

На правах рукописи



ВОЛКОВСКАЯ Ирина Игоревна

**ПОГЛОЩЕНИЕ И РАССЕЯНИЕ
ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ВОЛН
МАЛЫМИ ЧАСТИЦАМИ И СИСТЕМАМИ ИЗ НИХ**

1.3.4 – радиофизика

Автореферат

диссертации на соискание ученой степени
кандидата физико-математических наук

Нижний Новгород – 2022

ОБЩАЯ ХАРАКТЕРИСТИКА ДИССЕРТАЦИИ

Актуальность темы диссертации

Диссертационная работа посвящена исследованиям взаимодействия электромагнитных волн с частицами, малыми по сравнению с длиной падающей волны, а также упорядоченными и неупорядоченными системами из таких частиц. 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 композициями 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 не-

больших 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.

Для достижения поставленной цели решались следующие задачи:

1. Создание новой модели эффективной среды для расчета магнитной проницаемости среды, содержащей металлические включения
2. Измерение поглощательных свойств керамических материалов при высоких температурах
3. Развитие теории генерации оптических гармоник субволновыми резонансными диэлектрическими структурами

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.

Основной метод 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. Экспериментально получены температурные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь пористых керамических и композитных материалов на основе оксида алюминия в широком диапазоне температур на частоте 24 ГГц, используемой для микроволновой обработки материалов.
3. Дано теоретическое описание нового экспериментального результата – анизотропии генерации третьей гармоники наноструктурами из аморфного кремния.
4. Предложена новая теоретическая модель для описания возникновения высокодобротных резонансных состояний в субволновых диэлектрических резонаторах на основе двух подходов: мультипольного анализа и теории связанных мод.

Основные положения, выносимые на защиту

1. Модель эффективной магнитной проницаемости металлодиэлектрических композиционных материалов, основанная на равенстве магнитного момента заданного объема эффективной среды суммарному магнитному моменту металлических частиц во внешнем высокочастотном магнитном поле, применима в широком диапазоне значений относительной объемной концентрации металлических частиц.
2. Эффективность генерации второй гармоники в субволновом цилиндрическом резонаторе из AlGaAs при одновременном возбуждении магнитооптупольного суперрезонансного состояния на основной частоте, формируемого благодаря сильной связи двух ТЕ-поляризованных мод с азимутальным распределением электрического поля, и высокодобротной моды на частоте второй гармоники повышается на два порядка по сравнению со случаем возбуждения низших дипольных резонансов на основной частоте и достигает 1% для значений интенсивности падающего излучения порядка 1 ГВт/см². Эффективность генерации второй гармоники многократно возрастает при возбуждении резонатора лазерным пучком с азиму-

тальной поляризацией по сравнению с линейно поляризованным излучением благодаря соответствию относительных вкладов магнитных мультиполей в составе полей накачки и возбуждаемых ТЕ-мод.

3. Анизотропия нелинейного отклика структур из кремниевых нанодисков (тримеров и квадрумеров) соответствует симметрии точечной группы структуры и достигается вращением поляризации нормально падающего излучения за счет возбуждения коллективных мод, суммарный магнитный дипольный момент которых лежит в плоскости структуры. Рассчитанная интенсивность генерации третьей гармоники при освещении квадрумера лазерным пучком с азимутальной поляризацией на два порядка больше, чем в случаях освещения пучками с радиальной или линейной поляризацией, благодаря возбуждению коллективной моды с магнитными дипольными моментами, ориентированными вдоль осей дисков.

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 более эффективны для практического применения и позволяют приблизиться к более реалистичному описанию процессов микроволновой обработки материалов. Предложенная модель была использована в моделировании микроволнового нагрева металлических порошковых компактов, лежащего в основе различных инновационных технологических процессов.

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

Развиваемые в работе аналитические методы описания процессов генерации гармоник диэлектрическими и полупроводниковыми наноантеннами могут быть применимы при создании новых наноразмерных источников излучения в инфракрасном, оптическом и ультрафиолетовом диапазонах, сенсоров и нанофотонных электронных схем.

Достоверность результатов

Все результаты работы получены хорошо известными методами, применение которых в рассматриваемых условиях обосновано. Аналитические результаты подтверждаются численным моделированием и согласуются с экспериментальными результатами, 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», г. Москва, 2017 г.
- 10th International Workshop “Strong Microwaves and Terahertz Waves: Sources and Applications”, г. Нижний Новгород, 2017 г.
- XVIII научная школа «Нелинейные волны-2018» и XIX научная школа «Нелинейные волны – 2020», г. Нижний Новгород, 2018 и 2020 годы
- “Bremen Workshop on Light Scattering”, Германия, г. Бремен, 2018 г.
- The 13th International Symposium on Nanophotonics and Metamaterials, г. Санкт-Петербург, 2018 г.
- 30th Joint Russian-German Meeting on ECRH and Gyrotrons, г. Нижний Новгород, 2018 г.
- 23-я, 24-я и 26-я Нижегородская сессия молодых ученых, г. Нижний Новгород, 2018, 2019 и 2021 годы
- VII International Conference “Frontiers of nonlinear physics”, г. Нижний Новгород, 2019 г.
- 4-я и 5-я международная конференция по метаматериалам и нанофотонике “METANANO”, г. Санкт-Петербург 2019 г. и онлайн 2020 г.

