

Федеральное государственное бюджетное научное учреждение «Федеральный исследовательский центр Институт прикладной физики Российской академии наук»
(ИПФ РАН)

**НАУЧНЫЙ ДОКЛАД
ОБ ОСНОВНЫХ РЕЗУЛЬТАТАХ ПОДГОТОВЛЕННОЙ
НАУЧНО-КВАЛИФИКАЦИОННОЙ РАБОТЫ (ДИССЕРТАЦИИ)**

«Поглощение и рассеяние электромагнитных волн малыми частицами и системами из них»

Аспирант: Волковская Ирина Игоревна

(подпись аспиранта)

Научный руководитель:

Рыбаков Кирилл Игоревич, д.ф.-м.н.
заведующий сектором теории СВЧ разряда

(подпись научного руководителя)

Направление подготовки:

03.06.01 Физика и астрономия

Направленность (профиль) подготовки:

01.04.03 Радиофизика

Форма обучения: очная

Нижний Новгород
2021

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДИССЕРТАЦИИ

Актуальность темы диссертации

Представленная квалификационная работа посвящена исследованиям взаимодействия электромагнитных волн с частицами, малыми по сравнению с длиной падающей волны, а также упорядоченными и неупорядоченными системами из таких частиц. Неугасающий интерес научного сообщества к широкому кругу задач поглощения и рассеяния электромагнитных волн, сопровождаемых нелинейными процессами при увеличении интенсивности падающего излучения, подтверждает актуальность выбранной темы. Создание новых материалов с заданными свойствами, новых источников излучения, устройств для управления световыми потоками и диагностики различных сред требует развития общего теоретического описания рассеяния волн на неоднородностях среды. Масштабная инвариантность уравнений Максвелла позволяет строить общую теорию и создавать справедливые для широкого диапазона частот аналитические модели, основанные на описании рассеяния дипольными откликами и в более общем случае на мультипольном разложении полей по сферическим гармоникам. Это отражено в данной работе на примерах задач в задачах определения эффективных диэлектрических и магнитных характеристик дисперсных сред для расчета поглощения микроволнового излучения керамическими композитами или металлическими порошковыми материалами, а также рассеяния и генерации гармоник в субволновых диэлектрических резонаторах для эффективного управления излучением в оптическом и инфракрасном диапазонах частот.

Вопросы поглощения микроволнового излучения в металлических порошковых материалах приобретают актуальность в связи с развитием методов высокотемпературной микроволновой обработки материалов [1-2]. Электродинамический расчет поглощения СВЧ излучения в малых частицах и неоднородных средах, содержащих такие частицы, представляет не только практический, но и значительный методический интерес. Задачи моделирования диэлектрических характеристик мелкодисперсных смесей, включающих в свой состав проводящие фракции, возникают как при описании процессов высокотемпературной микроволновой обработки композитных и градиентных материалов, так и при разработке эффективных поглощающих сред для различных приложений микроволновых технологий, как материаловедческих и технических (модификация свойств поверхностей, микроволновое соединение деталей), так и перспективных медико-биологических (избирательный нагрев тканей с введенным поглотителем).

Знание высокотемпературных свойств материалов необходимо как для выполнения моделирования процессов микроволновой обработки материалов, так и для их успешной реализации на практике. Диэлектрические свойства могут изменяться в весьма широких пределах в зависимости даже от небольших отклонений в морфологии и примесном составе материалов. Поэтому имеющиеся в литературе данные (к тому же обычно весьма скудные) не дают возможности адекватно судить о свойствах конкретных материалов, имеющих в наличии, и единственным способом определить их является измерение.

Развитие нанотехнологий стимулирует значительный интерес к исследованиям нелинейных оптических эффектов, возникающих при больших интенсивностях лазерного излучения в наноструктурах из диэлектрических и полупроводниковых материалов с высоким значением показателя преломления. Такие уникальные оптические свойства диэлектрических наночастиц, как малые диссипативные потери, оптический магнитный отклик и наличие множества мультипольных резонансов Ми типа [3], обеспечивают исключительные возможности для управления светом на субволновых масштабах, в том числе в нелинейном режиме. Создание аналитических и численных моделей для описания генерации второй и третьей гармоник диэлектрическими наночастицами с высоким показателем преломления (AlGaAs, GaAs, Si, BaTiO₃) важно в связи с растущим числом экспериментов в условиях возбуждения мод Ми резонансов, проводимыми многими исследовательскими группами по всему миру [4-8].

Цели работы

Цель работы – развитие общего теоретического описания взаимодействия электромагнитного излучения с субволновыми объектами и системами из них, а также применение развитых подходов в задачах поглощения электромагнитных волн в мелкодисперсных средах или компактированных материалах, задачах рассеяния и генерации оптических гармоник резонансными диэлектрическими и полупроводниковыми наноструктурами и генерации оптических гармоник.

Основные задачи исследования следующие:

- Создание новой модели эффективной среды для расчета магнитной проницаемости среды, содержащей металлические включения
- Измерение поглощательных свойств керамических материалов при высоких температурах
- Развитие теории генерации оптических гармоник субволновыми резонансными диэлектрическими структурами
- Разработка методов управления направленностью излучения с использованием нелинейных наноантенн

Методы исследования

Исследование проводилось с использованием широко применяемых методов классической электродинамики, таких как методы теории дифракции, асимптотическое разложение полей и теории взаимодействия света с веществом.

Основные методы исследования – аналитическое и численное решение уравнений Максвелла. Методы решения задач генерации оптических гармоник основаны на мультипольном разложении рассеиваемых и генерируемых полей по базису векторных сферических гармоник. Для получения аналитических выражений для мультипольных коэффициентов используется лемма Лоренца. Аналитические результаты подтверждаются дополнительно с помощью полноволнового численного трехмерного моделирования, основанного на методе конечных элементов.

