## 06

# Генерация второй гармоники от тонкого цилиндрического слоя. І. Аналитическое решение

© А.А. Шамына, В.Н. Капшай

Гомельский государственный университет им. Ф. Скорины, 246019 Гомель, Беларусь e-mail: anton.shamyna@gmail.com; kapshai@rambler.ru

Поступила в редакцию 24.12.2018 г. В окончательной редакции 16.01.2019 г. Принята к публикации 23.01.2019 г.

В приближении Релея–Ганса–Дебая получено аналитическое решение задачи о генерации второй гармоники плоской электромагнитной волной с эллиптической поляризацией от тонкого оптически нелинейного слоя на поверхности цилиндрической диэлектрической частицы конечных размеров, помещенной в диэлектрик. Результат представлен в тензорной и векторной формах в общем случае, когда тензор нелинейной диэлектрической восприимчивости имеет четыре независимых компоненты (одну киральную и три некиральных). Впервые показано, что при генерации от торцевых поверхностей цилиндрической частицы вклад киральных компонент отличается по фазе от вклада некиральных. Также обнаружено, что при малых значениях линейных размеров цилиндрической частицы (высота и радиус основания) излучение, обусловленное киральной компонентой тензора нелинейной диэлектрической восприимчивости второго порядка, вносит доминирующий вклад в генерацию второй гармоники от нелинейного слоя цилиндрической формы (торцевая и боковая поверхности).

DOI: 10.21883/OS.2019.06.47765.374-18

## Введение

Генерация второй гармоники от двумерных объектов занимает важное место среди нелинейных явлений оптики. Несмотря на то, что этот эффект достаточно слаб, он может использоваться для экспериментального исследования двумерных объектов, таких как тонкие пленки, монослои, границы раздела, поверхности частиц. Преимущество нелинейной спектроскопии также в том, что благодаря мгновенному отклику можно получать динамические свойства наночастиц [1]. С помощью генерации второй гармоники можно узнать энергию адсорбции и поверхностную плотность адсорбированных молекул [2], электростатический потенциал [3], ориентацию адсорбированных молекул и их тензор гиперполяризуемости [4].

В связи с появлением технической возможности производства диэлектрических нано- и микрочастиц появилась необходимость в исследовании их физических свойств и особенностей. Такие частицы, например, могут входить в состав коллоидных систем, широко используемых в медицине, химии и некоторых технологиях. Поскольку в нано- и микрочастицах отношение площади поверхности к их объему имеет большую величину, то свойства их поверхности в значительной степени влияют на свойства самих частиц [5] и, следовательно, на свойства содержащей их системы. Среди ключевых характеристик частиц можно указать форму, структуру и размеры их поверхности, наличие адсорбированных молекул и их свойства: интенсивность нелинейного отклика, плотность распределения и ориентация молекул относительно поверхности частицы.

Именно генерация второй гармоники благодаря своей избирательности позволяет получить сигнал только от поверхности частицы, что делает ее незаменимым инструментом неразрушающего исследования поверхностей нано- и микрочастиц. Однако для ее эффективного использования необходимо иметь адекватную математическую модель генерации от таких частиц, параметры которой связаны с описанными свойствами.

Среди всех моделей, используемых для описания генерации второй гармоники и других нелинейных эффектов, выделяются две модели. Первая основывается на точном решении задачи о рассеянии [6–8]. Она чаще используется для описания нелинейных явлений от металлических частиц, поскольку достаточно сложна, но позволяет учесть рассеяние падающих и генерируемых волн.

Вторая модель (на основе приближения Релея–Ганса– Дебая [7,9–12]) применяется для описания оптически "мягких" диэлектрических частиц, чей показатель преломления слабо отличается от показателя преломления окружающей среды. Это позволяет в удобной для анализа форме получить решение задачи о генерации второй гармоники или суммарной частоты. Преимущество модели на основе приближения Релея–Ганса–Дебая в том, что она позволяет проанализировать симметрию и свойства полученного решения [12–16], а также получить аналитические формулы, описывающие нелинейную генерацию от поверхности частиц произвольной формы [10].

Генерации второй гармоники от поверхности частиц сферической формы посвящено уже достаточно много публикаций, поэтому растет интерес к нелинейным эффектам от частиц более сложной формы [10] для их последующего исследования, так как форма поверхности частицы оказывает непосредственное влияние на ее свойства. В качестве примера можно привести использование именно цилиндрических диэлектрических частиц для реализации возможности контролируемого распространения света через границы раздела [17]. В медицине таким примером может служить многократный рост эффективности препарата для лечения рака молочной железы при доставке к раковым клеткам с помощью стержнеобразных и даже червеобразных наночастиц [18].

В настоящей работе описывается молепь Релея-Ганса-Дебая учетом с дисперсии лля описания генерации второй гармоники от поверхности диэлектрических нано- и микрочастиц цилиндрическое чей показатель преломления формы, близок к показателю преломления окружающей среды [13]. качестве примера могут быть приведены В полистирольные частицы с размерами порядка 100-500 nm, покрытые малахитовым зеленым для усиления эффекта генерации второй гармоники на длине волны падающего излучения 850 nm (для его получения можно использовать титансапфировый лазер). Применимость приближения Релея-Ганса-Дебая для частиц таких размеров неоднократно проверена экспериментально сферических частицах [9-11]. Доказано, что учет дисперсии расширяет границы применимости этого приближения [9]. В случае достаточно точного совпадения показателей преломления материала частицы и окружающей среды диапазон размеров частицы, для которых применима рассматриваемая нами модель, значительно расширяется. Разработанная теория впоследствии может стать основой для математического описания нелинейной генерации от цилиндрических частиц и частиц более сложной формы, но уже с учетом рассеяния, а также для описания нелинейной



Схема задачи о генерации второй гармоники от поверхности цилиндрической частицы.

генерации от биологических наночастиц (мицелл, везикул, липосом).

# Генерация второй гармоники от поверхности цилиндрической частицы

### Обозначения и вспомогательные формулы

Пусть  $\mathbf{e}_r$ ,  $\mathbf{e}_{\theta}$ ,  $\mathbf{e}_{\varphi}$  — базисные векторы сферической системы координат  $(r, \theta, \varphi)$ , а векторы  $\mathbf{e}_x$ ,  $\mathbf{e}_y$ ,  $\mathbf{e}_z$  — базисные векторы декартовой системы координат (x, y, z). Пусть цилиндрическая частица высотой h и радиусом основания a покрыта нелинейным слоем толщиной  $d_0 \ll a, d_0 \ll h$ . Расположим ее так, чтобы ось цилиндра совпадала с осью Oz, а геометрический центр находился в начале координат (рисунок).

