

复合磁性纳米阵列薄膜磁光特性的研究

张建修¹, 张学彬¹, 张绍银^{1,2*}

¹临沂大学物理与电子工程学院, 凝聚态物理研究所, 山东 临沂

²南京大学物理学院, 江苏 南京

Email: *shaoyinzhang@163.com

收稿日期: 2021年2月25日; 录用日期: 2021年3月24日; 发布日期: 2021年3月31日

摘要

为增进磁性薄膜的磁光性能, 利用Comsol软件设计了含钴膜的多层阵列薄膜, 对二维周期性复合薄膜磁光性能进行了数值计算。阐明了二维阵列薄膜的等离激元激发与入射光波波长和方位角有关, 具有各向异性。探寻了阵列薄膜光学反射率、纵向磁光克尔角随波长和方位角的变化规律。研究发现, 复合多层磁性薄膜的磁光性能相较于单层磁性薄膜有了较大提升, 由此阐明了磁光增强的物理新机制: 复合多层阵列薄膜的等离激元和介质层的腔效应耦合是磁光性能改善的根源。此项研究对于设计高性能磁光材料提供了有益指导。

关键词

周期磁性阵列薄膜, 等离激元, 克尔效应

Research on Magnetic-Optical Performance of Composite Magnetic Nano-Array Films

Jianxiu Zhang¹, Xuebin Zhang¹, Shaoyin Zhang^{1,2*}

¹Institute of Condensed Matter Physics, School of Physics and Electronic Engineering, Linyi University, Linyi Shandong

²School of Physics, Nanjing University, Nanjing Jiangsu

Email: *shaoyinzhang@163.com

Received: Feb. 25th, 2021; accepted: Mar. 24th, 2021; published: Mar. 31st, 2021

Abstract

In order to enhance the magneto-optical properties of magnetic films, the quadrilayer array films

*通讯作者。

were designed by Comsol, and the numerical calculations were shown as for two-dimensional orderly array film. The anisotropies of surface plasmon resonance with wavelength and azimuthal angle of incident plane were presented. Furthermore, the optical reflectance and the longitudinal Kerr spectra varying with wavelength and azimuthal angle of incident plane were studied in the range of visible light. The calculations showed the enhancement of magneto-optical Kerr rotation for the quadrilayer array film in comparison with that of the single layer Co film. It is elucidated that the magneto-optical enhancement of quadrilayer array film can be realized by the coupling between surface plasmon resonance and cavity effect. The study will be valuable in future applications for high performance magnetic film.

Keywords

Magnetic Orderly Array Film, Surface Plasmons, Kerr Effect

Copyright © 2021 by author(s) and Hans Publishers Inc.

This work is licensed under the Creative Commons Attribution International License (CC BY 4.0).

<http://creativecommons.org/licenses/by/4.0/>



Open Access

1. 引言

随着对表面等离激元理论研究的深入与现代纳米加工技术的进步,一些专家学者开始发现表面等离激元 SPP(Surface Plasmon Polariton)具有极其广阔的前景,越来越多的专家学者加入了这个研究的队伍。在 20 世纪末,发现了二维周期性金属圆孔结构的透过增强现象,这个发现极大地促进了表面等离激元的原理以及在实际生活中,这样一门新兴科学——表面等离激元学也就慢慢形成了[1] [2] [3]。跨入 21 世纪以来,在表面等离激元相关领域的研究已经取得了许多令人欣喜的新进展,而且由于它的应用广泛性,这门学科迅速与其它学科领域交叉渗透,形成了许多新的研究领域[4] [5] [6]。

表面等离激元有两个重要的特性:表面局域性和近场增强性,利用这两个重要的特性,可以应用在能源、超分辨成像、传感探测、生命科学等多个科学领域。特别是,随着纳米加工和制备技术以及理论模拟分析手段的发展,表面等离激元对磁光效应影响的研究逐渐广泛和深入。磁性材料的磁光克尔效应在理论和实验方面都引起人们很大的兴趣。探求增强磁光克尔效应的途径是一项极受重视的工作。以前的研究多集中于单一磁性材料纳米结构中的磁光效应,利用等离激元激发来调控磁光性能。然而在复合磁性纳米结构中存在两种效应:等离激元的激发及介质层内微腔干涉效应,这二者耦合怎样影响磁光效应,以及通过等离激元和微腔效应耦合有效调控磁光效应是一个有意义的科学问题,也是一个需要解决的关键问题。因此,研究纳米结构材料的磁光性能具有重要的科学意义。鉴于此,在本项目中我们将引入电介质层,使其与磁性金属层相结合,设计复合多层的磁性纳米结构,探讨其磁光增强的规律。为实现磁性纳米材料磁光效应的人工调控,发展具有强的磁光效应的新型纳米结构功能材料和高灵敏传感器件提供理论依据。