Научная новизна

1. Предложена новая модель эффективной среды для определения эффективной комплексной магнитной проницаемости компактированных металлических порошковых сред.
2. Впервые измерены температурные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь пористых керамических и композитных материалов в широком диапазоне температур на частоте 24 ГГц, используемой для микроволновой обработки материалов, (>99,5% Al₂O₃ в интервале 200 – 1100 °С и 88% Al₂O₃ + 11% ZrO₂ + 1% Y₂O₃ в интервале 200 – 1100 °С), описан метод измерения.
3. Предложен дизайн цилиндрической наноантенны из (110)-GaAs для нелинейного оптического переключения, обладающей высокой направленностью излучения вдоль оптической оси, который затем был впервые реализован в эксперименте.
4. Дано теоретическое описание нового экспериментального результата - анизотропии генерации третьей гармоники наноструктурами из аморфного кремния
5. С помощью развитых аналитических методов на основе леммы Лоренца и мультипольного разложения дано объяснение особенностей генерации второй гармоники аксиально-симметричных наноантенн из (111)-GaAs, изготовленных впервые.
6. Разработана новая теоретическая модель для описания возникновения высокочастотных резонансных состояний в субволновых диэлектрических резонаторах на основе двух подходов: мультипольного анализа и теории связанных мод.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Учет взаимного влияния электропроводящих частиц в модели эффективной среды позволил уточнить значения действительной и мнимой части магнитной проницаемости металлических порошковых компактов в микроволновом диапазоне. Модель, основанная на равенст-

ве магнитного момента заданного объема эффективной среды суммарному магнитному моменту металлических частиц во внешнем высокочастотном магнитном поле, возникающему благодаря возбуждению в частицах вихревых электрических токов, позволяет получать значения эффективной магнитной проницаемости при произвольной концентрации металлических частиц.

2. Наноантенны, выращенные вдоль оси (110), могут быть использованы в качестве нелинейных оптических переключателей, обладающих высокой направленностью излучения вдоль оптической оси. В мультипольный состав генерируемого излучения наноантенн из (110)-(Al)GaAs входят мультиполи только с нечетными значениями азимутального индекса, направленность излучения объясняется интерференцией мультиполей с азимутальным индексом ± 1 .
3. Для аксиально-симметричных частиц из (111)-(Al)GaAs интенсивность генерации второй гармоники не меняется при вращении поляризации плоской волны, падающей вдоль оси частицы, в широком диапазоне размеров частиц, при этом диаграмма направленности зависит от угла поворота и повторяется через каждые 60° . Нелинейный ток поляризации можно представить как сумму двух токов, по-разному вращающихся и генерирующих мультиполи только с четными или только с нечетными значениями азимутального индекса. Интерференция мультиполей различной четности приводит к изменению диаграммы направленности, но не дает вклада в полную мощность излучения из-за ортогональности мультиполей.
4. Одновременная реализация высокодобротных резонансов в цилиндрическом резонаторе из AlGaAs на частотах лазерной накачки и ее второй гармоники повышает эффективность частотного преобразования. Эффективное преобразование частоты достигается при возбуждении на основной частоте сильно связанных аксиально-симметричных мод, характеризующихся аномально малыми радиационными потерями с октупольной диаграммой направленности из-за деструктивной интерференции дипольных вкладов в рассеяние. Мощность сигнала на второй гармонике многократно возрастает при возбуждении резонатора цилиндрическим векторным пучком с азимутальной поляризацией по сравнению с линейно поляризованным излучением благодаря лучшему соответствию мультипольного состава накачки и возбуждаемых мод.
5. Анизотропия нелинейного отклика в наноструктурах из близко расположенных кремниевых дисков (олигомерах) достигается за счет возбуждения коллективных мод, суммарный магнитный дипольный момент которых лежит в плоскости структуры, и соответствует симметрии точечной группы (C_3 или C_4). Максимумы и минимумы интенсивности сигнала на третьей гармонике при вращении поляризации нормально падающей плоской волны соответствуют возбуждению вырожденных собственных мод с различным распределением полей и различной ориентацией магнитных дипольных моментов в отдельных дисках.
6. Иерархия коллективных мод кремниевой структуры из четырех близко расположенных дисков (квадрумера) с различной добротностью и мультипольным составом позволяет модулировать эффективность генерации третьей гармоники путем изменения длины волны или типа поляризации падающего излучения. При возбуждении азимутально поляризованным цилиндрическим векторным пучком наиболее добротной моды с магнитными дипольными моментами, ориентированными вдоль осей дисков, интенсивность излучения на третьей гармонике на два порядка больше, чем в случаях возбуждения линейно поляризованным или радиально поляризованным излучением.

Научная и практическая значимость

Разработка нового метода расчета эффективной магнитной проницаемости среды имеет значительную практическую ценность с точки зрения применимости при построении численных моделей взаимодействия микроволнового излучения с разного рода мелкодисперсными материалами. Предлагаемые методы позволяют строить модели, более эффективные для практического использования, поскольку позволяют приблизиться к более реалистичному описанию процессов микроволновой обработки материалов.

Решение задачи измерения высокотемпературных диэлектрических свойств керамических и композиционных материалов актуально для развития методов высокотемпературной микроволновой обработки материалов.

Развиваемые в работе теоретические модели и подходы востребованы и показали свою эффективность при постановке и объяснении ряда экспериментов, выполненных известными в области нанопластики коллективами: группами А. Федянина (физический факультет Московского государственного университета имени М.В. Ломоносова) и Д. Нешева (Австралийский национальный университет, Канберра, Австралия), а также для проектирования направленных нелинейных наноантенн.

