

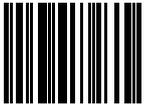
Министерство науки и высшего образования Российской Федерации
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ
УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ ИТМО
ITMO University

ВЫПУСКНАЯ КВАЛИФИКАЦИОННАЯ РАБОТА
GRADUATION THESIS

Циркулярный дихроизм второй гармоники в диэлектрических наноструктурах

Обучающийся / Student Никитина Анастасия Дмитриевна
Факультет/институт/кластер/ Faculty/Institute/Cluster физический факультет
Группа/Group Z34431
Направление подготовки/ Subject area 16.03.01 Техническая физика
Образовательная программа / Educational program Техническая физика 2019
Язык реализации ОП / Language of the educational program Русский
Статус ОП / Status of educational program
Квалификация/ Degree level Бакалавр
Руководитель ВКР/ Thesis supervisor Фризюк Кристина Сергеевна, кандидат физико-математических наук, Университет ИТМО, физический факультет, младший научный сотрудник

Обучающийся/Student

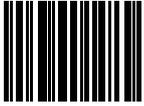
Документ подписан	
Никитина Анастасия Дмитриевна	
27.05.2023	

(эл. подпись/ signature)

Никитина
Анастасия
Дмитриевна

(Фамилия И.О./ name
and surname)

Руководитель ВКР/
Thesis supervisor

Документ подписан	
Фризюк Кристина Сергеевна	
27.05.2023	

(эл. подпись/ signature)

Фризюк
Кристина
Сергеевна

(Фамилия И.О./ name
and surname)

Министерство науки и высшего образования Российской Федерации
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ
УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ ИТМО
ITMO University

ЗАДАНИЕ НА ВЫПУСКНУЮ КВАЛИФИКАЦИОННУЮ РАБОТУ /
OBJECTIVES FOR A GRADUATION THESIS

Обучающийся / Student Никитина Анастасия Дмитриевна

Факультет/институт/кластер/ Faculty/Institute/Cluster физический факультет

Группа/Group Z34431

Направление подготовки/ Subject area 16.03.01 Техническая физика

Образовательная программа / Educational program Техническая физика 2019

Язык реализации ОП / Language of the educational program Русский

Статус ОП / Status of educational program

Квалификация/ Degree level Бакалавр

Тема ВКР/ Thesis topic Циркулярный дихроизм второй гармоники в диэлектрических наноструктурах

Руководитель ВКР/ Thesis supervisor Фризюк Кристина Сергеевна, кандидат физико-математических наук, Университет ИТМО, физический факультет, младший научный сотрудник

Основные вопросы, подлежащие разработке / Key issues to be analyzed

Техническое задание и исходные данные к работе:

1. Используя формализм функции Грина и аппарат теории групп, изучить условия возникновения кругового дихроизма второй гармоники (ВГ-КД) в диэлектрической наноструктуре определенной симметрии и материала, а именно получить условия на взаимную ориентацию наноструктуры и ее кристаллической решетки, при которых ВГ-КД в системе возможен.
2. Составить таблицу с условиями возникновения ВГ-КД для наноструктур различных симметрий и материалов.
3. Проверить правильность теоретических результатов с помощью численного моделирования в COMSOL Multiphysics™.
4. Из полученных теоретических результатов определить связь симметрии системы и условий возникновения ВГ-КД и с помощью закона сохранения проекции углового момента вывести общую формулу, позволяющую быстро определять ориентацию диэлектрической наноструктуры любой симметрии и кристаллической решетки, при которой наблюдается ВГ-КД.
5. Убедиться, что выведенная формула и составленная таблица согласуются между собой.

Содержание выпускной квалификационной работы:

Введение

1. Теория возникновения циркулярного дихроизма второй гармоники в диэлектрических наноструктурах

1.1. Формализм функции Грина и интеграл перекрытия

1.2. Тензор нелинейной восприимчивости, нелинейная поляризация

- 1.3. Интенсивность второй гармоники и условия возникновения ВГ-КД
2. Результаты
 - 2.1. Применение теоретического рассмотрения к наноструктурам различной симметрии и материалов
 - 2.2. Численное моделирование ВГ-КД в COMSOL Multiphysics™
3. Вывод общей формулы
 - 3.1. Теория ВГ-КД в диэлектрических наноструктурах, основанная на правиле сохранения проекции углового момента
 - 3.2. Применение общей формулы к наноструктурам различной симметрии и материалов и проверка согласования с теоретическим анализом
- Заключение
- Список использованных источников

Исходные материалы и пособия:

- [1] R. Boyd: Nonlinear Optics (Academic Press, Cambridge, MA, USA, 2002).
- [2] K. Frizyuk et al.: Nonlinear Circular Dichroism in Mie-Resonant Nanoparticle Dimers. Nano Lett. 21, 4381 (2021).
- [3] K. Frizyuk et al.: Second-harmonic generation in Mie-resonant dielectric nanoparticles made of noncentrosymmetric materials. Phys. Rev. B 99, 075425 (2019).
- [4] L. Novotny et al.: Principles of Nano-Optics (Cambridge University Press, USA, 2006).
- [5] M. B. Doost et al.: Resonant-state expansion applied to three-dimensional open optical systems. Phys. Rev. A 90, 013834 (2014).
- [6] P. Lalanne et al.: Light Interaction with Photonic and Plasmonic Resonances. Laser Photonics Rev. 12, 1700113 (2018).
- [7] C. Gigli et al.: Quasinormal-Mode Non-Hermitian Modeling and Design in Nonlinear Nano-Optics. ACS Photonics 7, 1197 (2020).
- [8] Z. Xiong et al.: On the constraints of electromagnetic multipoles for symmetric scatterers: eigenmode analysis. Opt. Express 28, 3073 (2020).
- [9] S. Gladyshev et al.: Symmetry analysis and multipole classification of eigenmodes in electromagnetic resonators for engineering their optical properties. Phys. Rev. B 102, 075103 (2020).
- [10] I. Deriy et al.: Bound States in the Continuum in Compact Acoustic Resonators. Phys. Rev. Lett. 128, 084301 (2022).
- [11] D. A. Varshalovich et al.: Quantum Theory Of Angular Momentum: Irreducible Tensors, Spherical Harmonics, Vector Coupling Coefficients, 3nj Symbols (World Scientific Publishing Company, Singapore, 1988).
- [12] C. F. Bohren et al.: Absorption and Scattering of Light by Small Particles (John Wiley & Sons, Ltd, 1998) pp. 82–129.
- [13] A. I. Akhiezer et al.: Quantum Electrodynamics (Interscience Publishers, Hoboken, NJ, USA, 1965).
- [14] S. Cabuk: The nonlinear optical susceptibility and electro-optic tensor of ferroelectrics: first-principle study. Open Physics 10, 239 (2012).

Дата выдачи задания / Assignment issued on: 15.01.2023

Срок представления готовой ВКР / Deadline for final edition of the thesis 20.05.2023

Характеристика темы ВКР / Description of thesis subject (topic)

Тема в области фундаментальных исследований / Subject of fundamental research: да / yes

Тема в области прикладных исследований / Subject of applied research: нет / not

СОГЛАСОВАНО / AGREED:

Руководитель ВКР/
Thesis supervisor

Документ подписан	
Фризюк Кристина Сергеевна	
03.03.2023	

Фризюк
Кристина
Сергеевна

(эл. подпись)

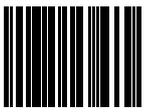
Задание принял к
исполнению/ Objectives
assumed BY

Документ подписан	
Никитина Анастасия Дмитриевна	
03.03.2023	

Никитина
Анастасия
Дмитриевна

(эл. подпись)

Руководитель ОП/ Head
of educational program

Документ подписан	
Белов Павел Александрович	
18.05.2023	

Белов Павел
Александрович

(эл. подпись)

**Министерство науки и высшего образования Российской Федерации
ФЕДЕРАЛЬНОЕ ГОСУДАРСТВЕННОЕ АВТОНОМНОЕ ОБРАЗОВАТЕЛЬНОЕ
УЧРЕЖДЕНИЕ ВЫСШЕГО ОБРАЗОВАНИЯ
НАЦИОНАЛЬНЫЙ ИССЛЕДОВАТЕЛЬСКИЙ УНИВЕРСИТЕТ ИТМО
ITMO University**

**АННОТАЦИЯ
ВЫПУСКНОЙ КВАЛИФИКАЦИОННОЙ РАБОТЫ
SUMMARY OF A GRADUATION THESIS**

Обучающийся / Student Никитина Анастасия Дмитриевна

Факультет/институт/кластер/ Faculty/Institute/Cluster физический факультет

Группа/Group Z34431

Направление подготовки/ Subject area 16.03.01 Техническая физика

Образовательная программа / Educational program Техническая физика 2019

Язык реализации ОП / Language of the educational program Русский

Статус ОП / Status of educational program

Квалификация/ Degree level Бакалавр

Тема ВКР/ Thesis topic Циркулярный дихроизм второй гармоники в диэлектрических наноструктурах

Руководитель ВКР/ Thesis supervisor Фризюк Кристина Сергеевна, кандидат физико-математических наук, Университет ИТМО, физический факультет, младший научный сотрудник

**ХАРАКТЕРИСТИКА ВЫПУСКНОЙ КВАЛИФИКАЦИОННОЙ РАБОТЫ
DESCRIPTION OF THE GRADUATION THESIS**

Цель исследования / Research goal

Детальное теоретическое исследование циркулярного (кругового) дихроизма второй гармоники (КД-ВГ) в одиночных диэлектрических ахиральных наноструктурах различных симметрий и материалов, основанное на формализме функции Грина, аппарате теории групп и мультипольном разложении собственных мод.

Задачи, решаемые в ВКР / Research tasks

1. Получить условия на взаимную ориентацию наноструктуры и ее кристаллической решетки, при которых КД-ВГ в системе возможен, для ахиральных наноструктур различных симметрий и материалов. 2. Проверить корректность теоретических результатов с помощью численного моделирования в COMSOL Multiphysics. 3. Проанализировать теоретические результаты и выявить закономерности.

Краткая характеристика полученных результатов / Short summary of results/findings

Для ахиральных наноструктур различных симметрий и различных, не обладающих центром инверсии материалов теоретическими расчетами были получены условия на взаимную ориентацию наноструктуры и ее кристаллической решетки, при которых в системе существует КД-ВГ. Результаты показали, что КД-ВГ сложным образом зависит от симметрии как наноструктуры, так и кристаллической решетки и либо существует только при определенной взаимной их ориентации, либо невозможен вовсе. Корректность теоретических результатов была подтверждена с помощью численного моделирования в COMSOL Multiphysics. Была выведена общая формула, описывающая условия

возникновения КД-ВГ в одиночных диэлектрических ахиральных наноструктурах. Она основана на правиле сохранения проекции полного углового момента и модальном анализе и позволяет быстро и без трудоемкого симметричного анализа определять условия существования КД-ВГ в ахиральных наноструктурах любой симметрии и любого материала с ненулевым тензором нелинейной восприимчивости.

Наличие публикаций по теме выпускной работы / Publications on the topic of the thesis

1. Nikitina A., Nikolaeva A., Frizyuk K. Nonlinear circular dichroism in achiral dielectric nanoparticles//Physical Review B, 2023, Vol. 107, No. 4, pp. L041405 (Статья; Scopus, Web of Science)
2. Nikitina A., Nikolaeva A., Friziuk K.S. NONLINEAR CIRCULAR DICHROISM IN DIELECTRIC NANOPARTICLE DIMERS AND TRIMERS//St. Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics, 2022. ISSUE no. SPbOPEN2022 (Тезисы)
3. Nikitina A.D., Nikolaeva A., Petrov M.I., Friziuk K.S. Nonlinear circular dichroism in dielectric nanoparticle dimers and trimers [Нелинейный циркулярный дихроизм в димерах и тримерах диэлектрических наночастиц]//Научно-технические ведомости Санкт-Петербургского государственного политехнического университета. Физико-математические науки= St.Petersburg State Polytechnical University Journal. Physics and Mathematics, 2022, Vol. 15, No. S3.2, pp. 321-325 (Статья; Scopus, Web of Science, ВАК, РИНЦ)
4. Никитина А.Д., Николаева А.А., Фризюк К.С. Нелинейный циркулярный дихроизм в димерах и тримерах диэлектрических наночастиц - 2022 (Тезисы)

Наличие выступлений на конференциях по теме выпускной работы / Conference reports on the topic of the thesis

1. XV Российская конференция по физике полупроводников, 03.10.2022 - 07.10.2022 (Конференция, статус - всероссийский)
2. Школа-конференция с международным участием по оптоэлектронике, фотонике и нанобиоструктурам Saint Petersburg OPEN 2022, 24.05.2022 - 27.05.2022 (Конференция, статус - международный)

Обучающийся/Student

Документ подписан	
Никитина Анастасия Дмитриевна	
27.05.2023	

(эл. подпись/ signature)

Никитина
Анастасия
Дмитриевна

(Фамилия И.О./ name
and surname)

Руководитель ВКР/
Thesis supervisor

Документ подписан	
Фризюк Кристина Сергеевна	
27.05.2023	

(эл. подпись/ signature)

Фризюк
Кристина
Сергеевна

(Фамилия И.О./ name
and surname)

СОДЕРЖАНИЕ

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ	8
ВВЕДЕНИЕ	9
1 ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ВВЕДЕНИЕ.....	13
1.1 Геометрия задачи	13
1.2 Теория возникновения циркулярного дихроизма второй гармонике в ахиральной диэлектрической наноструктуре.....	15
1.3 Вектор нелинейной поляризации	17
1.4 Интенсивность второй гармонике и условия возникновения циркулярного дихроизма второй гармонике.....	25
2 РЕЗУЛЬТАТЫ.....	29
2.1 Условия возникновения циркулярного дихроизма второй гармонике в ахиральных диэлектрических наноструктурах различных симметрий и материалов.....	29
2.1.1 Наноструктура GaAs[111] z симметрии C_{3v}	32
2.1.2 Наноструктура GaAs[111] z симметрии C_{4v}	39
2.1.3 Наноструктура BaTiO ₃ [001] x симметрии C_{4v}	48
2.2 Численное моделирование циркулярного дихроизма второй гармонике в COMSOL Multiphysics®	54
3 ОБЩАЯ ФОРМУЛА ЦИРКУЛЯРНОГО ДИХРОИЗМА ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ	57
3.1 Теория циркулярного дихроизма второй гармонике в диэлектрических наноструктурах, основанная на правиле сохранения проекции полного углового момента.....	57
3.2 Общая формула условий циркулярного дихроизма второй гармонике в ахиральных диэлектрических наноструктурах	60
ЗАКЛЮЧЕНИЕ	64
СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ.....	65
ПРИЛОЖЕНИЕ А (Векторные сферические гармонике)	83
ПРИЛОЖЕНИЕ Б (Мультипольное разложение плоской волны по векторным сферическим гармоникам)	85
ПРИЛОЖЕНИЕ В (Пример представления тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ в цилиндрических координатах).....	87

СПИСОК СОКРАЩЕНИЙ И УСЛОВНЫХ ОБОЗНАЧЕНИЙ

КД-ВГ – циркулярный (круговой) дихроизм второй гармоники

ЛКП – левая круговая поляризация

ПКП – правая круговая поляризация

ВВЕДЕНИЕ

Хиральность, общее определение которой впервые было сформулировано британским физиком лордом Кельвином, — свойство объекта не накладываться на свое зеркальное изображение, присущее как и многим органическим веществам, так и химически синтезированным лекарственным средствам [1–3]. Хиральность молекул была впервые обнаружена французским химиком Луи Пастером, исследовавшего растворы тартрата аммония [4]. При этом удивительным фактом природы, известным как гомохиральность, причины которого до сих пор остаются дискуссионной темой, является то, что в отличие от хиральных искусственных продуктов, все природные соединения, формирующие живые организмы, как например: природные аминокислоты, ферменты, моносахариды, встречаются в основном лишь в одной единственной конфигурации из двух принципиально возможных своих зеркальных изображений, в одной, так называемой, энантиомерной форме [5–9]. Однако наряду с нерешенными фундаментальными вопросами об асимметрии Вселенной, изучение хиральных соединений необходимо и для современного мира. Значимую роль во многих областях науки, особенно в фармакологии и химии, играет умение различать между собой пару энантиомеров хиральных молекул, поскольку они часто проявляют контрастирующее поведение в химических процессах, как, например, в обмене веществ, и, как следствие, состоящие из них лекарственные средства обладают или целебными свойствами, или, напротив, приводят к интоксикации живого организма [10–14]. Для решения этой и многих других задач, как например: управление передачей энергии при многофотонной ионизации [15] или анализ вторичной структуры и фолдинга белков [16], давно и широко используется метод исследования хиральных молекул, основанный на разнице в поглощении веществом света левой или правой циркулярной поляризации, — спектроскопия циркулярного (кругового) дихроизма (КД) [17–20].

Однако хиральные эффекты в природных средах преимущественно слабы, поэтому для усиления хиральных откликов молекул на сегодняшний день предложено множество подходов, среди которых использование стоячих волн [21], магнитных и электрических резонансов [22] или хирального эффекта Парселла [23]. Кроме того, в последние годы активно изучаются хиральные плазмонные структуры [24–28], в которых сигналы КД, напри-

мер, усилены резонансом Фано [29; 30], и хиральные метаматериалы [31–33]. Искусственные хиральные наноразмерные структуры с достижимыми сильными и контролируемыми хироптическими откликами представляют собой большой интерес, благодаря их многообещающим возможностям для реализации широкого спектра приложений, включая хиральный оптический сенсинг [34–36], хиральные мета-зеркала [37], валитроника [38–40], циркулярные поляризаторы и детекторы [41–43], хиральная мета-голография [44–47], шифрование данных [48; 49] и другие. В дополнение, перспективным методом для усиления хирального отклика молекул и достижения высокой эффективности спектроскопии КД является использование ахиральных диэлектрических наноструктур, как например: димеров [50–53] или наносфер [54–56]. Благодаря наличию Ми-резонансов [57–59], анапольных состояний [60; 61] и квазисвязанных состояний в континууме (КССК) [62], они способны генерировать локально усиленные электромагнитные поля, необходимые для чувствительных измерений хироптических сигналов.

Тем временем, хиральные отклики не ограничиваются линейным режимом и проявляются, например, при генерации второй или третьей гармоники. При этом часто нелинейный циркулярный дихроизм значительно сильнее линейного эффекта, благодаря своей высокой чувствительности к нарушению симметрии, и поэтому является отдельным объектом исследований [63–72]. В основном, нелинейные хиральные отклики изучаются в хиральных плазмонных метаповерхностях различных форм, среди которых G-образные структуры [73–75], структуры C_n вращательной симметрии [76–79] и других хиральных конфигураций [80–85].