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, а также в материалах российских и международных конференций. Всего по теме исследования опубликовано 11 статей в рецензируемых журналах [A1-A11] (из них 11 – в журналах, рекомендованных ВАК для публикации основных материалов), 15 статей и тезисов докладов в сборниках трудов всероссийских и международных конференций [A12-A26]. 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, представленные в настоящей диссертации, получены лично автором либо при ее непосредственном участии. Автор также принимала участие в эксперименте по измерению коэффициента поглощения СВЧ-излучения в керамических образцах, проводила измерения и об-

рабатывала результаты. Совместно с научным руководителем осуществлялись постановка и обсуждение результатов решения теоретических задач главы 2. Идея построения новой модели эффективной среды была предложена В.Е. Семеновым и реализована автором. Постановка задач главы 3 осуществлялась Д.А. Смирновой, также при ее консультативной поддержке автор выполняла аналитические расчеты и численное моделирование. Метод определения мультипольного состава излучения нелинейных наноантенн на основе леммы Лоренца был предложен Д.А. Смирновой, ей также принадлежит идея теоретического объяснения экспериментально наблюдаемых особенностей нелинейных наноантенн из GaAs.

Структура и объем диссертации

Диссертационная работа состоит из введения, трёх глав, заключения и списка литературы. Общий объем диссертации составляет 130 страниц и включает 28 рисунков и 5 таблиц. Список публикаций автора по теме диссертации содержит 26 наименований, список цитированной литературы содержит 95 наименований.

КРАТКОЕ СОДЕРЖАНИЕ РАБОТЫ

Во введении описаны актуальность выбора темы исследования, цели и задачи работы, методы исследования и научная новизна, научная и практическая значимость, положения, выносимые на защиту.

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 – электродипольная 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 приближенные выражения для параметров лоренцевой кривой коэффициента рассеяния вблизи магнитоди-

польного резонанса диэлектрической частицы с высоким показателем преломления и малыми потерями, в случае, когда частица мала по сравнению с длиной волны в окружающем пространстве.

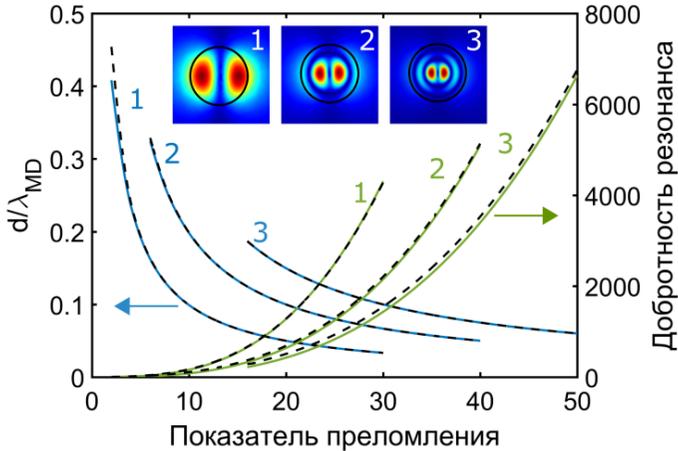


Рис. 1. Добротность и отношение диаметра к длине волны для первых трех магнитодипольных резонансов диэлектрического шара в зависимости от показателя преломления материала. Вставки показывают распределение амплитуды электрического поля магнитодипольного резонанса внутри частицы, когда магнитный диполь ориентирован вертикально в плоскости сечения

Рисунок 1 показывает зависимость добротности первых трех магнитодипольных резонансов диэлектрической сферы от показателя преломления. По второй оси отложен параметр отношения диаметра частицы к резонансной длине d/λ_{MD} . Сплошные линии соответствуют аналитическим расчетам в приближении малости частицы по сравнению с длиной волны, пунктирными линиями показаны результаты численных расчетов.

В разделе 1.3 приведены выводы по главе 1.

Глава 2 посвящена электродинамическому описанию мелкодисперсных материалов с помощью моделей эффективной среды, анализу поглощения электромагнитного излучения в металлических порошковых средах, а также в керамических и композиционных материалах. 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. 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. В результате получено уравнение для определения эффективной магнитной проницаемости μ_{eff} среды, состоящей из металлических сферических включений и вакуума:

$$\mu_{\text{eff}} - 1 = -\frac{3}{2} \sum_j \frac{\mu_{\text{eff}}(\xi_j(2\mu_j + 1) + (k_j a_j)^2)}{\xi_j(\mu_{\text{eff}} - \mu_j) + (k_j a_j)^2 \mu_{\text{eff}}} \eta_j. \quad (1)$$

Здесь $\xi_j = k_j a_j \text{ctg}(k_j a_j) - 1$, $k_j = \sqrt{\varepsilon_j \mu_j} \omega / c$ – волновое число внутри материала включений сорта j , ε_j и μ_j – диэлектрическая и магнитная проницаемости материала включений сорта j , η_j – объемная доля металлических включений сорта j , a_j – радиус включений сорта j . Уравнение представляет собой алгебраическое уравнение, степень которого равна количеству различных сортов включений в эффективной среде, включая вакуум. Рисунок 2 иллюстрирует расчетную зависимость мнимой части эффективной магнитной проницаемости металлического порошка со сферическими включениями одного сорта от относительной объемной концентрации частиц и отношения радиуса частиц к глубине скин-слоя. При заданной концентрации потери магнитного типа достигают максимума, когда размер частиц порядка толщины скин-слоя. При достаточно больших значениях параметра a/δ (от приблизительно 3 и более) наблюдается максимум поглощения при концентрации частиц около 0,7. Уменьшение поглощения при высокой объемной концентрации проводящих включений, по-видимому, связано с влиянием плотной среды на магнитное поле в ней. При меньших значениях параметра a/δ поглощение монотонно растет с ростом концентрации.