2. 理论模型的建立

2.1. 等离激元波矢匹配条件

现设有无限大的两种各向同性介质材料,运用 Maxwell (麦克斯韦)方程,和边界条件相结合,便可

计算得到 SPP (Surface Plasmon Polariton) 的色散特征和它的场分布, 假设 TM 电磁波与垂直方向偏离一定角度射到半无限介质与金属界面(xz 平面)。一般 TM 电磁波的波矢量 $\mathbf{k} = (k_x, k_y, 0)$, 电场和磁场的表达式可以写成如下[7]-[12]形式:

$$\begin{aligned} \mathbf{E} &= [E_x, E_y, 0] e^{i(k_x x + k_y y - \omega t)} \\ \mathbf{H} &= [0, 0, H_z] e^{i(k_x x + k_y y - \omega t)} \end{aligned} \quad (1)$$

依据麦克斯韦无源的方程式:

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\varepsilon \partial \mathbf{E}}{\partial t}$$

在介质与金属界面, 再结合边界连续条件, 得到沿着介质和金属分界面传播的 SPP 的色散方程:

$$k_{spp} = k_0 \sqrt{\frac{\varepsilon_1 \varepsilon_2}{\varepsilon_1 + \varepsilon_2}} \quad (2)$$

上式中 ε_1 是介质的介电常数, 是一实数。但是由于金属的介电常数 $\varepsilon_2 = \varepsilon_{2r} + i\varepsilon_{2i}$ 是一个复数。

通过上面的传播等离子元 SPP 色散关系, 我们只是明确了表面等离子元的自身的一些性质, 如要想使其在金属与介质的交界面上产生表面等离子元, 由于 SPP 的波矢与空间中的光波矢具有一定的差值, 也就说如果要激发 SPP 就必须使用一些方法, 提供缺少的那段波矢。也就是我们说的进行波矢匹配, 这样才能产生表面传播等离子元的激发。

在进行波矢匹配时, 我们利用周期性结构带来的倒格矢来达到自由空间的光波矢量与 SPP 的波矢进行匹配的目的[13][14], 这是一个简单而有效的方法。关于周期性结构来说, 因为面内波矢的动量是守恒的, 于是可以得到以下波矢匹配条件:

$$|\operatorname{Re}(k_{spp}(\lambda))| = |k_{\parallel}(\lambda) + G| \quad (3)$$

上述式子当中 $\operatorname{Re}(k_{spp})$ 代表的是表面 SPP 波矢中的实数部分, G 代表的是晶格倒格矢, k_{\parallel} 代表的是入射光周期阵列平面内的波矢分量。所谓的波矢匹配如(3)式, 就是要平面内光波矢加上外在的倒格矢的等于在这个频率下的 SPP 的波矢。

这里我们讨论二维周期性结构, 这边我们采用的是四方晶格, 四方晶格它的波矢匹配条件是:

$$|\operatorname{Re}(k_{spp}(\lambda))| = |k_{\parallel}(\lambda) + G_{m,n}| = \left| k_{\parallel}(\lambda) + \left(m \cdot \frac{2\pi}{a_1} i + n \cdot \frac{2\pi}{a_2} j \right) \right|$$

正空间中晶格结构的周期这里用 a_1, a_2 表示, (m, n) 它所代表的是倒格矢所对应的级次, 称为衍射级次。如果上述式子的条件满足后, 就会产生表面等离子元(SPP)。

2.2. COMSOL 计算模型

COMSOL multiphysics 是一个常见的多物理分析的软件, 可以用这个软件来进行力学、光学、化学等很多方面的模拟。周期性结构中的光学性质可以用这套软件射频模块来模拟。我们使用软件的射频模块, 作如下说明:

1) 三维建模。COMSOL 提供了一整套的建模工具, 比如矩形、椭圆等基本形状, 以及拉伸、阵列等操作, 根据 Co 点阵列结构, 我们建立了如下面图 1 所示的三维模型。