В то же время, иногда объекты, на первый взгляд кажущиеся ахиральными, способны демонстрировать, наряду с хиральными структурами, неожиданно сильные хиральные отклики, вызванные различными причинами, среди которых нарушение зеркальной симметрии при наклонном угле падения света на метаповерхность [84; 86–90], “структурная” хиральность, связанная с относительной ориентацией ахиральных частиц в массиве [91; 92], возбуждение структуры вихревым оптическим пучком, взаимодействующим по-разному с ее мультипольными моментами [93], вращение частиц [94], асимметричное возбуждение структуры [95], усиление внутреннего слабого хирального отклика за счет плазмонного резонансного воз-

буждения [96] или ориентированное промежуточное резонансное состояние в отдельных атомах [97]. Более того, удивительно то, что даже одиночные ахиральные диэлектрические наноструктуры, способные поддерживать генерацию второй гармоники во всем объеме за счет кристаллической решетки [98–105], возбужденные нормально падающим циркулярно поляризованным светом, в нелинейных процессах способны породить ненулевые сигналы КД. В недавней работе были экспериментально получены значительные хиральные отклики в генерации второй гармоники для наноструктуры димера AlGaAs, и, кроме того, теоретически описаны с помощью аппарата теории групп и симметричного анализа условия возникновения такого хирального эффекта в исследуемой системе: было выяснено, что КД возможен только при определенной ориентации кристаллической решетки диэлектрика относительно самой наноструктуры [106]. Однако в литературе существенному нелинейному КД в одиночных диэлектрических наноструктурах уделено малое количество внимания и, в основном, работы посвящены именно хиральным одиночным наноструктурам, поддерживающим хироптические сигналы в линейной и нелинейном режимах [107; 108]. В то же время, например, для хирального сенсинга [109–112], принципиальное значение может иметь именно нелинейный хиральный отклик от ахирального объекта, без учета которого результаты измерений не будут соответствовать действительности. В самом деле, если в экспериментах, например, с хиральными молекулами используется ахиральная наноструктура для усиления интересующего хироптического сигнала [50–53], то необходимо при обработке данных исключать хироптический сигнал, порождаемый самой наноструктурой. Кроме того, важно принимать во внимание то, что проявляющийся в системе в нелинейном режиме сильный КД влияет и на линейный хиральный отклик, поскольку разное количество энергии преобразуется во вторую гармонику для левой или правой циркулярной поляризации света.

Целью выпускной квалификационной работы является детальное теоретическое исследование циркулярного (кругового) дихроизма второй гармоники (КД-ВГ) в одиночных диэлектрических ахиральных наноструктурах различных симметрий и материалов, основанное на формализме функции Грина, аппарате теории групп и мультипольном разложении собственных

мод. В соответствии с поставленной целью сформулированы следующие задачи:

- а) обобщить теоретический анализ условий возникновения КД-ВГ в димере AlGaAs, разработанный в статье [106]: получить условия на взаимную ориентацию наноструктуры определенной симметрии и ее кристаллической решетки, при которых КД-ВГ в системе возможен, для ахиральных наноструктур различных симметрий и материалов,
- б) проверить правильность теоретических результатов с помощью численного моделирования в COMSOL Multiphysics[®],
- в) проанализировать теоретические результаты и выявить закономерности.

Структура работы следующая: в разделе 1 дано теоретическое введение, включающее в себя геометрию задачи и теоретическое описание условий возникновения КД-ВГ в общем случае наноструктур. В разделе 2 представлены основные результаты работы: таблица с условиями существования КД-ВГ в ахиральных наноструктурах различных симметрий из различных материалов, а также примеры теоретических расчетов, необходимых для их получения, и численного моделирования КД-ВГ в COMSOL Multiphysics[®]. В разделе 3 с помощью закона сохранения проекции полного углового момента и модального анализа получена общая формула для определения условий КД-ВГ в одиночных ахиральных диэлектрических наноструктурах, не требующая для своего применения описанного трудоемкого теоретического анализа. Благодаря своей простоте и удобству, она может сэкономить время исследователям в этой области.

1 ТЕОРЕТИЧЕСКОЕ ВВЕДЕНИЕ

1.1 Геометрия задачи

В работе теоретически анализируются условия возникновения циркулярного дихроизма второй гармоники (КД-ВГ) в ахиральных диэлектрических наноструктурах различных симметрий и материалов. Для этого исследуется следующая геометрия: одиночная наноструктура определенной группы симметрии с осью симметрии вдоль оси z , которую можно обозначить в символах Шёнфлиса: C_{nv} (группа, содержащая ось симметрии n -го порядка и n плоскостей отражения, проходящих через нее), D_{nh} (группа, содержащая ось симметрии n -го порядка, n перпендикулярных ей осей симметрии 2-го порядка и плоскость отражения, перпендикулярную оси n -го порядка) или C_{1h} , обозначаемая как C_s (группа, содержащая лишь единичный элемент и плоскость отражения, в работе выбранную вертикальной) [113–115]. Кристаллическая решетка материала наноструктуры ориентирована определенным образом. При этом для допустимости в системе генерации второй гармоники она не обладает центром инверсии и ее нелинейные оптические свойства характеризуются ненулевым тензором третьего ранга — тензором нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ [114]. Кроме того, предполагается, что образец сфабрикован из монокристаллического объемного материала методом литографии, поэтому он может быть вытравлен под различными углами относительно ориентации кристаллической решетки. В силу этих соображений, ориентация наноструктуры считается фиксированной, а ее ось симметрии направленной вдоль оси z и параллельной выбранной кристаллографической оси кристаллической решетки, обозначаемой z' . Кристаллическая решетка, в свою очередь, — повернутой на произвольный угол β вокруг оси z . При этом, следует заметить, что для теоретического описания абсолютно неважно, чье именно положение зафиксировано: наноструктуры или кристаллической решетки. Важно, что их относительная ориентация определяется углом β . Описанная система возбуждается нормально падающей вдоль оси z лево- или право-циркулярно поляризованной волной, осциллирующей на частоте ω , и генерирует волну на удвоенной частоте 2ω — вторую гармонику. Геометрия задачи схематически изображена на рисунке 1. Наноструктура, характеризующаяся зависящей от частоты диэлектрической проницаемостью $\varepsilon_2(k)$, находится в однородной внешней среде с $\varepsilon_1 = 1$. Магнитная проницаемость μ взята равной единице. Стоит отметить, что в работе не учитываются

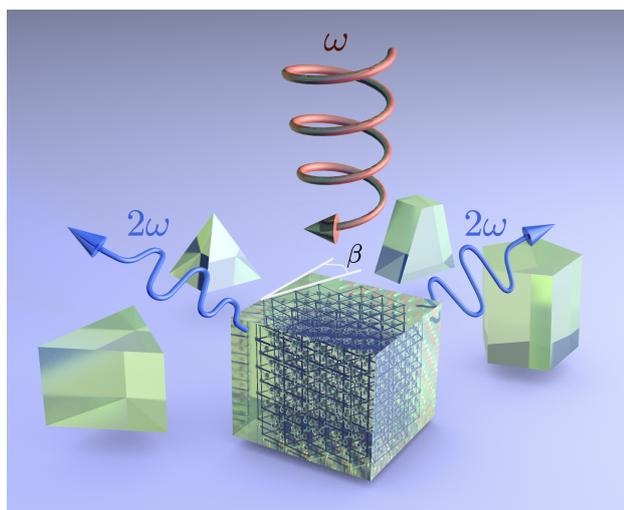


Рисунок 1 – Геометрия задачи: одиночная ахиральная наноструктура определенной симметрии C_{nv}/D_{nh} или C_{1h} (например, призма или пирамида) с осью симметрии вдоль оси z генерирует вторую гармонику при возбуждении нормально падающей вдоль оси z лево- или право-циркулярно поляризованной волной. Конкретная кристаллическая решетка материала, из которого изготовлена наноструктура, не обладает центром инверсии (например, GaAs). Она ориентированна определенным образом по отношению к нанообъекту и повернута на произвольный угол β вокруг оси z [116]

эффекты, связанные с анизотропией кристаллической решетки и с поглощением материала. Кроме того, для результатов работы важна только симметрия наноструктуры, в то время как ее конкретная форма никак не влияет на возникновение КД-ВГ: например, не играет никакой роли в дальнейшем рассматривать тример, составленный из трех близко-расположенных идентичных цилиндров, или треугольную призму. Для обеих таких структур рассуждения будут идентичны, поскольку они обе обладают D_{3h} симметрией, как изображено на рисунке 2. В дополнение, не важны как и конкретный размер наноструктуры, так и длина падающей волны. Тем не менее, их диапазоны должны быть подобраны таким образом, чтобы, с одной стороны, поглощение материала было пренебрежимо мало, что верно для части видимого и для инфракрасного областей спектра, а с другой стороны, размеры наночастицы были достаточно велики, чтобы она могла поддерживать, в среднем, первые пять Ми-резонансов. Второе ограничение вместе с его причинами будут уточнены подробнее в дальнейшем. Кроме того, наличие или отсутствие подложки не влияет на результат работы. Стоит, наконец, добавить, что в работе интенсивность второй гармоники слаба по сравнению с интенсивно-

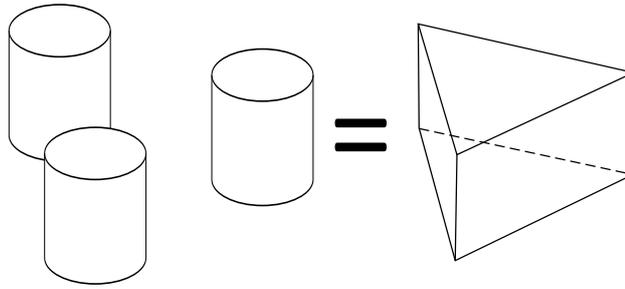


Рисунок 2 – Демонстрация на примере тримера, составленного из трех близко-расположенных идентичных цилиндров, и треугольной призмы незначимости в теоретических рассуждениях работы конкретной формы наноструктуры: условия возникновения КД-ВГ в обеих нанобъектах одинаковы, поскольку они оба обладают D_{3h} симметрией

стью падающей волны накачки, поэтому допустимо использовать приближение об отсутствии влияния второй гармоники на волну накачки — приближение неистошмой накачки.

1.2 Теория возникновения циркулярного дихроизма второй гармоники в ахиральной диэлектрической наноструктуре

Возникновение циркулярного дихроизма второй гармоники в одиночной ахиральной диэлектрической наноструктуре в работе определяется как разность полных, проинтегрированных по всем углам интенсивностей второй гармоники, генерируемой при возбуждении волной правой или левой циркулярной поляризации, деленная на среднюю общую интенсивность генерируемой второй гармоники [68; 72; 82]

$$\text{КД-ВГ} = \frac{(I_{\text{ПКП}}^{2\omega} - I_{\text{ЛКП}}^{2\omega})}{(I_{\text{ПКП}}^{2\omega} + I_{\text{ЛКП}}^{2\omega})/2}, \quad (1)$$

где $I_{\text{ПКП/ЛКП}}^{2\omega}$ — это полные, проинтегрированные по всем углам интенсивности второй гармоники, генерируемой при возбуждении волной правой или левой циркулярной поляризации (ПКП/ЛКП), соответственно. Из уравнения (1) следует, что значения КД-ВГ меняются в диапазоне от -2 до $+2$, при чем граница ± 2 соответствует полному отсутствию генерации второй гармоники для одной из поляризаций падающей волны. Если интенсивности $I_{\text{ПКП}}^{2\omega}$ и $I_{\text{ЛКП}}^{2\omega}$ различны, КД-ВГ в наноструктуре ненулевой. Следовательно, для описания условий его возникновения необходимо знать выражения для полных интенсивностей второй гармоники $I_{\text{ПКП}}^{2\omega}$ и $I_{\text{ЛКП}}^{2\omega}$. Для того, чтобы их

получить, требуется определить напряженность электрического поля второй гармоники вне наноструктуры $\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r})$. Она может быть описана в формализме диадной функции Грина электрического поля, представляющей собой тензор $\widehat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', k)$ [102; 106; 117]

$$\begin{aligned}
\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) &= (2\omega)^2 \mu_0 \int_V dV' \widehat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', k) \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') = \\
&= (2\omega)^2 \mu_0 \int_V dV' \sum_j \frac{\mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}) \otimes \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}')}{2k(k - k_j)} \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') = \\
&= (2\omega)^2 \mu_0 \sum_j \frac{1}{2k(k - k_j)} \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}) \int_V dV' \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}'),
\end{aligned} \tag{2}$$

где k — модуль волнового вектора электромагнитного поля в вакууме, связанный с угловой частотой $\omega = ck$ через скорость света в вакууме c , μ_0 — магнитная постоянная, $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ — вектор нелинейной поляризации, квадратичный по напряженности индуцированного падающей волной внутри наноструктуры электрического поля на фундаментальной частоте ω . Интегрирование производится по объему наноструктуры. Кроме того, стоит отметить, что уравнение (2) записано только для пространственной части поля, потому что временную зависимость в волновых уравнениях Максвелла, которым удовлетворяют напряженности электрических полей, можно исключить для монохроматических волн, рассматриваемых в работе, то есть волн, меняющихся по времени по некоторому гармоническому закону $e^{i\tilde{\omega}t}$. Полная функция напряженности электрического поля волны на частоте $\tilde{\omega}$, в свою очередь, выражается вещественной частью произведения ее пространственной и временной зависимостей $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \text{Re}\{\mathbf{E}(\mathbf{r})e^{i\tilde{\omega}t}\}$. Кроме того, в уравнении (2) использовано спектральное представление диадной функции Грина, полученное с помощью теоремы Миттаг-Леффлера [118; 119], а именно разложение в сумму тензорных произведений квази-ортогональных, нормированных собственных мод системы $\mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r})$ [120; 121] на соответствующей частоте второй гармоники. Функция Грина, в свою очередь, удовлетворяет волновому уравнению Максвелла с дельта-функцией в качестве источника

$$\text{rot rot } \widehat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', k) - k^2 \varepsilon(\mathbf{r}, k) \widehat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', k) = \hat{\mathbf{1}} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), \tag{3}$$

где $\hat{\mathbf{1}}$ — единичный тензор, $\varepsilon(\mathbf{r}, k) = \varepsilon_1 = 1$ — диэлектрическая проницаемость вакуума вне наноструктуры, $\varepsilon(\mathbf{r}, k) = \varepsilon_2(k)$ — внутри наноструктуры. Стоит отметить, что главный вопрос работы связан исключительно с условиями возникновения КД-ВГ в определенной наноструктуре, но не с его конкретным численным значением. В связи с этим в работе используются симметричные рассуждения и теоретико-групповые методы, в контексте которых необходимо сделать несколько замечаний. Во-первых, в уравнении (2) и в дальнейшем опущены вопросы как применимости и сходимости спектрального представления функции Грина для области вне структуры, так и полноты его базиса [122], потому что эти и другие тонкие моменты спектрального представления функции Грина никак не влияют на требуемый симметричный анализ. Во-вторых, поскольку в рамках работы требуется определить, равен или не равен нулю КД-ВГ в определенной наноструктуре при конкретных условиях, то есть, согласно формуле (1), равна или не равна нулю разность полных интенсивностей $I_{\text{ПКП}}^{2\omega}$ и $I_{\text{ЛКП}}^{2\omega}$, в выражении (2) для напряженности поля второй гармоники $\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r})$ можно не учитывать константы и параметры, не зависящие от знака поляризации падающей волны, и ввести знак пропорциональности

$$\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}) \int_V dV' \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') = \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}) D_j, \quad (4)$$

где введен интеграл перекрытия $D_j = \int_V dV' \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$, играющий ключевую роль в теоретических рассуждениях работы. Однако, безусловно, например, для экспериментаторов существенную роль играют не только условия возникновения КД-ВГ, но и его сила, на вопрос о которой используемый симметричный анализ не дает ответа. Несмотря на это, в разделе 2 будут сделаны некоторые предположения, как можно добиться существенных хироптических сигналов подбором размера наноструктуры и длины падающей волны.

1.3 Вектор нелинейной поляризации

Вектор нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$, “возбуждающий” волну на удвоенной частоте 2ω , квадратичен по напряженности индуцированного падающей волной внутри наноструктуры электрического поля $\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})$ на фунда-

ментальной частоте ω и определяется тензором третьего порядка — тензором нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ [114]

$$\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}) = \varepsilon_0 \hat{\chi}^{(2)} \mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r}) \mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r}), \quad P_{\alpha}^{2\omega}(\mathbf{r}) = \varepsilon_0 \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)} E_{\beta}^{\text{in}}(\mathbf{r}) E_{\gamma}^{\text{in}}(\mathbf{r}), \quad (5)$$

где ε_0 — электрическая постоянная, а α, β, γ нумеруют компоненты векторов и тензоров. Ненулевые компоненты тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ определяются исключительно кристаллической решеткой, а точнее ее симметрией, вид напряженности поля внутри частицы $\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})$, в свою очередь, зависит от напряженности электрического поля падающей волны $\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r})$ левой или правой циркулярной поляризации и от симметрии наноструктуры. При этом оси координат расположены таким образом, что волновой вектор падающей волны направлен по оси z . Следовательно, она в декартовой системе координат с базисными векторами $\hat{\mathbf{e}}_x, \hat{\mathbf{e}}_y, \hat{\mathbf{e}}_z$ представляет собой сумму волн линейной поляризации вдоль осей x и y , сдвинутых по фазе друг относительно друга на $\pm\pi/2$ в зависимости от знака циркулярной поляризации. Однако для решения задач работы в аналитических расчетах оказывается значительно удобнее использовать цилиндрическую систему координат с базисными векторами $\hat{\mathbf{e}}_r, \hat{\mathbf{e}}_{\varphi}, \hat{\mathbf{e}}_z$. В ней электрическое поле падающей волны $\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r})$ может быть записано в следующем компактном виде

$$\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r}) = E_0 e^{ikz} (\hat{\mathbf{e}}_x \pm i\hat{\mathbf{e}}_y) = E_0 e^{ikz} (\hat{\mathbf{e}}_r \pm i\hat{\mathbf{e}}_{\varphi}) e^{\pm i\varphi} = \mathbf{E}^{\text{wave}}(r, z) e^{\pm i\varphi}, \quad (6)$$

где E_0 — некоторая амплитуда волны, а \pm указывает на знак циркулярной поляризации волны, то есть на левую или правую циркулярную поляризацию, соответственно. Переход между системами координат осуществляется с помощью соотношений между базисными векторами систем координат

$$\hat{\mathbf{e}}_x = \cos \varphi \hat{\mathbf{e}}_r - \sin \varphi \hat{\mathbf{e}}_{\varphi}, \quad \hat{\mathbf{e}}_y = \sin \varphi \hat{\mathbf{e}}_r + \cos \varphi \hat{\mathbf{e}}_{\varphi}, \quad \hat{\mathbf{e}}_z = \hat{\mathbf{e}}_z. \quad (7)$$

Однако для четкого понимания, какое поле возбуждается падающей волной $\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r})$ внутри наноструктуры, необходимо к выводу уравнения (6) подходить другим образом, а именно с использованием мультипольного разложения электрического поля [102; 106; 123]. Напряженность электрического поля, удовлетворяющая векторному волновому уравнению,