Оригинальность предложенного метода заключается в 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].

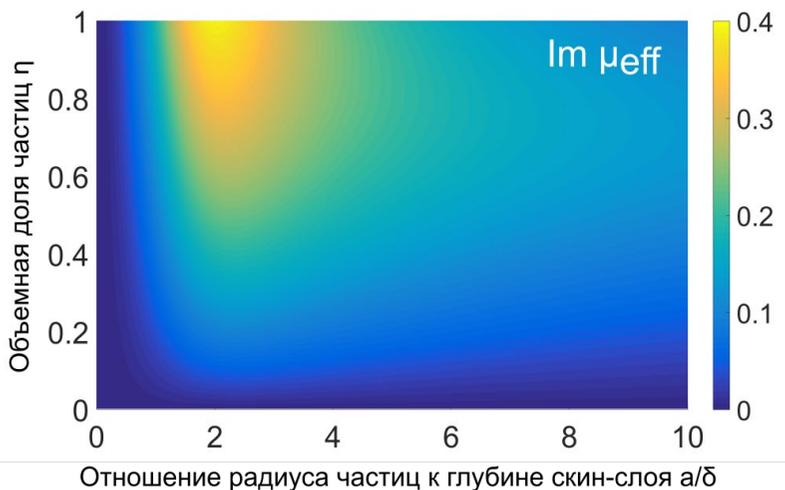


Рис. 2. Мнимая часть эффективной магнитной проницаемости металлического порошка в зависимости от объемной доли частиц η и отношения радиуса частиц к глубине скин-слоя a/δ

В разделе 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 используемого метода 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. Для определения тангенса угла диэлектрических потерь исследуемых материалов производились расчеты коэффициента поглощения микроволнового излучения в условиях всестороннего облучения, а также расчеты диэлектрических характеристик материалов с использованием приближения эффективной среды. На рисунке 3 представлены экспериментально полученные температурные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь на частоте 24 ГГц для двух образцов из керамических и композитных материалов на основе Al_2O_3 в широком диапазоне температур.

Раздел 2.4 содержит выводы по главе.

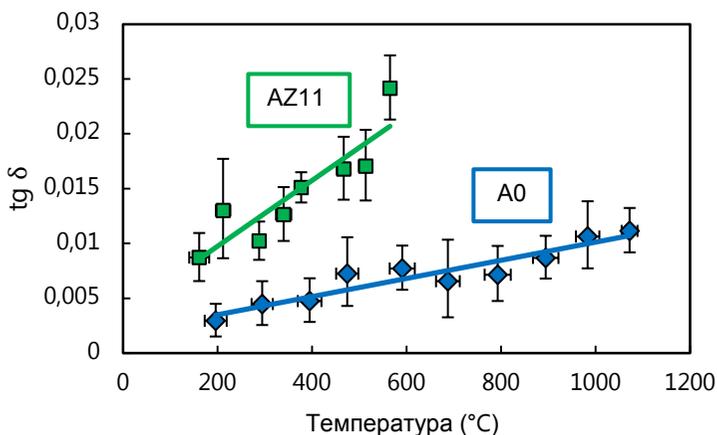


Рис. 3. Зависимость тангенса угла диэлектрических потерь $\text{tg } \delta$ от температуры для двух материалов: AZ11 – 88% Al_2O_3 + 11% ZrO_2 + 1% Y_2O_3 , A0 – чистая окись алюминия (99,5 – 99,7 % Al_2O_3) на частоте 24 ГГц. Пористость исследуемых образцов 20%

Глава 3 посвящена особенностям генерации оптических гармоник в диэлектрических и полупроводниковых резонансных наноструктурах (AlGaAs , GaAs , BaTiO_3 , Si).

Раздел 3.1 посвящен мультипольному описанию электромагнитных волн в задачах рассеяния на субволновых объектах. Приведено решение векторного уравнения Гельмгольца в однородной изотропной среде в сферической системе координат. Решение строится в базисе из ортогональных векторных

сферических гармоник, что позволяет разделить векторные поля на чисто тангенциальные к сферическим поверхностям и содержащие радиальную компоненту. Базис из векторных сферических гармоник в дальнейшем используется в главе 3 при решении задач линейного рассеяния и генерации оптических гармоник субволновыми диэлектрическими и полупроводниковыми частицами. Приведено описание продольных и поперечных (электрических и магнитных) векторных сферических гармоник и показано, как на их основе строится решение для полей для различных граничных условий. Отдельно рассматривается угловая зависимость векторных сферических гармоник. Приведено мультипольное разложение электромагнитного поля, и получены основные формулы для расчета энергетических характеристик полей рассеяния в дальней зоне.