建模方法: 建立这种多层的周期性的纳米点阵结构, 需要首先建立一个四方晶格阵列支架, 然后在上层叠加一些薄膜层, 总共四层薄膜, 分别是银(Ag)、二氧化铪(HfO₂)、钴(Co)、二氧化铪(HfO₂)。

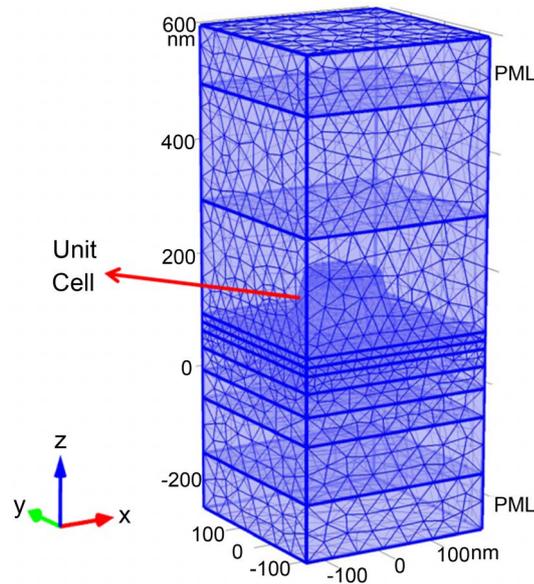


Figure 1. The schematic for COMSOL calculation model
图 1. COMSOL 模型示意图

2) 网格划分：由于数值计算的需要我们采用网格化这种形式。所谓的网格划分就是把它分成一个一个小网格，计算的时候先计算第一个网格，再计算第二个网格……然后把它们延伸起来，每个网格就是一个计算单位。这种计算的方式也是软件所要求的。

3) 材料参数设置：最上层的薄膜选用 HfO_2 ，其中 HfO_2 的光学折射率约为 1.9，比日常我们用的玻璃(折射率约为 1.55)还要高。因此它透过的光就比较多，在两层 HfO_2 薄膜之间形成法布里波罗腔，透射光能够在腔里反复震荡，增加了光与钴(Co)的作用时间。如果上层不覆盖二氧化铪薄膜，光在钴的表面就会立刻反射出来，作用效果就没那么强了。

4) 其他设置，对于入射光电场 \mathbf{E} 的偏振方向如图 2(a)所示。磁场方向垂直纸面向外，与膜面平行。 \mathbf{E} 和 \mathbf{H} 的叉乘沿着 \mathbf{k} 的方向， \mathbf{k} 、 \mathbf{E} 和 \mathbf{H} 相互垂直。入射光场，是一种 P 偏振光场。图 2(b)标示了入射光的入射角 θ 和方位角 φ 。

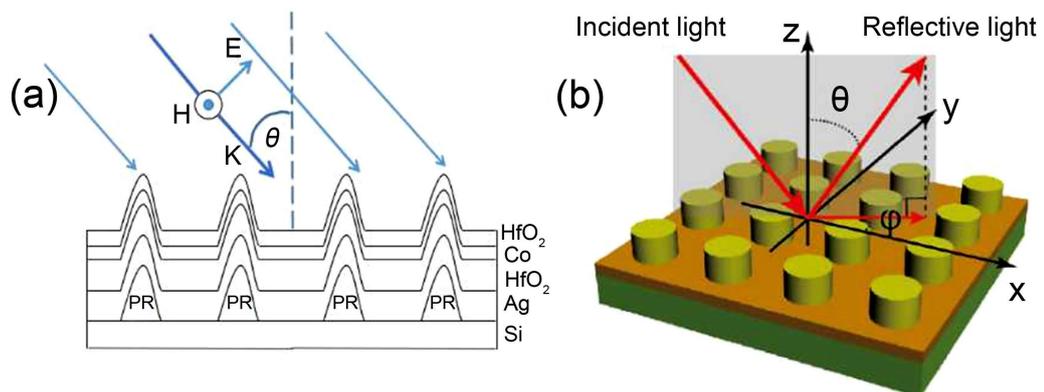


Figure 2. (a) The cross-section schematic of magnetic quadrilayer of nano-array; (b) The x, y axis is along the perpendicular direction of the square array, respectively. The alphabet of θ is expressed as incidence angle of light, the alphabet of φ is expressed as light azimuthal angle for the array film