$\nabla^2 \mathbf{E}(\mathbf{r}) + k^2 \varepsilon(\mathbf{r}, k) \mathbf{E}(\mathbf{r}) = 0$, может быть записана в виде разложения по бесконечному фундаментальному набору решений векторного волнового уравнения в сферических координатах, называемых вещественными магнитными $\mathbf{M}_{e_{mn}}$ и электрическими $\mathbf{N}_{e_{mn}}$ векторными сферическими гармониками [123]. Индексы e_o , то есть сокращенные обозначения even (odd), обозначают четность (нечетность) электрических векторных гармоник $\mathbf{N}_{e_{mn}}$ и нечетность (четность) магнитных векторных гармоник $\mathbf{M}_{e_{mn}}$ при преобразовании $\varphi \rightarrow -\varphi$. Индекс $n \in \mathbb{Z} \geq 0$ — целое положительное число, связанное с полным угловым моментом, и $m = 0, 1, \dots, n$ — с абсолютным значением проекции углового момента. Про векторные сферические гармоники подробнее описано в [124; 125]. Как и определение векторных сферических гармоник через скалярные функции, являющиеся решениями скалярного волнового уравнения, так и их явный вид представлены в приложении А. Известно [123], что в разложение падающей вдоль оси z волны линейной поляризации вдоль оси x входят только векторные сферические гармоники $\mathbf{N}_{e_{1n}}, \mathbf{M}_{o_{1n}}$, в то время как в разложение падающей вдоль оси z волны, но линейной поляризации вдоль оси y входят — $\mathbf{N}_{o_{1n}}, \mathbf{M}_{e_{1n}}$, поэтому разложение падающей вдоль оси z волны циркулярной поляризации имеет следующий вид

$$\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r}) = E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \{(-i\mathbf{N}_{e_{1n}} + \mathbf{M}_{o_{1n}}) \pm i(-i\mathbf{N}_{o_{1n}} - \mathbf{M}_{e_{1n}})\}, \quad (8)$$

где \pm опять же указывает на знак циркулярной поляризации волны, то есть на левую (ЛКП) и правую (ПКП) циркулярную поляризацию волны, соответственно. Подробнее про процедуру получения разложения (8) описано в приложении Б. Таким образом, разложение (8) циркулярно поляризованной падающей волны $\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r})$ можно привести к компактной записи (6) с помощью явного вида векторных сферических гармоник $\mathbf{M}_{e_{mn}}, \mathbf{N}_{e_{mn}}$, изложенного в приложении А, и цилиндрических координат, причем

$$\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r}) = \mathbf{E}^{\text{wave}}(r, z) e^{\pm i l \varphi} = \mathbf{E}^{\text{wave}}(r, z) e^{\pm m^{\text{wave}} i \varphi}, \quad (9)$$

где введено обозначение $\pm m^{\text{wave}} = \pm 1$, связанное с проекцией углового момента, соответствующей лево- или право-циркулярно поляризованной падающей волне, соответственно. При этом, стоит отметить, что как в выраже-

нии (6), так и в (9) для падающей волны не зависящий от координаты φ векторный множитель $\mathbf{E}^{\text{wave}}(r, z) \propto \hat{\mathbf{e}}_r \pm i\hat{\mathbf{e}}_\varphi$, по идее, содержит в себе зависимость от знака поляризации падающей волны. Однако она в дальнейших расчетах опущена, поскольку в контексте симметричного анализа КД-ВГ требуется определить именно симметричное поведение векторного электрического поля как целого и для этого можно заменить все векторные функции скалярными с соответствующим симметричным поведением. Внутри наноструктуры симметрии $C_{nv}(D_{nh})$ (или C_{1h} , если $n = 1$) падающей волной возбуждаются собственные моды на фундаментальной частоте ω . Они могут быть разложены по векторным сферическим гармоникам $\mathbf{M}_{emn}, \mathbf{N}_{emn}$, согласно тому, как они преобразуются при преобразованиях симметрии группы симметрии самой наноструктуры. Мультипольные разложения собственных мод для разных групп симметрии системы описаны, например, в [126; 127]. Однако, поскольку, согласно полученному ранее выражению (9), в разложение падающей лево- или право-циркулярно поляризованной волны входят только сферические гармоники с проекциями $\pm m^{\text{wave}} = \pm 1$, по правилу сохранения проекции углового момента в разложение поля внутри структуры $\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})$ входят только магнитные и электрические векторные сферические гармоники с проекциями $\pm m^{\text{in}} = \pm 1 + n\nu$ для лево- или право-циркулярно поляризованной падающей волны, соответственно, где $\nu \in \mathbb{Z}$ — целое число, а индекс n связан с группой симметрии наноструктуры $C_{nv}(D_{nh})$ (или C_{1h} , если $n = 1$). Описанное утверждение можно проверить с помощью мультипольных разложений для разных групп симметрии системы, представленных в [126; 127]. В итоге, поле, индуцированное падающей волной на фундаментальной частоте ω внутри структуры, имеет следующий вид

$$\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r}) = \sum_{\nu} \mathbf{E}_{\nu}^{\text{in}}(r, z) e^{\pm 1i\varphi + n\nu i\varphi} = \sum_{\nu} \mathbf{E}_{\nu}^{\text{in}}(r, z) e^{\pm m^{\text{in}} i\varphi}. \quad (10)$$

То есть, благодаря тому, что наноструктура обладает n -кратной вращательной симметрией, в разложение поля внутри нее $\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})$ к разложению падающей волны $\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r})$ примешиваются векторные сферические гармоники с дополнительной проекцией углового момента, кратной n . Таким образом, зная выражение (10) поля $\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})$ и пользуясь уравнением (5), можно получить выражение для вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$, однако на этом ша-

ге необходимо вспомнить про тензор нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$. Он определяется симметрией кристаллической решетки материала наноструктуры, от которой приходит своя дополнительная проекция углового момента в итоговое выражение для $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$. Для того, чтобы это показать, необходимо и тензор $\hat{\chi}^{(2)}$ записать в цилиндрических координатах, используя метод, описанный в [106]. Для этого, важно заметить, что тензор нелинейной восприимчивости, как тензор третьего ранга, может быть представлен в виде $\hat{\chi}^{(2)} = \chi_{\alpha\beta\gamma} \hat{\mathbf{e}}_{\alpha} \hat{\mathbf{e}}_{\beta} \hat{\mathbf{e}}_{\gamma}$, где $\hat{\mathbf{e}}_{\alpha, \beta, \gamma}$ — компоненты базисных векторов соответствующей системы координат. Независимые компоненты тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ в декартовых координатах определяются из симметрии кристаллической решетки и для большинства кристаллических решеток описаны в литературе. Пользуясь ими, а также соотношениями между базисными векторами соответствующих систем координат (7) и приведенной выше записью, можно получить необходимое выражение для тензора $\hat{\chi}^{(2)}$. При этом, стоит отметить, что в рамках симметричного описания необходимо определить только симметричное поведение тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ при поворотах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях, в то время как его точное выражение в цилиндрической системе координат знать не требуется. Подробная процедура разобрана в приложении В на примере кристаллической решетки GaAs определенной ориентации: одна из кристаллографических координатных осей кристаллической решетки [001], записанная с помощью индексов Миллера, параллельна оси z ([001]|| z). Полученное симметричное поведение при поворотах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях ее тензора $\hat{\chi}^{(2)} \sim \sin [2(\varphi - \beta)]$ представлено во втором столбце во второй строке в таблице 1, где учтен некоторый угол β , соответствующий углу поворота кристаллической решетки вокруг оси z . Помимо того, в работе были рассмотрены еще четыре кристаллические решетки, для тензоров $\hat{\chi}^{(2)}$ которых симметричное поведение при поворотах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях показано в следующих строках таблицы 1. Полученные выражения демонстрируют, какая дополнительная проекция углового момента приходит от кристаллической решетки в итоговое выражение для вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$: например, для вышеуказанной кристаллической решетки GaAs, [001]|| z дополнительная проекция $m_{\chi} = \pm 2$. Пользуясь ими, а также известным из рассуждений ранее разложением (10) поля

Таблица 1 – В первом столбце показаны названия рассматриваемых в работе кристаллических решеток и их ориентации: одна из кристаллографических координатных осей кристаллической решетки $[jkl]$, записанная с помощью индексов Миллера, параллельна определенной оси координат, x или z . Для каждой кристаллической решетки во втором, третьем и четвертом столбцах приведены симметричное поведение их тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ при поворотах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях, где угол β — произвольный угол поворота кристаллической решетки вокруг оси z , разложение (15) вектора нелинейной поляризации в цилиндрических координатах $\mathbf{P}^{2\omega}(r, z, \varphi)$ и разницы Δm_χ между любыми двумя проекциями углового момента m_χ , приходящими от тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$, соответственно [116]

Кристаллическая решетка	$\hat{\chi}^{(2)}$	$\mathbf{P}^{2\omega}(r, z, \varphi)$	Δm_χ
GaAs[001] z	$\sim \sin[2(\varphi - \beta)]$	$\propto \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{0\nu}^{2\omega}(r, z) e^{n\nu i\varphi} \right\} e^{\pm 2i\beta} + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{4\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 4i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\mp 2i\beta}$	4
BaTiO ₃ [001] x/ /GaAs[011] z	$\sim \sin[\varphi - \beta] + \sin[3(\varphi - \beta)]$	$\propto \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{3\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 3i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\mp 1i\beta} + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{1\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 1i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\pm 1i\beta} + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 5i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\mp 3i\beta} + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\mp 1i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\pm 3i\beta}$	2, 4, 6
GaAs[111] z	$\sim 1 + \sin[3(\varphi - \beta)]$	$\propto \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 5i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\mp 3i\beta} + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\mp 1i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\pm 3i\beta} + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 2i\varphi + n\nu i\varphi} \right\}$	3, 6
BaTiO ₃ [001] z	~ 1	$\propto \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 2i\varphi + n\nu i\varphi} \right\}$	—

$\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})$ и уравнением (5), можно получить итоговое разложение для вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$. Первым шагом, запишем отдельно выражения для $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ для случая падения на наноструктуру волны левой циркулярной поляризации

$$\text{ЛКП : } \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_{m_\chi, \nu} e^{-m_\chi i\beta} \left[\mathbf{P}_{(m_\chi+2)\nu}^{2\omega}(r, z) e^{(m_\chi+2+n\nu)i\varphi} \right], \quad (11)$$

где ЛКП означает левую циркулярную поляризацию падающей волны, проекция $(+2 + n\nu)$ соответствует сумме проекций $(m^{\text{in}} + m^{\text{in}})$ от $\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})$ при возбуждении волной левой циркулярной поляризации, а дополнительная проекция углового момента, приходящая от кристаллической решетки, обозначена как m_χ . Во множителе $\mathbf{P}_{(m_\chi+2)\nu}^{2\omega}(r, z)$, не зависящем от координаты φ , введены для удобства нижние индексы: $(m_\chi + 2)$ и ν . При этом из-за поворота кристаллической решетки вокруг оси z на произвольный угол β в выражение (11) от тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ добавилась некоторая фаза $(-m_\chi\beta)$. Аналогичным образом запишем выражение для $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ для случая падения на наноструктуру волны правой циркулярной поляризации

$$\text{ПКП} : \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_{m_\chi, \nu} e^{-m_\chi i\beta} \left[\mathbf{P}_{(m_\chi-2)\nu}^{2\omega}(r, z) e^{(m_\chi-2+n\nu)i\varphi} \right], \quad (12)$$

где ПКП означает правую циркулярную поляризацию падающей волны, а проекция $(-2 + n\nu)$ соответствует сумме проекций $(-m^{\text{in}} - m^{\text{in}})$ от $\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})\mathbf{E}^{\text{in}}(\mathbf{r})$ при возбуждении волной правой циркулярной поляризации. Однако запись (12) неудобна для дальнейших расчетов. Ее можно переписать, учтя, что из-за симметричного поведения при поворотах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ в разложении $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ всегда будут присутствовать или противоположные друг к другу дополнительные проекции углового момента m_χ и $-m_\chi$, или $m_\chi = 0$. В этом можно легко убедиться с помощью выражений, представленных в таблице 1. Например, для кристаллической решетки GaAs, $[011]||z$ тензор $\chi^{(2)} \sim (\sin[\varphi - \beta] + \sin[3(\varphi - \beta)])$. От него приходят дополнительные проекции $m_\chi = 1$ и $m_\chi = -1$, а также $m_\chi = 3$ и $m_\chi = -3$. Принимая во внимание вышесказанное, представим выражение для $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ для случая падения на наноструктуру волны правой циркулярной поляризации в следующем виде

$$\text{ПКП} : \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_{m_\chi, \nu} e^{+m_\chi i\beta} \left[\mathbf{P}_{-(m_\chi+2)\nu}^{2\omega}(r, z) e^{(-m_\chi-2+n\nu)i\varphi} \right]. \quad (13)$$

Следующим шагом, выражения для двух случаев поляризации падающей волны (11) и (13) можно объединить. Для этого стоит напомнить, что в работе рассматриваются ахиральные наноструктуры, поэтому вклады вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ с противоположными проекциями углового

момента $\pm(m_\chi + 2)$ возбуждаются лево- и право-циркулярно поляризованной волной с одинаковым весом $\left| \mathbf{P}_{+(m_\chi+2)\nu}^{2\omega}(r,z) \right| = \left| \mathbf{P}_{-(m_\chi+2)\nu}^{2\omega}(r,z) \right|$. С учетом этого утверждения, выражение для вектора $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ может быть описано в следующем виде

$$\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_{m_\chi, \nu} e^{\mp m_\chi i \beta} \left[\mathbf{P}_{(m_\chi+2)\nu}^{2\omega}(r,z) e^{(\pm m_\chi \pm 2 + n\nu) i \varphi} \right], \quad (14)$$

где знак \pm указывает на знак поляризации падающей волны: ЛКП или ПКП, соответственно. Кроме того, поскольку от тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ всегда приходят как минимум две проекции m_χ , противоположные друг другу, как объяснялось ранее, кроме тривиального случая с $m_\chi = 0$, для удобства дальнейших расчетов можно ввести обозначение $\Delta m_\chi > 0$ — разницу между любыми двумя проекциями m_χ . Разницы Δm_χ для всех рассмотренных кристаллических решеток представлены в последнем столбце таблицы 1. Например, как обсуждалось выше, от кристаллической решетки GaAs[011]||z приходят дополнительные проекции $m_\chi = 1$ и $m_\chi = -1$, а также $m_\chi = 3$ и $m_\chi = -3$, поэтому $\Delta m_\chi = \{2, 4, 6\}$ — всевозможные разницы между любыми двумя проекциями. Таким образом, с учетом вышесказанного разложение (14) для вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ можно переписать в следующем виде

$$\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_{m_\chi, \nu} e^{\mp m_\chi i \beta} \left[\mathbf{P}_{(m_\chi+2)\nu}^{2\omega}(r,z) e^{(\pm m_\chi \pm 2 + n\nu) i \varphi} + e^{\mp \Delta m_\chi i \beta} \mathbf{P}_{(\Delta m_\chi + m_\chi + 2)\nu}^{2\omega}(r,z) e^{(\pm \Delta m_\chi \pm m_\chi \pm 2 + n\nu) i \varphi} \right]. \quad (15)$$

В такой записи для каждой рассмотренной кристаллической решетки выражения для вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ представлены в третьем столбце таблицы 1. Стоит заметить, что, как и ранее отмечалось для напряженности падающей волны $\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r})$, вся учитываемая в этой работе зависимость вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ от знака поляризации падающей волны заложена во множителе, зависящем от координаты φ , и в фазе $(\mp m_\chi \beta)$, в то время как зависимость $\mathbf{P}_{(m_\chi+2)\nu}^{2\omega}(r,z)$ и $\mathbf{P}_{(\Delta m_\chi + m_\chi + 2)\nu}^{2\omega}(r,z)$ от знака поляризации опущена, поскольку она не влияет на симметричные рассуждения. Сделаем последний комментарий, который пригодится для теоретического анализа, изложенного в последующих разделах 2 и 3. В частности, в

разложение (15) вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ входят векторные сферические гармоники с проекциями углового момента $(\pm m_\chi \pm 2 + n\nu)$, которые можно обозначить как $\pm m^{2\omega}$.

1.4 Интенсивность второй гармоники и условия возникновения циркулярного дихроизма второй гармоники

С помощью выведенного ранее соотношения (4) можно посчитать напряженность поля второй гармоники $\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}) D_j$, генерируемой в наноструктуре определенной группы симметрии $C_{nv}(D_{nh})$ (или C_{1h} , если $n = 1$). Для этого требуется определить входящий в него интеграл перекрытия $D_j = \int_V dV' \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$. Соответственно, необходимо знать, во-первых, вектор нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$, разложение которого (15) для рассмотренных кристаллических решеток приведено в третьем столбце таблицы 1. Во-вторых, — собственную моду наноструктуры $\mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}')$, которая преобразуется по определенному неприводимому представлению группы симметрии наноструктуры и раскладывается в бесконечный ряд по определенным магнитным $\mathbf{M}_{\epsilon mn}$ и электрическим $\mathbf{N}_{\epsilon mn}$ векторным сферическим гармоникам [126; 127]

$$\mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}') = \sum_{n,m=[0,n]} \left\{ a_{\epsilon mn} \mathbf{N}_{\epsilon mn}(\mathbf{r}') + b_{\epsilon mn} \mathbf{M}_{\epsilon mn}(\mathbf{r}') + \right. \quad (16)$$

$$\left. + a_{\epsilon mn} \mathbf{N}_{\epsilon mn}(\mathbf{r}') + b_{\epsilon mn} \mathbf{M}_{\epsilon mn}(\mathbf{r}') \right\}.$$

Они ведут себя при преобразованиях симметрии группы симметрии наноструктуры точно так же, как сама собственная мода $\mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}')$. Стоит отметить, что коэффициенты $a_{\epsilon mn}$ и $b_{\epsilon mn}$ в разложении (16), в общем случае, комплексные. Для теоретических расчетов необходимо определить ненулевые значения интеграла перекрытия D_j , при этом точные численные результаты для требуемого симметричного анализа не требуются. Главное: при условии, если интеграл перекрытия D_j ненулевой, то он пропорционален сумме фаз $(\mp m_\chi \beta)$, зависящих от знака поляризации и умноженных на некоторые, не зависящие от знака поляризации коэффициенты. Фазы приходят от вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$. Таким образом, зная симметричное поведение (16) собственных мод $\mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}')$ и разложение (15) вектора нелиней-

ной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$, для получения значения интеграла перекрытия D_j необходимо воспользоваться аппаратом теории групп: интеграл перекрытия D_j ненулевой только в том случае, если стоящее подынтегральное выражение никак не преобразуется при преобразованиях симметрии группы симметрии наноструктуры, то есть преобразуется по тривиальному неприводимому представлению [128; 129]. Этот симметричный анализ составляет основную часть работы и в каждом отдельном случае системы требует исследования симметрии всех ее собственных мод. В частности, в работе рассматриваются несколько различных наноструктур. Каждая из них характеризуется определенной группой симметрии $C_{nv}(D_{nh})$ (или C_{1h} , если $n = 1$) и одной из пяти кристаллических решеток, названия и ориентация которых представлены в таблице 1. В итоге, процедура получения поля $\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r})$ второй гармоники в каждом конкретном случае системы подчиняется следующему порядку действия:

- а) определить симметричное поведение при поворотах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ и разложение (15) вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$, которые для изучаемых кристаллических решеток показаны в таблице 1,
- б) получить разложения (16) собственных мод наноструктуры $\mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}')$,
- в) найти, основываясь на симметричном анализе, ненулевые значения интегралов перекрытий D_j ,
- г) посчитать разложение поля второй гармоники $\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r})$ с помощью выражения (4).