Достоверность результатов

Все результаты работы получены хорошо известными методами, обоснованы и достоверны. Аналитические результаты подтверждены численным моделированием и согласуются с экспериментальными результатами, полученными с участием автора или известными из литературы.

Апробация результатов и публикации

Основные результаты диссертационной работы докладывались на следующих конференциях и научных школах:

- 6-й международный научный семинар «Перспективные технологии консолидации материалов с применением электромагнитных полей», 2017
- 10-е международное научное совещание "Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications", 2017
- XVIII научная школа «Нелинейные волны-2018» и XIX научная школа "Нелинейные волны – 2020", Нижний Новгород, 2018 и 2020 годы
- Научное совещание “Bremen Workshop on Light, Германия, Бремен, 2018
- The 13th International Symposium on Nanophotonics and Metamaterials, Санкт-Петербург, 2018
- 30th Joint Russian-German Meeting on ECRH and Gyrotrons, Городец, 2018
- 23-я, 24-я и 26-я Нижегородская сессия молодых ученых (технические, естественные, математические науки), Нижний Новгород, 2018, 2019 и 2021 годы
- VII International conference Frontiers of nonlinear physics, Нижний Новгород, 2019
- IV International Conference on Metamaterials and Nanophotonics METANANO 2019, Санкт-Петербург, 2019
- V International Conference on Metamaterials and Nanophotonics METANANO 2020 online, 2020

Результаты работы также обсуждались на научных семинарах в Институте прикладной физики РАН и в Институте физики микроструктур РАН. Материалы диссертации были опубликованы в ведущих российских и зарубежных научных журналах: Nanophotonics, Physical Review B, ACS Nano, Advanced Optical Materials, Nano letters, Известия вузов. Радиофизика, Журнал технической физики, Ceramics International, European Physical Journal – Web of Conferences, а также работы в материалах российских и международных конференций и других. Всего по теме исследования опубликовано 11 статей в рецензируемых журналах [A1-A11] (из них 11 – в журналах, рекомендованных ВАК для публикации основных материалов), 14 статей в сборниках тезисов докладов и сборниках трудов всероссийских и международных конференций [A12-A25]. Представленные результаты были отмечены премиями Конкурсов работ молодых учёных ИПФ РАН в 2020 и 2021 годах и IV открытого конкурса научных работ молодых учёных в области физики, химии и технологии наноструктур и элементов наноэлектроники (ИФМ РАН) в 2019 году.

Личный вклад автора

Все теоретические результаты, изложенные в настоящей диссертации, получены лично автором либо при его непосредственном участии. Автор также принимала участие в эксперименте

по измерению коэффициента поглощения СВЧ-излучения в керамических образцах, проводила измерения и самостоятельно обрабатывала результаты, постановка эксперимента была осуществлена к.ф.-м.н. А.Г. Еремеевым. Совместно с научным руководителем д.ф.-м.н. К.И. Рыбаковым осуществлялись постановка и обсуждение результатов теоретических задач главы 2. Идея построения новой модели эффективной среды была предложена д.ф.-м.н. В.Е. Семеновым и реализована автором. Работа над задачами главы 3 осуществлялась совместно с научным консультантом к.ф.-м.н. Д.А. Смирновой.

Структура и объем диссертации

Диссертационная работа состоит из введения, трёх глав, заключения и списка литературы. Общий объем диссертации составляет 111 страниц, включая 25 рисунков. Список публикаций автора по теме диссертации содержит 25 наименований, список литературы содержит 75 наименований.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении описаны актуальность выбора темы исследования, цели и задачи работы, методы исследования и научная новизна.

Глава 1 посвящена электродинамическому описанию малых частиц в поле электромагнитной волны. Рассмотрены и проанализированы точные и приближенные методы расчета поглощения и получены зависимости коэффициентов поглощения от диэлектрических свойств материала частиц, их размера и других параметров [A1]. В **разделе 1.1** приведено описание распространения электромагнитных волн в сферически симметричной среде с помощью потенциалов Дебая, определяющих две различные моды электромагнитной волны - электро- и магнитодипольная моды. Приведен анализ приближенных решений задачи рассеяния на малом шаре, полученных при учете только низших мод в разложении Ми. В **разделе 1.2** описано резонансное рассеяние и поглощение при возбуждении низших дипольных мод. При сравнении с приближенным решением задачи о поглощении в малых (в масштабе длины волны) сферических частицах, приведенным в книге Л. Д. Ландау и Е. М. Лифшица "Электродинамика сплошных сред" получены уточненные условия применимости квазистатического дипольного приближения. Получены выражения для параметров лоренцевой кривой вблизи магнитодипольного резонанса диэлектрической частицы с высоким показателем преломления и малыми потерями, в случае, когда частица мала по сравнению с длиной волны в окружающем пространстве. В **разделе 1.3** приведены выводы по главе 1.

Глава 2 посвящена электродинамическому описанию мелкодисперсных материалов с помощью моделей эффективной среды. Предложена новая модель расчета эффективных диэлектрической и магнитной проницаемостей смеси частиц [A2]. В основе модели лежит равенство дипольного момента заданного объема эффективной однородной среды сумме всех дипольных моментов включений различных сортов. Таким образом, для использования данной модели необходимо рассчитать дипольный момент частицы каждого сорта, помещенной в однородную эффективную среду. Влияние всех частиц среды на поле внутри и снаружи отдельной частицы описывается эффективными характеристиками среды. В **разделе 2.1** предлагаемый метод апробирован на известной задаче об определении эффективной диэлектрической проницаемости среды из сферических частиц с различными заданными диэлектрическими проницаемостями. Отмечено, что решение указанной задачи ранее было получено методом прямого усреднения полей по объему [9]. В **разделе 2.2** изложена разработанная модель эффективной магнитной проницаемости смеси частиц. анализу поглощения электромагнитных волн в сферических частицах и мелкодисперсных материалах, консолидированных из таких частиц. В основе модели лежит равенство полного магнитного момента эффективной среды суммарному магнитному моменту металлических частиц во внешнем высокочастотном магнитном поле, возникающему благодаря возбуждению в частицах вихревых электрических токов. Оригинальность предложенного метода заключается в адекватном учете взаимного влияния проводящих частиц при их высокой концентрации в среде (что характерно для многих технологических процессов), т.е. в том случае, когда не применимы традиционные модели, основанные на приближении изолированной проводящей частицы, погруженной в диэлектрическую среду. Расчеты в рамках предложенной модели позволяют уточнить значения