Векторы  $\mathbf{k}^{(\omega)}$  и  $\mathbf{k}^{(2\omega)}$  — волновые векторы падающей и генерируемой волн соответственно. Их модули выражаются через параметры среды и частоту следующим образом:

$$|\mathbf{k}^{(\omega)}| = k_{\omega} = \frac{\omega}{c} n_{\omega} = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{\omega} \mu_{\omega}},$$
$$|\mathbf{k}^{(2\omega)}| = k_{2\omega} = \frac{2\omega}{c} n_{2\omega} = \frac{2\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_{2\omega} \mu_{2\omega}}, \qquad (1)$$

где  $\varepsilon_{\omega}$ ,  $\mu_{\omega}$  и  $\varepsilon_{2\omega}$ ,  $\mu_{2\omega}$  — диэлектрическая и магнитная проницаемости окружающей частицу среды на частотах  $\omega$  и  $2\omega$  соответственно, причем для дальней зоны  $\mathbf{k}^{(2\omega)} = k_{2\omega}\mathbf{e}_r$ . Для реализации обобщенного приближения Релея–Ганса–Дебая понадобится коэффициент, характеризующий дисперсию:

$$\xi = \frac{k_{2\omega}}{2k_{\omega}}.$$
 (2)

В задаче также понадобится вектор рассеяния

$$\mathbf{q} = 2\mathbf{k}^{(\omega)} - \mathbf{k}^{(2\omega)},\tag{3}$$

его составляющие вдоль оси Ог и перпендикулярно ей:

$$\mathbf{q}_{\parallel} = (\mathbf{q}\mathbf{e}_z)\mathbf{e}_z = q_{\parallel}\mathbf{e}_z, \quad \mathbf{q}_{\perp} = \mathbf{q} - \mathbf{q}_{\parallel}, \quad q_{\perp} = |\mathbf{q}_{\perp}|, \quad (4)$$

а также единичный вектор вдоль составляющей  $\mathbf{q}_\perp$ :

$$\mathbf{v} = \mathbf{q}_{\perp} / |\mathbf{q}_{\perp}|. \tag{5}$$

Напряженность поля падающей плоской электромагнитной волны пусть задается уравнением

$$\mathbf{E}^{(\omega)}(\mathbf{x}) = E_{\omega} \mathbf{e}^{(\omega)} \exp(i\mathbf{k}^{(\omega)}\mathbf{x}), \tag{6}$$

где  $E_{\omega}$  — ее комплексная амплитуда, а  $\mathbf{e}^{(\omega)}$  — комплексный вектор, отвечающий за поляризацию  $(|\mathbf{e}^{(\omega)}|^2 = \mathbf{e}^{(\omega)}(\mathbf{e}^{(\omega)})^* = 1)$ . Символ \* означает комплексное сопряжение. Векторное произведение далее будем обозначать конструкцией  $[\mathbf{a} \times \mathbf{b}]$ , а тензорное произведение символом  $\otimes$ . В уравнении (6) и далее подразумевается временная зависимость  $\exp(-i\omega t)$ .

Направление и поляризацию падающей электромагнитной волны будем задавать с помощью величин  $\theta_{in}$ ,  $\varphi_{in}$ ,  $\sigma$ . Угол  $\theta_{in}$  — угол между волновым вектором падающей волны  $\mathbf{k}^{(\omega)}$  и осью  $O_z$ . Угол  $\varphi_{in}$  — угол между большой полуосью эллипса поляризации падающей волны и плоскостью, содержащей  $\mathbf{k}^{(\omega)}$  и ось  $O_z$  (плоскостью Oxz, если вектор  $\mathbf{k}^{(\omega)}$  параллелен оси  $O_z$ ). Величина  $\sigma$  — степень эллиптичности падающей электромагнитной волны;  $|\sigma|$  определяется отношением длины меньшей полуоси. Значения  $0 < \sigma < 1$  ( $-1 < \sigma < 0$ ) соответствуют правой (левой) эллиптической поляризации, значения  $\sigma = +1$  ( $\sigma = -1$ ) соответствуют правой (левой) циркулярной поляризации, а  $\sigma = 0$  — линейной поляризации.

В задаче используется дипольная модель среды, в которой компоненты нелинейной части поляризации для генерации второй гармоники с использованием правила суммирования по повторяющимся индексам записываются в виде

$$P_i^{(2)} = \chi_{ijk}^{(2)} E_j^{(\omega)} E_k^{(\omega)}, \tag{7}$$

где  $E_j^{(\omega)}$  — компоненты вектора напряженности падающей волны, а  $\chi_{ijk}^{(2)}$  — тензор нелинейной диэлектрической восприимчивости второго порядка. При генерации от элемента поверхности он имеет четыре независимые компоненты (три некиральных и одна киральная) и записывается в виде

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_1^{(2)} n_i n_j n_k + \chi_2^{(2)} n_i \delta_{jk} + \chi_3^{(2)} (n_j \delta_{ki} + n_k \delta_{ij}) + \chi_4^{(2)} n_m (n_k \varepsilon_{ijm} - n_j \varepsilon_{imk}),$$
(8)

где  $\delta_{ij}$ ,  $\varepsilon_{ijk}$  — символы Кронекера и Леви–Чивита соответственно,  $n_i$  — компоненты единичного вектора нормали **n** к поверхности. Коэффициенты  $\chi_{1-3}^{(2)}$  — значения некиральных независимых компонент тензора  $\chi_{ijk}^{(2)}$ , а  $\chi_4^{(4)}$  — значение киральной независимой компоненты. Коэффициенты  $\chi_{1-4}^{(2)}$  являются линейными комбинациями других известных в научной литературе [8–10] коэффициентов анизотропии  $\chi_{\perp\perp\perp}^{(2)}$ ,  $\chi_{\parallel\parallel}^{(2)}$ ,  $\chi_{\parallel\parallel\prime\perp}^{(2)}$ ,  $\chi_{\parallel\parallel\prime\perp}^{(2)}$ .

$$\begin{aligned} \chi_{1}^{(2)} &= \chi_{\perp \perp \perp}^{(2)} - \chi_{\perp \parallel \parallel}^{(2)} - 2\chi_{\parallel \perp \parallel}^{(2)}, \quad \chi_{2}^{(2)} = \chi_{\perp \parallel \parallel}^{(2)} = \chi_{\perp \parallel' \parallel'}^{(2)}, \\ \chi_{3}^{(2)} &= \chi_{\parallel \perp \parallel}^{(2)} = \chi_{\parallel' \perp \parallel'}^{(2)} = \chi_{\parallel \parallel \perp}^{(2)} = \chi_{\parallel' \parallel' \perp}^{(2)}, \\ \chi_{4}^{(2)} &= \chi_{\parallel \parallel' \perp}^{(2)} = \chi_{\parallel \perp \parallel'}^{(2)} = -\chi_{\parallel' \parallel \perp}^{(2)} = -\chi_{\parallel' \perp \parallel}^{(2)}. \end{aligned}$$
(9)

Здесь индексы  $\bot$ ,  $\|$ ,  $\|'$  означают компоненты вдоль единичных векторов  $\mathbf{n} = \mathbf{n}_{\bot}$ ,  $\mathbf{n}_{\|}$ ,  $\mathbf{n}_{\|'}$ , которые образуют правую тройку перпендикулярных векторов (рисунок). Более подробно связь коэффициентов в (9) описана в Приложении.