Другими словами, необходимо определить симметричное поведение поля $\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r})$ второй гармоники, генерируемой в определенной наноструктуре. После этого требуется посчитать полную интенсивность второй гармоники $I^{2\omega}(\mathbf{r})$. Для этого воспользуемся двухмодовым приближением

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) &= \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r})D_j \approx \mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r})D_1 + \mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})D_2 = \\ &= \mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_1 + e^{i\alpha}\mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_2, \end{aligned} \quad (17)$$

где в явном виде из комплексных $D_{1,2}$ выделена фаза α между собственными модами $\mathbf{E}_{1,2}^{2\omega}(\mathbf{r})$ и, тем самым, введены $\tilde{D}_{1,2}$. Интенсивность второй гармоники

$I^{2\omega}(\mathbf{r})$, с учетом приближения (17), определяется следующим выражением

$$I^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \left| \mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_1 + e^{i\alpha}\mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_2 \right|^2. \quad (18)$$

В итоге, выражение для полной интенсивности второй гармоники $I^{2\omega}$, проинтегрированной по всем углам, может быть записано в следующем виде

$$I^{2\omega} = \int_{\text{сфера}} dV I^{2\omega}(\mathbf{r}), \quad (19)$$

где интегрирование производится по сфере в дальнем поле, содержащей наноструктуру. Таким образом, определив полную интегральную интенсивность второй гармоники $I^{2\omega}$, необходимо понять, зависит ли она от поляризации падающей волны и при каких условиях на угол β . Полученные условия дадут окончательный ответ на вопрос об условиях возникновения циркулярного дихроизма второй гармоники в определенной наноструктуре, согласно введенному ранее определению КД-ВГ (1). При этом, важно отметить, что, если модули коэффициентов D_j одинаковы для различных поляризаций, то интегральная полная интенсивность $I^{2\omega}$ (19) будет иметь зависимость от поляризации падающей волны только в том случае, если собственные моды $\mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r})$ и $\mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})$, входящие в выражение (18), преобразуются по одному и тому же неприводимому представлению группы симметрии наноструктуры, а фазы между ними различные для разных поляризаций. При этом, окажется, что равенство или неравенство модулей коэффициентов D_j не сказывается на рассмотрении в работе, поскольку не приносит дополнительных условий. Это утверждение может быть доказано с помощью аппарата теории групп [128; 129]. Действительно, если собственные моды $\mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r})$ и $\mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})$ преобразуются по разным неприводимым представлениям, то полная интегральная интенсивность $I^{2\omega}$ (19)

$$\begin{aligned} I^{2\omega}(\mathbf{r}) &\propto \int_{\text{сфера}} dV \left\{ \left| \mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_1 \right|^2 + \left| \mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_2 \right|^2 + \right. \\ &\quad \left. + e^{-i\alpha}\mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_1 \left(\mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_2 \right)^* + e^{i\alpha} \left(\mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_1 \right)^* \mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_2 \right\} = \\ &= \int_{\text{сфера}} dV \left\{ \left| \mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_1 \right|^2 + \left| \mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{D}_2 \right|^2 \right\}, \end{aligned} \quad (20)$$

где перекрестные слагаемые, пропорциональные $(\mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r}))^* \mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r})$ и $\mathbf{E}_1^{2\omega}(\mathbf{r}) (\mathbf{E}_2^{2\omega}(\mathbf{r}))^*$, по правилам отбора [128; 129] при интегрировании по сфере дадут только нулевые значения, поскольку собственные моды преобразуются по разным неприводимым представлениям. В итоге, полная интегральная интенсивность (20) $I^{2\omega}$ пропорциональна только квадратам модулей полей $|\mathbf{E}_{1,2}^{2\omega}(\mathbf{r})\tilde{\mathbf{D}}_{1,2}|^2$. В то время как интерференционные слагаемые не вносят в нее вклад. С учетом вышесказанного, для получения условий КД-ВГ необходимо рассматривать интерференцию собственных мод, преобразующихся по одному неприводимому представлению, потому что только она в выражение интенсивности (19) $I^{2\omega}$ добавляет перекрестные интерференционные слагаемые.

2 РЕЗУЛЬТАТЫ

2.1 Условия возникновения циркулярного дихроизма второй гармоники в ахиральных диэлектрических наноструктурах различных симметрий и материалов

Описанная в разделе 1 теория циркулярного дихроизма второй гармоники в одиночных ахиральных диэлектрических наноструктурах в работе была применена к различным наноструктурам. Каждая из них характеризовалась определенной группой симметрии $C_{nv}(D_{nh})$ (или C_{1h} , если $n = 1$) и одной из пяти кристаллических решеток. В частности, были взяты кристаллические решетки титаната бария $BaTiO_3$ [130] и арсенида галлия $GaAs$ [102] с разными ориентациями: одна из кристаллографических координатных осей кристаллической решетки $[jkl]$, записанная с помощью индексов Миллера, параллельна определенной оси координат. Их названия и ориентации были в работе уже отмечены в разделе 1 в таблице 1. Стоит добавить, что ненулевые компоненты тензоров нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ в декартовых координатах для кристаллических решеток $BaTiO_3[001]||z$ и $GaAs[001]||z$ были определены из литературы [102; 130]. Тензоры $\hat{\chi}^{(2)}$ же кристаллических решеток $BaTiO_3$ и $GaAs$ других ориентаций, в свою очередь, были получены с помощью Matlab кода [131]. Он “поворачивает” тензор $\hat{\chi}^{(2)}$ соответствующей “не повернутой” кристаллической решетки, то есть $[001]||z$, известный из литературы, в соответствии с ориентацией кристаллической решетки. Главные результаты работы, а именно условия на угол поворота β вокруг оси z кристаллической решетки относительно наноструктуры, при которых КД-ВГ в каждом конкретном случае возможен, представлены на рисунке 3. В первой строке обозначены название и ориентация каждой кристаллической решетки. Во второй строке для наглядности изображен вид сверху на нее, то есть проекция на плоскость XY . Кроме того, — угловое распределение интенсивности индуцируемой второй гармоники в одиночной частице (цилиндрической или конической симметрии), посчитанное с помощью численного моделирования для верхнего полупространства в COMSOL Multiphysics®. Число “лепестков” на нем зависит от представленной в таблице 1 разницы Δm_χ между проекциями углового момента m_χ , приходящими в поле второй гармоники от тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ кристаллической решетки. В первом столбце рисунка 3 названа группа симметрии наноструктуры C_{1h} или $C_{nv}(D_{nh})$ и проиллюстрирован пример соответствующей

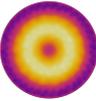
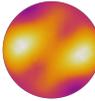
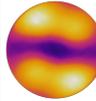
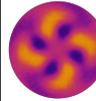
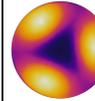
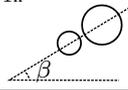
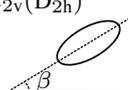
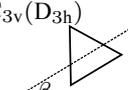
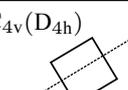
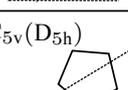
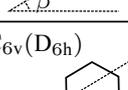
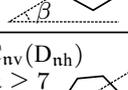
Материал	BaTiO ₃		GaAs		
	[001] z	[001] x	[011] z	[001] z	[111] z
ВГ от одиночной частицы  Решетка, вид сверху 					
 C_{1h}	✗	✓ $\beta \neq \pi\nu/2$	✓ $\beta \neq \pi\nu/2$	✓ $\beta \neq \pi\nu/4$	✓ $\beta \neq \pi\nu/3$
 $C_{2v}(D_{2h})$	✗	✓ $\beta \neq \pi\nu/2$	✓ $\beta \neq \pi\nu/2$	✓ $\beta \neq \pi\nu/4$	✓ $\beta \neq \pi\nu/6$
 $C_{3v}(D_{3h})$	✗	✓ $\beta \neq \pi\nu/6$	✓ $\beta \neq \pi\nu/6$	✗	✓ $\beta \neq \pi\nu/3$
 $C_{4v}(D_{4h})$	✗	✓ $\beta \neq \pi\nu/4$	✓ $\beta \neq \pi\nu/4$	✓ $\beta \neq \pi\nu/4$	✗
 $C_{5v}(D_{5h})$	✗	✗	✗	✗	✗
 $C_{6v}(D_{6h})$	✗	✓ $\beta \neq \pi\nu/6$	✓ $\beta \neq \pi\nu/6$	✗	✓ $\beta \neq \pi\nu/6$
 $C_{nv}(D_{nh})$ $n \geq 7$	✗	✗	✗	✗	✗

Рисунок 3 – Основные результаты работы по существованию циркулярного дихроизма второй гармоники (КД-ВГ) в одиночных ахиральных диэлектрических наноструктурах различных симметрий и кристаллических решетках. В верхних строках для каждой рассмотренной кристаллической решетки показаны ее название и ориентация, вид сверху на нее и угловое распределение интенсивности индуцируемой второй гармоники в одиночной частице (цилиндрической или конической симметрии), посчитанное с помощью численного моделирования для верхнего полупространства в COMSOL Multiphysics[®]. В левом столбце — группы симметрии C_{1h} или $C_{nv}(D_{nh})$ с примерами возможных при этом форм наноструктуры, а также угол взаимной ориентации наноструктуры и кристаллической решетки β . В основной части рисунка представлены сами результаты: КД-ВГ либо возможен при любых углах поворота β , за исключением конечного числа углов, которые даны в каждой ячейке, где индекс $\nu \in \mathbb{Z}$, либо не возникает ни при какой взаимной ориентации [116]

формы наночастицы, которая, как было замечено в разделе 1, на симметричный анализ не влияет. Кроме того, в первом столбце изображен угол β поворота наноструктуры относительно кристаллической решетки вокруг оси z . Стоит напомнить, что, как объяснялось ранее в разделе 1, не важно, поворачивать кристаллическую решетку вокруг оси z относительно фиксированного положения наноструктуры, или наоборот, как изображено на рисунке 3. В основной части рисунка 3 написаны условия возникновения КД-ВГ на значения угла β : красный крест означает, что КД-ВГ не возможен ни при каких условиях в наноструктуре данной кристаллической решетки и симметрии, зеленая галочка — КД-ВГ появляется для любых углов поворота β , за исключением конечного числа углов, которые также даны под галочкой, где индекс $\nu \in \mathbb{Z}$. Стоит добавить, что представленные результаты дают читателю ответ только на вопрос о существовании или отсутствии КД-ВГ в каждой наноструктуре, но не о его силе. Однако его большие значения действительно достижимы, что продемонстрировано в [106], а также подразделе 2.2. Кроме того, в подразделе 2.2 объяснено, как можно найти такие локальные максимумы КД-ВГ. В дополнение, два утверждения, представленные на рисунке 3, что 1) условия возникновения КД-ВГ в наноструктуре одинаковы для групп симметрии C_{nv} и D_{nh} , то есть они определяются только поворотной симметрией структуры и симметрией при отражениях относительно вертикальных плоскостей, и 2) КД-ВГ не возможен ни при каких условиях в группах симметрии с индексом $n \geq 7$, могут быть проверены теоретическими расчетами для соответствующих групп симметрии и кристаллических решеток, а также их причина более подробно объяснена в разделе 3. Для определения представленных на рисунке 3 условий возникновения КД-ВГ для каждой конкретной наноструктуры потребовались трудоемкие теоретические расчеты, являющиеся основной частью работы. Поскольку они занимают существенное количество места и при этом объединены идентичной последовательностью действий, ниже в разделе подробно разобраны лишь несколько демонстративных примеров наноструктур, для которых они были проделаны, а именно для GaAs[111]|| z симметрии C_{3v} в пункте 2.1.1 и C_{4v} в пункте 2.1.2, а также BaTiO₃[001]|| x симметрии C_{4v} в пункте 2.1.3. Условия возникновения КД-ВГ в наноструктурах других симметрий и кристаллических решеток были получены аналогичным образом, и более того, с помощью описанной в разделе 1 и

рассмотренной ниже в пунктах на примерах теории они могут быть определены для ахиральных наноструктур любых форм и кристаллических решеток произвольных ориентаций. Для этого необходимо знать только группу симметрии наноструктуры и тензор нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ “не повернутой” кристаллической решетки ($[001]||z$), обычно известный из литературы.

2.1.1 Наноструктура GaAs $[111]||z$ симметрии C_{3v}

Вектор нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ для GaAs $[111]||z$, согласно таблице 1, представим в следующем виде

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{2\omega}(r, z, \varphi) \propto & \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 5i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\mp 3i\beta} + \\ & + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\mp i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\pm 3i\beta} + \\ & + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 2i\varphi + n\nu i\varphi} \right\}. \end{aligned} \quad (21)$$

Для рассматриваемой группы симметрии C_{3v} , называемой далее симметрией тримера, индекс $n = 3$. Такой вектор нелинейной поляризации (21) $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ в тримере возбуждает его собственные моды на удвоенной частоте 2ω , преобразующиеся по двумерному неприводимому представлению E [126; 127; 132]. При этом собственные моды, преобразующиеся по другим неприводимым представлениям, возбуждаться не будут. Вышесказанное можно доказать, посчитав соответствующие интегралы перекрытий $D_j = \int_V dV' \mathbf{E}_j^{2\omega}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$. Подробнее рассмотрим этот механизм, а именно сначала убедимся, что собственные моды, преобразующиеся по E, действительно, возбуждаются. Для этого запишем разложение (16) собственных мод тримера, преобразующихся по E, по магнитным и электрическим векторным сферическим гармоникам $\mathbf{M}_{e_{mn}}, \mathbf{N}_{e_{mn}}$. Согласно таблицам мультипольного разложения [126; 127; 132], в них входят только векторные сферические гармоники с проекциями углового момента $m = 3s - 1$ и $m = 3s - 2$, где $s \in \mathbb{Z}_+$, с некоторыми, в общем случае, комплексными коэффициентами. Однако важно при разложении учесть, что E — двумерное неприводимое представление. Это означает, что друг через друга по нему преобразуются две ортогональ-

ные собственные моды. С учетом вышесказанного, собственные моды можно записать следующим образом

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_j^{2\omega,x}(\mathbf{r}') &= a_{e11}\mathbf{N}_{e11} + a_{e22}\mathbf{N}_{e22} + a_{e12}\mathbf{N}_{e12} + b_{o11}\mathbf{M}_{o11} + b_{o22}\mathbf{M}_{o22} + \dots \quad (22) \\ \mathbf{E}_j^{2\omega,y}(\mathbf{r}') &= a_{o11}\mathbf{N}_{o11} + a_{o22}\mathbf{N}_{o22} + a_{o12}\mathbf{N}_{o12} + b_{e11}\mathbf{M}_{e11} + b_{e22}\mathbf{M}_{e22} + \dots,\end{aligned}$$

где $\mathbf{E}_j^{2\omega,x}(\mathbf{r}')$, $\mathbf{E}_j^{2\omega,y}(\mathbf{r}')$ — ортогональные собственные моды, преобразующиеся по E, в ортогональности которых несложно убедиться с помощью приложения А. Индекс j нумерует определенную собственную моду из суммы в выражении (4) для поля $\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r})$. Причем, стоит отметить, поскольку ортогональные собственные моды должны преобразовываться друг через друга определенным образом при преобразованиях группы симметрии C_{3v} [132], коэффициенты a_{emn} и a_{omn} , как и b_{emn} и b_{omn} связаны между собой, а именно $a_{e(3s-2)n} = a_{o(3s-2)n} = a_{(3s-2)n}$, $a_{e(3s-1)n} = -a_{o(3s-1)n} = a_{(3s-2)n}$, в то время как $b_{e(3s-2)n} = -b_{o(3s-2)n} = b_{(3s-2)n}$, $b_{e(3s-1)n} = b_{o(3s-1)n} = b_{(3s-1)n}$, где $s \in \mathbb{Z}_+$. Эти соотношения можно доказать, применив к собственным модам, разложенных в соответствии с (22), преобразования симметрии группы симметрии C_{3v} . С учетом этого разложение (22) примет следующий вид

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_j^{2\omega,x}(\mathbf{r}') &= a_{11}\mathbf{N}_{e11} + a_{22}\mathbf{N}_{e22} + a_{12}\mathbf{N}_{e12} + b_{11}\mathbf{M}_{o11} + b_{22}\mathbf{M}_{o22} + \dots \quad (23) \\ \mathbf{E}_j^{2\omega,y}(\mathbf{r}') &= a_{11}\mathbf{N}_{o11} + (-a_{22})\mathbf{N}_{o22} + a_{12}\mathbf{N}_{o12} + (-b_{11})\mathbf{M}_{e11} + b_{22}\mathbf{M}_{e22} + \dots\end{aligned}$$

Такие собственные моды (23) удобны для расчетов, связанных с облучением линейно поляризованной плоской волной, но не слишком подходят для расчетов при облучении циркулярно поляризованной волной. В связи с этим, проведем смену базиса $\frac{\mathbf{E}_j^{2\omega,x} + i\mathbf{E}_j^{2\omega,y}}{2}$ и $\frac{\mathbf{E}_j^{2\omega,x} - i\mathbf{E}_j^{2\omega,y}}{2}$. Соответственно, разложение новых собственных мод может быть записано в следующем виде

$$\begin{aligned}\mathbf{E}_j^{2\omega,x+iy}(\mathbf{r}') &= \frac{a_{11}}{2}(\mathbf{N}_{e11} + i\mathbf{N}_{o11}) + \frac{a_{22}}{2}(\mathbf{N}_{e22} - i\mathbf{N}_{o22}) + \quad (24) \\ &+ \frac{a_{12}}{2}(\mathbf{N}_{e12} + i\mathbf{N}_{o12}) + \frac{b_{11}}{2}(\mathbf{M}_{o11} - i\mathbf{M}_{e11}) + \dots\end{aligned}$$

$$\mathbf{E}_j^{2\omega,x-iy}(\mathbf{r}') = \frac{a_{11}}{2}(\mathbf{N}_{e11} - i\mathbf{N}_{o11}) + \frac{a_{22}}{2}(\mathbf{N}_{e22} + i\mathbf{N}_{o22}) + \quad (25)$$

$$+ \frac{a_{12}}{2}(\mathbf{N}_{e12} - i\mathbf{N}_{o12}) + \frac{b_{11}}{2}(\mathbf{M}_{o11} + i\mathbf{M}_{e11}) + \dots,$$

