах были исследованы методами спектроскопии магнитного нелинейно-оптического эффекта Керра на частотах ВГ и ТГ. Исследовались спектральные зависимости магнитоиндуцированного поворота плоскости поляризации, сдвига фаз и магнитного контраста интенсивности волн ВГ и ТГ в окрестности края ФЗЗ (для магнитофотонного кристалла) и микрорезонаторной моды (для магни-

тофотонного МР). Максимальное значение керровского вращения плоскости поляризации волны ВГ наблюдалось в максимуме спектральной зависимости интенсивности ВГ для МФК и составило  $140^\circ$ ; в магнитофотонном МР в спектральной окрестности МР моды магнитоиндуцированный поворот плоскости поляризации достигал  $90^\circ$  в магнитном поле напряженностью 2 кГс (рис. 6,а). Наиболее сильный эффект магнитоиндуцированного изменения интенсивности ВГ обнаружен в случае магнитофотонного МР (рис. 6,б):  $\rho_{2\omega} \approx 0.65$ ; при этом магнитоиндуцированный сдвиг фаз волны ВГ составлял около  $170^\circ$ .

Наличие индуцированного магнитным полем поворота плоскости поляризации волны ВГ в МФК (МФМР) связано с появлением запрещенной для изотропной немагнитной среды нечетной по  $\mathbf{M}$   $s$ -поляризованной составляющей, которая для  $s$ -поляризованного излучения накачки определяется компонентой  $\chi_{yyy}$ , а немагнитный сигнал ВГ – компонентой  $\chi_{zyy}$ . Из экспериментальных зависимостей можно определить отношение  $\chi_{yyy}^{odd}/\chi_{zyy}^{even} \approx 2.7$  для магнитофотонного магнитофотонного кристалла и  $\approx 0.9$  - для МР, т.е. эффективная компонента магнитной квадратичной восприимчивости превышает немагнитную. Отметим, что наблюдавшиеся значения магнитооптических эффектов на частоте ВГ по крайней мере на два порядка превосходят линейные магнитооптические аналоги. В магнитофотонных структурах также были обнаружены магнитоиндуцированные эффекты на частоте ТГ в интенсивности и поляризации, однако их величины оказались существенно, на  $2 \div 3$  порядка по величине, меньше наблюдаемых в случае генерации ВГ.

В третьем параграфе представлены результаты исследования магнитоиндуцированных нелинейно - оптические эффектов в новом типе магнитофотонных кристаллов - трехмерных фотонно-кристаллических структурах на основе синтетических опалов. Периодические трехмерные магнитные структуры представляют большой интерес с точки зрения их возможного применения в качестве оптических переключателей, лазерных источников света, сенсоров и проч., однако их изготовление является сложной технологической задачей. В работе были исследованы образцы синтетических опалов, инфильтрованных  $Bi:YIG$ , предоставленные проф. В.Г. Голубевым (ФТИ им. А.Ф. Иоффе). Матрица опала с гранецентрированной кубической структурой была выращена из монодисперсных шаров аморфной окиси кремния  $SiO_2$  ( $\varnothing \approx 330 \pm 5$  нм), по-

верхность образца соответствовала грани (111). Образцы имели полидоменную структуру, средние размеры доменов составляли десятки микрон. Заполнение пор опала железо-иттриевым гранатом проводилось по золь-гель технологии с использованием коллоидного раствора гидроксидов  $Bi:YIG$  с последующим высокотемпературным отжигом. Данные рентгеноструктурного анализа указывают на наличие в порах опала железо - иттриевого граната и оксидов железа, определяющих магнитные свойства образцов. Фактор заполнения пор составил около 30%, т.е. менее 8% от объема образца.