В ходе решения также понадобятся значения следующих интегралов:

$$\int_{0}^{2\pi} \exp(i a \mathbf{q}_{\perp} \mathbf{n}) n_k d\varphi' = 2\pi i J_1(q_{\perp} a) \nu_k, \qquad (10)$$

$$\int_{0}^{2\pi} \exp(ia\mathbf{q}_{\perp}\mathbf{n})n_{i}n_{j}d\varphi' = 2\pi \left[-\nu_{i}\nu_{j}J_{2}(q_{\perp}a) + (\delta_{ij} - \delta_{jz}\delta_{jz})\frac{1}{2}(J_{0}(q_{\perp}a) + J_{2}(q_{\perp}a))\right], \quad (11)$$

$$\int_{0}^{2\pi} \exp(ia\mathbf{q}_{\perp}\mathbf{n})n_{i}n_{j}n_{k}d\varphi' = 2\pi i \left[-J_{3}(q_{\perp}a)\nu_{i}\nu_{j}\nu_{k}\right]$$

$$+ \frac{1}{4} (J_1(q_\perp a) + J_3(q_\perp a))(\nu_i(\delta_{jk} - \delta_{jz}\delta_{kz}) + \nu_j(\delta_{ki} - \delta_{iz}\delta_{kz}) + \nu_k(\delta_{ij} - \delta_{iz}\delta_{jz})) \bigg], \qquad (12)$$

где  $v_i$  — компоненты вектора v,  $J_m(z)$  — цилиндрическая функция Бесселя порядка m, а  $n_i$  — компоненты вектора  $\mathbf{n} = (\cos \varphi', \sin \varphi', 0)$ . Здесь и далее все появления i вне индексов означает мнимую единицу. Приближенные значения функций Бесселя при предельных значениях аргумента:

$$J_m(z) = \frac{z^m}{2^m m!}, \quad |z| \ll 1,$$
  
$$J_m(z) = \sqrt{\frac{2}{\pi z}} \cos\left(z - \frac{m\pi}{2} - \frac{\pi}{4}\right)$$
  
$$-\frac{4m^2 - 1}{4\sqrt{2\pi z^3}} \sin\left(z - \frac{m\pi}{2} - \frac{\pi}{4}\right), \quad |z| \gg 1.$$
  
(13)

Генерируемое поле будем искать в дальней зоне, где оно имеет вид плоской электромагнитной волны. Тогда с учетом уравнений Максвелла векторы напряженности магнитного поля и Умова–Пойнтинга генерируемой волны выражаются через вектор электрической напряженности в виде

$$\mathbf{H}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \frac{n_{2\omega}}{\mu_{2\omega}} [\mathbf{e}_r \times \mathbf{E}^{(2\omega)}(\mathbf{x})], \qquad (14)$$

$$\mathbf{S}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \frac{1}{2} \frac{c}{4\pi} \operatorname{Re}[\mathbf{E}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) \times (\mathbf{H}^{(2\omega)}(\mathbf{x}))^*],$$
  
$$S_r^{(2\omega)} \approx |\mathbf{S}^{(2\omega)}(\mathbf{x})| = \frac{c}{8\pi} \frac{n_{2\omega}}{\mu_{2\omega}} |\mathbf{E}^{(2\omega)}(\mathbf{x})|^2, \qquad (15)$$

где  $n_{2\omega}$  и  $\mu_{2\omega}$  — показатель преломления и магнитная проницаемость среды на частоте  $2\omega$  соответственно.

#### Боковая поверхность

Рассмотрим случай генерации только от боковой поверхности цилиндрической частицы. Аналогично работе [13] вектор напряженности электрического поля второй гармоники в дальней зоне в приближении Релея– Ганса–Дебая записывается в виде

$$\mathbf{E}_{\text{lat}}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r)\mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \times \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} \int\limits_V \exp(-i\mathbf{k}^{(2\omega)}\mathbf{x}')\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}')d^3\mathbf{x}', \quad (16)$$

Оптика и спектроскопия, 2019, том 126, вып. 6

где  $r = |\mathbf{x}|$ , а интегрирование ведется по объему V нелинейного слоя на боковой поверхности.

Комбинируя (3), (6), (7) и (16), получаем

$$E_{\text{lat}}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r}$$
$$\times (E_{\omega})^2 (\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) e_j^{(\omega)} e_k^{(\omega)}$$
$$\times \int_V \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}') \chi_{mjk}^{(2)}(\mathbf{x}') d^3\mathbf{x}'.$$
(17)

Конкретизируя этот интеграл, получаем

$$E_{\text{lat},i}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r}$$

$$\times E_{\omega}^2(\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m})e_j^{(\omega)}e_k^{(\omega)} \int_a^{a+d_0} r'dr'$$

$$\times \int_{-h/2}^{h/2} \exp(iq_{\parallel}z')dz' \int_0^{2\pi} \exp(ia\mathbf{q}_{\perp}\mathbf{n})\chi_{mjk}^{(2)}(\mathbf{n})d\varphi'. \quad (18)$$

Пользуясь (10)–(12), вычисляем интегралы в (18) и получаем

$$E_{\text{lat},i}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \mu_{2\omega} \, \frac{(2\omega)^2}{c^2} \, \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} \, d_0 a h \\ \times E_{\omega}^2(\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) e_j^{(\omega)} e_k^{(\omega)} X_{ijk}^{(2\omega)}, \qquad (19)$$