В разделе 3.2 изложена теория генерации второй гармоники (ГВГ) 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 для сферических частиц из AlGaAs и BaTiO₃ при возбуждении магнитодипольного резонанса на основной частоте [Аб]. Эти коэффициенты определяются интегралами перекрытия плотности тока поляризации на частоте второй гармоники $\mathbf{j}^{(2\omega)} = \partial \mathbf{P}^{(2\omega)} / \partial t$ с векторными сферическими гармониками $\mathbf{X}_{lm}(\theta, \varphi)$ и коэффициентами прохождения $t_l^{E,M}$, полученными при решении вспомогательной задачи падения сферических электрических и магнитных волн на частицу с диэлектрической проницаемостью $\varepsilon(2\omega)$ [11]:

$$\begin{aligned} a_E(l, m) &\sim t_l^E \iiint \mathbf{j}^{(2\omega)} j_l(kr\sqrt{\varepsilon(2\omega)}) \mathbf{X}_{lm}^*(\theta, \varphi) dV, \\ a_M(l, m) &\sim t_l^M \iiint \mathbf{j}^{(2\omega)} \nabla \times \left(j_l(kr\sqrt{\varepsilon(2\omega)}) \mathbf{X}_{lm}^*(\theta, \varphi) \right) dV, \end{aligned} \quad (2)$$

где j_l – сферическая функция Бесселя порядка l , $k = \omega/c$ – волновое число в вакууме, интегрирование производится по объему частицы. На рисунке 4 показаны относительные вклады отдельных мультиполей в мощность излучения на частоте второй гармоники для сферической частицы из AlGaAs.

Вид объемного тензора квадратичной нелинейной восприимчивости для AlGaAs и BaTiO₃ зависит от взаимной ориентации электрического поля падающей волны относительно главных кристаллических осей материала, что влияет на эффективность генерации второй гармоники и диаграмму направленности излучения. Предложенный метод расчета мультипольных коэффициентов генерируемого излучения является хорошей альтернативой нелинейной теории Ми.

В разделе 3.3 освещены особенности генерации второй гармоники нанополостями из GaAs, выращенными вдоль различных кристаллографических

направлений (100), (110) и (111) [A7-A8]. С использованием аналитических методов и численного моделирования был проведен мультипольный анализ излучения на частоте второй гармонике при падении плоской линейно поляризованной волны вдоль оси нанопластины. В случае аксиально-симметричных нанопластинок интегральные выражения для мультипольных коэффициентов излучения позволяют определить значения азимутальных индексов мультиполей m . Значения и четность индексов m дают информацию о характеристиках излучения в дальней зоне, в частности, о направленности нелинейных нанопластинок.

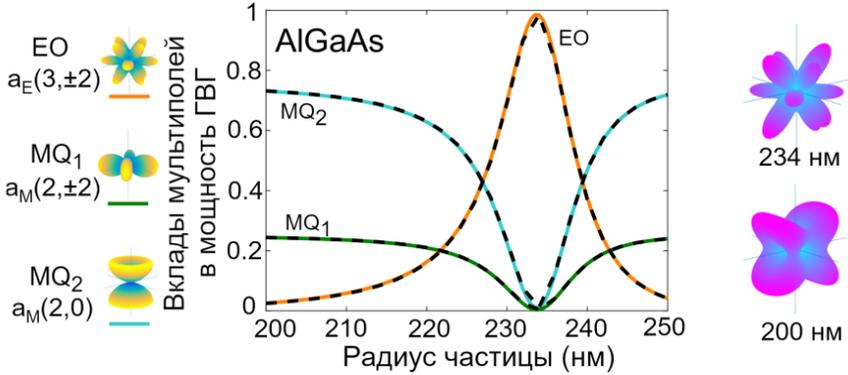


Рис. 4. Вклады отдельных мультиполей в эффективность генерации второй гармоники при возбуждении плоской волной сферической наночастицы из AlGaAs. Длина волны падающего излучения $\lambda_0 = 1550$ нм, окружающая среда – воздух. Сплошные линии соответствуют аналитическим результатам, штриховые линии соответствуют результатам численного моделирования. Слева показаны диаграммы направленности отдельных мультипольных вкладов в излучение на частоте второй гармоники, справа – диаграммы направленности излучения на частоте второй гармоники для частиц с радиусами 200 нм и 234 нм

В разделе 3.4 изложена теория генерации второй гармоники при возбуждении высокодобротных резонансных состояний в субволновом диэлектрическом цилиндрическом нанорезонаторе (нанодиске) [A9]. Были рассмотрены способы возбуждения двух сильно связанных ТЕ-поляризованных мод нанодиска из AlGaAs с азимутальным распределением электрического поля, мультипольный состав которых определяется магнитным диполем ($l = 1, m = 0$) и магнитным октополем ($l = 3, m = 0$). Относительные вклады мультиполей, и соответственно добротности системы, определяются аспектным отношением диска. В рассматриваемом случае нелинейный источник в (100)-AlGaAs, определяемый объемным тензором квадратичной нелинейности, возбуждает моды, в мультипольный состав которых входят нечетные электрические и четные магнитные мультиполи с азимутальным индексом $m = \pm 2$. Эффективность возбуждения связанных мод на основной частоте, а следовательно,

и эффективность генерации второй гармоники, зависят от типа падающего излучения, а именно, от его мультипольного состава. Показано, что эффективность генерации второй гармоники при возбуждении азимутально поляризованным лазерным пучком в несколько раз больше, чем при возбуждении линейно поляризованной плоской волной, поскольку в мультипольном составе азимутально поляризованного пучка существенно преобладает магнитный октуполь, а в плоской волне относительный вклад магнитного диполя больше. Максимальная эффективность генерации второй гармоники достигает нескольких процентов в случае двойного резонанса: при одновременном возбуждении магнитооктупольной моды на основной частоте ($Q \approx 100$) и высокодобротной моды на частоте второй гармоники ($Q \approx 300$) (см. Рисунок 5). При моделировании также учитывалась нелинейная поправка к поляризации на основной частоте, связанная с обратным влиянием второй гармоники на первую.