В спектре отражения опалов наблюдался широкий максимум в диапазоне длин волн 700÷800 нм, соответствующий фотонной запрещенной зоне. В спектре ВГ наблюдалось возрастание интенсивности второй гармоники более чем в 10 раз (по сравнению с ее величиной вне ФЗЗ) вблизи длинноволнового края ФЗЗ, связанное, как можно предположить, с выполнением условий фазового синхронизма для генерации ВГ. Максимальная величина магнитного контраста интенсивности ВГ, измеренного в этом спектральном диапазоне, достигала 7%. Относительно небольшое значение  $\rho_{2\omega}$  в опалах с  $Bi:YIG$  связано, во-первых, с малым количеством магнитного материала в структуре и, во-вторых, с некогерентным характером генерации ВГ, в том числе ее магнитоиндуцированной составляющей, в полидоменной структуре опала.

В третьем параграфе представлены результаты исследования кубичных эффектов самовоздействия света в фотонно - кристаллических микрорезонаторах в условиях резонансного возбуждения МР моды. Непараметрический эффект светового самовоздействия состоит в зависимости показателя преломления нелинейной среды от напряженности электромагнитного поля излучения накачки,  $n(I) = n_0 + n_2^{eff}I$ , где  $n_0$  - линейный показатель преломления,  $n_2$  - нелинейная добавка к нему, определяемая кубичной восприимчивостью  $\chi^{(3)}(\omega; \omega, -\omega, \omega) = n_0 n_2 / 3\pi$ . Исследования были проведены для описанных выше магнитофотонных МР в спектральной окрестности МР моды с применением различных модификаций метода Z-сканирования. Из полученных данных была сделана оценка величины эффективного коэффициента нелинейной рефракции,  $n_2^{eff} = 10^{-9} \text{ см}^2/\text{Вт}$ , что на несколько порядков превышает величину  $n_2$  железо-иттриевого граната с висмутом.

Эффект нелинейного поглощения в микрорезонаторе был исследован мето-

дом безапертурного  $Z$ -сканирования; получено значительное превышение величины эффективной нелинейной добавки к коэффициенту поглощения по сравнению с типичной для пленки  $Bi:YIG$ , не помещенной в МР структуру. Новый эффект, наблюдавшийся при изучении самовоздействия света в МР структуре, заключается в зависимости угла поворота плоскости поляризации прошедшего излучения от его интенсивности. Показано, что такой эффект может проявляться при наличии двулучепреломления в МР слое. Для этих экспериментов был разработан поляризационно-чувствительный метод  $Z$ -сканирования.

Значительное превышение эффективных коэффициентов нелинейной рефракции и нелинейного поглощения в случае микрорезонаторной структуры по сравнению с наблюдающимися в случае эквивалентной свободной пленки железо-иттриевого граната может быть обусловлено двумя эффектами. Во-первых, в МР области резонансное поле накачки усиливается в  $Q$  раз, где  $Q$  - добротность микрорезонатора. Во-вторых, в МР структуре за счет многопроходности увеличивается эффективная толщина нелинейного слоя. Таким образом, выражение для показателя преломления МР слоя принимает вид:  $n(I) = n_0 + n_2^{eff}I$ , где  $n_2^{eff} = n_2Q^2$  - эффективная нелинейная добавка к показателю преломления. Аналогичным образом описываются эффекты нелинейного поглощения и поворота плоскости поляризации.

Результаты по визуализации оптического аналога эффекта Боррманна в нелинейном фотонном кристалле с помощью спектроскопии  $Z$ -сканирования приведены в заключительном параграфе главы. Эффект Боррманна, или аномального пропускания, известен из рентгеновской оптики и заключается в резонансной зависимости коэффициента пропускания кристаллического твердого тела от длины волны, обусловленного спектральным перераспределением поля стоячей электромагнитной волны в структуре. Оптический аналог этого эффекта для одномерного фотонного кристалла, образованного чередующимися линейными и нелинейными слоями ( $(Bi : YIG/SiO_2)^{5.5}$ ), был исследован в окрестности длинноволнового края ФЗЗ с помощью спектроскопии нелинейной рефракции и нелинейного поглощения. Величина этих эффектов определяется пространственным распределением интенсивности излучения и коэффициентом пропускания ФК, и для нелинейной рефракции имеет вид:

$\Delta n = n_2 I^{NL} \propto |b(\lambda)|^2 \cdot T(\lambda)$ , где  $b(\lambda)$  - коэффициент Боррманна, характеризующий степень локализации электрического поля в нелинейных слоях структуры:  $E_\omega^{NL} = b(\lambda)t(\lambda)E_\omega^{in}$ ,  $E_\omega^{in}$  - поле накачки вне ФК,  $t(\lambda)$  - коэффициент пропускания по полю. Из экспериментальных спектров  $\Delta n(\lambda)$  и  $t^2(\lambda)$  была рассчитана спектральная зависимость квадрата модуля коэффициента Боррманна  $|b(\lambda)|^2$ , имевшая немонотонный характер вблизи длинноволнового края ФЗЗ. Полученная зависимость находится в качественном соответствии с результатами модельных расчетов для исследованного фотонного кристалла в реализованных экспериментально условиях.

## Основные результаты и выводы:

1. Впервые с использованием нелинейно - оптических методов генерации второй оптической гармоники (ВГ) исследованы сегнетоэлектрические свойства и особенности фазового перехода в сверхтонких пленочных структурах на примере ленгмюровских пленок полимера поливинилиденфторида с трифторэтиленом. Обнаружено существование сегнетоэлектрического состояния и фазового перехода в предельно тонкой двумерной планарной структуре – мономолекулярном ленгмюровском слое. Зарегистрирован сегнетоэлектрический фазовый переход на свободной поверхности многослойных ленгмюровских пленок, обусловленный упорядочением дипольных моментов полимерных молекул в поверхностном ленгмюровском слое. Обнаружены особенности температурного поведения интенсивности ВГ, связанные с нанокристалличностью структуры сегнетоэлектрических ленгмюровских пленок.

2. Методами генерации второй оптической гармоники исследованы сегнетоэлектрические свойства и особенности фазового перехода в тонких эпитаксиальных пленочных структурах сегнетоэлектрических материалов. Обнаружены изменения сегнетоэлектрических свойств тонкопленочных структур по сравнению со свойствами монокристаллов. В пленках ниобата калия зарегистрирован эффект понижения температуры Кюри,  $T_C$ , и уширения температурной области сегнетоэлектрического фазового перехода, обусловленные нанокристалличностью структуры пленок при малых толщинах. Показано, что в случае эпитаксиальных пленок сегнетомангнетика феррита висмута достигает

ся значительное уменьшение температуры Кюри,  $T_C^{film}$ , сегнетоэлектрического фазового перехода по сравнению с температурой Кюри для монокристалла, вызванное ростом величины эпитаксиально-ростового механического напряжения в структуре. Разница температур Кюри  $\Delta T = T_C^{crystal} - T_C^{film}$  достигает величин  $\Delta T = (65 \pm 20)^\circ\text{C}$  для пленок с величиной механического напряжения  $\sigma = 0.27$  ГПа и  $\Delta T = (135 \pm 20)^\circ\text{C}$  - для пленок с  $\sigma = 0.36$  ГПа.

3. С использованием нелинейно - оптического метода генерации ВГ в тонких планарных ячейках сегнетоэлектрического жидкого кристалла исследованы особенности фазового перехода между полярной и неполярной смектическими фазами (переход  $SmC^* \rightarrow SmC_A$ ). Обнаружен электроклинный эффект, связанный с возникновением в таких системах тонкого приграничного слоя молекул, не испытывающего сегнетоэлектрического переключения при изменении температуры или внешнего электростатического поля в исследованном диапазоне напряженности вплоть до 8 МВ/м. Определено значение критического индекса  $\beta \approx 0.31$  перехода  $SmC^* \rightarrow SmC_A$ .