где  $X_{ijk}^{(2\omega)}$  — эффективная восприимчивость, которую можно записать в виде

$$\begin{split} X_{ijk}^{(2\omega)} &= \frac{1}{2\pi h} \int_{-h/2}^{h/2} \exp(iq_{\parallel}z') dz' \int_{0}^{2\pi} \exp(ia\mathbf{q}_{\perp}\mathbf{n}) \chi_{mjk}^{(2)}(\mathbf{n}) d\varphi' \\ &= \frac{\sin(q_{\parallel}h/2)}{q_{\parallel}h/2} (i\chi_{1}^{(2)} \{ -J_{3}(q_{\perp}a) v_{i}v_{j}v_{k} \\ &+ \frac{1}{4} (J_{1}(q_{\perp}a) + J_{3}(q_{\perp}a)) [v_{i}(\delta_{jk} - \delta_{jz}\delta_{kz}) \\ &+ v_{j}(\delta_{ki} - \delta_{iz}\delta_{kz}) + v_{k}(\delta_{ij} - \delta_{iz}\delta_{jz}) ] \} \\ &+ iJ_{1}(q_{\perp}a) (\chi_{2}^{(2)}v_{i}\delta_{jk} + \chi_{3}^{(2)}(v_{j}\delta_{ik} + v_{k}\delta_{ij})) \\ &- \frac{1}{2} \chi_{4}^{(2)} (J_{0}(q_{\perp}a) + J_{2}(q_{\perp}a)) (\varepsilon_{ijz}\delta_{kz} - \varepsilon_{izk}\delta_{jz}) \\ &- \chi_{4}^{(2)} J_{2}(q_{\perp}a) v_{m} (v_{k}\varepsilon_{ijm} - v_{j}\varepsilon_{imk})). \end{split}$$

Векторная форма решения может быть записана с помощью вектора  $\mathbf{f}_{\text{lat}}^{(2\omega)},$  компоненты которого находятся

по формуле 
$$f_{\text{lat},i}^{(2\omega)} = X_{ijk}^{(2\omega)} e_j^{(\omega)} e_k^{(\omega)}$$
:  
 $\mathbf{f}_{\text{lat}}^{(2\omega)} = \frac{\sin(q_{\parallel}h/2)}{q_{\parallel}h/2} (i\chi_1^{(2)} \{-J_3(q_{\perp}a)\mathbf{v}(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(\omega)})^2 + \frac{1}{4} (J_1(q_{\perp}a) + J_3(q_{\perp}a)) [\mathbf{v}((\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}^{(\omega)}) - (\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}_z)^2) + 2(\mathbf{e}^{(\omega)} - \mathbf{e}_z(\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}_z))(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(\omega)})] \} + iJ_1(q_{\perp}a)(\chi_2^{(2)}\mathbf{v}(\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}^{(\omega)}) + 2\chi_3^{(2)}\mathbf{e}^{(\omega)}(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(\omega)})) - \chi_4^{(2)}(J_0(q_{\perp}a) + J_2(q_{\perp}a)) \times [\mathbf{e}^{(\omega)} \times \mathbf{e}_z](\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}_z) - 2\chi_4^{(2)}J_2(q_{\perp}a)[\mathbf{e}^{(\omega)} \times \mathbf{v}](\mathbf{v}\mathbf{e}^{(\omega)})).$ 
(21)

Тогда вектор напряженности поля второй гармоники запишется в виде

$$\mathbf{E}_{\text{lat}}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = 2\pi\mu_{2\omega}\,\frac{(2\omega)^2}{c^2}\,\frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r}$$
$$\times d_0ah E_{\omega}^2(1-\mathbf{e}_r\otimes\mathbf{e}_r)\mathbf{f}_{\text{lat}}^{(2\omega)}.\tag{22}$$

## Торцы цилиндра

Поле, обусловленное генерацией от торцов частицы, можно найти по формуле, аналогичной (17), но интегрируя по объему нелинейного слоя на торцах цилиндра. Расписывая подробнее интеграл (17) для этого случая, получим

$$\begin{split} E_{\mathrm{be},i}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) &= \mu_{2\omega} \, \frac{(2\omega)^2}{c^2} \, \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} \, E_{\omega}^2(\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) e_j^{(\omega)} e_k^{(\omega)} \\ &\times \left[ \int_{h/2}^{h/2+d_0} \exp(iq_{||}z') \chi_{mjk}^{(2)}(z') dz' \int_{0}^{a} r' dr' \right] \\ &\times \int_{0}^{2\pi} \exp(iq_{\perp}r'\cos\varphi') d\varphi' + \int_{-h/2-d_0}^{-h/2} \exp(iq_{||}z') \chi_{mjk}^{(2)}(z') dz' \\ &\times \int_{0}^{a} r' dr' \int_{0}^{2\pi} \exp(iq_{\perp}r'\cos\varphi') d\varphi' \right]. \end{split}$$
(23)

Вычисление интегралов в (23) приводит к следующему выражению:

$$E_{be,i}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \pi \mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r}$$

$$\times E_{\omega}^2 a^2 d_0 (\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) e_j^{(\omega)} e_k^{(\omega)} (J_0(q_{\perp}a))$$

$$+ J_2(q_{\perp}a)) [\exp(iq_{\parallel}h/2) \chi_{mjk}^{(2)}(h/2)]$$

$$+ \exp(-iq_{\parallel}h/2) \chi_{mjk}^{(2)}(-h/2)], \qquad (24)$$

где  $\chi^{(2)}_{mjk}(h/2)$  и  $\chi^{(2)}_{mjk}(-h/2)$  — значения тензоров нелинейной диэлектрической восприимчивости для генера-

ции второй гармоники на противоположных торцах:

$$\chi_{mjk}^{(2)}(h/2) = \chi_{1}^{(2)}e_{z,m}e_{z,j}e_{z,k} + \chi_{2}^{(2)}e_{z,m}\delta_{jk} + \chi_{3}^{(2)}(e_{z,j}\delta_{km} + e_{z,k}\delta_{mj}) + \chi_{4}^{(2)}e_{z,l}(e_{z,k}\varepsilon_{mjl} - e_{z,j}\varepsilon_{mlk}), \chi_{mjk}^{(2)}(-h/2) = -(\chi_{1}^{(2)}e_{z,m}e_{z,j}e_{z,k} + \chi_{2}^{(2)}e_{z,m}\delta_{jk} + \chi_{3}^{(2)}(e_{z,j}\delta_{km} + e_{z,k}\delta_{mj})) + \chi_{4}^{(2)}e_{z,l}(e_{z,k}\varepsilon_{mjl} - e_{z,j}\varepsilon_{mlk}).$$
(25)

Подставляя (25) в (24), получаем

$$E_{be,i}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = 2\pi\mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r}$$

$$\times E_{\omega}^2 a^2 d_0 (\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) e_j^{(\omega)} e_k^{(\omega)} (J_0(q_{\perp}a))$$

$$+ J_2(q_{\perp}a)) [i\sin(q_{\parallel}h/2)(\chi_1^{(2)}e_{z,m}e_{z,j}e_{z,k})$$

$$+ \chi_2^{(2)}e_{z,m}\delta_{jk} + \chi_3^{(2)}(e_{z,j}\delta_{km} + e_{z,k}\delta_{mj}))$$

$$+ \cos(q_{\parallel}h/2)\chi_4^{(2)}e_{z,l}(e_{z,k}\varepsilon_{mjl} - e_{z,j}\varepsilon_{mlk})]. \quad (26)$$