действительной и мнимой частей магнитной проницаемости металлических порошковых компактов в микроволновом диапазоне. С ростом концентрации частиц характеры зависимостей и величины действительной и мнимой частей эффективной магнитной проницаемости, полученные в рамках новой модели, начинают заметно отличаться от результатов, полученных в ранее использовавшейся модели без учета взаимного влияния частиц друг на друга. Расчеты эффективной магнитной проницаемости металлических частиц в микроволновом диапазоне в рамках полученной модели хорошо совпадают с результатами численного моделирования, приведенными в работе [10]. Сформулированы условия применимости предложенной модели, и проверено их выполнение для металлических порошковых компактов на частотах микроволнового и миллиметрового диапазонов. Показана применимость данного метода при типичных для задач микроволновой обработки материалов значениях параметров поля и среды. Предложенная модель была использована в моделировании микроволнового нагрева и спекания порошковых материалов [A3-A4]. В **раздел 2.3** изложен метод и результаты экспериментального определения коэффициента поглощения микроволнового излучения в керамических и композиционных материалах при высоких температурах [A5]. Диэлектрические свойства материалов исследуются применением той же самой установки, которая используется для их обработки. Описан метод исследования, проанализированы основные его достоинства и недостатки. Преимуществом метода, изложенного в представленной статье, является определение диэлектрических потерь образцов, непосредственно размещаемых в нагревной камере установки для микроволновой обработки материалов. При этом микроволновое излучение используется как в качестве источника энергии, необходимой для нагрева образцов до заданной температуры, так и в качестве диагностического сигнала, что позволяет получать наиболее релевантные результаты. **Раздел 2.4** содержит выводы по главе.

Глава 3 посвящена особенностям генерации оптических гармоник в диэлектрических и полупроводниковых резонансных наноструктурах (AlGaAs, GaAs, BaTiO₃, Si) В **разделе 3.1** изложена разработанная теория генерации второй гармоники лазерного излучения диэлектрическими частицами с анизотропным тензором объемной квадратичной нелинейной восприимчивости при возбуждении волной накачки низших (электро- и магнитодипольных) резонансов типа Ми. С использованием леммы Лоренца получены аналитические выражения для мультипольных коэффициентов генерируемого поля на удвоенной частоте в одномодовом магнитодипольном приближении для сферических частиц из AlGaAs и BaTiO₃. В результате такого анализа сформулированы правила отбора для мультипольного состава нелинейного излучения на второй гармонике в зависимости от симметрии кристаллической структуры и поляризации падающего света [A6]. В **разделе 3.2** описаны особенности генерации второй гармоники наноантеннами из GaAs, выращенными вдоль различных кристаллографических направлений. Нелинейный отклик аксиально-симметричных наноантенн из AlGaAs (или GaAs), выращенных вдоль различных кристаллографических направлений, существенно зависит от взаимной ориентации кристаллических осей и поляризации падающего излучения. С помощью леммы Лоренца, а также численных методов, основанных на мультипольном разложении полей по сферическим гармоникам, был проведен мультипольный анализ излучения на второй гармонике для наноантенн из AlGaAs/GaAs, выращенных вдоль различных кристаллографических направлений (100), (110) и (111) при падении плоской линейно-поляризованной волны вдоль оси наноантенны. Так, например, при возбуждении аксиально-симметричных наночастиц, выращенных вдоль оси (100), в мультипольный состав излучения на второй гармонике входят мультиполи только с четными азимутальными индексами $m=0, \pm 2$ [A6]. Такие наноантенны можно использовать, например, для генерации векторных пучков, однако у них есть и недостатки [8]. Наноантенны выращенные вдоль оси (100) не излучают на второй гармонике вдоль оптической оси при нормальном падении лазерного излучения, излучение на второй гармонике направлено преимущественно в стороны, и его трудно собрать. С помощью развитых теоретических методов удалось объяснить экспериментально наблюдаемые особенности первых наноантенн (111)-GaAs [A7]. Нелинейные токи в наноантеннах (111)-GaAs генерируют мультиполи как с четными, так и с нечетными азимутальными индексами, и такие наноантенны характеризуются лучшей направленностью по сравнению с наноантеннами (100)-GaAs. Интересное свойство наноантенн (111)-GaAs состоит в том, что при постоянной эффективности генерации второй гармоники диаграмма направленности излучения повторяется каждые 60° при вращении