4. Обнаружено, что в магнитных наноструктурах - нанослоях и наночастицах магнитных металлов и железо-иттриевого граната - магнитные нелинейно - оптические эффекты второго и третьего порядков существенно, на один-два порядка по величине, превосходят значения соответствующих линейных магнитооптических аналогов. Значительное усиление магнитного нелинейно - оптического эффекта Керра на частотах второй и третьей оптических гармоник связано с появлением магнитоиндуцированной составляющей нелинейной поляризации в приповерхностной области магнитной среды. Экспериментально показано, что в неупорядоченных ансамблях магнитных наночастиц генерация второй и третьей оптических гармоник имеет вид гиперрелеевского рассеяния, характерные значения относительной величины магнитной гиперполяризуемости наночастиц по порядку величины составляют 0,1.

5. Впервые зарегистрировано усиление магнитного нелинейно - оптического эффекта Керра на частотах второй и третьей оптических гармоник в наногранулярных магнитных пленках. Обнаружена корреляция величины магнитного нелинейно - оптического эффекта Керра и коэффициента гигантского магнитосопротивления в гранулярных пленках  $Co_xAg_{1-x}$ , проявляющаяся в качественно одинаковой зависимости магнитного контраста интенсивности второй

и третьей гармоник, и коэффициента магнитосопротивления от концентрации ферромагнитного металла в структуре пленок. Обнаружено возрастание как магнитного, так и немагнитного (кристаллического) отклика на частоте ВГ в гранулярных пленках  $Co_xAg_{1-x}$ , обусловленное резонансным возбуждением локальных поверхностных плазмонов в магнитных наногранулах в спектральном диапазоне  $3.9 \div 4.0$  эВ.

6. Обнаружен эффект усиления интенсивности квадратичного и кубического нелинейно - оптического отклика металлических наночастиц в спектральной области, соответствующей возбуждению в них локальных поверхностных плазмонов. Показано, что в островковых пленках серебра резонансное возрастание локального оптического поля при возбуждении локальных поверхностных плазмонов приводит к увеличению эффективности генерации второй и третьей гармоник, соответствующие коэффициенты усиления составляют около  $10^2$ . Обнаружен сдвиг спектрального максимума интенсивности второй и третьей оптических гармоник в длинноволновую область спектра при уменьшении расстояния между островковой пленкой и кремниевой подложкой, что подтверждает плазмонный механизм усиления нелинейно - оптического отклика островковых пленок серебра.

7. Впервые исследованы эффекты усиления нелинейно - оптического отклика магнитофотонных кристаллов и микрорезонаторов. Показано, что механизмами усиления второй и третьей, в том числе магнитоиндуцированных, гармоник в таких структурах являются выполнение условий фазового синхронизма для соответствующего нелинейно - оптического процесса в спектральной окрестности края фотонной запрещенной зоны, а также пространственная локализация оптического поля в микрорезонаторной области в случае магнитофотонного микрорезонатора. В спектральной области усиления нелинейно - оптического отклика исследованы магнитоиндуцированные эффекты при генерации второй и третьей гармоник. Магнитный контраст интенсивности ВГ в экваториальном эффекте Керра достигает 90%, магнитоиндуцированный поворот плоскости поляризации -  $140^\circ$ .

8. Обнаружено значительное усиление кубических нелинейно-оптических эффектов: нелинейной рефракции, нелинейного поглощения и поляризационного самовоздействия света в фотонно-кристаллических микрорезонаторах в спек-

тральной окрестности микрорезонаторной моды. Возрастание непараметрических нелинейно-оптических эффектов обусловлено усилением оптических полей при пространственной локализации резонансного излучения в микрорезонаторной моде. Методами спектроскопии нелинейной рефракции и поглощения выявлена спектральная зависимость распределения электромагнитного поля вблизи края фотонной запрещенной зоны одномерного нелинейного фотонного кристалла, что является проявлением оптического аналога эффекта Боррманна.