В векторном виде (26) будет выглядеть следующим образом:

$$\begin{split} \mathbf{E}_{be}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) &= 2\pi\mu_{2\omega} \, \frac{(2\omega)^2}{c^2} \, \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} \, E_{\omega}^2 a^2 d_0 (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \\ &\times \{ (J_0(q_{\perp}a) + J_2(q_{\perp}a)) [i \sin(q_{\parallel}h/2)(\chi_1^{(2)}\mathbf{e}_z(\mathbf{e}_z\mathbf{e}^{(\omega)})^2 \\ &+ \chi_2^{(2)}\mathbf{e}_z(\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}^{(\omega)}) + 2\chi_3^{(2)}\mathbf{e}^{(\omega)}(\mathbf{e}_z\mathbf{e}^{(\omega)})) \\ &+ 2\cos(q_{\parallel}h/2)\chi_4^{(2)}[\mathbf{e}^{(\omega)} \times \mathbf{e}_z](\mathbf{e}_z\mathbf{e}^{(\omega)})] \} \\ &= 2\pi\mu_{2\omega} \, \frac{(2\omega)^2}{c^2} \, \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} \, E_{\omega}^2 a^2 d_0 (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \{\mathbf{f}_{be}^{(2\omega)}\}. \end{split}$$
(27)

#### Полная поверхность цилиндра

Поле второй гармоники, генерируемое от цилиндрической частицы, полностью покрытой нелинейным слоем, можно найти как суперпозицию полей от боковой и торцевой поверхностей:

$$\mathbf{E}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) = \mathbf{E}_{\text{lat}}^{(2\omega)}(\mathbf{x}) + \mathbf{E}_{\text{be}}^{(2\omega)}(\mathbf{x})$$
  
=  $2\pi\mu_{2\omega} \frac{(2\omega)^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{2\omega}r)}{r} E_{\omega}^2 ahd_0(1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r)\mathbf{f}^{(2\omega)},$   
(28)

где принято обозначение

$$\mathbf{f}^{(2\omega)} = \mathbf{f}_{\text{lat}}^{(2\omega)} + \frac{a}{h} \, \mathbf{f}_{\text{be}}^{(2\omega)}.$$
 (29)

В выражениях для  $\mathbf{f}_{\text{lat}}^{(2\omega)}$  и  $\mathbf{f}_{\text{be}}^{(2\omega)}$  киральные слагаемые (содержащие  $\chi_4^{(2)}$ ) отличаются от некиральных (содержащих  $\chi_{1-3}^{(2)}$ ) по фазе на множитель  $i = \exp(i\pi/2)$ .

Далее проанализируем форму решения для больших и малых линейных размеров цилиндрической частицы.

#### Предельные формы решения

Используя (13), находим, что вектор  $\mathbf{f}_{\text{lat}}^{(2\omega)}$  при малых значениях радиуса основания цилиндрической частицы  $(q_{\perp}a\ll 1)$  имеет вид

$$\mathbf{f}_{\text{lat}}^{(2\omega)} = \frac{\sin(q_{\parallel}h/2)}{q_{\parallel}h/2} \left( i\chi_{1}^{(2)} \frac{q_{\perp}a}{8} \left\{ \mathbf{\nu} \left[ (\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}^{(\omega)}) - (\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}_{z})^{2} \right] + 2 \left[ \mathbf{e}^{(\omega)} - \mathbf{e}_{z}(\mathbf{e}_{z}\mathbf{e}^{(\omega)}) \right] (\mathbf{\nu}\mathbf{e}^{(\omega)}) \right\} + i \frac{q_{\perp}a}{2} \left[ \chi_{2}^{(2)}\mathbf{\nu}(\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}^{(\omega)}) + 2\chi_{3}^{(2)}\mathbf{e}^{(\omega)}(\mathbf{\nu}\mathbf{e}^{(\omega)}) \right] - \chi_{4}^{(2)} \left[ \mathbf{e}^{(\omega)} \times \mathbf{e}_{z} \right] (\mathbf{e}_{z}\mathbf{e}^{(\omega)}) \right).$$
(30)

Аналогично для больших значений радиуса основания  $(q_{\perp}a \gg 1)$ :

$$\begin{aligned} \mathbf{f}_{\text{lat}}^{(2\omega)} &= \frac{\sin(q_{\parallel}h/2)}{q_{\parallel}h/2} \bigg\{ \frac{i\sqrt{2}\sin(q_{\perp}a - \pi/4)}{\sqrt{\pi q_{\perp}a}} [\chi_{1}^{(2)} \boldsymbol{\nu}(\boldsymbol{\nu} \mathbf{e}^{(\omega)})^{2} \\ &+ \chi_{2}^{(2)} \boldsymbol{\nu}(\mathbf{e}^{(\omega)} \mathbf{e}^{(\omega)}) + 2\chi_{3}^{(2)} \mathbf{e}^{(\omega)}(\boldsymbol{\nu} \mathbf{e}^{(\omega)})] \\ &+ \frac{2\sqrt{2}\cos(q_{\perp}a - \pi/2)}{\sqrt{\pi q_{\perp}a}} \chi_{4}^{(2)} [\mathbf{e}^{(\omega)} \times \boldsymbol{\nu}](\boldsymbol{\nu} \mathbf{e}^{(\omega)}) \bigg\}. \end{aligned}$$
(31)

В выражении (30) (при  $q_{\perp}a \ll 1$ ) наибольший вклад в генерацию вносит киральная компонента. Если нелинейный слой обладает киральными свойствами ( $\chi_4^{(2)} \neq 0$ ), то при малых значениях радиуса основания цилиндрической частицы мощность генерируемых волн пропорциональна  $a^2h^2$ . Если же он не обладает киральными свойствами ( $\chi_4^{(2)} = 0$ ), то мощность генерации пропорциональна  $a^4h^2$ . Причем при  $q_{\perp} = 0$  за генерацию отвечает только киральная компонента тензора нелинейной диэлектрической восприимчивости, что позволяет использовать эти направления для оценки величины киральных компонент. При больших значениях радиуса основания (выражение (31)) модуль вектора Умова.Пойнтинга пропорционален  $ah^2$ .