где $\mathbf{E}_j^{2\omega, x \pm iy} = \frac{\mathbf{E}_j^{2\omega, x} \pm i\mathbf{E}_j^{2\omega, y}}{2}$ — ортогональные собственные моды, составленные из мод $\mathbf{E}_j^{2\omega, x}, \mathbf{E}_j^{2\omega, y}$. С помощью явного вида векторных сферических гармоник, представленного в приложении А, можно привести разложение собственных мод (24) и (25) к следующему виду

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j^{2\omega, x \pm iy}(\mathbf{r}') &= \frac{a_{11}}{2}\mathbf{N}_{11}(r, z)e^{\pm 1i\varphi} + \frac{a_{22}}{2}\mathbf{N}_{22}(r, z)e^{\mp 2i\varphi} + \\ &+ \frac{a_{12}}{2}\mathbf{N}_{12}(r, z)e^{\pm 1i\varphi} + \frac{b_{11}}{2}\mathbf{M}_{11}(r, z)e^{\pm 1i\varphi} + \dots, \end{aligned} \quad (26)$$

где в $\mathbf{N}(\mathbf{M})_{mn}(r, z)$ содержится часть выражения для линейных комбинаций векторных сферических гармоник, не зависящая от координаты φ . Последним шагом, вводя новые обозначения, приводим выражение (26) для ортогональных собственных мод $\mathbf{E}_j^{2\omega, x \pm iy}$ к окончательному компактному разложению

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j^{2\omega, x \pm iy}(\mathbf{r}') &= \sum_n \left\{ \mathbf{E}_{j,1n}(r, z)e^{\pm 1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,2n}(r, z)e^{\mp 2i\varphi} + \right. \\ &\left. + \mathbf{E}_{j,4n}(r, z)e^{\pm 4i\varphi} + \mathbf{E}_{j,5n}(r, z)e^{\mp 5i\varphi} + \dots \right\}, \end{aligned} \quad (27)$$

где в $\mathbf{E}_{j,mn}(r, z)$ содержатся линейные комбинации $\mathbf{N}(\mathbf{M})_{mn}(r, z)$ с комплексными коэффициентами a_{mn}, b_{mn} . Подставим выражения (27) собственных мод $\mathbf{E}_j^{2\omega, x \pm iy}(\mathbf{r}')$ и разложение (21) вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$, в интегралы перекрытий $D_j = \int_{C_{3\nu}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x \pm iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$. Получим четыре разных интеграла D_j . В частности, два — для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x \pm iy}(\mathbf{r}')$ при падении волны левой и правой циркулярной поляризации

$$\begin{aligned} \text{ЛКП : } D_j &= \int_{C_{3\nu}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x \pm iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \\ &= \int_{C_{3\nu}} dV' \sum_{n, \nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n}e^{+1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,2n}e^{-2i\varphi} + \right. \right. \\ &\left. \left. + \mathbf{E}_{j,4n}e^{+4i\varphi} + \mathbf{E}_{j,5n}e^{-5i\varphi} + \dots \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{+5i\varphi + 3\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \right. \end{aligned} \quad (28)$$

$$+ \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{+2i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} \left. \right] \right)$$

$$\begin{aligned} \text{ПКП : } D_j &= \int_{C_{3v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto & (29) \\ &= \int_{C_{3v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{+1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,2n} e^{-2i\varphi} + \right. \right. \\ &+ \mathbf{E}_{j,4n} e^{+4i\varphi} + \mathbf{E}_{j,5n} e^{-5i\varphi} + \dots \left. \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{-5i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \right. \\ &+ \left. \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{+1i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \left. \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{-2i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} \right] \right) \end{aligned}$$

и два — для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}')$ при падении волны левой и правой циркулярной поляризации

$$\begin{aligned} \text{ЛКП : } D_j &= \int_{C_{3v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto & (30) \\ &= \int_{C_{3v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{-1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,2n} e^{+2i\varphi} + \right. \right. \\ &+ \mathbf{E}_{j,4n} e^{-4i\varphi} + \mathbf{E}_{j,5n} e^{+5i\varphi} + \dots \left. \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{+5i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \right. \\ &+ \left. \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \left. \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{+2i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} \right] \right) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{ПКП : } D_j &= \int_{C_{3v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto & (31) \\ &= \int_{C_{3v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{-1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,2n} e^{+2i\varphi} + \right. \right. \\ &+ \mathbf{E}_{j,4n} e^{-4i\varphi} + \mathbf{E}_{j,5n} e^{+5i\varphi} + \dots \left. \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{-5i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \right. \\ &+ \left. \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{+1i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \left. \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{-2i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} \right] \right). \end{aligned}$$

Необходимо определить, какие из выражений (28), (29), (30), (31) для интегралов D_j дают ненулевые значения, то есть в каком случае подынтегральное выражение преобразуется по тривиальному неприводимому представлению A_1 группы симметрии C_{3v} . В группе C_{3v} по тривиальному неприводимому представлению A_1 преобразуются собственные моды, в разложение которых входят векторные сферические гармоники $\mathbf{M}_{o(3s)n}$ и $\mathbf{N}_{e(3s)n}$, где $s \in \mathbb{Z}_+$ [132]. Таким образом, подынтегральное выражение должно содержать экспоненты вида $e^{\pm 3si\varphi}$. Только в таком случае оно будет ненулевым. Соответственно, выражения (28) и (29) для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}')$, с учетом вышесказанного, примут следующий вид

$$\begin{aligned} \text{ЛКП} : D_j &\propto c_j^+ e^{-3i\beta} + c_j'^+ e^{+3i\beta} + c_j''^+ \\ \text{ПКП} : D_j &= 0, \end{aligned} \quad (32)$$

где введены некоторые коэффициенты $c_j^+, c_j'^+, c_j''^+$. В них входят все интегралы с функциями и константами, не зависящими от знака поляризации падающей волны. Аналогично выражения (30) и (31) для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}')$ примут следующий вид

$$\begin{aligned} \text{ЛКП} : D_j &= 0 \\ \text{ПКП} : D_j &\propto c_j^- e^{+3i\beta} + c_j'^- e^{-3i\beta} + c_j''^-, \end{aligned} \quad (33)$$

где новые коэффициенты $c_j^-, c_j'^-, c_j''^-$ с точностью до знака равны старым $c_j^+, c_j'^+, c_j''^+$ из выражения (32). В этом можно убедиться, сделав в выражении (31) замену $\varphi \rightarrow -\varphi$. Следующим шагом, подставляем в разложение для напряженности поля второй гармоники (4) полученное выражение (32) для интеграла перекрытия D_j для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}')$

$$\begin{aligned} \text{ЛКП} : \mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) &\propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) (c_j^+ e^{-3i\beta} + c_j'^+ e^{+3i\beta} + c_j''^+) \\ \text{ПКП} : \mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) &= 0 \end{aligned} \quad (34)$$

и выражение (33) для интеграла перекрытия D_j для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}')$

$$\text{ЛКП} : \mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) = 0 \quad (35)$$

$$\text{ПКП} : \mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) (c_j^+ e^{+3i\beta} + c_j'^+ e^{-3i\beta} + c_j''^+).$$

Таким образом, выражения для поля второй гармоники (34) и (35) доказывают, что при падении волны левой циркулярной поляризации в наноструктуре GaAs[111]||z симметрии C_{3v} на удвоенной частоте возбуждаются собственные моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r})$, преобразующиеся по неприводимому представлению E. При падении волны правой циркулярной поляризации — моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r})$. При этом собственные моды, преобразующиеся по другим неприводимым представлениям группы симметрии тримера, а именно по A_1 или A_2 , возбуждаться не будут. В этом можно убедиться, получив для них из тех же теоретических рассуждений такие же разложения (27). В них входят векторные сферические гармоники с проекциями углового момента $m = 3s$, где $s \in \mathbb{Z}_+$. В связи с этим интегралы перекрытий D_j для таких собственных мод, наоборот, не будут содержать инвариантных слагаемых и дадут только нулевые значения. Получив разложения индуцируемых на удвоенной частоте собственных мод, необходимо посчитать в двухмодовом приближении полную интегральную интенсивность второй гармоники $I^{2\omega}$, пользуясь формулой (19). Для этого сначала отдельно рассмотрим падение на наноструктуру волны левой циркулярной поляризации. Она, согласно выражению (34), приводит к возбуждению собственных мод $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r})$

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega} \propto \int_{\text{сфера}} dV \left| \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_j^+ e^{-3i\beta} + \tilde{c}_j'^+ e^{+3i\beta} + \tilde{c}_j''^+) + e^{i\alpha} \mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_i^+ e^{-3i\beta} + \tilde{c}_i'^+ e^{+3i\beta} + \tilde{c}_i''^+) \right|^2, \quad (36)$$

где в явном виде из комплексных коэффициентов $c_{j,i}^+, c_{j,i}'^+, c_{j,i}''^+$ выделена фаза α между собственными модами $\mathbf{E}_{i,j}^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r})$ и, тем самым, введены новые $\tilde{c}_{j,i}^+, \tilde{c}_{j,i}'^+, \tilde{c}_{j,i}''^+$. Интерференционные слагаемые пропорциональны

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \right)^* \cdot (A_{ji} + B_{ji} e^{+6i\beta} + C_{ji} e^{-6i\beta} + D_{ji} e^{+3i\beta} + E_{ji} e^{-3i\beta}) + \text{с.с.}, \quad (37)$$

где $I_{\text{ЛКП}}^{2\omega, \text{интерф.}}$ означает интерференционные слагаемые из выражения (36) полной интегральной интенсивности $I_{\text{ЛКП}}^{2\omega}$, представляющие собой большой интерес, а введенные коэффициенты $A_{ji}, B_{ji}, C_{ji}, D_{ji}, E_{ji}$ – переопределенные для сокращения записи комбинации из коэффициентов $\tilde{c}_{j,i}^+, \tilde{c}_{j,i}^{\prime+}, \tilde{c}_{j,i}^{\prime\prime+}$. Аналогично для интенсивности второй гармоники при падении на наноструктуру волны правой циркулярной поляризации. Она, согласно выражению (35), приводит к возбуждению собственных мод уже $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r})$

$$I_{\text{ПКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \right)^* \cdot (A_{ji} + B_{ji}e^{-6i\beta} + C_{ji}e^{+6i\beta} + D_{ji}e^{-3i\beta} + E_{ji}e^{+3i\beta}) + \text{с.с.} \quad (38)$$

Таким образом, можно объединить выражения (37) и (38) для интерференционных вкладов, входящих в выражения интенсивности второй гармоники, генерируемой при падении лево- и правоциркулярно поляризованной волны. Для этого необходимо учесть, что $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \right)^* = \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \right)^*$. Выражение для интерференционных слагаемых $I_{\text{ЛКП}}^{2\omega, \text{интерф.}}$ примет следующий вид

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto e^{-i\alpha} \text{const}_{ji} \cdot (A_{ji} + B_{ji}e^{\pm 6i\beta} + C_{ji}e^{\mp 6i\beta} + D_{ji}e^{\pm 3i\beta} + E_{ji}e^{\mp 3i\beta}) + \text{с.с.}, \quad (39)$$

где \pm соответствует знаку поляризации падающей волны, а в const_{ji} содержится интегральный множитель. Заметим, что в интерференционном вкладе (39), входящем в выражение интенсивности, появляются слагаемые с множителями вида $\cos(\alpha \pm 3\beta)$ и другие подобные, которые, очевидно, различны для разных поляризаций для большинства значений α и β . Таким образом, из полученного выражения (39) в выражении полной интегральной интенсивности $I^{2\omega}$ второй гармоники содержится $I^{2\omega, \text{интерф.}}$, зависящее от поляризации падающей волны, если углы поворота β , сидящие в экспонентах, не равны $\pi\nu/3$, где $\nu \in \mathbb{Z}$. Из чего можно сделать окончательный вывод: КД-ВГ в наноструктуре GaAs[111]||z симметрии C_{3v} возникает при $\beta \neq \pi\nu/3$, где $\nu \in \mathbb{Z}$. Это согласуется с результатами работы, представленными на рисунке 3. Стоит сделать несколько комментариев. Во-первых, поскольку в работе рассматривается полная интегральная интенсивность второй гармоники $I^{2\omega}$,

важно, что, как обсуждалось в разделе 1, интерференция собственных мод, преобразующихся по одному неприводимому представлению, вносит определяющий вклад в наличие КД-ВГ. Действительно, интерференционные слагаемые (39) $I^{2\omega, \text{интерф.}}$, зависящие от знака поляризации падающей волны, в рассматриваемой наноструктуре ненулевые, поскольку посчитаны при учете интерференции собственных мод $\mathbf{E}_j^{2\omega, x \pm iy}(\mathbf{r})$ и $\mathbf{E}_i^{2\omega, x \pm iy}(\mathbf{r})$. В свою очередь, можно проверить, что не интерференционные слагаемые могут быть как равны по модулю для двух поляризаций, так и не равны в зависимости от конкретного вида коэффициентов. Однако достаточно рассматривать только интерференционный вклад, поскольку невозможна ситуация, когда он не будет содержать зависимости от поляризации, в то время как не интерференционный будет. Во-вторых, обратим внимание, что фазы в полученном выражении (39) равны $(\pm 6i\beta)$, $(\mp 6i\beta)$, $(\pm 3i\beta)$, $(\mp 3i\beta)$. В то же время, согласно таблице 1, разницы Δm_χ между дополнительными проекциями m_χ для кристаллической решетки GaAs[111]||z $\Delta m_\chi = \{3, 6\}$. Этот комментарий дает некоторые подсказки к выводу общей формулы в разделе 3.

2.1.2 Наноструктура GaAs[111]||z симметрии C_{4v}

Вектор нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ GaAs[111]||z, как и в предыдущем пункте 2.1.1, раскладывается в соответствии с выражением (21). В случае группы симметрии C_{4v} индекс $n = 4$. В наноструктуре группы симметрии C_{4v} возбуждаются на удвоенной частоте 2ω ее собственные моды, преобразующиеся по двумерному неприводимому представлению E и по одномерным — V_1 и V_2 . Моды, преобразующиеся по другим неприводимым представлениям, не возбуждаются. Для доказательства этих утверждений посчитаем отдельно интегралы перекрытий D_j . Сначала — для собственных мод, преобразующихся по E. В их мультипольные разложения, согласно [126; 127; 132], входят только векторные сферические гармоники с проекциями углового момента $m = 2s - 1$, где $s \in \mathbb{Z}_+$, с некоторыми, в общем случае, комплексными коэффициентами. Ортогональные собственные моды можно записать в следующем виде

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j^{2\omega, x}(\mathbf{r}') &= a_{e11}\mathbf{N}_{e11} + a_{e12}\mathbf{N}_{e12} + a_{e33}\mathbf{N}_{e33} + b_{o11}\mathbf{M}_{o11} + b_{o12}\mathbf{M}_{o12} + \dots \quad (40) \\ \mathbf{E}_j^{2\omega, y}(\mathbf{r}') &= a_{o11}\mathbf{N}_{o11} + a_{o12}\mathbf{N}_{o12} + a_{o33}\mathbf{N}_{o33} + b_{e11}\mathbf{M}_{e11} + b_{e12}\mathbf{M}_{e12} + \dots, \end{aligned}$$

где $\mathbf{E}_j^{2\omega,x}(\mathbf{r}')$, $\mathbf{E}_j^{2\omega,y}(\mathbf{r}')$ — ортогональные собственные моды, преобразующиеся по E, в ортогональности которых несложно убедиться с помощью приложения А. Опять же индекс j нумерует определенную собственную моду из суммы в выражении для поля $\mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r})$. Используя те же самые рассуждения, что и в пункте 2.1.1, можно переопределить константы $a_{\circ mn}$ и $b_{\circ mn}$ и сменить базис: $\frac{\mathbf{E}_j^{2\omega,x} + i\mathbf{E}_j^{2\omega,y}}{2}$ и $\frac{\mathbf{E}_j^{2\omega,x} - i\mathbf{E}_j^{2\omega,y}}{2}$. С учетом вышесказанного, разложение новых собственных мод представимо в следующем виде

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j^{2\omega,x+iy}(\mathbf{r}') &= \frac{a_{11}}{2}(\mathbf{N}_{e11} + i\mathbf{N}_{o11}) + \frac{a_{12}}{2}(\mathbf{N}_{e12} + i\mathbf{N}_{o12}) + \\ &+ \frac{a_{33}}{2}(\mathbf{N}_{e33} - i\mathbf{N}_{o33}) + \frac{b_{11}}{2}(\mathbf{M}_{o11} - i\mathbf{M}_{e11}) + \dots \end{aligned} \quad (41)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j^{2\omega,x-iy}(\mathbf{r}') &= \frac{a_{11}}{2}(\mathbf{N}_{e11} - i\mathbf{N}_{o11}) + \frac{a_{12}}{2}(\mathbf{N}_{e12} - i\mathbf{N}_{o12}) + \\ &+ \frac{a_{33}}{2}(\mathbf{N}_{e33} + i\mathbf{N}_{o33}) + \frac{b_{11}}{2}(\mathbf{M}_{o11} + i\mathbf{M}_{e11}) + \dots, \end{aligned} \quad (42)$$

где $\mathbf{E}_j^{2\omega,x\pm iy} = \frac{\mathbf{E}_j^{2\omega,x} \pm i\mathbf{E}_j^{2\omega,y}}{2}$ — ортогональные собственные моды, составленные из мод $\mathbf{E}_j^{2\omega,x}$, $\mathbf{E}_j^{2\omega,y}$. С помощью явного вида векторных сферических гармоник, указанного в приложении А, и новых обозначений, разложение собственных мод (41) и (42), как и ранее, можно привести к следующему компактному виду

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j^{2\omega,x\pm iy}(\mathbf{r}') &= \sum_n \left\{ \mathbf{E}_{j,1n}(r,z)e^{\pm 1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,3n}(r,z)e^{\mp 3i\varphi} + \right. \\ &\left. + \mathbf{E}_{j,5n}(r,z)e^{\pm 5i\varphi} + \mathbf{E}_{j,7n}(r,z)e^{\mp 7i\varphi} + \dots \right\}, \end{aligned} \quad (43)$$

где в $\mathbf{E}_{j,mn}(r,z)$ содержатся линейные комбинации $\mathbf{N}(\mathbf{M})_{mn}(r,z)$ с комплексными коэффициентами a_{mn} , b_{mn} . Подставим выражения (43) собственных мод $\mathbf{E}_j^{2\omega,x\pm iy}(\mathbf{r}')$ и разложение (21) вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$ в интегралы перекрытий $D_j = \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega,x\pm iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$. Получим четыре разных интеграла D_j . В частности, два — для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega,x+iy}(\mathbf{r}')$ при падении