9. На основе выполненных исследований развиты нелинейно - оптические методы диагностики наноструктурированных сегнетоэлектриков и магнетиков, включающие в себя комплексную характеризацию структурных, спектральных, сегнетоэлектрических и магнитных свойств нано- и микроструктур. Разработаны методы диагностики пространственно неупорядоченных магнитных и сегнетоэлектрических сред, основанные на гиперрелеевском рассеянии света и магнитном нелинейно - оптическом эффекте Керра второго и третьего порядков.

### **Список основных публикаций по теме диссертации:**

1. T.V. Murzina, E.A. Ganshina, V.S. Guschin, T.V. Misuryaev, O.A. Aktsipetrov, Nonlinear magneto-optical Kerr effect and second harmonic generation interferometry in Co-Cu granular films// Appl. Phys. Lett. – 1998. - Vol. 73, p. 3769-3771.

2. T.V. Murzina, G.B. Khomutov, A.A. Nikulin, Th. Rasing, O.A. Aktsipetrov, Hyper - Rayleigh scattering in Gd-containing LB superstructures// J. Opt. Soc. Am. B – 2000. - Vol. 17, p. 63-67.

3. O.A. Aktsipetrov, T.V. Misuryaev, T.V. Murzina, L.M. Blinov, V.M. Fridkin, S.P. Palto, Second - harmonic generation probe of two - dimensional ferroelectricity// Opt. Lett. – 2000. - Vol. 25, p. 411-413.

4. T.V. Murzina, A.A. Nikulin, O.A. Aktsipetrov, J.W. Ostrander, A.A. Mamedov, N.A. Kotov, M.A.C. Devillers, J. Roark, Nonlinear magneto - optical Kerr effect in hyper - Rayleigh scattering from layer-by-layer assembled films of yttrium iron garnet nanoparticles// Appl. Phys. Lett. – 2001. - Vol. 79, p. 1309-1311.

5. T.V. Murzina, T.V. Misuryaev, A.F. Kravets, J. Gudde, D. Schuhmacher, G. Marowsky, A.A. Nikulin, O.A. Aktsipetrov, Nonlinear magneto - optical Kerr effect and plasmon - assisted second harmonic generation in magnetic nanomaterials exhibiting giant magnetoresistance// Surf. Sci. – 2001. - Vol. 482-485, p. 1101-1106.