поляризации накачки из-за трехкратной вращательной симметрии кристалла (111)-GaAs относительно оси диска в сочетании с цилиндрической симметрией нанопластины. Эта особенность позволяет управлять излучением на второй гармонике вращением поляризации падающего излучения, и может быть применена, например, для так называемого демультимплексирования сигнала с постоянной эффективностью. Аксиально симметричные нанопластины, выращенные вдоль кристаллографического направления (110), характеризуются наилучшей направленностью излучения на второй гармонике вдоль оптической оси по сравнению с нанопластинами, выращенными вдоль осей направлений (111) или (100). Это объясняется тем, что нелинейный ток на частоте второй гармоники в нанопластинах из (110)-GaAs при возбуждении нормально падающей плоской волной генерирует мультиполи только с нечетными значениями азимутального индекса, и интерференция мультиполей с азимутальным индексом $m=\pm 1$ обеспечивает направленность излучения [A8]. В **разделе 3.3** изложена теория генерации второй гармоники при возбуждении высокодобротных резонансных состояний в диэлектрическом нанорезонаторе [A9]. С использованием аналитических и численных методов исследована генерация второй гармоники при возбуждении высокодобротных мод диэлектрического цилиндрического нанорезонатора (нанодиска) азимутально поляризованным цилиндрическим векторным пучком. Для описания нелинейного рассеяния развиты взаимодополняющие подходы на основе теории связанных мод и мультипольного разложения полей по сферическим гармоникам. Описано возбуждение двух сильно связанных азимутально-симметричных TE-поляризованных собственных мод открытого диэлектрического цилиндрического резонатора, мультипольный состав излучения которых описывается осесимметричными магнитными диполем и октуполем с азимутальным индексом $m=0$. При определенных параметрах системы добротность одной из мод сильно возрастает, что соответствует деструктивной интерференции излучения магнитодипольных составляющих, в результате чего остается лишь магнитооктупольный вклад. Такое высокодобротное состояние часто называют квази связанным состоянием в континууме (quasi-VIC). От мультипольного состава падающего излучения, в частности, от относительных вкладов магнитного диполя и магнитного октуполя с $m=0$, зависят эффективность возбуждения собственных мод, и следовательно, эффективность нелинейного преобразования частоты. Показано, что эффективность генерации второй гармоники при возбуждении азимутально поляризованным цилиндрическим векторным пучком в несколько раз больше, чем при возбуждении плоской волной, поскольку в мультипольном составе азимутально поляризованного пучка существенно преобладает магнитный октуполь, а в плоской волне относительный вклад магнитного диполя больше. Мультипольный анализ нелинейного источника при возбуждении таких мод в нанодиске из (100)-AlGaAs показал, что мультипольный состав излучения на второй гармонике определяется нечетными электрическими и четными магнитными мультиполями с азимутальным индексом $m=\pm 2$, и в точности соответствует мультипольному составу высокодобротной собственной моды диска на частоте второй гармоники. Эффективность генерации второй гармоники повышается до нескольких процентов для параметров, соответствующих пересечению ветвей дисперсии высокодобротной магнитооктупольной моды на основной частоте и моды на второй гармонике. При моделировании также были учтены нелинейные эффекты обратного влияния второй гармоники на первую, так как в случае эффективной генерации амплитуды электрических полей внутри частицы на основной и удвоенной частотах становятся сравнимы, и уже нельзя пренебрегать нелинейной поправкой к поляризации на основной частоте. **Раздел 3.4** посвящен особенностям генерации третьей гармоники в кремниевых наноструктурах. С помощью развитых численных методов и мультипольного анализа удалось объяснить наблюдаемую в эксперименте анизотропию генерации третьей гармоники наноструктурами из трех или четырех близко расположенных нанодисков (тримеры, квадрумеры), изготовленных из аморфного кремния [A10]. Аморфный кремний – это изотропный материал, соответственно линейный и нелинейный отклик одного кремниевого диска не меняется при вращении поляризации падающего излучения, как это было продемонстрировано в случае нанодиска из GaAs. Однако анизотропию нелинейного отклика можно создать искусственно, если расположить рядом три или четыре кремниевых нанодиска. Такие структуры называются олигомерами. В экспериментах продемонстрировано, что при нормальном падении плоской волны на структуры из одного, трех или четырех кремниевых нанодисков линейное рассеяние остается изотропным при вращении поляризации, в то время как нелинейный отклик дисков на

третьей гармонике зависит от угла поворота в соответствии с симметрией точечной группы (C_3 или C_4). Результаты численного моделирования показали, что в соответствии с экспериментальными наблюдениями нелинейный отклик имеет три пика в диапазоне $[0; \pi]$ для тримера и четырех пиков в диапазоне $[0; 2\pi]$ для квадримера. Для лучшего понимания был проведен подробный мультипольный анализ собственных мод олигомеров. Плоская волна при нормальном падении возбуждает собственные моды с магнитными дипольными моментами, ориентированными в плоскости. Были рассчитаны значения и ориентация магнитных дипольных моментов индуцированных в дисках с использованием мультипольные коэффициентов, полученные при численном моделировании. Магнитные моменты вращаются при вращении поляризации, и минимумы и максимумы отклика на третьей гармонике соответствуют собственным модам с различным распределением электромагнитного поля внутри дисков. На основе проведенного мультипольного анализа собственных коллективных мод квадримера, удалось предсказать многократное увеличение интенсивности излучения на третьей гармонике при возбуждении квадримера из Si азимутально-поляризованным цилиндрическим векторным пучком по сравнению с линейно-поляризованным накачкой, и определить оптимальные параметры системы с точки зрения максимальной эффективности преобразования инфракрасного излучения в излучение видимого диапазона [A11]. В простейшем рассмотрении, эффективность нелинейного преобразования при генерации третьей гармоники пропорциональна добротности резонанса на основной частоте в третьей степени. Анализ коллективных мод квадримера показал, что мультипольное разложение полей двух наиболее добротных мод определяется магнитными мультиполями с азимутальным индексом $m=0$. Наиболее добротная мода соответствует возбуждению магнитных диполей в дисках, ориентированных поперек плоскости, вдоль осей дисков. Эти моды нельзя возбудить линейно поляризованным излучением, падающим вдоль оси дисков, но зато можно возбудить азимутально поляризованным векторным пучком, мультипольный состав которого также определяется магнитными мультиполями с нулевым азимутальным индексом. В результате численного моделирования получено, что в случае азимутально поляризованного пучка эффективность преобразования на два порядка больше, чем в случаях линейной или радиальной поляризации. Все теоретические выводы подтверждены в эксперименте. В спектре излучения на третьей гармонике при возбуждении азимутально-поляризованным пучком наблюдалось два максимума, соответствующие возбуждению собственных мод квадримера. Интенсивность сигнала при возбуждении моды с магнитными дипольными моментами, ориентированными вдоль осей дисков, в 120 раз превышает интенсивность генерации неструктурированной кремниевой пленки. Интенсивность сигнала второго максимум при большей длине волны сигнала вдвое меньше, что позволяет различать эти две моды в дальнем поле. Результаты проведенных исследований открывают новый путь для контроля и модуляции эффективности генерации третьей гармоники путем изменения условий возбуждения наноструктуры. В разделе 3.5 приведены выводы по главе.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