图 2. (a) 四层磁性阵列薄膜竖截面示意图；(b) x、y 轴沿方形阵列两个正交方向，z 轴为法线方向。入射光的入射角为 θ ，在阵列薄膜的方位角为 φ

3. 分析与讨论

3.1. 探究纳米钴阵列膜的等离激元激发条件

把同一个钴的纳米点阵列膜，取为方形阵列，周期设置为 330 nm，纳米点高 20 nm，分别在空气和二氧化铪的包覆下，探究其激发表面等离激元的条件。软件数值计算的结果如下。

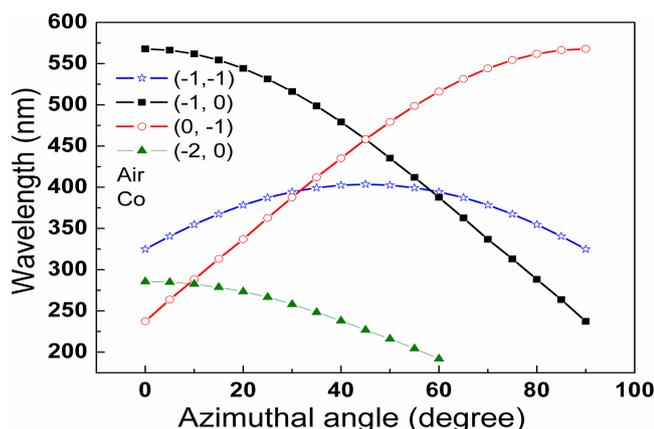


Figure 3. Simulation result of incident light’s wavelengths that need to excite surface plasmon resonances involving the diffraction orders for various azimuthal angles along the interface of Co layer of array in air

图 3. 空气中钴阵列膜的等离激元激发需要的入射波长随方位角的变化

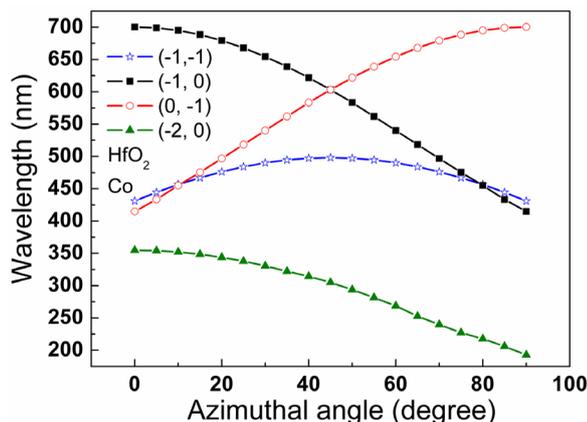


Figure 4. Simulation result of incident light’s wavelengths that need to excite surface plasmon resonances involving the diffraction orders for various azimuthal angles along the interface of Co layer of array in the dielectric of HfO₂

图 4. HfO₂ 介质中钴阵列膜的等离激元激发需要的入射波长随方位角的变化

由图 3、图 4，对比可以看出，同一纳米 Co 阵列膜不管在空气中还是在 HfO₂ 的包覆下，不同级次衍射光激发的等离激元的波长是不一样的。在两种介质中(-1, 0)这种衍射级次光产生 SPP 对应的入射波长，随方位角的增大而逐渐减小，(0, -1)级次产生 SPP 需要的入射波长，随方位角的增大而逐渐增加，(-1, -1)这种级次产生 SPP 需要的入射波长，随方位角的增大变化不大，而(-2, 0)级次光产生 SPP 需要的入射波长，随方位角的增大缓慢减小。

同时它们也有不同点，把 Co 纳米阵列膜放到不同的介质中，激发等离激元对应的入射波长是不一样的。在空气中的包覆下激发 SPP 最高波长约 570 nm，而在 HfO₂ 的包覆下 Co 激发 SPP 最高波长能达到 700 nm，前者激发 SPP 的入射波长主要在短波长，而后者激发 SPP 的入射波长主要处于较长波长的范围。

由此可见，钴阵列膜在不同的介质里面，等离激元激发对应的入射光波长是不一样的。虽然它们曲线的变化趋势大致相同，但是激发的波长范围有所不同，所以介质环境会影响钴阵列的光学特性。

3.2. 复合磁性纳米阵列膜的光学反射率

在数值计算中，我们取四层阵列膜各层厚度，从上到下依次为 HfO_2 (20 nm), Co (20 nm), HfO_2 (40 nm), Ag (40 nm)，方形阵列周期为 330 nm。复合纳米磁性阵列对光的反射，会随着方位角和入射光波长的变化而变化，以下研究这种周期阵列光学反射率的变化规律。