6. Yu.G. Fokin, T.V. Misuryaev, T.V. Murzina, S.P. Palto, N.N. Petukhova, S.G. Yudin, O.A. Aktsipetrov, Two - dimensional ferroelectricity in monolayer PVDF Langmuir Blodgett films studied by optical second - harmonic generation// Surf. Sci. – 2002. - Vol. 507-510, p. 719-723.
7. T.V. Murzina, T.V. Misuryaev, A.A. Nikulin, O.A. Aktsipetrov, J. Gudde, Correlation between GMR and nonlinear magneto - optical Kerr effect in granular films// J. Mang. Magn. Mat. – 2003. - Vol. 258-259, p. 99-102.
8. О.А. Акципетров, Р.В. Капра, Т.В. Мурзина, А.А. Рассудов, К. Ниши-мура, Х. Учида, М. Иноуэ, Генерация магнитоиндуцированной третьей гармо-ники в магнитных фотонных микрорезонаторах// Письма в ЖЭТФ – 2003. - Том 77, с. 639-642.
9. Т.В. Мурзина, Т.В. Мисюряев, Ю.Г. Фокин, С.П. Палто, С.Г. Юдин, О.А. Акципетров, Поверхностный фазовый переход в многослойных полимерных ленгмюровских пленках// Письма в ЖЭТФ – 2003. - Том 78, с. 160-164.
10. Т.В. Мурзина, Е.М. Ким, С.Е. Мацкевич, О.А. Акципетров, А.Ф. Кра-вец, А.Я. Вовк, Генерация магнитоиндуцированной третьей оптической гармо-ники в магнитных наногранулярных пленках: корреляция с гигантским маг-нитосопротивлением// Письма в ЖЭТФ - 2004. - Том 79, с. 190-194.
11. Yu.G. Fokin, T.V. Murzina, O.A. Aktsipetrov, S. Soria, G. Marowsky, Ferro- electric ordering and electroclinic effect in chiral smectic liquid crystals// Phys. Rev. E – 2004. - Vol. 69, p. 031701 1-6.
12. T.V. Murzina, R.V. Капра, Т.В. Dolgova, А.А. Fedyanin, О.А. Aktsipetrov, K. Nishimura, H. Uchida, M. Inoue, Magnetization - induced second - harmonic generation in magnetophotonic crystals// Phys. Rev. B – 2004. - Vol. 70, p. 012407 1-4.
13. Е.М. Ким, С.С. Еловиков, Т.В. Мурзина, О.А. Акципетров, М.А. Бадер, Г. Маровский, Генерация гигантской третьей оптической гармоника в остров-ковых пленках серебра// Письма в ЖЭТФ – 2004. - Том 80, с. 600-604.
14. О.А. Aktsipetrov, T.V. Murzina, Е.М. Kim, R.V. Капра, А.А. Fedyanin, M. Inoue, A.F. Kravets, S.V. Kuznetsova, M.V. Ivanchenko, V.G. Lifshits, Magnetization- induced second- and third harmonic generation in magnetic thin films and nanoparticles// J. Opt. Soc. Am. B – 2005. - Vol. 22, p. 137-147.
15. Е.М. Kim, S.S. Elovikov, T.V. Murzina, О.А. Aktsipetrov, М.А. Bader, G. Marowsky, Surface - enhanced optical third harmonic generation in Ag island films// Phys. Rev. Lett. – 2005. - Vol. 95. - p. 227402 1-4.
16. T.V. Murzina, Е.М. Kim, R.V. Капра, I.V. Moshnina, О.А. Aktsipetrov, D.A. Kurdyukov, S.F. Kaplan, V.G. Golubev, М.А. Bader, G. Marowsky, Magneto- photonic crystals based on yttrium-iron-garnet-infiltrated opals: Magnetization - induced second harmonic generation// Appl.Phys.Lett. – 2006. - Vol. 88, p. 022501 1-3.

17. T.V. Murzina, E.M. Kim, R.V. Kapra, O.A. Aktsipetrov, A.F. Kravets, M. Inoue, S.V. Kuznetsova, M.V. Ivanchenko, V.G. Lifshits, Magnetization-induced optical third harmonic generation in Co and Fe nanostructures// Phys. Rev. B – 2006. - Vol.73, p. 140404 1-4.
18. M. Inoue, R. Fujikawa, A. Baryshev, A. Khanikaev, P.B. Lim, H. Uchida, O. Aktsipetrov, A. Fedyanin, T. Murzina, A. Granovsky, Magnetophotonic crystals// J. Phys. D: Appl. Phys. – 2006. - Vol. 39, p. R151-R161.
19. T.V. Murzina, S.A. Savinov, A.A. Ezhov, O.A. Aktsipetrov, I.E. Korsakov, I.A. Bolshakov, A.R. Kaul, Ferroelectric properties in  $KNbO_3$  thin films probed by optical second harmonic generation// Appl. Phys. Lett. – 2006. - Vol. 89, p. 062907 1-3.
20. И.Э. Раздольский, Р.В. Капра, Т.В. Мурзина, О.А. Акципетров, М. Иноуэ, Кубичные эффекты самовоздействия в фотонно - кристаллических микрорезонаторах //Письма в ЖЭТФ – 2006. - Том 84, с. 529-532.
21. M.S. Kartavtseva, O.Yu. Gorbenko, A.R. Kaul, T.V. Murzina, S.A. Savinov, O.A. Aktsipetrov, Strain - induced effects in phase transitions in thin films of multiferroic  $BiFeO_3$  probed by optical second - harmonic generation// J. Mater. Res. – 2007. - Vol. 22, p. 2063-2067.
22. M.S. Kartavtseva, S.A. Savinov, O.Yu. Gorbenko, T.V. Murzina, A.R. Kaul, A. Barthelemy,  $BiFeO_3$  thin films prepared using metalorganic chemical vapor deposition// Thin Solid Films – 2007. - Vol. 515, p. 6416-6421.
23. И.Э. Раздольский, Т.В. Мурзина, О.А. Акципетров, М. Иноуэ, Эффект Боррманна в фотонных кристаллах: нелинейно-оптические следствия// Письма в ЖЭТФ – 2008. - Том 87, с. 461-464.
24. T.V. Murzina, I.E. Razdolski, O.A. Aktsipetrov, A.M. Grishin, S.I. Khartsev, Nonlinear magneto - optical effects in all - garnet magnetophotonic crystals// J. Magn. Magn. Mat. – 2009. - Vol. 321, p. 836-839.
25. Т.В. Мурзина, А.В. Шебаршин, И.А. Колмычек, Е.А. Ганьшина, О.А. Акципетров, Н.Н. Новитский, А.И. Стогний, А. Сташкевич, Магнетизм планарных наноструктур кобальт - золото на поверхности кремния// ЖЭТФ – 2009. - Том 136, с. 123-134.
26. T.V. Murzina, A.V. Shebarshin, A.I. Maidykovski, E.A. Gan'shina, O.A. Aktsipetrov, N.N. Novitski, A.I. Stognij, A. Stashkevich, Linear and nonlinear magneto-optics of planar Au/Co/Si nanostructures// Thin Solid Films - 2009. - Vol. 517, p. 5918-5921.