1. Описаны различные типы дипольных резонансов сферической частицы. Приведено сравнение решения задачи рассеяния и поглощения плоской электромагнитной волны на малом однородном шаре в квазистатическом дипольном приближении с результатами решения волновой задачи. Получены неравенства, определяющие применимость квазистатического дипольного приближения и уточняющие уже известное условие малости радиационных потерь по сравнению с внутренними потерями. Проанализированы условия применимости указанного приближения для различных параметров частицы и окружающей среды. Получены выражения для параметров лоренцевой кривой вблизи магнитодипольного резонанса диэлектрической частицы с высоким показателем преломления и малыми потерями, в случае, когда частица мала по сравнению с длиной волны в окружающем пространстве.
2. Полученные в работе условия на диэлектрические и магнитные проницаемости частицы и окружающего вещества определяют применимость квазистатического приближения в задачах рассеяния и поглощения высокочастотного электромагнитного излучения, а также в задачах расчета поглощения в ансамбле частиц при определении полей снаружи отдельной частицы, окруженной эффективной средой

3. Предложена модель эффективной среды для определения эффективной комплексной магнитной проницаемости компактированных металлических порошковых сред. В основе модели лежит равенство магнитного момента заданного объема эффективной среды суммарному магнитному моменту металлических частиц во внешнем высокочастотном магнитном поле, возникающему благодаря возбуждению в частицах вихревых электрических токов. Расчеты в рамках предложенной модели позволяют уточнить значения действительной и мнимой части магнитной проницаемости металлических порошковых компактов в микроволновом диапазоне. Сформулированы условия применимости предложенной модели и проверено их выполнение для металлических порошковых компактов на частотах микроволнового и миллиметрового диапазонов. Охарактеризован вклад собственной магнитной проницаемости материала частиц (например, для ферромагнетиков) в эффективную магнитную проницаемость. Разработанная модель была использована при расчетах микроволнового нагрева компактированных металлических порошковых материалов, лежащего в основе различных инновационных технологических процессов.
4. Экспериментально получены температурные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь на частоте 24 ГГц для образцов из керамических и композитных материалов на основе Al_2O_3 в широком диапазоне температур: ($> 99,5\% \text{ Al}_2\text{O}_3$) в интервале 200 – 1100 °С и Al_2O_3 - ZrO_2 композита (88 % Al_2O_3 + 11 % ZrO_2 + 1 % Y_2O_3) в интервале 200 – 600 °С. Метод измерений основан на сравнении интенсивностей электромагнитного излучения в рабочей камере гиротронного комплекса при наличии и в отсутствие образца внутри камеры.
5. Разработана теория генерации второй гармоники лазерного излучения диэлектрическими частицами с анизотропным тензором объемной квадратичной нелинейной восприимчивости при возбуждении волной накачки низших (электро- и магнитодипольных) резонансов типа Ми. С использованием леммы Лоренца получены аналитические выражения для мультипольных коэффициентов генерируемого поля на удвоенной частоте в одномодовом магнитодипольном приближении для сферических частиц из AlGaAs и BaTiO_3 . В результате такого анализа сформулированы правила отбора для мультипольного состава нелинейного излучения на второй гармонике в зависимости от симметрии кристаллической структуры и поляризации падающего света.
6. Продемонстрирована возможность создания эффективного удвоителя частоты лазерного излучения с использованием резонансных наноструктур из арсенида галлия (GaAs , AlGaAs). В основе предложенного частотного преобразователя лежит идея одновременной реализации в нанодисках из AlGaAs высокодобротных резонансов на частотах лазерной накачки и ее второй гармоники. Мощность сигнала на второй гармонике многократно возрастает при освещении нанодиска лазерным пучком с азимутальной поляризацией по сравнению с линейно- и радиально- поляризованным излучением благодаря лучшему соответствию мультипольного состава накачки и высокодобротной моды диска.
7. Предложен дизайн нелинейной гибридной наноантенны для повышения эффективности генерации второй гармоники. В случае окружения наноантенны металлическими стенками эффективность преобразования частоты в 2000 раз больше, чем в случае возбуждения отдельного диска.
7. Описана наблюдаемая в эксперименте анизотропия генерации третьей гармоники в наноструктурах из трех или четырех близко расположенных кремниевых дисков, обладающих симметрией точечной группы C_3 или C_4 (тримеры и квадримеры).
8. С помощью аналитических и численных методов предсказано многократное увеличение интенсивности излучения на третьей гармонике при возбуждении квадримеров азимутально-поляризованным цилиндрическим векторным пучком по сравнению с линейно-поляризованной накачкой, и найдены оптимальные параметры системы с точки зрения максимальной эффективности преобразования инфракрасного излучения в излучение видимого диапазона. Поляризационно-неоднородное лазерное излучение может быть использовано для реализации эффективных нелинейных процессов в гибридных наноантеннах и олигомерах кремниевых нанодисков.

СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bykov Y. V., Rybakov K. I., Semenov V. E. High-temperature microwave processing of materials // *Journal of Physics D: Applied Physics*. — 2001. — июнь. — т. 34, № 13. — R55—R75. — DOI: [10.1088/0022-3727/34/13/201](https://doi.org/10.1088/0022-3727/34/13/201).
2. Microwave Processing of Materials and Applications in Manufacturing Industries: A Review / S. Singh [и др.] // *Materials and Manufacturing Processes*. — 2014. — нояб. — т. 30, № 1. — с. 1—29. — DOI: [10.1080/10426914.2014.952028](https://doi.org/10.1080/10426914.2014.952028).
3. Mie G. BeitrÅNage zur Optik trÅNuber Medien, speziell kolloidaler MetallÅNosungen // *Annalen der Physik*. — 1908. — т. 330, № 3. — с. 377—445. — DOI: [10.1002/andp.19083300302](https://doi.org/10.1002/andp.19083300302).
4. Smirnova D., Kivshar Y. S. Multipolar nonlinear nanophotonics // *Optica*. — 2016. — окт. — т. 3, № 11. — с. 1241. — DOI: [10.1364/optica.3.001241](https://doi.org/10.1364/optica.3.001241).
5. Nonlinear Optical Magnetism Revealed by Second-Harmonic Generation in Nanoantennas / S. S. Kruk [и др.] // *Nano Letters*. — 2017. — май. — т. 17, № 6. — с. 3914—3918. — DOI: [10.1021/acs.nanolett.7b01488](https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.7b01488).
6. Enhanced Third-Harmonic Generation in Silicon Nanoparticles Driven by Magnetic Response / M. R. Shcherbakov [и др.] // *Nano Letters*. — 2014. — окт. — т. 14, № 11. — с. 6488—6492. — DOI: [10.1021/nl503029j](https://doi.org/10.1021/nl503029j).
7. Ultrafast All-Optical Switching with Magnetic Resonances in Nonlinear Dielectric Nanostructures / M. R. Shcherbakov [и др.] // *Nano Letters*. — 2015. — сент. — т. 15, № 10. — с. 6985—6990. — DOI: [10.1021/acs.nanolett.5b02989](https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.5b02989).
8. Nonlinear Generation of Vector Beams From AlGaAs Nanoantennas / R. Camacho-Morales [и др.] // *Nano Letters*. — 2016. — окт. — т. 16, № 11. — с. 7191—7197. — DOI: [10.1021/acs.nanolett.6b03525](https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.6b03525).
9. Rybakov K. I., Semenov V. E. Effective Microwave Dielectric Properties of Ensembles of Spherical Metal Particles // *IEEE Transactions on Microwave Theory and Techniques*. — 2017. — май. — т. 65, № 5. — с. 1479—1487. — DOI: [10.1109/tmtt.2016.2645154](https://doi.org/10.1109/tmtt.2016.2645154).
10. Extraction of effective permittivity and permeability of metallic powders in the microwave range / T. Galek [и др.] // *Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering*. — 2010. — март. — т. 18, № 2. — с. 025015. — DOI: [10.1088/0965-0393/18/2/025015](https://doi.org/10.1088/0965-0393/18/2/025015).

СПИСОК РАБОТ ПО ДИССЕРТАЦИИ

- A1. И. И. Волковская, В. Е. Семенов. О рассеянии и поглощении электромагнитных волн при возбуждении дипольных мод сферической частицы // *Изв. вузов. Радиофизика*, Т. 64, вып. 1, принято к публикации
- A2. И. И. Волковская, В. Е. Семенов, К. И. Рыбаков. Эффективная высокочастотная магнитная проницаемость компактированных металлических порошковых материалов // *Известия вузов. Радиофизика*. 2017. Т. 60, вып. 10, стр. 892—903
- A3. К. И. Рыбаков, В. Е. Семенов, И. И. Волковская. Микроволновый нагрев металлических порошковых кластеров // *ЖТФ*. 2018. Т. 88, Вып. 1. С. 46—51 DOI: [10.21883/JTF.2018.01.45480.2307](https://doi.org/10.21883/JTF.2018.01.45480.2307)
- A4. Rybakov K., Volkovskaya I. Electromagnetic field effects in the microwave sintering of electrically conductive powders // *Ceramics International*. — 2019. — май. — т. 45, № 7. — с. 9567—9572. — DOI: [10.1016/j.ceramint.2018.10.037](https://doi.org/10.1016/j.ceramint.2018.10.037).
- A5. И. И. Волковская, А. Г. Еремеев, Ю. В. Быков. Измерение коэффициента поглощения микроволнового излучения в керамических и композиционных материалах при высоких температурах // *Изв. вузов. Радиофизика*. 2018. Т. 61, № 4. С. 321—331.
- A6. Second-harmonic generation in Mie-resonant dielectric nanoparticles made of noncentrosymmetric materials / K. Frizyuk [и др.] // *Physical Review B*. — 2019. — февр. — т. 99, № 7. — DOI: [10.1103/physrevb.99.075425](https://doi.org/10.1103/physrevb.99.075425).
- A7. Tailoring Second-Harmonic Emission from (111)-GaAs Nanoantennas / J. D. Sautter [и др.] // *Nano Letters*. — 2019. — май. — т. 19, № 6. — с. 3905—3911. — DOI: [10.1021/acs.nanolett.9b01112](https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.9b01112).