волны левой и правой циркулярной поляризации

$$\begin{aligned}
 \text{ЛКП : } D_j &= \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto & (44) \\
 &= \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{+1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,3n} e^{-3i\varphi} + \right. \right. \\
 &+ \left. \left. \mathbf{E}_{j,5n} e^{+5i\varphi} + \mathbf{E}_{j,7n} e^{-7i\varphi} + \dots \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{+5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \right. \\
 &+ \left. \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{+2i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} \right] \right)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 \text{ПКП : } D_j &= \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto & (45) \\
 &= \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{+1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,3n} e^{-3i\varphi} + \right. \right. \\
 &+ \left. \left. \mathbf{E}_{j,5n} e^{+5i\varphi} + \mathbf{E}_{j,7n} e^{-7i\varphi} + \dots \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{-5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \right. \\
 &+ \left. \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{+1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{-2i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} \right] \right)
 \end{aligned}$$

и два — для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}')$ при падении волны левой и правой циркулярной поляризации

$$\begin{aligned}
 \text{ЛКП : } D_j &= \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto & (46) \\
 &= \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{-1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,3n} e^{+3i\varphi} + \right. \right. \\
 &+ \left. \left. \mathbf{E}_{j,5n} e^{-5i\varphi} + \mathbf{E}_{j,7n} e^{+7i\varphi} + \dots \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{+5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \right. \\
 &+ \left. \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{+2i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} \right] \right)
 \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\text{ПКП : } D_j &= \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \\
&= \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{-1i\varphi} + \mathbf{E}_{j,3n} e^{+3i\varphi} + \right. \right. \\
&\quad \left. \left. + \mathbf{E}_{j,5n} e^{-5i\varphi} + \mathbf{E}_{j,7n} e^{+7i\varphi} + \dots \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{-5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \right. \right. \\
&\quad \left. \left. + \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{+1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{-2i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} \right] \right).
\end{aligned} \tag{47}$$

Необходимо определить, какие из выражений (44), (45), (46), (47) для интегралов D_j дают ненулевые значения, то есть в каком случае подынтегральное выражение преобразуется по тривиальному неприводимому представлению A_1 группы симметрии C_{4v} . В группе C_{4v} по тривиальному неприводимому представлению A_1 преобразуются собственные моды, в разложение которых входят векторные сферические гармоники $\mathbf{M}_{o(4s)n}$ и $\mathbf{N}_{e(4s)n}$, где $s \in \mathbb{Z}_+$ [132]. Таким образом, подынтегральное выражение должно содержать экспоненты вида $e^{\pm 4si\varphi}$. Только в таком случае интеграл будет ненулевым. Соответственно, выражения (44) и (45) для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}')$, с учетом вышесказанного, примут следующий вид

$$\begin{aligned}
\text{ЛКП : } D_j &\propto c_j^+ e^{+3i\beta} \\
\text{ПКП : } D_j &\propto c_j'^+ e^{+3i\beta},
\end{aligned} \tag{48}$$

где введены некоторые коэффициенты $c_j^+, c_j'^+$. В них входят все интегралы с функциями и константами, не зависящими от знака поляризации падающей волны. Аналогично выражения (46) и (47) для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}')$ примут следующий вид

$$\begin{aligned}
\text{ЛКП : } D_j &\propto c_j'^- e^{-3i\beta} \\
\text{ПКП : } D_j &\propto c_j^- e^{-3i\beta},
\end{aligned} \tag{49}$$

где новые коэффициенты $c_j^-, c_j'^-$ с точностью до знака равны старым $c_j^+, c_j'^+$ из выражения (48). В этом можно убедиться, сделав в выражении (47) замену $\varphi \rightarrow -\varphi$. Таким образом, согласно выражениям (48) и (49), действительно, в наноструктуре возбуждаются собственные моды, преобразующиеся по E.

Следующим шагом, докажем, что возбуждаются и собственные моды, преобразующиеся по B_1 и B_2 . В их разложения входят векторные сферические гармоники с $m = 4s - 2$, где $s \in \mathbb{Z}$. Кроме того, стоит добавить, что собственные моды, преобразующиеся по B_1 четные при отражении в плоскости XZ , а моды, преобразующиеся по B_2 — нечетные при отражении в плоскости XZ . С учетом вышесказанного, их можно представить в следующем виде [126; 127; 132]

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j^{2\omega, B_1}(\mathbf{r}') &= a_{e22}\mathbf{N}_{e22} + a_{e66}\mathbf{N}_{e66} + a_{e26}\mathbf{N}_{e26} + b_{o22}\mathbf{M}_{o22} + \dots \\ \mathbf{E}_j^{2\omega, B_2}(\mathbf{r}') &= a_{o22}\mathbf{N}_{o22} + a_{o66}\mathbf{N}_{o66} + a_{o26}\mathbf{N}_{o26} + b_{e22}\mathbf{M}_{e22} + \dots \end{aligned} \quad (50)$$

Используя явный вид векторных сферических гармоник, представленный в приложении А, и новые обозначения, разложения собственных мод (50) можно привести к следующему виду

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j^{2\omega, B_1}(\mathbf{r}') &= \sum_n \left\{ [E_{j,e2n}^r(r, z) \hat{\mathbf{e}}_r + E_{j,e2n}^z(r, z) \hat{\mathbf{e}}_z] \cos 2\varphi + \right. \\ &\quad \left. + E_{j,e2n}^\varphi(r, z) \hat{\mathbf{e}}_\varphi \sin 2\varphi + \dots \right\} \end{aligned} \quad (51)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_j^{2\omega, B_2}(\mathbf{r}') &= \sum_n \left\{ [E_{j,o2n}^r(r, z) \hat{\mathbf{e}}_r + E_{j,o2n}^z(r, z) \hat{\mathbf{e}}_z] \sin 2\varphi + \right. \\ &\quad \left. + E_{j,o2n}^\varphi(r, z) \hat{\mathbf{e}}_\varphi \cos 2\varphi + \dots \right\}, \end{aligned} \quad (52)$$

где в коэффициенты $E_{j,e2n}^r(r, z)$, $E_{j,e2n}^z(r, z)$, $E_{j,e2n}^\varphi(r, z)$ заключены соответствующие константы и функции, не зависящие от координаты φ . Подставим выражения (51) и (52) собственных мод $\mathbf{E}_j^{2\omega, B_1}(\mathbf{r}')$, $\mathbf{E}_j^{2\omega, B_2}(\mathbf{r}')$ и разложение (21) вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$ в интегралы перекрытий $D_j = \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, B_1/B_2}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}')$. Получим четыре разных интеграла D_j . В частности, два — для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, B_1}(\mathbf{r}')$ при падении волны левой и правой циркулярной поляризации

$$\text{ЛКП : } D_j = \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, B_1}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \quad (53)$$

$$\begin{aligned}
&= \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\left\{ E_{j,e2n}^r(r,z) \hat{\mathbf{e}}_r + E_{j,e2n}^z(r,z) \hat{\mathbf{e}}_z \right\} \cos 2\varphi + \right. \right. \\
&+ \left. \left. E_{j,e2n}^\varphi(r,z) \hat{\mathbf{e}}_\varphi \sin 2\varphi + \dots \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{+5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \right. \right. \\
&+ \left. \left. \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{+2i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} \right] \right)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\text{ПКП : } D_j &= \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, B_1}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \tag{54} \\
&= \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\left\{ E_{j,e2n}^r(r,z) \hat{\mathbf{e}}_r + E_{j,e2n}^z(r,z) \hat{\mathbf{e}}_z \right\} \cos 2\varphi + \right. \right. \\
&+ \left. \left. E_{j,e2n}^\varphi(r,z) \hat{\mathbf{e}}_\varphi \sin 2\varphi + \dots \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{-5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \right. \right. \\
&+ \left. \left. \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{+1i\varphi+5\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{-2i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} \right] \right)
\end{aligned}$$

и два — для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, B_2}(\mathbf{r}')$ при падении волны левой и правой циркулярной поляризации

$$\begin{aligned}
\text{ЛКП : } D_j &= \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, B_2}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \tag{55} \\
&= \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\left\{ E_{j,o2n}^r(r,z) \hat{\mathbf{e}}_r + E_{j,o2n}^z(r,z) \hat{\mathbf{e}}_z \right\} \sin 2\varphi + \right. \right. \\
&+ \left. \left. E_{j,o2n}^\varphi(r,z) \hat{\mathbf{e}}_\varphi \cos 2\varphi + \dots \right] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{+5i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \right. \right. \\
&+ \left. \left. \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{+2i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} \right] \right)
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\text{ПКП : } D_j &= \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, B_2}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \tag{56} \\
&= \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\left\{ E_{j,o2n}^r(r,z) \hat{\mathbf{e}}_r + E_{j,o2n}^z(r,z) \hat{\mathbf{e}}_z \right\} \sin 2\varphi + \right. \right.
\end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + E_{j,02n}^\varphi(r,z) \hat{\mathbf{e}}_\varphi \cos 2\varphi + \dots \Big] \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{-5i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \right. \\
& \left. + \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{+i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{2\nu}^{2\omega} e^{-2i\varphi+3\nu i\varphi} \right\} \right].
\end{aligned}$$

Напомним, что в группе C_{4v} по тривиальному неприводимому представлению A_1 преобразуются собственные моды, в разложение которых входят векторные сферические гармоники $\mathbf{M}_{o(4s)n}$ и $\mathbf{N}_{e(4s)n}$, где $s \in \mathbb{Z}_+$ [132]. С учетом этого выражения (53) и (54) для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, B_1}(\mathbf{r}')$ примут следующий вид

$$\begin{aligned}
\text{ЛКП} : D_j &\propto c_j^{B_1} \\
\text{ПКП} : D_j &\propto c_j^{B_1},
\end{aligned} \tag{57}$$

где введены коэффициенты $c_j^{B_1}$. В них входят все интегралы с функциями и константами, не зависящими от знака поляризации падающей волны. Аналогично выражения (55) и (56) для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, B_2}(\mathbf{r}')$ примут следующий вид

$$\begin{aligned}
\text{ЛКП} : D_j &\propto c_j^{B_2} \\
\text{ПКП} : D_j &\propto c_j^{B_2},
\end{aligned} \tag{58}$$

где введены подобным образом коэффициенты $c_j^{B_2}$. Таким образом, согласно выражениям (57) и (58), действительно, в наноструктуре возбуждаются собственные моды, преобразующиеся по B_1 и B_2 . Следующим шагом, подставим в разложение для напряженности поля второй гармоники (4) полученное выражение (48) для интеграла перекрытия D_j для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}')$

$$\begin{aligned}
\text{ЛКП} : \mathbf{E}^{2\omega} &\propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) c_j^+ e^{+3i\beta} \\
\text{ПКП} : \mathbf{E}^{2\omega} &\propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) c_j'^+ e^{+3i\beta}
\end{aligned} \tag{59}$$

и выражение (49) для интеграла перекрытия D_j для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}')$

$$\begin{aligned}
\text{ЛКП} : \mathbf{E}^{2\omega} &\propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) c_j'^- e^{-3i\beta} \\
\text{ПКП} : \mathbf{E}^{2\omega} &\propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) c_j^- e^{-3i\beta}.
\end{aligned} \tag{60}$$

Кроме того, подставим выражение (57) для интеграла перекрытия D_j для моды $\mathbf{E}_j^{\text{B}_1}(\mathbf{r}')$

$$\text{ЛКП} : \mathbf{E}^{2\omega} \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{\text{B}_1}(\mathbf{r}) c_j^{\text{B}_1} \quad (61)$$

$$\text{ПКП} : \mathbf{E}^{2\omega} \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{\text{B}_1}(\mathbf{r}) c_j^{\text{B}_1}$$

и аналогично — выражение (58) для собственной моды $\mathbf{E}_j^{\text{B}_2}$

$$\text{ЛКП} : \mathbf{E}^{2\omega} \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{\text{B}_2}(\mathbf{r}) c_j^{\text{B}_2} \quad (62)$$

$$\text{ПКП} : \mathbf{E}^{2\omega} \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{\text{B}_2}(\mathbf{r}) c_j^{\text{B}_2}.$$

Таким образом, выражения для поля второй гармоники (59), (60), (61) и (62) $\mathbf{E}^{2\omega}$ доказывают, что при падении волны левой циркулярной поляризации вектором нелинейной поляризации (21) в наноструктуре GaAs[111]||z симметрии C_{4v} возбуждаются на удвоенной частоте собственные моды, преобразующиеся по неприводимому представлению E, а также по B_1 и B_2 . Аналогично — при падении волны правой циркулярной поляризации. При этом собственные моды, преобразующиеся по другим неприводимым представлениям, а именно по A_1 и A_2 возбуждаться не будут. В этом можно убедиться, получив для них из тех же теоретических расчетов такие же мультипольные разложения. В них входят векторные сферические гармоники с проекциями углового момента $m = 4s$, где $s \in \mathbb{Z}_+$. В связи с этим интегралы перекрытий D_j для таких мод, наоборот, не будут содержать инвариантных слагаемых и дадут только нулевые значения. Получив разложения индуцируемых на удвоенной частоте собственных мод, необходимо посчитать полную интегральную интенсивность второй гармоники $I^{2\omega}$, опять же пользуясь формулой (19). Несмотря на то, что при падении волны лево- или право-циркулярно поляризованной возбуждаются моды, преобразующиеся по разным неприводимым представлениям, важно напомнить, что необходимо считать интерференцию только между модами одинаковой симметрии. С учетом вышесказанного, посчитаем отдельно интерференцию собственных мод $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r})$ и интенсивность второй гармоники $I_{\text{ЛКП,ПКП}}^{2\omega}$ при падении волны левой и пра-

вой циркулярной поляризации, соответственно

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega} \propto \int_{\text{сфера}} dV \left| \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \tilde{c}_j^+ e^{+3i\beta} + e^{i\alpha} \mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \tilde{c}_i^+ e^{+3i\beta} \right|^2 \quad (63)$$

$$I_{\text{ПКП}}^{2\omega} \propto \int_{\text{сфера}} dV \left| \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \tilde{c}_j^+ e^{+3i\beta} + e^{i\alpha} \mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \tilde{c}_i^+ e^{+3i\beta} \right|^2, \quad (64)$$

где в явном виде из комплексных коэффициентов $c_{j,i}^+, c_{j,i}'^+$ выделена фаза α между собственными модами $\mathbf{E}_{i,j}^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r})$ и, тем самым, введены новые $\tilde{c}_{j,i}^+, \tilde{c}_{j,i}'^+$. Интерференционные слагаемые пропорциональны

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \right)^* A_{ji} + \text{с.с.} \quad (65)$$

$$I_{\text{ПКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \right)^* A'_{ji} + \text{с.с.}, \quad (66)$$

где $I_{\text{ЛКП,ПКП}}^{2\omega, \text{интерф.}}$ означают интерференционные слагаемые из выражений (63) и (64) полной интегральной интенсивности $I_{\text{ЛКП,ПКП}}^{2\omega}$, представляющие собой большой интерес, а введенные коэффициенты A_{ji}, A'_{ji} – переопределенные для сокращения записи комбинации из коэффициентов $\tilde{c}_{j,i}^+, \tilde{c}_{j,i}'^+$. Аналогично — интерференцию собственных мод $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r})$ и интенсивность второй гармоники $I_{\text{ЛКП,ПКП}}^{2\omega}$ при падении волны левой и правой циркулярной поляризации, соответственно

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega} \propto \int_{\text{сфера}} dV \left| \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \tilde{c}_j^- e^{-3i\beta} + e^{i\alpha} \mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \tilde{c}_i^- e^{-3i\beta} \right|^2 \quad (67)$$

$$I_{\text{ПКП}}^{2\omega} \propto \int_{\text{сфера}} dV \left| \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \tilde{c}_j^- e^{-3i\beta} + e^{i\alpha} \mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \tilde{c}_i^- e^{-3i\beta} \right|^2. \quad (68)$$

Интерференционные слагаемые пропорциональны

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \right)^* A'_{ji} + \text{с.с.} \quad (69)$$

$$I_{\text{ПКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \right)^* A_{ji} + \text{с.с.}. \quad (70)$$

Стоит напомнить, что $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \right)^* = \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \right)^*$. С учетом этого равенства и после сравнения выражений (65) и (70), а

также (66) и (69) приходим к заключению: интерференционные вклады $I^{2\omega, \text{интерф.}}$, а вместе с ними и интенсивность второй гармоники $I^{2\omega}$ одинаковы при возбуждении волной левой и правой циркулярной поляризации. Интерференция собственных мод, преобразующихся по B_1 или B_2 , в свою очередь, точно так же не приводит к возникновению зависимости интенсивности второй гармоники от знака поляризации падающей волны. В этом можно убедиться, заметив, что сама напряженность поля второй гармоники в выражениях (61) и (62) одинакова при возбуждении волной левой и правой циркулярной поляризации. Соответственно, интенсивность второй гармоники не будет иметь зависимости от знака поляризации падающей волны. Таким образом, можно сделать окончательный вывод: КД-ВГ в наноструктуре $\text{GaAs}[111]||z$ симметрии C_{4v} не возникает ни при каких условиях на угол β , несмотря на то, что в наноструктуре C_{3v} более высокой полной симметрии он возможен. Это согласуется с результатами работы, представленными в таблице (3).