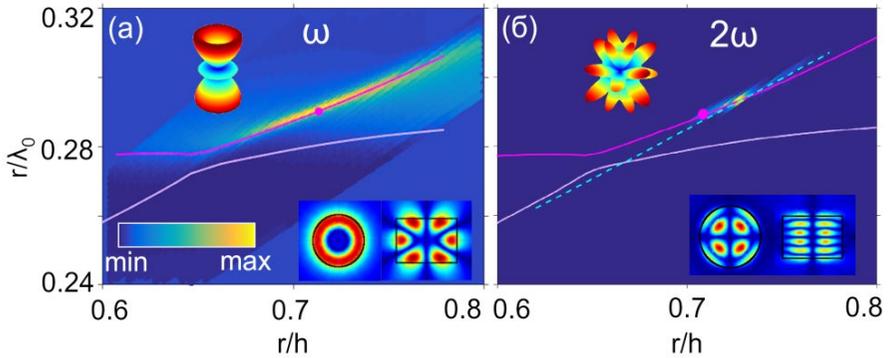


Рис. 5. Карты линейного рассеяния (а) и генерируемой мощности на второй гармонике (б) при возбуждении нанодиска из AlGaAs азимутально поляризованным лазерным пучком. По осям отложены отношение радиуса диска к высоте r/h и отношение радиуса диска к длине волны накачки r/λ_0 . Сплошными линиями построены дисперсии двух аксиально-симметричных ТЕ-мод диска на основной частоте, пунктирной линией – дисперсия моды на второй гармонике, возбуждаемой индуцированным нелинейным источником. Точкой отмечено высокодобротное магнитооктупольное состояние на основной частоте ($r/h \approx 0.71$). Вставки показывают распределение амплитуды электрического поля в диске и диаграммы направленности для параметров, обеспечивающих максимальную эффективность генерации второй гармоники, соответствующих пересечению ветвей дисперсии высокодобротной магнитооктупольной моды на основной частоте и моды на частоте второй гармоники ($r/h \approx 0.73$)

Раздел 3.5 посвящен особенностям генерации третьей гармоники в кремниевых наноструктурах. Разработанные подходы на основе мультипольного анализа позволили 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 нанодисков из GaAs [A7-A8]. 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 квадрумера. Для лучшего понимания эффекта был проведен подробный мультипольный анализ собственных мод олигомеров. Плоская волна при нормальном падении возбуждает собственные моды с магнитными дипольными моментами, ориентированными в плоскости структуры. 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 квадрумера удалось предсказать многократное увеличение интенсивности излучения на третьей гармонике при возбуждении квадрумера из Si азимутально поляризованным лазерным пучком по сравнению с линейно поляризованной накачкой, и определить оптимальные параметры системы с точки зрения максимальной эффективности преобразования инфракрасного излучения в излучение видимого диапазона [A11]. Рисунок 6(a) показывает добротности и длины волн собственных мод квадрумера кремниевых дисков. Анализ коллективных мод квадрумера показал, что мультипольное разложение полей двух наиболее добротных мод определяется магнитными мультиполями с азимутальным индексом $m = 0$. Мода с наибольшей добротностью соответствует возбуждению магнитных диполей в дисках, ориентированных поперек плоскости структуры, вдоль осей дисков. Эти моды нельзя возбудить линейно поляризованным излучением, падающим вдоль оси дисков, но зато можно возбудить азимутально поляризованным 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 поля-

ризации (см. Рисунок 6(б)). Все теоретические выводы согласуются с результатами эксперимента.

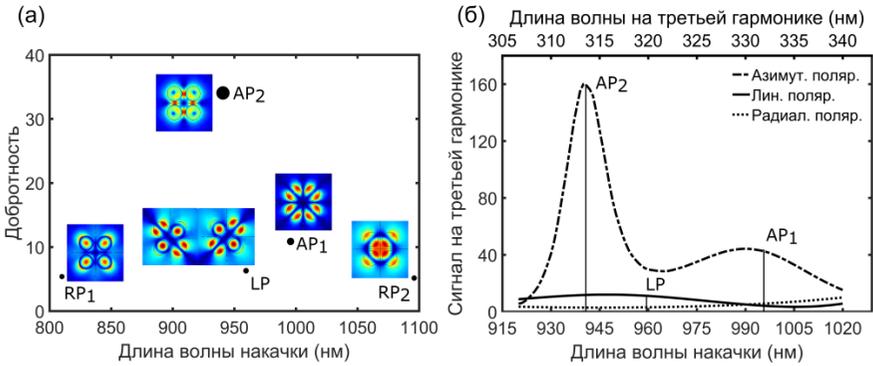


Рис. 6. (а) Добротности и длины волн собственных мод квадрумера нанодисков из a-Si. Вставки показывают распределение ближнего поля (показана норма электрического поля на середине высоты дисков в поперечном сечении плоскостью ху, параллельной плоскости образца). (б) Мощность излучения на третьей гармонике, нормированная на мощность сигнала от неструктурированной кремниевой пленки той же толщины, что и высота дисков, для различных случаев поляризации падающего излучения: азимутально поляризованный цилиндрический векторный пучок, радиально поляризованный цилиндрический векторный пучок и линейно поляризованное излучение. Вертикальные линии соответствуют длинам волн коллективных собственных мод

В разделе 3.6 приведены выводы по главе.

ОСНОВНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ

1. Получены уточненные неравенства, описывающие применимость квазистатического дипольного приближения для сферической частицы как в вакууме, так и в однородной среде, и проверена применимость этого приближения в различных случаях. Получены приближенные выражения для параметров лоренцевой кривой коэффициента рассеяния 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. 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.

2. Разработана 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. Разработанная модель была использована при расчетах микроволнового нагрева компактированных металлических порошковых материалов.
3. Реализован метод измерений диэлектрических свойств керамических и композитных материалов в миллиметровом диапазоне, основанный на сравнении интенсивностей электромагнитного излучения в рабочей камере гиротронного комплекса при наличии и при отсутствии образца внутри камеры. Экспериментально получены температурные зависимости тангенса угла диэлектрических потерь на частоте 24 ГГц для материалов на основе Al_2O_3 в широком диапазоне температур: для чистого Al_2O_3 – при 200–1100°C и для композита 88 % Al_2O_3 + 11 % ZrO_2 + 1 % Y_2O_3 – при 200–600°C.
4. С использованием леммы Лоренца получены аналитические выражения для мультипольных коэффициентов генерируемого поля на удвоенной частоте для сферических частиц из AlGaAs и BaTiO_3 при возбуждении на основной частоте первого магнитодипольного резонанса, когда магнитный дипольный момент частицы ориентирован вдоль кристаллической оси [010]. Получены аналитические зависимости относительных вкладов отдельных мультиполей в излучение на частоте второй гармоники на фиксированной длине волны в зависимости от радиуса частицы.
5. Продемонстрирована возможность создания удвоителя частоты лазерного излучения с использованием резонансных наноструктур из арсенида галлия (GaAs , AlGaAs). В основе предложенного частотного удвоителя лежит идея одновременной реализации в нанодисках из AlGaAs высокодобротных резонансов на частотах лазерной накачки и ее второй гармоники. Эффективность генерации второй гармоники многократно возрастает при освещении нанодиска лазерным пучком с азимутальной поляризацией по сравнению с линейно поляризованным излучением благодаря лучшему соответствию мультипольного состава накачки и высокодобротной моды диска.
6. С использованием аналитических и численных методов определен мультипольный состав коллективных мод квадрумеров кремниевых дисков с

различной ориентацией электрических и магнитных дипольных моментов в отдельных дисках. В результате численного моделирования получено, что при возбуждении квадрумера нормально падающим лазерным излучением эффективность генерации третьей гармоники на два порядка больше в случае азимутально поляризованного пучка, чем в случаях линейной или радиальной поляризации, благодаря возбуждению коллективных мод с наибольшей добротностью, мультипольный состав которых определяется магнитными мультиполями с азимутальным индексом $m = 0$.

СПИСОК РАБОТ ПО ТЕМЕ ДИССЕРТАЦИИ

- A1. Волковская И. И., Семенов В. Е. *О рассеянии и поглощении электромагнитных волн при возбуждении дипольных мод сферической частицы* // Известия вузов. Радиофизика. 2021. Т. **64** (1). С. 41-57.
- A2. Волковская И. И., Семенов В. Е., Рыбаков К. И. *Эффективная высокочастотная магнитная проницаемость компактированных металлических порошковых материалов* // Известия вузов. Радиофизика. 2017. Т. **60** (10), С. 892–903.
- A3. Рыбаков К. И., Семенов В. Е., Волковская И. И. *Микроволновый нагрев металлических порошковых кластеров* // Журнал технической физики. 2018. Т. **88** (1). С. 46–51.
- A4. Rybakov K.I., Volkovskaya I.I. *Electromagnetic field effects in the microwave sintering of electrically conductive powders* // Ceramics International. 2019. Vol. **45** (7B), P. 9567-9572.
- A5. Волковская И. И., Еремеев А. Г., Быков Ю. В. *Измерение коэффициента поглощения микроволнового излучения в керамических и композиционных материалах при высоких температурах* // Известия вузов. Радиофизика. 2018. Т. **61** (4). С. 321–331.
- A6. Frizyuk K., Volkovskaya I., Smirnova D., Poddubny A., and Petrov M. *Second-harmonic generation in Mie-resonant dielectric nanoparticles made of noncentrosymmetric materials* // Phys. Rev. B. 2019, Vol. **99**, 075425.
- A7. Sautter J. D., Xu L., Miroshnichenko A., Lysevych M., Volkovskaya I., Smirnova D. A., Camacho-Morales R., Kamali K. Z., Karouta F., Vora K., Tan H. H., Kauranen M., Staude I., Jagadish C., Neshev D. N., and Rahmani M. *Tailoring Second-Harmonic Emission from (111)-GaAs Nanoantennas* // Nano Letters. 2019. Vol. **19** (6) P. 3905-3911.
- A8. Xu L., Saelens G., Timofeeva M., Smirnova D. A., Volkovskaya I., Lysevych M., Camacho-Morales R., Cai M., Kamali K. Z., Huang L., Karouta F., Tan H. H., Jagadish C., Miroshnichenko A. E., Grange R., Neshev D. N., Rahmani M. *Forward and Backward Switching of Nonlinear*