При малых и больших значениях высоты *h* цилиндрической частицы необходимо использовать следующие приближения:

$$\frac{\sin(q_{\parallel}h/2)}{q_{\parallel}h/2} \to 1, \quad |q_{\parallel}h| \ll 1,$$
$$\frac{\sin(q_{\parallel}h/2)}{q_{\parallel}h/2} \to \frac{2\pi}{h}\,\delta(q_{\parallel}), \quad |q_{\parallel}h| \gg 1.$$
(32)

Здесь  $\delta(q_{\parallel})$  — дельта-функция Дирака. В первом случае вектор электрической напряженности поля второй гармоники, генерируемой от боковой поверхности цилиндрической частицы, не зависит от  $q_{\parallel}$ . Во втором случае излучение концентрируется преимущественно в тех направлениях, где  $q_{\parallel} \rightarrow 0$ .

Вид функци<br/>и $\mathbf{f}_{\mathrm{be}}^{(2\omega)}$  при малых значениях радиуса основания цилиндрической частицы<br/>  $(q_{\perp}a\ll 1)$ 

$$\begin{aligned} \mathbf{f}_{be}^{(2\omega)} &= i \sin(q_{\parallel}h/2) (\chi_1^{(2)} \mathbf{e}_z (\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\omega)})^2 + \chi_2^{(2)} \mathbf{e}_z (\mathbf{e}^{(\omega)} \mathbf{e}^{(\omega)}) \\ &+ 2\chi_3^{(2)} \mathbf{e}^{(\omega)} (\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\omega)})) + 2 \cos(q_{\parallel}h/2) \chi_4^{(2)} [\mathbf{e}^{(\omega)} \times \mathbf{e}_z] (\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\omega)}). \end{aligned}$$
(33)

При этом генерируемое поле не зависит от  $q_{\perp}$ , а мощность генерации пропорциональна  $a^4$ . При больших значениях радиуса цилиндрической частицы  $(q_{\perp}a \gg 1)$  получаем

$$\mathbf{f}_{be}^{(2\omega)} = \frac{4}{\sqrt{2\pi(q_{\perp}a)^3}} \sin\left(q_{\perp}a - \frac{\pi}{4}\right) [i\sin(q_{\parallel}h/2) \\ \times (\chi_1^{(2)}\mathbf{e}_z(\mathbf{e}_z\mathbf{e}^{(\omega)})^2 + \chi_2^{(2)}\mathbf{e}_z(\mathbf{e}^{(\omega)}\mathbf{e}^{(\omega)}) + 2\chi_3^{(2)}\mathbf{e}^{(\omega)}(\mathbf{e}_z\mathbf{e}^{(\omega)})) \\ + 2\cos(q_{\parallel}h/2)\chi_4^{(2)}[\mathbf{e}^{\omega} \times \mathbf{e}_z](\mathbf{e}_z\mathbf{e}^{(\omega)})].$$
(34)

Тогда модуль вектора Умова-Пойнтинга пропорционален *а*.

При малых значениях высоты h цилиндрической частицы  $(|a_{\parallel}h|\ll 1)$  выражение для  $\mathbf{f}_{\mathrm{be}}^{(2\omega)}$  принимает вид

$$\mathbf{f}_{be}^{(2\omega)} = \{ (J_0(q_{\perp}a) + J_2(q_{\perp}a)) \Big[ \frac{iq_{\parallel}h}{2} (\chi_1^{(2)} \mathbf{e}_z(\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\omega)})^2 + \chi_2^{(2)} \mathbf{e}_z(\mathbf{e}^{(\omega)} \mathbf{e}^{(\omega)}) + 2\chi_3^{(2)} \mathbf{e}^{(\omega)}(\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\omega)})) + 2\chi_4^{(2)} [\mathbf{e}^{(\omega)} \times \mathbf{e}_z] (\mathbf{e}_z \mathbf{e}^{(\omega)}) \Big] \Big\}.$$
(35)

В этом случае мощность излучения второй гармоники пропорциональна  $a^4h^2$  для некирального слоя  $(\chi_4^{(2)} = 0)$  и  $a^4$  для кирального  $(\chi_4^{(2)} \neq 0)$ .

Стоит заметить, что для обоих векторов  $\mathbf{f}_{lat}^{(2\omega)}$  и  $\mathbf{f}_{be}^{(2\omega)}$  уменьшение линейных размеров цилиндрического слоя ведет к тому, что решающий вклад в генерацию вносит именно киральная компонента, содержащая  $\chi_4^{(2)}$ .

#### Сравнение с работами других авторов

Задача о генерации второй гармоники от цилиндрической частицы (в том числе и от ее поверхности) в приближении Релея–Ганса–Дебая была рассмотрена в работе [12]. В ней описано решение для случая, когда в окружающей среде отсутствует дисперсия, а ее магнитная проницаемость равна единице.

В этом частном случае полученное нами выражение для излучения второй гармоники, генерируемого от боковой поверхности цилиндрической частицы, совпадает с полученным в [12] при форме тензора нелинейной восприимчивости, записанной в виде (8). Формула (29) в работе [12] для интеграла по боковой поверхности цилиндра получена для тензора  $\chi_{ijk}^{(2)}$ , содержащего 27 независимых компонент. Поэтому она может быть использована для описания генерации суммарной частоты от боковой поверхности цилиндрической частицы, где количество независимых компонент равно семи. Однако громоздкая форма решения с излишними независимыми компонентами тензора создала сложности для дальнейшего анализа пространственного распределения генерируемого излучения.

При интегрировании по торцевым поверхностям в работе [12], как и в работе [10] для генерации суммарной частоты, не учтено, что при переходе от одного торца к другому киральные компоненты тензора  $\chi_{s,ijk}^{(2)}$  (в работе [10] и в нашей работе он обозначен как  $\chi_{ijk}^{(2)}$  не меняют своего знака на противоположный. Поэтому выражение (27) работы [12] для поля, генерируемого от торцов, является верным только для некирального случая. Исправить вклад киральных компонент в [12] можно, если в выражении для поля от торцов, обусловленного киральными компонентами, вместо  $\sin(Q_3\Lambda a)$  записать  $-i\cos(Q_3\Lambda a)$ .

О правильности такого изменения говорит также то, что в этом случае в формулах (21), (22), (27), описывающих генерацию от боковой поверхности и от торцевых, слагаемые, обусловленные киральными компонентами, отличаются по фазе от слагаемых, обусловленных некиральными компонентами, на множитель  $i = \exp(i\pi/2)$ . Также при таком изменении для малых размеров цилиндрической частицы ( $a \ll h, h \ll \lambda$ ) решающий вклад в генерацию будут вносить именно киральные компоненты как для боковой поверхности, так и для торцевых.