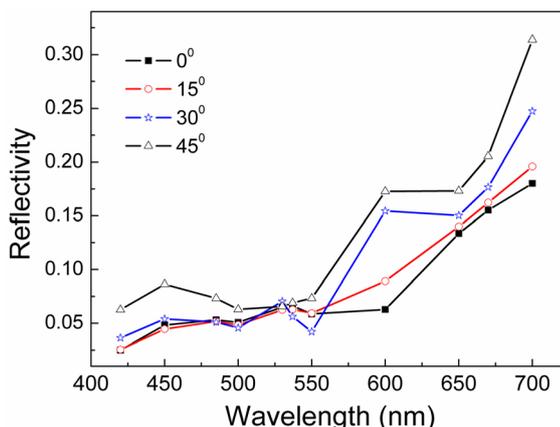


Figure 5. The reflectivity of the quadrilayer of nano-array as a function of wavelength with various azimuthal angles of incident plane

图 5. 不同方位角的复合纳米阵列膜光学反射率随入射波长的变化曲线

这里入射角固定 45° 情况下，我们分别取了方位角为 0° , 15° , 30° , 45° 来研究四层纳米钴阵列的反射系数。图 5 中横坐标代表的是入射光的波长，纵坐标代表的是反射率。

由图 5 看出，在入射光的频率相同的条件下，不同的方位角它的反射率是不一样的，都彼此分离。这就可以说明在点阵列的四层结构中薄膜的反射率跟方位角的大小有着很大的关联，在不同的方位角下薄膜的反射特性会发生改变，并且如果固定方位角的大小，薄膜的反射率也会随着入射光频率的改变而改变。方位角为 0° , 15° , 30° , 45° 时它们的反射率随入射光频率变化曲线可以看出，这几个曲线的变化趋势大致类似，入射光在短波范围内时，它们的反射率都比较低一些，随着入射光波长的增加，它们的反射率会上升，反射率随波长和方位角变化。因此，多层点阵薄膜对光具有各向异性。

在方位角为 30° ，入射光的频率为 550 nm 时，我们发现它有一个谷值，对这个极小值出现的原因我们做了进一步分析。我们取了单层纳米钴的点阵列(在空气的包覆下)和多层纳米钴的点阵列(在 HfO_2 的包覆下)进行比较。

从图 6，我们发现在方位角为 30° ，入射光频率相同的情况下，单层的钴薄膜(在空气的包覆下)薄膜的反射率比较高，而多层的钴薄膜(在 HfO_2 的包覆下)它的反射率就比较低。显然多层结构的光吸收比较显著。并且在空气中的单层钴薄膜在入射光的波长为 550 nm 时并没有极小值的出现。那么多层的阵列薄膜光吸收比较显著的原因是：钴薄膜有 HfO_2 的包覆，入射光照射在它的表面就可以在多层结构中形成法布里波罗腔。光学腔通过光的折射对光进行一定的吸收，进去的光能量多，出来的光能量少，这样就导致了单层结构反射率高，而多层结构反射率低，对光吸收比较显著。这说明构成四层结构的薄膜形成的光学腔起到了对光的一个吸纳作用，降低了它的反射率。

为了解释多层结构在方位角 30° 为入射光的波长 550 nm 反射率出现的极小值，利用 COMSOL 软件，

我们又做了一个在方位分别为 0° 和 30° ，入射光的波长为 550 nm 时，多层纳米钴阵列纳米盘光场的空间分布。

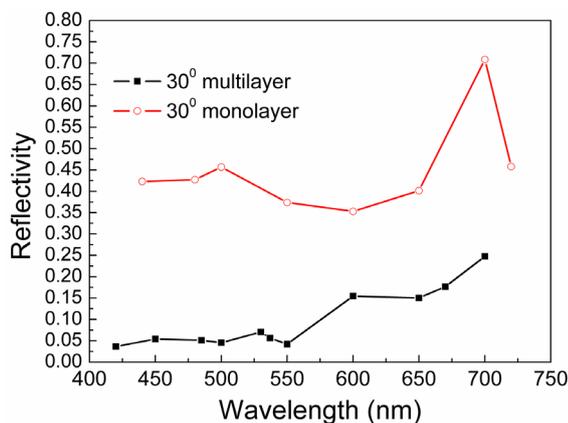


Figure 6. The comparison of reflectivity between monolayer and quadrilayer of Co nano-array
图 6. 单层纳米磁性阵列膜和复合纳米磁性阵列膜反射率对比