- Unidirectional Emission from GaAs Nanoantennas* // ACS Nano. 2020. Vol. **14** (2), P.1379-1389.
- A9. Volkovskaya I., Smirnova D., Xu L., Huang L., Smirnov A. I., and Miroshnichenko A. *Multipolar second-harmonic generation from high-Q quasi-BIC states in subwavelength resonators* // Nanophotonics. 2020. Vol. **9** (12) P. 3953-3963.
- A10. Kroychuk M., Yagudin D., Shorokhov A., Volkovskaya I., Smirnova D., Shcherbakov M., Shvets G., Kivshar Y., and Fedyanin A., *Tailored Nonlinear Anisotropy in Mie-Resonant Dielectric Oligomers* // Advanced Optical Materials. 2019. Vol. **7** (20). 1900447.
- A11. Kroychuk M. K., Shorokhov A. S., Yagudin D. F., Shilkin D. A., Smirnova D. A., Volkovskaya I., Shcherbakov M. R., Shvets G., Fedyanin A. A. *Enhanced nonlinear light generation in oligomers of silicon nanoparticles under vector beam illumination* // Nano Letters. 2020. Vol. **20** (5), P. 3471–3477.
- A12. Volkovskaya I.I., Semenov V.E. and Rybakov K.I. *Effective magnetic permeability of compacted metal powders at microwave frequencies* // EPJ Web of Conferences. 2017. Vol. **149**, 02008.
- A13. Volkovskaya I. I., Ereemeev A., Bykov Yu. *Measuring absorptivity of ceramic materials at high temperatures in Gyrotron Ceramics Sintering System* // EPJ Web of Conferences. 2018 Vol. **187**, 01022.
- A14. Smirnova D. A., Volkovskaya I. I., and Smirnov A. I. *Second-Harmonic Generation by Mie-resonant Nanoparticles with Bulk Quadratic Nonlinearity* // 2018 20th International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON). 2018. P. 1-3.
- A15. Volkovskaya I., Smirnova D. and Smirnov A. *Nonlinear generation of multipolar radiation in Mie-resonant nanoparticles* // 2019 21st International Conference on Transparent Optical Networks (ICTON), 2019, P. 1-4.
- A16. Volkovskaya I., Smirnova D., Xu L., Sautter J., Miroshnichenko A., Lysevych M., Camacho-Morales R., Kamali K.Z., Karouta F., Vora K., Tan H. H., Kauranen M., Staude I., Jagadish C., Neshev D. and Rahmani M. *Multipolar analysis of second-harmonic generation in (111) Gallium Arsenide nanoparticles* // Journal of Physics: Conference Series, Vol. **1461**, METANANO 2019 15-19 July 2019, St. Petersburg, Russian Federation
- A17. Volkovskaya I., Smirnova D.A., Xu L., Saerens G., Timofeeva M., Lysevych M., Camacho-Morales R., Cai M., Kamali K. Z., Huang L., Karouta F., Tan H. H., Jagadish C., Miroshnichenko A. E., Grange R., Neshev D.N., and Rahmani M. *Multipolar analysis of second-harmonic generation in GaAs nanoparticles grown along different crystallographic directions* // AIP Conference Proceedings, 2020, Vol. **2300**, P. 020131
- A18. Волковская И. И., Семенов В. Е., Рыбаков К. И. *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.
- A19. Волковская И. И., Смирнова Д. А. *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.
- A20. Волковская И. И., Смирнова Д. А. *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.
- A21. Волковская И. И., Рыбаков К. И., *Поглощение электромагнитных волн в металлических порошковых материалах* // XXIII Нижегородская сессия молодых ученых (технические, естественные, математические науки), материалы докладов. Том II С. 8-9 / Княгинино : НГИЭУ. 2018. – 226 с.
- A22. 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
- A23. Volkovskaya I., Smirnova D. A. and Smirnov A. I. *Nonlinear harmonic generation by Mie-resonant nanoparticles* // VII International conference “Frontiers of nonlinear physics”. 2019. Proceedings, P.160-161
- A24. Волковская И. И., Смирнова Д. А., *Нелинейная генерация гармоник Ми-резонансными наночастицами*, XXIV Нижегородская сессия молодых ученых (технические, естественные, математические науки), материалы докладов, С. 86-87 / Нижний Новгород: НРЛ, 2019. – 270 с.
- A25. Волковская И.И., Смирнова Д.А., Смирнов А.И., *Эффективная генерация второй гармоники в высокочастотном диэлектрическом нанорезонаторе* // XIX научная школа "Нелинейные волны – 2020", Нижний Новгород, 29 февраля - 6 марта 2020 г., сборник тезисов, С. 74-75
- A26. Волковская И.И., Смирнова Д.А., *Генерация оптических гармоник в субволновых диэлектрических резонаторах*, XXVI Нижегородская сессия молодых ученых (технические, естественные науки), сборник статей и тезисов докладов, С. 251-253, М.: Издательство «Перо», 2021. – 261 с. – [Электронное издание].