2.1.3 Наноструктура $\text{BaTiO}_3[001]||x$ симметрии C_{4v}

Вектор нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ для $\text{BaTiO}_3[001]||x$, согласно таблице 1, представим в следующем виде

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{2\omega}(r, z, \varphi) \propto & \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{3\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 3i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\mp 1i\beta} + \\ & + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{1\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 1i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\pm 1i\beta} + \\ & + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\pm 5i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\mp 3i\beta} + \\ & + \left\{ \sum_{\nu} \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega}(r, z) e^{\mp 1i\varphi + n\nu i\varphi} \right\} e^{\pm 3i\beta}, \end{aligned} \quad (71)$$

где с учетом интересующей группы симметрии C_{4v} индекс $n = 4$. Такой вектор нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ (71) возбуждает в наноструктуре симметрии C_{4v} собственные моды на удвоенной частоте 2ω , преобразующиеся по двумерному неприводимому представлению E [126; 127; 132]. Моды, преобразующиеся по другим неприводимым представлениям, не возбуждаются. Для доказательства этих утверждений проделаем идентичные рассуждения,

как и в предыдущих пунктах 2.1.1 и 2.1.2. Сначала посчитаем интеграл перекрытия D_j для мод, преобразующихся по E . Их разложения по векторным сферическим гармоникам для группы симметрии C_{4v} уже были получены в пункте 2.1.2 и представлены в выражении (43). В связи с этим необходимо только аналогичным образом определить интегралы перекрытий D_j , но для вектора нелинейной поляризации (71) $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$. Получим опять же четыре разных интеграла D_j . В частности, два — для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}')$ при падении волны левой и правой циркулярной поляризации

$$\begin{aligned} \text{ЛКП: } D_j = \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{+1i\varphi} + \right. \right. & (72) \\ & + \mathbf{E}_{j,3n} e^{-3i\varphi} + \mathbf{E}_{j,5n} e^{+5i\varphi} + \mathbf{E}_{j,7n} e^{-7i\varphi} + \dots \left. \right] \cdot \\ & \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{3\nu}^{2\omega} e^{+3i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-1i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{1\nu}^{2\omega} e^{+1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+1i\beta} + \right. \\ & \left. + \left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{+5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} \text{ПКП: } D_j = \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{+1i\varphi} + \right. \right. & (73) \\ & + \mathbf{E}_{j,3n} e^{-3i\varphi} + \mathbf{E}_{j,5n} e^{+5i\varphi} + \mathbf{E}_{j,7n} e^{-7i\varphi} + \dots \left. \right] \cdot \\ & \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{3\nu}^{2\omega} e^{-3i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+1i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-1i\beta} + \right. \\ & \left. + \left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{-5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{+1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} \right] \end{aligned}$$

и два — для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}')$ при падении волны левой и правой циркулярной поляризации

$$\begin{aligned} \text{ЛКП: } D_j = \int_{C_{4v}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \int_{C_{4v}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{-1i\varphi} + \right. \right. & (74) \\ & + \mathbf{E}_{j,3n} e^{+3i\varphi} + \mathbf{E}_{j,5n} e^{-5i\varphi} + \mathbf{E}_{j,7n} e^{+7i\varphi} + \dots \left. \right] \cdot \end{aligned}$$

$$\cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{3\nu}^{2\omega} e^{+3i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-1i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{1\nu}^{2\omega} e^{+1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+1i\beta} + \right. \\ \left. + \left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{+5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} \right]$$

$$\text{ПКП: } D_j = \int_{C_{4\nu}} dV' \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}') \mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r}') \propto \int_{C_{4\nu}} dV' \sum_{n,\nu} \left(\left[\mathbf{E}_{j,1n} e^{-1i\varphi} + \right. \quad (75) \\ \left. + \mathbf{E}_{j,3n} e^{+3i\varphi} + \mathbf{E}_{j,5n} e^{-5i\varphi} + \mathbf{E}_{j,7n} e^{+7i\varphi} + \dots \right] \cdot \right. \\ \left. \cdot \left[\left\{ \mathbf{P}_{3\nu}^{2\omega} e^{-3i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+1i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{1\nu}^{2\omega} e^{-1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-1i\beta} + \right. \right. \\ \left. \left. + \left\{ \mathbf{P}_{5\nu}^{2\omega} e^{-5i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{+3i\beta} + \left\{ \mathbf{P}_{-1\nu}^{2\omega} e^{+1i\varphi+4\nu i\varphi} \right\} e^{-3i\beta} \right] \right).$$

Необходимо определить, какие из выражений (72), (73), (74), (75) для интегралов D_j дают ненулевые значения. В группе $C_{4\nu}$, напомним, по тривиальному неприводимому представлению A_1 преобразуются собственные моды, в разложение которых входят векторные сферические гармоники $\mathbf{M}_{o(4s)n}$ и $\mathbf{N}_{e(4s)n}$, где $s \in \mathbb{Z}_+$ [132]. Таким образом, подынтегральное выражение должно содержать экспоненты вида $e^{\pm 4si\varphi}$. Соответственно, выражения (72) и (73) для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}')$, с учетом вышесказанного, примут следующий вид

$$\text{ЛКП: } D_j \propto c_j^+ e^{-1i\beta} + c_j'^+ e^{+3i\beta} \quad (76)$$

$$\text{ПКП: } D_j \propto c_j''^+ e^{-1i\beta} + c_j'''^+ e^{+3i\beta},$$

где введены некоторые коэффициенты $c_j^+, c_j'^+, c_j''^+, c_j'''^+$. В них входят все интегралы с функциями и константами, не зависящими от знака поляризации падающей волны. Аналогично выражения (74) и (75) для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}')$ примут следующий вид

$$\text{ЛКП: } D_j \propto c_j''^- e^{+1i\beta} + c_j'''^- e^{-3i\beta} \quad (77)$$

$$\text{ПКП: } D_j \propto c_j^- e^{+1i\beta} + c_j'^- e^{-3i\beta},$$

где новые коэффициенты $c_j^-, c_j'^-, c_j''^-, c_j'''^-$ с точностью до знака равны старым $c_j^+, c_j'^+, c_j''^+, c_j'''^+$ из выражения (76). В этом можно убедиться, сделав в выраже-

нии (75) замену $\varphi \rightarrow -\varphi$. Таким образом, согласно выражениям (76) и (77), действительно, в наноструктуре возбуждаются собственные моды, преобразующиеся по E. Подставляем в разложение для напряженности поля второй гармоники (4) полученное выражение (76) для интеграла перекрытия D_j для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}')$

$$\text{ЛКП} : \mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) (c_j^+ e^{-1i\beta} + c_j'^+ e^{+3i\beta}) \quad (78)$$

$$\text{ПКП} : \mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) (c_j''^+ e^{-1i\beta} + c_j'''^+ e^{+3i\beta})$$

и выражение (77) для интеграла перекрытия D_j для моды $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}')$

$$\text{ЛКП} : \mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) (c_j''^- e^{+1i\beta} + c_j'''^- e^{-3i\beta}) \quad (79)$$

$$\text{ПКП} : \mathbf{E}^{2\omega}(\mathbf{r}) \propto \sum_j \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) (c_j^- e^{+1i\beta} + c_j'^- e^{-3i\beta}).$$

Таким образом, выражения для поля второй гармоники (78) и (79) доказывают, что при падении волны левой и правой циркулярной поляризации вектором нелинейной поляризации (71) в наноструктуре $\text{BaTiO}_3[001]||x$ симметрии C_{4v} возбуждаются на удвоенной частоте собственные моды, преобразующиеся по неприводимому представлению E. При этом собственные моды, преобразующиеся по другим неприводимым представлениям группы симметрии наноструктуры, а именно по A_1 , A_2 , B_1 или B_2 , возбуждаться не будут. В этом можно убедиться аналогичными расчетами интегралов перекрытий D_j . При этом мультипольные разложения для собственных мод, преобразующихся по B_1 или B_2 , были уже получены в пункте 2.1.2 и представлены в (51) и (52). В разложения же собственных мод, преобразующихся по A_1 или A_2 , входят векторные сферические гармоники с проекциями углового момента $m = 4s$, где $s \in \mathbb{Z}_+$. Интегралы перекрытий D_j для таких мод не будут содержать инвариантных слагаемых и дадут только нулевые значения. Таким образом, получив разложения индуцируемых на удвоенной частоте собственных мод необходимо определить полную интегральную интенсивность второй гармоники $I^{2\omega}$, пользуясь формулой (19). Напомним, что интерференционный вклад в выражение полной интенсивности дает только интерферен-

ция собственных мод одной симметрии. С учетом этого, посчитаем отдельно ее между модами $\mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r})$ (78). Интенсивность второй гармоники $I_{\text{ЛКП, ПКП}}^{2\omega}$ запишется в следующем виде при падении волны левой циркулярной поляризации

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega} \propto \int_{\text{сфера}} dV \left| \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_j^+ e^{-i\beta} + \tilde{c}_j^+ e^{+3i\beta}) + e^{i\alpha} \mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_i^+ e^{-i\beta} + \tilde{c}_i^+ e^{+3i\beta}) \right|^2 \quad (80)$$

и при падении волны правой циркулярной поляризации

$$I_{\text{ПКП}}^{2\omega} \propto \int_{\text{сфера}} dV \left| \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_j'^+ e^{-i\beta} + \tilde{c}_j''^+ e^{+3i\beta}) + e^{i\alpha} \mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_i'^+ e^{-i\beta} + \tilde{c}_i''^+ e^{+3i\beta}) \right|^2, \quad (81)$$

где в явном виде из комплексных коэффициентов $c_{j,i}^+, c_{j,i}'^+, c_{j,i}''^+, c_{j,i}'''^+$ выделена фаза α между собственными модами $\mathbf{E}_{i,j}^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r})$ и, тем самым, введены новые $\tilde{c}_{j,i}^+, \tilde{c}_{j,i}'^+, \tilde{c}_{j,i}''^+, \tilde{c}_{j,i}'''^+$. Интерференционные слагаемые, входящие в интенсивность второй гармоники, пропорциональны при падении волны левой циркулярной поляризации

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \right)^* \cdot (A_{ji} + B_{ji} e^{-4i\beta} + C_{ji} e^{+4i\beta}) + \text{c.c.} \quad (82)$$

и при падении волны правой циркулярной поляризации

$$I_{\text{ПКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x+iy}(\mathbf{r}) \right)^* \cdot (A'_{ji} + B'_{ji} e^{-4i\beta} + C'_{ji} e^{+4i\beta}) + \text{c.c.}, \quad (83)$$

где $I_{\text{ЛКП, ПКП}}^{2\omega, \text{интерф.}}$ означают интерференционные слагаемые из выражений (80) и (81) полной интегральной интенсивности $I_{\text{ЛКП, ПКП}}^{2\omega}$, представляющие собой большой интерес, а введенные коэффициенты $A_{ji}, B_{ji}, C_{ji}, A'_{ji}, B'_{ji}, C'_{ji}$ — переопределенные для сокращения записи комбинации из коэффициентов $\tilde{c}_{j,i}^+, \tilde{c}_{j,i}'^+, \tilde{c}_{j,i}''^+, \tilde{c}_{j,i}'''^+$. Аналогично посчитаем отдельно интерференцию между мо-

дами $\mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r})$ (79). Интенсивность второй гармоники $I_{\text{ЛКП, ПКП}}^{2\omega}$ запишется в следующем виде при падении волны левой циркулярной поляризации

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega} \propto \int_{\text{сфера}} dV \left| \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_j'' e^{+1i\beta} + \tilde{c}_j''' e^{-3i\beta}) + e^{i\alpha} \mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_i'' e^{+1i\beta} + \tilde{c}_i''' e^{-3i\beta}) \right|^2 \quad (84)$$

и при падении волны правой циркулярной поляризации

$$I_{\text{ПКП}}^{2\omega} \propto \int_{\text{сфера}} dV \left| \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_j^- e^{+1i\beta} + \tilde{c}_j^- e^{-3i\beta}) + e^{i\alpha} \mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) (\tilde{c}_i^- e^{-1i\beta} + \tilde{c}_i^- e^{+3i\beta}) \right|^2. \quad (85)$$

Интерференционные слагаемые, входящие в интенсивность второй гармоники, пропорциональны при падении волны левой циркулярной поляризации

$$I_{\text{ЛКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \right)^* \cdot (A'_{ji} + B'_{ji} e^{+4i\beta} + C'_{ji} e^{-4i\beta}) + \text{c.c.} \quad (86)$$

и при падении волны правой циркулярной поляризации

$$I_{\text{ПКП}}^{2\omega, \text{интерф.}} \propto \int_{\text{сфера}} dV e^{-i\alpha} \mathbf{E}_j^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \left(\mathbf{E}_i^{2\omega, x-iy}(\mathbf{r}) \right)^* \cdot (A_{ji} + B_{ji} e^{+4i\beta} + C_{ji} e^{-4i\beta}) + \text{c.c.} \quad (87)$$

Таким образом, после сравнения выражений (82) и (87), а также (83) и (86), приходим к заключению: полная интегральная интенсивность второй гармоники зависит от поляризации падающей волны, если углы поворота β , сидящие в экспонентах, не равны $\pi\nu/4$, где $\nu \in \mathbb{Z}$. Из чего можно сделать окончательный вывод: КД-ВГ в наноструктуре $\text{BaTiO}_3[001]||x$ симметрии C_{4v} возникает при $\beta \neq \pi\nu/4$, где $\nu \in \mathbb{Z}$. Это согласуется с результатами работы, представленными на рисунке 3. Обратим внимание, что фазы в полученных выражениях (82) и (87), а также (83) и (86) равны $(\pm 4i\beta)$, $(\mp 4i\beta)$. В то же время, согласно таблице 1, разницы Δm_χ между дополнительными проекциями

m_χ для кристаллической решетки $\text{BaTiO}_3[001]||x$ $\Delta m_\chi = \{2, 4, 6\}$. Этот комментарий дает некоторые подсказки к выводу общей формулы в разделе 3.

2.2 Численное моделирование циркулярного дихроизма второй гармоники в COMSOL Multiphysics®

Корректность теоретических результатов, показанных на рисунке 3, была проверена численным моделированием в COMSOL Multiphysics® в приближении неистощимой накачки с использованием интерфейса Electromagnetic waves, Frequency domain (ewfd). Этот метод широко известен и описан, например, в [106; 133; 134]. Для определенной симметрии наноструктуры с определенной кристаллической решетки для различных углов их взаимной ориентации β были получены значения полной интенсивности второй гармоники, проинтегрированной по верхнему полупространству, при падении волны левой и правой циркулярной поляризации, а также значения КД-ВГ, посчитанные по формуле (1). В качестве иллюстративного примера на рисунке 4 представлено моделирование для наноструктуры BaTiO_3 с ориентацией $[001]||x$ симметрии C_{2v} . Она представляла собой два близко расположенных идентичных цилиндра. Согласно теоретическим расчетам, аналогичным описанным в пунктах 2.1.1, 2.1.2 и 2.1.3, в такой наноструктуре возбуждаются на удвоенной частоте собственные моды, преобразующиеся по неприводимым представлениям V_1 и V_2 . В выражении полной интегральной интенсивности содержатся фазы, зависящие от поляризации падающей волны: $(\pm 2\beta)$, $(\pm 4\beta)$, $(\pm 6\beta)$, $(\mp 2\beta)$, $(\mp 4\beta)$, $(\mp 6\beta)$, поэтому КД-ВГ возможен в наноструктуре BaTiO_3 с ориентацией $[001]||x$ симметрии C_{2v} при углах $\beta \neq \pi\nu/2$, где $\nu \in \mathbb{Z}$. Это условие представлено на рисунке 3 вместе с основными результатами работы. Численное моделирование подтвердило его корректность. В качестве демонстрации на рисунке 4 представлены результаты численного моделирования при значении угла $\beta = \pi/4$. В частности, на рисунке 4 а) показаны значения полной интегральной интенсивности второй гармоники в условных единицах, проинтегрированной по верхнему полупространству, при падении волны левой и правой циркулярной поляризации, а на рисунке 4 б) — значения КД-ВГ, посчитанные по формуле (1). Параметры системы были следующие: цилиндры с диаметром и высотой $d = 550$ нм и $h = 450$ нм, соответственно, были расположены на расстоянии друг от друга $l = 30$ нм; показатель преломления материала был использован $n_{\text{refr}} = 3$, по-

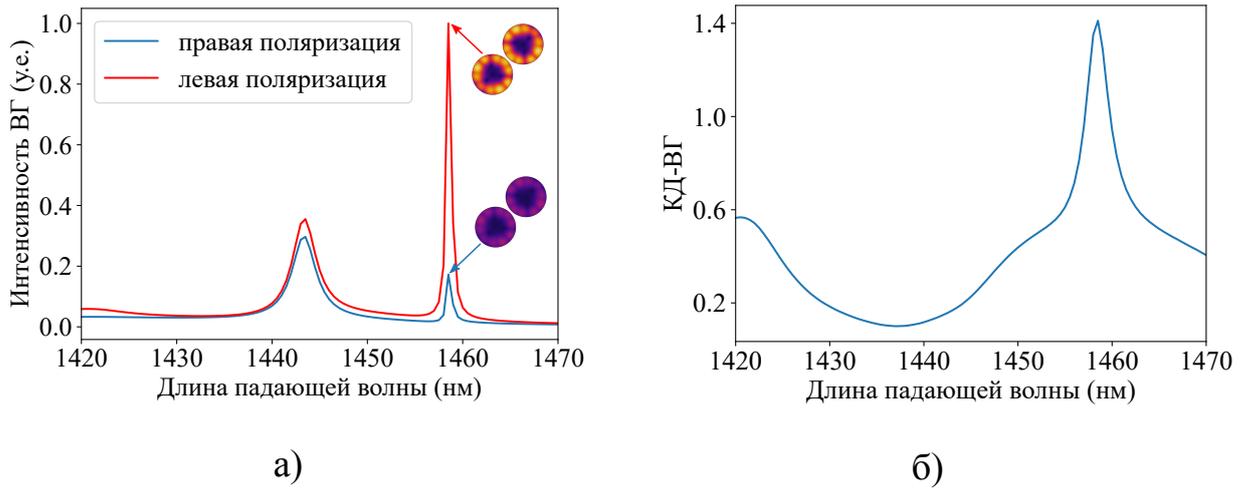


Рисунок 4 – Результаты численного моделирования в COMSOL Multiphysics[®] для наноструктуры BaTiO₃ с ориентацией [001]||x симметрии C_{2v}, представляющей собой два близко расположенных идентичных цилиндра, при значении угла $\beta = \pi/4$. а) Значения в условных единицах полной интенсивности второй гармоники, проинтегрированной по верхнему полупространству, при падении волны левой и правой циркулярной поляризации в диапазоне длин от 1420 нм до 1470 нм и угловое распределение нормы полей второй гармоники на поверхности цилиндров, посчитанное в резонансе для значения длины падающей волны $\lambda = 1458.5$ нм и двух поляризаций. б) Значения циркулярного дихроизма второй гармоники по формуле (1) $\text{КД-ВГ} = \frac{(I_{\text{ПКП}}^{2\omega} - I_{\text{ЛКП}}^{2\omega})}{(I_{\text{ПКП}}^{2\omega} + I_{\text{ЛКП}}^{2\omega})/2}$ [116]

скольку он близок к значениям типичных диэлектрических материалов, значения тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ “не повернутой” кристаллической решетки BaTiO₃ ([001]||z) были взяты из [130]; длина падающей волны менялась в диапазоне от 1420 нм до 1470 нм. Размер цилиндров был выбран достаточно большим для того, чтобы наноструктура была способна поддерживать резонансы собственных мод высокого порядка, поскольку, как видно на рисунке 4, именно вблизи резонанса был достигнут локальный максимум КД-ВГ. На рисунке 4 а) в резонансе для длины падающей волны $\lambda = 1458.5$ нм и двух поляризаций для наглядности представлено угловое распределение нормы полей второй гармоники на поверхности цилиндров. Согласно ему, локальные максимумы КД-ВГ в рассматриваемой наноструктуре находятся вблизи резонансов собственных мод наноструктуры с проекцией углового момента $m = 5$. В общем случае, важно, что они находятся вблизи резонансов собственных мод с проекциями углового момента $m^{2\omega}$ и

$m^{2\omega} + \Delta m_\chi$ (обозначения были введены в разделе 1 и в выражении (15)). В итоге, для получения существенных значений КД-ВГ необходимо подбором размера наноструктуры добиться существования резонансов соответствующих порядков. Такие локальные максимумы КД-ВГ могут быть объяснены тем, что вблизи резонансов фаза между собственными модами α быстро меняется и возможна конструктивная или деструктивная интерференция собственных мод.