图 7 是 x, y 平面的光场空间分布情况。图 7(a) 图是方位角为 0° 时光场的空间分布，图 7(b) 图是方位角为 30° 时光场的空间分布。可见方位角为 30° 时，在钴的纳米点的附近形成了非常强的电偶极子，电偶极激发比较显著，光在纳米盘的附近有一个非常强的光场分布。而对照方位角为 0° 的时候，此时它虽然也能进行电偶极激发，但是电偶极子激发比较弱，光在纳米盘的附近的光场分布相对也会弱很多。这就说明，在方位角为 30° 时，它存在一个强烈的光吸收，形成一个比较强的局域电偶极激发，使光聚集在纳米点的附近，从而使反射出来的光能量变少。因此，它的反射率才有一个明显的降低。根据 3.1 的计算结果，这种条件下并不能激发 SPP 波，由此说明钴纳米点的附近光增强源于局域等离子激元的激发。

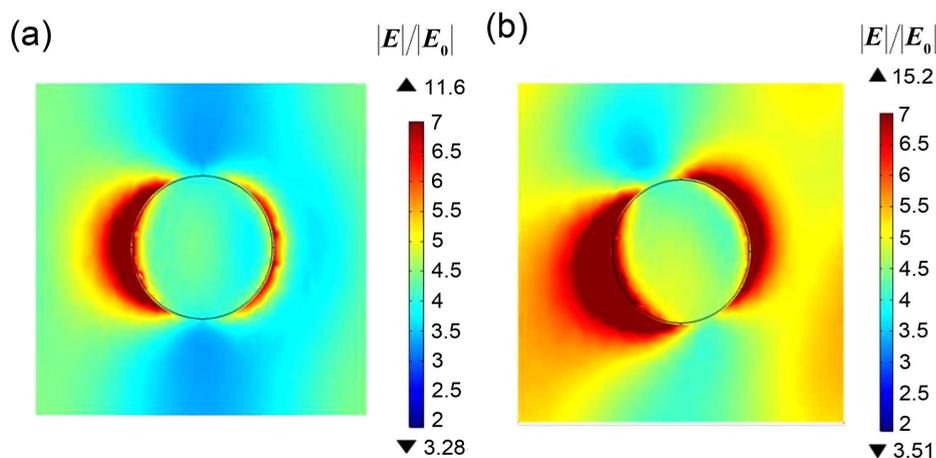


Figure 7. The comparison of distribution of normalized electric field $|E|/|E_0|$ for nano-disk between two azimuthal angles 0° and 30° . $|E|$ stands for electric field amplitude, $|E_0|$ stands for electric field amplitude of incident light

图 7. 光场相对强度 $|E|/|E_0|$ 的空间分布比较。其中 $|E_0|$ 为初始入射电场模， $|E|$ 为空间中电场模

3.3. 复合磁性纳米阵列膜的纵向磁光克尔谱

我们利用 HfO_2 高折射率介质构筑的复合多层 $\text{HfO}_2/\text{Co}/\text{HfO}_2/\text{Ag}/\text{substrate}$ 阵列薄膜，旨在提高复合磁

性薄膜的磁光性能。那么这种复合点阵结构与单层的 Co 阵列膜，磁光性能有怎样地改善呢？利用 COMSOL 数值计算，以纵向克尔效应的克尔谱进行比较，由此阐明阵列膜磁光增强的物理机制。

从图 8 可以看出，克尔谱曲线随入射面的方位角发生变化，磁光克尔效应呈现各向异性。据克尔角与菲涅尔反射系数的关系[15]: $\theta_k = r_{sp}/r_{pp}$ 由于不同方位角下，Co 阵列膜的等离激元激发情况不同，反射系数 r_{sp} 、 r_{pp} 不同，所以克尔角发生相应的变化。

图 9 为复合多层阵列薄膜的克尔谱，与图 8 相比，克尔谱发生了明显的变化，克尔角量值有了较大的改变，不同方位角下，克尔角最大值都有了较大增长，这说明复合多层阵列薄膜磁光克尔效应得到了明显改善。在波长 550 nm 附近，方位角为 30°，单层 Co 薄膜克尔角在极小值附近，而复合多层阵列薄膜的克尔角在极大值附近。对单层的 Co 薄膜不存在光腔效应，而复合多层阵列薄膜存在光腔效应，光在 Co 和 Ag 所夹的 HfO₂ 介质层内发生了法布里玻罗腔的光增强效应(如图 10)，光在腔内多次反射干涉，增强了光与 Co 膜的作用。前面的计算已说明，光波长在 550 nm 处，于 Co 膜表面也引起了局域等离激元激发，使膜表面光场得到增强。由于光腔效应与等离子电偶极激发共同耦合作用，使反射率在该处出现明显降低，相应薄膜的克尔角变大，磁光效应得到加强。