После такой поправки выражение для поля, генерируемого от торцевых поверхностей, приведенное в работе [12], совпадет с частным случаем нашего решения (27). Это также потребует исправления табл. І в работе [12] (и других формул и таблиц в ней, содержащих киральные компоненты) для явного вида компонент тензора эффективной восприимчивости, где киральные компоненты примут другой вид. Отметим также, что в последней строке этой таблицы допущена опечатка: вместо  $\chi_{s,\perp\parallel\parallel}^{(2)}$  следует написать  $\chi_{s,\perp\perp\perp}^{(2)}$ . После внесения соответствующих поправок явный вид тензора эффективной восприимчивости для цилиндрической частицы, приведенный в табл. І работы [12], будет согласоваться с нашим решением.

Связь обозначений в работе [12] с нашими (если тензор  $\chi_{ijk}^{(2)}$  имеет вид (8), и если учесть описанные выше изменения) следущая:

$$\mathbf{K}_{1} = \mathbf{k}^{(2\omega)}, \quad (Q_{1}, Q_{2}, Q_{3}) = \mathbf{q},$$

$$\Lambda = \frac{h}{2a}, \quad L = h,$$

$$\chi_{s,ijk}^{(2)} = \chi_{ijk}^{(2)}, \quad \chi_{s,\parallel//\perp}^{(2)} = \chi_{\parallel\parallel'/\perp}^{(2)},$$

$$\frac{\sin(Q_{3}\Lambda a)}{Q_{3}\Lambda a} \Gamma = \mathbf{f}_{\text{lat}}^{(2\omega)}.$$
(36)

Здесь в левой части каждого равенства записано обозначение в работе [12], а в правой — наше обозначение для аналогичной величины.

# Заключение

В настоящей работе с помощью обобщенного приближения Релея–Ганса–Дебая решена задача о генерации второй гармоники от поверхности цилиндрической частицы в рамках дипольной модели. Получен явный вид зависимости напряженности электрического поля генерируемого излучения от направления наблюдения для дальней зоны. При этом тензор нелинейной диэлектрической восприимчивости второго порядка для генерации второй гармоники от поверхности выбран в общей для данной задачи форме, содержащей четыре независимые компоненты, включая киральные.

В настоящей работе обнаружено отличие по фазе слагаемых, обусловленных киральными и некиральными компонентами, на множитель *i*. Также показано, что при уменьшении линейных размеров цилиндрической частицы возрастает вклад киральных компонент в генерацию. Эти же свойства были замечены нами ранее для генерации второй гармоники от поверхности сферической частицы [13] и для генерации суммарной частоты от поверхности цилиндрической [14] или сферической частицы [15,16].

## Финансирование работы

Работа выполнена при финансовой поддержке БРФФИ (проект Ф18М-026).

# Приложение

Пусть  $\mathbf{e}^{(\omega)}$  — произвольный вектор поляризации. Тогда выражение  $\chi_{ijk}^{(2)} e_j^{(\omega)} e_k^{(\omega)}$ , где тензор имеет вид (8), представимо в векторном виде:

$$\chi_{ijk}^{(2)} e_{j}^{(\omega)} e_{k}^{(\omega)} = \chi_{1}^{(2)} n_{i} (n_{j} e_{j}^{(\omega)}) (n_{k} e_{k}^{(\omega)}) + \chi_{2}^{(2)} n_{i} (\delta_{jk} e_{j}^{(\omega)} e_{k}^{(\omega)}) + \chi_{3}^{(2)} (n_{j} \delta_{ki} e_{j}^{(\omega)} e_{k}^{(\omega)} + n_{k} \delta_{ij} e_{j}^{(\omega)} e_{k}^{(\omega)}) + \chi_{4}^{(2)} n_{m} (n_{k} \varepsilon_{ijm} e_{j}^{(\omega)} e_{k}^{(\omega)} - n_{j} \varepsilon_{imk} e_{j}^{(\omega)} e_{k}^{(\omega)}) = [\chi_{1}^{(2)} \mathbf{n} (\mathbf{ne}^{(\omega)})^{2} + \chi_{2}^{(2)} \mathbf{n} (\mathbf{e}^{(\omega)} \mathbf{e}^{(\omega)}) + 2\chi_{3}^{(2)} \mathbf{e}^{(\omega)} (\mathbf{ne}^{(\omega)}) + 2\chi_{4}^{(2)} [\mathbf{e}^{(\omega)} \times \mathbf{n}] (\mathbf{ne}^{(\omega)})]_{i}.$$
(37)

Это же выражение можно записать через компоненты векторов вдоль  $\mathbf{n}_{\perp}, \mathbf{n}_{\parallel}, \mathbf{n}_{\parallel'}$ :

$$\begin{aligned} \chi_{1}^{(2)} \mathbf{n} (\mathbf{n} \mathbf{e}^{(\omega)})^{2} + \chi_{2}^{(2)} \mathbf{n} (\mathbf{e}^{(\omega)} \mathbf{e}^{(\omega)}) + 2\chi_{3}^{(2)} \mathbf{e}^{(\omega)} (\mathbf{n} \mathbf{e}^{(\omega)}) \\ &+ 2\chi_{4}^{(2)} [\mathbf{e}^{(\omega)} \times \mathbf{n}] (\mathbf{n} \mathbf{e}^{(\omega)}) = \chi_{1}^{(2)} \mathbf{n}_{\perp} e_{\perp}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} \\ &+ \chi_{2}^{(2)} \mathbf{n}_{\perp} (e_{\perp}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} + e_{\parallel}^{(\omega)} e_{\parallel}^{(\omega)}) + e_{\parallel'}^{(\omega)} e_{\parallel'}^{(\omega)}) \\ &+ 2\chi_{3}^{(2)} (\mathbf{n}_{\perp} e_{\perp}^{(\omega)} + \mathbf{n}_{\parallel} e_{\parallel}^{(\omega)}) e_{\perp}^{(\omega)} = (\chi_{1}^{(2)} + \chi_{2}^{(2)} + 2\chi_{3}^{(2)}) \mathbf{n}_{\perp} e_{\perp}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} \\ &+ 2\chi_{4}^{(2)} (\mathbf{n}_{\parallel} e_{\parallel'}^{(\omega)} - \mathbf{n}_{\parallel'} e_{\parallel}^{(\omega)}) e_{\perp}^{(\omega)} = (\chi_{1}^{(2)} + \chi_{2}^{(2)} + 2\chi_{3}^{(2)}) \mathbf{n}_{\perp} e_{\perp}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} \\ &+ \chi_{2}^{(2)} \mathbf{n}_{\perp} e_{\parallel}^{(\omega)} e_{\parallel}^{(\omega)} + \chi_{2}^{(2)} \mathbf{n}_{\perp} e_{\parallel'}^{(\omega)} e_{\parallel'}^{(\omega)} \\ &+ 2\chi_{3}^{(2)} \mathbf{n}_{\parallel} e_{\parallel}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} + 2\chi_{3}^{(2)} \mathbf{n}_{\parallel'} e_{\parallel'}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} \\ &- 2\chi_{4}^{(2)} \mathbf{n}_{\parallel'} e_{\parallel}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} = \chi_{\perp\perp\perp}^{(2)} \mathbf{n}_{\perp} e_{\parallel'}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} \\ &+ \chi_{\perp\parallel\parallel\parallel}^{(2)} \mathbf{n}_{\perp} e_{\parallel}^{(\omega)} e_{\parallel}^{(\omega)} + 2\chi_{\parallel'\parallel'}^{(2)} \mathbf{n}_{\perp} e_{\parallel'}^{(\omega)} e_{\parallel'}^{(\omega)} \\ &+ 2\chi_{\parallel\parallel\parallel\perp}^{(2)} \mathbf{n}_{\parallel} e_{\parallel}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} + 2\chi_{\parallel'\parallel'\perp}^{(2)} \mathbf{n}_{\parallel'} e_{\parallel'}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} \\ &+ 2\chi_{\parallel\parallel\parallel'\perp}^{(2)} \mathbf{n}_{\parallel} e_{\parallel''}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)} + 2\chi_{\parallel'\parallel\perp}^{(2)} \mathbf{n}_{\parallel'} e_{\parallel''}^{(\omega)} e_{\perp}^{(\omega)}. \end{aligned}$$
(38)