## Цитированная литература

- [1] С.А. Ахманов, Р.В. Хохлов, *Проблемы нелинейной оптики*. - М. - Наука. - 1964. - 362С.

[2] И.Р. Шен, *Принципы нелинейной оптики*. - М. - Наука. - 1989. - 557С.

[3] О.А. Акципетров, О.В. Брагинский, Д.А. Есиков, Нелинейная оптика гиротропных сред: генерация второй гармоники в пленках редкоземельных феррит-гранатов// *Квантовая электроника*. - 1990. - Том 20, с. 259-265.

[4] U. Pustogowa, W. Hubner, K. H. Bennemann, Enhancement of the magneto-optical Kerr angle in nonlinear optical response// *Phys. Rev. B* - 1994. - Vol. 49, p. 10031-10034.

[5] A. V. Bune, V. M. Fridkin, S. Ducharme, L.M. Blinov, S.P. Palto, A. V. Sorokin, S.G. Yudin, A. Zlatkin, Two-dimensional ferroelectric films// *Nature* - 1998. - Vol. 391, p. 874-877.

[6] Л.М. Блинов, В.М. Фридкин, С.П. Палто, А.В. Буне, П.А. Даубен, С. Дюшарм, Двумерные сегнетоэлектрики// *Успехи физических наук*. - 2000. - Том 170, с. 247-262.

[7] А.М. Агальцов, В.С. Горелик, А.К. Звездин, В.А. Мурашев, Д.Н. Раков, Температурная зависимость второй оптической гармоники в сегнетомагнетике феррите висмута// *Краткие сообщения по физике* - 1989. - № 5, с. 37-39.

[8] В.И. Емельянов, Н.И. Коротеев, Эффект гигантского комбинационного рассеяния света молекулами, адсорбированными на поверхности металла// *Успехи физических наук* - 1981. - Том 135, с. 345-361.

[9] A.G. Zhdanov, A.A. Fedyanin, O.A. Aktsipetrov, D. Kobayashi, H. Uchida, M. Inoue, Enhancement of Faraday rotation at photonic-band-gap edge in garnet-based magnetophotonic crystals// *J. Magn. Magn. Mat.* - 2006. - Vol. 300, p. 253-257.

Подписано в печать 24/11-09

Формат 60x84/16. Заказ № 97. Тираж 110 экз. П. л. 2,25

Отпечатано в РИИС ФИАН с оригинал-макета заказчика.

119991 Москва, Ленинский проспект, 53. Тел. 499 783 3640