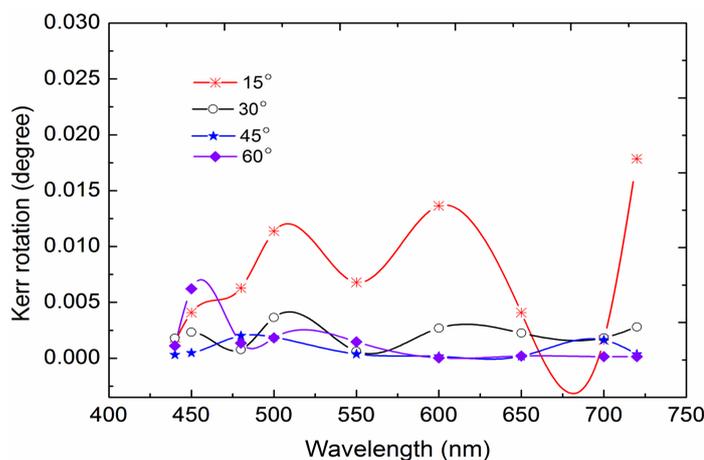


Figure 8. Kerr spectra with various azimuthal angle for monolayer of nanoarray
图 8. 单层 Co/substrate 阵列薄膜克尔谱

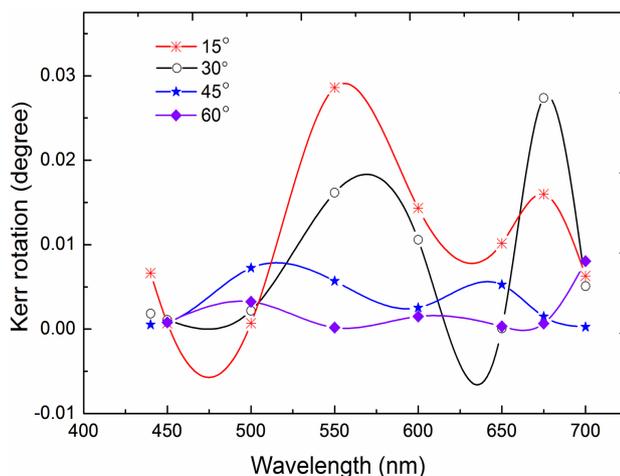


Figure 9. Kerr spectra with various azimuthal angle for quadrilayer of nanoarray
图 9. 四层 HfO₂/Co/HfO₂/Ag/substrate 阵列薄膜克尔谱

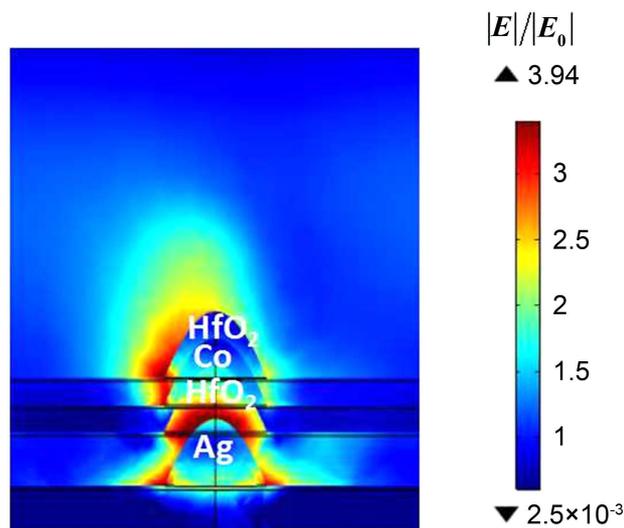


Figure 10. The distribution of normalized electric field $|E|/|E_0|$ for the quadrilayer $\text{HfO}_2/\text{Co}/\text{HfO}_2/\text{Ag}/\text{substrate}$ of nanoarray

图 10. 四层 $\text{HfO}_2/\text{Co}/\text{HfO}_2/\text{Ag}/\text{substrate}$ 阵列薄膜的电场相对强度分布