- A8. Forward and Backward Switching of Nonlinear Unidirectional Emission from GaAs Nanoantennas / L. Xu [и др.] // ACS Nano. — 2019. — дек. — т. 14, № 2. — с. 1379—1389. — DOI: [10.1021/acsnano.9b07117](https://doi.org/10.1021/acsnano.9b07117).
- A9. Multipolar second-harmonic generation from high-Q quasi-BIC states in subwavelength resonators / I. Volkovskaya [и др.] // Nanophotonics. — 2020. — авг. — т. 9, № 12. — с. 3953—3963. — DOI: [10.1515/nanoph-2020-0156](https://doi.org/10.1515/nanoph-2020-0156).
- A10. Tailored Nonlinear Anisotropy in Mie-Resonant Dielectric Oligomers / M. K. Kroychuk [и др.] // Advanced Optical Materials. — 2019. — июль. — т. 7, № 20. — с. 1900447. — DOI: [10.1002/adom.201900447](https://doi.org/10.1002/adom.201900447).
- A11. Enhanced Nonlinear Light Generation in Oligomers of Silicon Nanoparticles under Vector Beam Illumination / M. K. Kroychuk [и др.] // Nano Letters. — 2020. — апр. — т. 20, № 5. — с. 3471—3477. — DOI: [10.1021/acs.nanolett.0c00393](https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.0c00393).
- A12. Volkovskaya I., Semenov V., Rybakov K. Effective magnetic permeability of compacted metal powders at microwave frequencies // EPJ Web of Conferences / под ред. A. Litvak. — 2017. — т. 149. — с. 02008. — DOI: [10.1051/epjconf/201714902008](https://doi.org/10.1051/epjconf/201714902008).
- A13. Volkovskaya I. I., Ereemeev A., Bykov Y. Measuring absorptivity of ceramic materials at high temperatures in Gyrotron Ceramics Sintering System // EPJ Web of Conferences / под ред. V. Zapevalov. — 2018. — т. 187. — с. 01022. — DOI: [10.1051/epjconf/201818701022](https://doi.org/10.1051/epjconf/201818701022).
- A14. Smirnova D. A., Volkovskaya I. I., Smirnov A. I. Second-Harmonic Generation by Mie-resonant Nanoparticles with Bulk Quadratic Nonlinearity // 2018 20th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON). — IEEE, 07.2018. — DOI: [10.1109/icton.2018.8473795](https://doi.org/10.1109/icton.2018.8473795).
- A15. Volkovskaya I., Smirnova D., Smirnov A. Nonlinear generation of multipolar radiation in Mie-resonant nanoparticles // 2019 21st International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON). — IEEE, 07.2019. — DOI: [10.1109/icton.2019.8840231](https://doi.org/10.1109/icton.2019.8840231).
- A16. Multipolar analysis of second-harmonic generation in (111) Gallium Arsenide nanoparticles / I. Volkovskaya [и др.] // Journal of Physics: Conference Series. — 2020. — март. — т. 1461. — с. 012185. — DOI: [10.1088/1742-6596/1461/1/012185](https://doi.org/10.1088/1742-6596/1461/1/012185).
- A17. Multipolar analysis of second-harmonic generation in GaAs nanoparticles grown along different crystallographic directions / I. Volkovskaya [и др.] // INTERNATIONAL CONFERENCE ON PHYSICS AND CHEMISTRY OF COMBUSTION AND PROCESSES IN EXTREME ENVIRONMENTS (COMPHYSCHEM'20-21) and VI INTERNATIONAL SUMMER SCHOOL "MODERN QUANTUM CHEMISTRY METHODS IN APPLICATIONS". — AIP Publishing, 2020. — DOI: [10.1063/5.0032623](https://doi.org/10.1063/5.0032623).
- A18. Switching Second-Harmonic Forward to Backward Emission via GaAs Nanoantennas / L. Xu [и др.] // Conference on Lasers and Electro-Optics. — OSA, 2020. — DOI: [10.1364/cleo_si.2020.sw3n.2](https://doi.org/10.1364/cleo_si.2020.sw3n.2).
- A19. Nonlinear Light Generation Driven by Collective Magnetic Modes in Oligomers of Silicon Nanoparticles Excited by Vector Beams / M. K. Kroychuk [и др.] // Conference on Lasers and Electro-Optics. — OSA, 2020. — DOI: [10.1364/cleo_qels.2020.fth4c.3](https://doi.org/10.1364/cleo_qels.2020.fth4c.3).
- A20. И. И. Волковская, В. Е. Семенов, К. И. Рыбаков. Расчет эффективной магнитной проницаемости металлических порошковых материалов в микроволновом диапазоне // Перспективные технологии консолидации материалов с применением электромагнитных полей. 6-й Научный семинар. Тезисы докладов. М.: НИЯУ МИФИ, 2017. С. 23–24.
- A21. И. И. Волковская, Д. А. Смирнова, Генерация второй гармоники Ми-резонансными наночастицами с объемной квадратичной нелинейностью, XVIII научная школа Нелинейные волны – 2018, 26 февраля – 4 марта 2018 года, Нижний Новгород. Сборник тезисов, с. 26-27.
- A22. И. И. Волковская, Д. А. Смирнова "Second-Harmonic Generation by Mie-resonant Nanoparticles Made of Noncentrosymmetric Dielectrics", Bremen Workshop on Light Scattering 2018, 18-21 марта 2018 г. Сборник тезисов, с. 75-77.

- A23. Volkovskaya I. I., Smirnova D. A., “Second harmonic generation in Mie-resonant dielectric nanoparticles made of noncentrosymmetric materials”, International Conference “Days on Diffraction 2018” 4-8 июня 2018 г., Россия, г. Санкт-Петербург, Сборник тезисов, с. 222
- A24. Волковская И.И., Смирнова Д.А., Смирнов А.И., “Эффективная генерация второй гармоники в высокодобротном диэлектрическом нанорезонаторе”, XIX научная школа "Нелинейные волны – 2020", Нижний Новгород, 29 февраля - 6 марта 2020 г., сборник тезисов, с. 74-75
- A25. I. Volkovskaya, D. A. Smirnova and A. I. Smirnov, Nonlinear harmonic generation by Mie-resonant nanoparticles //VII International conference Frontiers of nonlinear physics, Proceedings, p.160-161