СПИСОК ЦИТИРОВАННОЙ ЛИТЕРАТУРЫ

1. Bykov Y. V., Rybakov K. I., Semenov V. E. *High-temperature microwave processing of materials* // Journal of Physics D: Applied Physics. 2001. Vol. **34** (13), P. R55-R75.
2. Singh S., Gupta D., Jain V., Sharma A. K. *Microwave Processing of Materials and Applications in Manufacturing Industries: A Review* // Materials and Manufacturing Processes. 2014. Vol. **30** (1), P. 1-29.
3. Mie G. *Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen* // Annalen der Physik. 1908. Vol. **330** (3), P. 377-445.
4. Smirnova D., Kivshar Y. S. *Multipolar nonlinear nanophotonics* // Optica. 2016. Vol. **3** (11) P. 1241-1255
5. Kruk S.S., Camacho-Morales R., Xu L. Rahmani M., Smirnova D.A., Wang L., Tan H.H., Jagadish C., Neshev D.N., Kivshar Y.S. *Nonlinear Optical Magnetism Revealed by Second-Harmonic Generation in Nanoantennas* // Nano Letters. 2017. Vol. 17 (6), P. 3914—3918.
6. Shcherbakov M.R., Neshev D.N., Hopkins B., Shorokhov A.S., Staude I., Melik-Gaykazyan E.V., Decker M., Ezhov A.A., Miroshnichenko A.E., Brener I., Fedyanin A.A., Kivshar Y.S. *Enhanced Third-Harmonic Generation in Silicon Nanoparticles Driven by Magnetic Response* // Nano Letters. 2014. Vol. **14** (11), P. 6488-6492.
7. Shcherbakov M.R., Vabishchevich P.P., Shorokhov A.S., Chong K.E., Choi D.-Y., Staude I., Miroshnichenko A.E., Neshev D.N., Fedyanin A.A., Kivshar Y.S. *Ultrafast All-Optical Switching with Magnetic Resonances in Nonlinear Dielectric Nanostructures* // Nano Letters. 2015. Vol. **15** (10), P. 6985-6990.
8. Camacho-Morales R., Rahmani M., Kruk S., Wang L., Xu L., Smirnova D.A., Solntsev A.S., Miroshnichenko A., Tan H.H., Karouta F., Naureen S., Vora K., Carletti L., Angelis C. De, Jagadish C., Kivshar Y.S., Neshev D.N., *Nonlinear Generation of Vector Beams From AlGaAs Nanoantennas* // Nano Letters. 2016. Vol. **16**, (11), P. 7191-7197.
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. Vol. **65** (5), P. 1479-1487.
10. Galek T., Porath K., Burkel E. Rienen U. van. *Extraction of effective permittivity and permeability of metallic powders in the microwave range* // Modelling and Simulation in Materials Science and Engineering. 2010. Vol. **18** (2). P. 025015.
11. Smirnova D., Smirnov A.I., Kivshar Y.S. *Multipolar second-harmonic generation by Mie-resonant dielectric nanoparticles* //Physical Review A. 2018. Vol. **97**, P. 013807

СОДЕРЖАНИЕ ДИССЕРТАЦИИ

Введение	4
Глава 1. Электродинамическое описание малых частиц в поле электромагнитной волны	11
1.1 Описание рассеяния электромагнитной волны на сферической частице низшими дипольными модами	14
1.2 Резонансное рассеяние и поглощение низших дипольных мод	20
1.3 Заключение по Главе 1	31
Глава 2. Электродинамическое описание мелкодисперсной среды	33
2.1 Эффективная диэлектрическая проницаемость смеси	36
2.2 Магнитная проницаемость среды из металлических сферических частиц	39
2.3 Измерение коэффициента поглощения микроволнового излучения в керамических и композиционных материалах при высоких температурах	47
2.4 Заключение по Главе 2	51
Глава 3. Генерация оптических гармоник в субволновых диэлектрических резонаторах	53
3.1 Мультипольное разложение электромагнитного поля в базисе векторных сферических гармоник для задач линейного и нелинейного рассеяния субволновыми объектами	53
3.2 Генерация второй гармоники сферическими наночастицами из AlGaAs и BaTiO ₃	65
3.3 Генерация второй гармоники наночастицами из GaAs, выращенными вдоль различных кристаллографических направлений	79
3.4 Генерация второй гармоники при возбуждении высокочастотных резонансных состояний в диэлектрическом субволновом резонаторе	95
3.5 Особенности генерации третьей гармоники в наноструктурах из Si	108
3.6 Заключение по Главе 3	114
Заключение	116
Публикации автора по теме диссертации	119
Список литературы	122

ВОЛКОВСКАЯ Ирина Игоревна

**ПОГЛОЩЕНИЕ И РАССЕЯНИЕ
ЭЛЕКТРОМАГНИТНЫХ ВОЛН
МАЛЫМИ ЧАСТИЦАМИ И СИСТЕМАМИ ИЗ НИХ**

А в т о р е ф е р а т

Подписано к печати 27.06.2022.
Формат $60 \times 90 \frac{1}{16}$. Усл. печ. л. 1,5.
Тираж 100 экз. Заказ № 32(2022).

Отпечатано в типографии Института прикладной физики РАН
603950, Нижний Новгород, ул. Ульянова, 46