4. 结论

利用 Comsol 软件研究了二维磁性阵列薄膜的等离子激元激发规律。研究发现：等离子激元的激发随入射方位角的变化呈现各向异性。钴阵列膜在不同的介质里面，等离子激元激发对应的入射光波长是不同的。由此说明介质环境显著影响钴阵列膜的光学特性。在此基础上，对磁性阵列薄膜的反射率和克尔角进行了数值计算，发现反射率和克尔角对入射方位角的变化均呈现各向异性。而且单层磁性阵列膜与四层阵列膜光学反射率、克尔谱随入射方位角和波长变化曲线存在显著差别，单层的钴阵列膜光学反射率比四层阵列膜反射率高，这源于四层阵列膜存在法布里光腔效应增强了光吸收。而四层阵列膜克尔角最大值要高于单层阵列膜，因此四层阵列薄膜的磁光特性有了较大改善。由此阐明，四层阵列膜的磁光增强源于等离子激元与法布里光腔效应耦合作用。该研究为设计高性能磁光材料提供了理论依据。

基金项目

本文得到 2019 年国家级大学生创新创业项目(磁等离子激元纳米薄膜的结构设计及其磁光特性研究)(201910452017)，山东省自然科学基金项目(ZR2016AL09)和临沂大学博士启动金(No. 40615046)的资助。

参考文献

- [1] Jackson, J.D. (1975) *Classical Electrodynamics*. Wiley & Sons, New York.
- [2] Raether, H. (1988) *Surface Plasmons on Smooth and Rough Surfaces and on Gratings*. Vol. 111, Springer, Berlin, Heidelberg. <https://doi.org/10.1007/BFb0048317>
- [3] 周张凯. 贵金属纳米阵列等离子激元光学性质研究[D]: [博士学位论文]. 武汉: 武汉大学, 2011.
- [4] 马中团, 等. 物理[J]. 左手性材料研究进展, 2004, 33(7): 497-502.
- [5] 孔繁敏, 李康, 郭毅峰, 刘新. 平面光波导结构的 FDTD 分析[J]. 光子学报, 2004, 33(3): 281-283.
- [6] Li, Z.B, Tian, J.G. and Liu, Z.B. (2005) Enhanced Light Transmission through a Single subwavelength Aperture in Layered Films Consisting of Metal and Dielectric. *Optics Express*, **13**, 9071-9077. <https://doi.org/10.1364/OPEX.13.009071>
- [7] 王振林. 表面等离子激元研究新进展[J]. 物理学进展, 2009, 29(3): 287-324.
- [8] 李婷. 基于表面等离子激元效应的金属纳米结构光学特性的研究[D]: [硕士学位论文]. 北京: 北京邮电大学, 2011.

- [9] Bozhevolnyi, S.I., Vohnsen, B., Smolyaninov, I.I. and Zayats, A.V. (1995) Direct Observation of Surface Polariton Localization Cause by Surface Roughness. *Optics Communications*, **117**, 417-423. [https://doi.org/10.1016/0030-4018\(95\)00170-D](https://doi.org/10.1016/0030-4018(95)00170-D)
- [10] Pendry, J.B. (2000) Negative Refraction Makes a Perfect Lens. *Physical Review Letters*, **85**, 3966-3969. <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.85.3966>
- [11] Otto, A. (1968) Excitation of Nonradiative Surface Plasmon Wave in Sliver by the Method of Frustrated Total Reflection. *Zeitschrift für Physik A Hadrons and Nuclei*, **216**, 398-410. <https://doi.org/10.1007/BF01391532>
- [12] 明海, 王小蕾, 王沛, 鲁拥华. 表面等离激元的调控研究与应用[J]. 科学通报, 2010, 55(21): 2068-2077.
- [13] 李继军, 吴耀德, 宋明玉. 表面等离子体激元基本特征研究[J]. 长江大学学报(自然科学版), 2007, 4(4): 46-49.
- [14] Dintinger, J., Klein, S., Bustos, F., Barnes, W.L. and Ebbesen, T.W. (2005) Strong Coupling between Surface Plasmon-Polaritons and Organic Molecules in Subwavelength Hole Arrays. *Physical Review B*, **71**, Article ID: 035424. <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.71.035424>
- [15] You, C.-Y. and Shin, S.-C. (2005) First-Order Approximations of the General Magneto-Optical Kerr Effects for an Optically Thin Capping Layer. *Thin Solid Films*, **493**, 226-229. <https://doi.org/10.1016/j.tsf.2005.08.009>