В (38) используется следующая замена:

$$\chi_{\perp\perp\perp}^{(2)} = \chi_{1}^{(2)} + \chi_{2}^{(2)} + 2\chi_{3}^{(2)}, \quad \chi_{\perp\parallel\parallel}^{(2)} = \chi_{\perp\parallel'\parallel'}^{(2)} = \chi_{2}^{(2)},$$
  
$$\chi_{\parallel\parallel\perp}^{(2)} = \chi_{\parallel'\parallel\perp}^{(2)} = \chi_{3}^{(2)}, \quad \chi_{\parallel\parallel'\perp}^{(2)} = -\chi_{\parallel'\parallel\perp}^{(2)} = \chi_{4}^{(2)}.$$
(39)

Выражая из (39) коэффициенты  $\chi_{1-4}^{(2)}$  и используя симметрию относительно перестановки последних двух индексов для некиральных коэффициентов (и антисимметрию для киральных), получаем формулы (9).

#### Список литературы

- Yan E.C.Y., Eisenthal K.B. // J. Phys. Chem. B. 2000. V. 104. N 29. P. 6686. doi 10.1021/jp001111n
- [2] Wang H.F., Yan E.C.Y., Liu Y., Eisenthal K.B. // J. Phys. Chem. B. 1998. V. 102. N 23. P. 4446. doi 10.1021/jp980491y
- [3] Yan E.C.Y., Liu Y., Eisenthal K.B. // J. Phys. Chem. B. 1998.
   V. 102. N 33. P. 6331. doi 10.1021/jp981335u
- Beer A.G.F., Roke S. // J. Chem. Phys. 2010. V. 132. N 23.
   P. 234702. doi 10.1063/1.3429969
- [5] Evans D.F., Wennerström H. The Colloidal Domain: Where Physics, Chemistry, Biology and Technology Meet. Wiley-VCH, 1994. 515 p.
- [6] Valencia C.I., Mendez E.R. // J. Opt. Soc. Am. B. 2004. V. 21.
   N 1. P. 36. doi 10.1364/JOSAB.21.000036
- [7] Dadap J.I., Shan J., Heinz T.F. // J. Opt. Soc. Am. B. 2004.
   V. 21. N 7. P. 1328. doi 10.1364/JOSAB.21.001328
- [8] Beer A.G.F., Roke S. // Phys. Rev. B. 2009. V. 79. N 15.
   P. 155420. doi 10.1103/PhysRevB.79.155420
- [9] Viarbitskaya S., Kapshai V., van der Meulen P., Hansson T. // Phys. Rev. A. 2010. V. 81. N 5. P. 053850. doi 10.1103/PhysRevA.81.053850

Оптика и спектроскопия, 2019, том 126, вып. 6

- Beer A.G.F., Roke S., Dadap J.I. // J. Opt. Soc. Am. B. 2011.
   V. 28. N 6. P. 1374. doi 10.1364/JOSAB.28.001374
- [11] Jen S.-H., Dai H.-L., Gonella G. // J. Phys. Chem. C. 2010.
   V. 114. N 10. P. 4302. doi 10.1021/jp910144c
- [12] Dadap J.I. // Phys. Rev. B. 2008. V. 78. N 20. P. 205322. doi 10.1103/PhysRevB.78.205322
- [13] Капшай В.Н., Шамына А.А. // Опт. и спектр. 2017.
   Т. 123. № 3. С. 416. doi 10.7868/S003040341709015X; Kapshai V.N., Shamyna A.A. // Opt. Spectrosc. 2017. V. 123.
   N 3. P. 440. doi 10.1134/S0030400X17090144
- [14] Шамына А.А., Капшай В.Н. // Опт. и спектр. 2018.
   Т. 124. № 1. С. 105. doi 10.21883/OS.2018.01.45366.176-17; Shamyna A.A., Kapshai V.N. // Opt. Spectrosc. 2018. V. 124.
   N 1. P. 103. doi 10.1134/S0030400X18010198
- [15] Капшай В.Н., Шамына А.А. // Опт. и спектр. 2018.
   Т. 124. № 6. С. 795. doi 10.21883/OS.2018.06.46083.55-18; Kapshai V.N., Shamyna A.A. // Opt. Spectrosc. 2018. V. 124.
   N 6. P. 826.
- [16] Шамына А.А., Капшай В.Н. // Опт. и спектр. 2018.
   Т. 125. № 1. С. 71. doi 10.21883/OS.2018.07.46269.56-17; Shamyna A.A., Kapshai V.N. // Opt. Spectrosc. 2018. V. 125.
   N 1. P. 74. doi 10.1134/S0030400X1807024X
- [17] Mangalgiri G.M., Manley P., Riedel W., Schmid M. // Scientific Reports. 2017. V. 7. P. 4311. doi 10.1038/s41598-017-03721-w
- [18] Karagoz B., Esser L., Duong H.T., Basuki J.S., Boyer C., Davis T.P. // Polym. Chem. 2014. V. 5. P. 350–355. doi 10.1039/c3py01306e