3 ОБЩАЯ ФОРМУЛА ЦИРКУЛЯРНОГО ДИХРОИЗМА ВТОРОЙ ГАРМОНИКИ

3.1 Теория циркулярного дихроизма второй гармоники в диэлектрических наноструктурах, основанная на правиле сохранения проекции полного углового момента

Теория генерации второй гармоники и возникновения циркулярного дихроизма второй гармоники в диэлектрических наноструктурах подробно описана в работах [102; 106] и в разделе 1. Однако применение ее к каждому конкретному случаю и получение условий КД-ВГ, как продемонстрировано на примерах в пунктах 2.1.1, 2.1.2, 2.1.3, несмотря на наличие четкой, изученной процедуры, всегда сопряжено с массивными теоретическими расчетами, отнимающими у ученого ощутимое количество времени. Более того, они требуют аккуратности, поскольку рассмотрение собственных мод сильно зависит от их симметрии, то есть от того, по какому неприводимому представлению они преобразуются, и вырождены они или нет. Для решения этих проблем в работе в теоретически полученных результатах были выявлены некоторые закономерности, на основании которых был получен простой, короткий метод определения условий КД-ВГ в любых односторонних ахиральных диэлектрических наноструктурах. С его помощью можно получить ответ моментально, зная только симметрию наноструктуры и тензор нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ кристаллической решетки. Он основан на рассуждениях, использующих мультипольное разложение векторных полей по магнитным и электрическим векторным сферическим гармоникам $\mathbf{M}_{e mn}, \mathbf{N}_{e mn}$ [102; 127] и правило сохранения проекции полного углового момента [102; 135]. Во-первых, заметим, что вектор нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$, разложение (15) которого было получено ранее в разделе 1 и для рассмотренных кристаллических решеток представлено в таблице 1, содержит несколько слагаемых. Для каждого его слагаемого выполнено правило сохранения проекции полного углового момента: проекция углового момента векторных гармоник, входящих в разложение вектора $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$, $\pm m^{2\omega} = \pm m_{\chi} \pm 2 + n\nu = \pm m_{\chi} \pm (m^{\text{in}} + m^{\text{in}})$, где $\nu \in \mathbb{Z}$. Знак \pm соответствует знаку поляризации падающей волны. Проекция $\pm m^{\text{in}}$ приходит от поля, индуцируемого внутри структуры на фундаментальной частоте ω , в то время как дополнительная проекция $\pm m_{\chi}$ — от тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$. Кроме того, из-за поворота кристаллической решетки и нанострук-

туры друг относительно друга вокруг оси z на угол β , тензор $\hat{\chi}^{(2)}$ привносит в каждое слагаемое дополнительную фазу $e^{\mp m_\chi i\beta}$, соответствующую лево- и право-циркулярно поляризованной падающей волне, соответственно. Во-вторых, различные слагаемые вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ возбуждают собственные моды наноструктуры на удвоенной частоте 2ω , которые при этом могут преобразовываться по одному или по разным неприводимым представлениям. Стоит напомнить, что интерференционный вклад в выражение полной интегральной интенсивности второй гармоники $I^{2\omega}$ вносит только интерференция одинаковых по симметрии собственных мод, то есть преобразующихся по одинаковому неприводимому представлению, как было объяснено в разделе 1. Однако интерференционного вклада недостаточно для возникновения КД-ВГ: для того, чтобы интенсивность второй гармоники $I^{2\omega}$ оказалась различной при падении лево- и право-циркулярно поляризованной волны, необходимо наличие в выражении интенсивности $I^{2\omega}$ зависящей от знака поляризации фазы $e^{\mp \Delta m_\chi i\beta}$, где Δm_χ — введенная в разделе 1 разность между любыми двумя проекциями m_χ . В этом можно убедиться из теоретических расчетов, примеры которых представлены в пунктах 2.1.1, 2.1.2, 2.1.3. Это может быть выполнено только при условии, если в разложении поля второй гармоники содержатся как минимум два слагаемых с различными фазами $e^{\mp m_\chi i\beta}$, но при этом описывающие две одинаковые по симметрии моды. Такие моды должны возбуждаться различными слагаемыми вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$. С учетом вышесказанного, можно сформулировать необходимое условие для возникновения КД-ВГ в определенной наноструктуре: по крайней мере два различных слагаемых вектора нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ должны возбуждать собственные моды, преобразующиеся по одинаковому неприводимому представлению. Поскольку проекции суммарного углового момента $m^{2\omega}$ различных слагаемых $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$, отличаются друг от друга на дополнительную проекцию Δm_χ , для выполнения описанного выше условия необходимо, чтобы разность Δm_χ между любыми двумя проекциями m_χ была равна целому числу, кратному индексу n , для структуры с n -кратной вращательной симметрией. Другими словами, должно существовать такое целое число s

$$s = \Delta m_\chi = n\nu, \nu \in \mathbb{Z}. \quad (88)$$

Описанное условие может быть легко проверено с помощью соответствующих интегралов перекрытий и сравнено с результатами теоретических расчетов: например, согласно таблице 1, для кристаллической решетки GaAs[111] $\parallel z$ $\Delta m_\chi = \{3, 6\}$. Опираясь на необходимое условие, можно утверждать, что в изготовленной из нее наноструктуре симметрии C_{3v} КД-ВГ возможен, поскольку существует такое число $s = \Delta m_\chi = \{3, 6\} = 3\nu$, $\nu \in \mathbb{Z}$. Это подтверждается и результатами на рисунке 3, и теоретическими рассуждениями, представленными в пункте 2.1.1: в наноструктуре из GaAs[111] $\parallel z$ симметрии C_{3v} все три слагаемых вектора нелинейной поляризации (21) $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ возбуждают собственные моды, преобразующиеся по E, что приводит к появлению в выражениях интенсивности (39) $I^{2\omega}$ фаз $(\pm 6\beta)$, $(\mp 6\beta)$, $(\pm 3\beta)$, $(\mp 3\beta)$ и, как следствие, к возникновению КД-ВГ. Однако, например, с помощью необходимого условия моментально может быть обнаружена невозможность существования КД-ВГ в наноструктуре из такой же кристаллической решетки, но симметрии C_{4v} , поскольку не существует такого числа $s = \Delta m_\chi = \{3, 6\} = 4\nu$, $\nu \in \mathbb{Z}$. Это подтверждается и результатами на рисунке 3, и теоретическим анализом, проведенным в пункте 2.1.2: в наноструктуре GaAs[111] $\parallel z$ симметрии C_{4v} все три члена вектора нелинейной поляризации (21) $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ возбуждают собственные моды разной симметрии. Как следствие, в выражениях интенсивности (63) и (64), а также (68) и (67) $I^{2\omega}$ не возникает фаз, зависящих от поляризации и ответственных за существование КД-ВГ, поэтому для левой и правой циркулярной поляризации падающей волны значения интенсивности $I^{2\omega}$ одинаковые и КД-ВГ не возможен. В то же время, пользуясь необходимым условием, легко обнаружить, что в наноструктуре той же симметрии C_{4v} , но изготовленной из BaTiO₃[001] $\parallel x$, для которой, согласно таблице 1 $\Delta m_\chi = \{2, 4, 6\}$, КД-ВГ, напротив, возможен, так как существует такое число $s = \Delta m_\chi = 4 = 4\nu$, $\nu \in \mathbb{Z}$. Это также согласуется и с результатами на рисунке 3, и с теорией, описанной в пункте 2.1.3: в наноструктуре из BaTiO₃[001] $\parallel x$ симметрии C_{4v} возможен КД-ВГ, потому что два слагаемых нелинейной поляризации (71) $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ возбуждают собственные моды, преобразующиеся по E, и в выражениях интенсивности (80) и (81), а также (84) и (85) $I^{2\omega}$, тем самым, содержатся фазы $(\mp 4\beta)$, $(\pm 4\beta)$. Таким образом, условие (88) является необходимым условием для возможности возникновения в нанострукту-

ре КД-ВГ, однако недостаточным, поскольку важно, как видно из обсуждений выше, чтобы фаза в выражении интенсивности второй гармоники $I^{2\omega}$ не равнялась $(\pi\nu)$, в противном случае она не зависит от знака поляризации и, как следствие, КД-ВГ не наблюдается. Это приводит к необходимому и достаточному условию на взаимную ориентацию кристаллической решетки и наноструктуры, то есть на угол β : если условие (88) выполнено, то есть существует такое целое число s , и углы поворота β кристаллической решетки и наноструктуры друг относительно друга вокруг оси z не равны $\pi\nu/s$, $\nu \in \mathbb{Z}$, тогда и только тогда КД-ВГ существует.

3.2 Общая формула условий циркулярного дихроизма второй гармоники в ахиральных диэлектрических наноструктурах

После суммирования вышеописанных в подразделе 3.1 рассуждений, основанных на правиле сохранения проекции полного углового момента и закономерностях теоретических результатов, можно записать общую формулу условий КД-ВГ в ахиральных диэлектрических наноструктурах. Для ее использования все, что необходимо знать, — это группу симметрии наноструктуры $C_{nv}(D_{nh})$ (или C_{1h} , если $n = 1$) и тензор нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ в цилиндрических координатах, а точнее его симметричное поведение при вращении вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях: он будет содержать несколько экспоненциальных членов $e^{im_\chi(\varphi-\beta)}$, где под углом β подразумевается угол поворота кристаллической решетки вокруг оси z относительно наноструктуры. Понимая под обозначением Δm_χ разницу между любыми двумя проекциями углового момента m_χ , условие на углы β , при которых возможен КД-ВГ, можно сформулировать следующим образом: если существует такое число $\nu \in \mathbb{Z}$, что разница Δm_χ между любыми двумя проекциями m_χ от тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ равна $n\nu$, где индекс n связан с группой симметрии наноструктуры, то вводится целое число s

$$s = \Delta m_\chi = n\nu, \nu \in \mathbb{Z}. \quad (89)$$

Циркулярный дихроизм второй гармоники в такой наноструктуре появляется для любых углов β , если

$$\beta \neq \frac{\pi\nu}{s}. \quad (90)$$

При этом, поскольку для одной кристаллической решетки могут существовать несколько Δm_χ , стоит добавить, что если условие (89) выполнено для нескольких Δm_χ , то необходимо выбрать только такие углы $\beta \neq \pi\nu/s$, одинаковые при всех возможных числах $s = \Delta m_\chi$. В таблице 2 показаны результаты применения общей формулы к рассмотренным ранее в разделе 2 наноструктурам. При этом опущен тривиальный случай кристаллической решетки BaTiO_3 ориентации $[001]||z$, для которой, согласно таблице 1, тензор нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ никак не меняется при поворотах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях, от него может приходиться только одна единственная нулевая проекция углового момента $m_\chi = 0$. Тем самым, вектор нелинейной поляризации $\mathbf{P}^{2\omega}(\mathbf{r})$ состоит из одного единственного слагаемого и не содержит дополнительной фазы с углом β . Соответственно, в наноструктурах BaTiO_3 ориентации $[001]||z$ КД-ВГ не возможен ни при каких условиях и ни для какой возможной симметрии, поскольку нельзя ввести никакую разницу Δm_χ и ни при какой симметрии выполнить необходимое условие (89). Это согласуется с теоретическими результатами, показанными на рисунке 3. В первой строке таблицы 2 приведены названия и ориентация кристаллических решеток и разница Δm_χ между любыми двумя проекциями углового момента m_χ тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ каждой кристаллической решетки. В первом столбце, — индекс n , связанный с группой симметрии наноструктуры $C_{nv}(D_{nh})$ (или C_{1h} , если $n = 1$). В основной части таблицы 2 в каждой ячейке с помощью общей формулы (89) и (90) записаны или число s и все углы взаимной ориентации кристаллической решетки и наноструктуры β , при которых КД-ВГ возможен, или “нет”, означающее невозможность возникновения КД-ВГ. Стоит обратить внимание, что из сформулированного правила (89) отчетливо видно, что условия возникновения КД-ВГ определяются только поворотной симметрией структуры и симметрией при отражениях относительно вертикальных плоскостей, которым отвечает индекс n , поэтому они одинаковы для наноструктуры симметрии C_{nv} и D_{nh} . Кроме того, поскольку тензор $\hat{\chi}^{(2)}$ — тензор третьего ранга,

Таблица 2 – Примеры применения общей формулы условий КД-ВГ в одиночных ахиральных диэлектрических наноструктурах. В первой строке приведены названия и ориентация кристаллических решеток и разница Δm_χ между любыми двумя проекциями углового момента m_χ тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ каждой кристаллической решетки. В первом столбце — индекс n , связанный с группой симметрии наноструктуры $C_{nv}(D_{nh})$ (или C_{1h} , если $n = 1$). В основной части для каждой симметрии и кристаллической решетки раскрыта общая формула $s = \Delta m_\chi = n\nu$, $\nu \in \mathbb{Z}$. Если число s существует, то оно представлено в ячейке под формулой вместе со всеми углами взаимной ориентации кристаллической решетки и наноструктуры $\beta \neq \pi\nu/s$, при которых КД-ВГ возможен, если число s не существует, то написано “нет”, означающее невозможность возникновения КД-ВГ [116]

n	GaAs[001] z $\Delta m_\chi = 4$	BaTiO ₃ [001] x/ GaAs[011] z $\Delta m_\chi = 2, 4, 6$	GaAs[111] z $\Delta m_\chi = 3, 6$
1	$4 = 1\nu \rightarrow$ $s = 4$ $\beta \neq \pi\nu/4$	$2,4,6 = 1\nu \rightarrow$ $s = 2,4,6$ $\beta \neq \pi\nu/2$	$3,6 = 1\nu \rightarrow$ $s = 3,6$ $\beta \neq \pi\nu/3$
2	$4 = 2\nu \rightarrow$ $s = 4$ $\beta \neq \pi\nu/4$	$2,4,6 = 2\nu \rightarrow$ $s = 2,4,6$ $\beta \neq \pi\nu/2$	$3,6 = 2\nu \rightarrow$ $s = 6$ $\beta \neq \pi\nu/6$
3	$4 = 3\nu \rightarrow$ — нет	$2,4,6 = 3\nu \rightarrow$ $s = 6$ $\beta \neq \pi\nu/6$	$3,6 = 3\nu \rightarrow$ $s = 3,6$ $\beta \neq \pi\nu/3$
4	$4 = 4\nu \rightarrow$ $s = 4$ $\beta \neq \pi\nu/4$	$2,4,6 = 4\nu \rightarrow$ $s = 4$ $\beta \neq \pi\nu/4$	$3,6 = 4\nu \rightarrow$ — нет
5	$4 = 5\nu \rightarrow$ — нет	$2,4,6 = 5\nu \rightarrow$ — нет	$3,6 = 5\nu \rightarrow$ — нет
6	$4 = 6\nu \rightarrow$ — нет	$2,4,6 = 6\nu \rightarrow$ $s = 6$ $\beta \neq \pi\nu/6$	$3,6 = 6\nu \rightarrow$ $s = 6$ $\beta \neq \pi\nu/6$
≥ 7	$4 = n\nu \rightarrow$ — нет	$2,4,6 = n\nu \rightarrow$ — нет	$3,6 = n\nu \rightarrow$ — нет

проекция приходящего от него углового момента $m_\chi \leq 3$, то есть разница $\Delta m_\chi \leq 6$. Таким образом, из общей формулы (89) моментально следует, что КД-ВГ не возможен ни для какой кристаллической решетки для групп симметрии с индексом $n \geq 7$. Результаты применения формулы, представ-

ленные в таблице 2, и описанные выше утверждения полностью согласованы с результатами на рисунке 3, полученными с помощью теоретического анализа.

ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В итоге, в рамках выпускной квалификационной работы с помощью формализма функции Грина, аппарата теории групп и мультипольного разложения собственных мод проведено детальное теоретическое исследование циркулярного дихроизма второй гармоники в одиночных диэлектрических ахиральных наноструктурах различных симметрий и материалов и представлены следующие результаты:

- а) для ахиральных наноструктур различных симметрий $C_{nv}(D_{nh})$ (или C_{1h} , если $n = 1$) и пяти различных материалов, не обладающих центром инверсии, теоретическими расчетами получены условия на взаимную ориентацию наноструктуры и ее кристаллической решетки, при которых в системе существует КД-ВГ,
- б) условия показали, что КД-ВГ сложным образом зависит от симметрии как наноструктуры, так и кристаллической решетки и либо существует только при определенной взаимной их ориентации, либо невозможен вовсе,
- в) корректность теоретических результатов проверена с помощью численного моделирования в COMSOL Multiphysics[®],
- г) выведена общая формула, описывающая условия возникновения КД-ВГ в одиночных диэлектрических ахиральных наноструктурах. Она основана на правиле сохранения проекции полного углового момента и модальном анализе и позволяет быстро и без трудоемкого симметричного анализа определять условия существования КД-ВГ в ахиральной наноструктуре любой симметрии и любого материала с ненулевым тензором нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$.

Стоит заметить, поскольку общая формула не зависит от углового момента падающей волны, она может быть применима для возбуждения структур пучками с произвольным угловым моментом. Разработанный метод, в свою очередь, может дать идеи о том, как описать появление КД-ВГ в других системах, в которых симметрии кристаллической решетки и мета-атомов взаимодействуют, например, в метаповерхностях с повернутыми мета-атомами определенной симметрии. Таким образом, детальное изучение этих гипотез может стать предметом дальнейших работ в этой области.

СПИСОК ИСПОЛЬЗОВАННЫХ ИСТОЧНИКОВ

1. Kelvin W. T. B. Baltimore Lectures on Molecular Dynamics and the Wave Theory of Light. — C.J. Clay, Sons, 1904. — ISBN 978-0-59884270-1. — URL: https://books.google.co.uk/books?id=XWQSAAAAIAAJ&redir_esc=y.
2. Guijarro A., Yus M. The Origin of Chirality in the Molecules of Life: A Revision from Awareness to the Current Theories and Perspectives of this Unsolved Problem. — Royal Society of Chemistry, 2008. — ISBN 978-0-85404156-5. — URL: https://books.google.ru/books?id=TS2Ce-LWCjYC&redir_esc=y.
3. Barron L. D. Chirality and Life // Space Sci. Rev. — 2008. — Т. 135, № 1. — С. 187–201. — ISSN 1572-9672. — DOI: 10.1007/s11214-007-9254-7. — URL: <https://doi.org/10.1007/s11214-007-9254-7>.
4. Pasteur L. Recherches sur les relations qui peuvent exister entre la forme cristalline, la composition chimique et les sens de la polarisation rotatoire // Ann. Chim. Phys. — 1848. — Т. xxiv, № 3. — С. 442–460. — URL: <https://wellcomecollection.org/works/rdepqfzw>.
5. Cahn R. S., Ingold C., Prelog V. Specification of Molecular Chirality // Angew. Chem., Int. Ed. Engl. — 1966. — Т. 5, № 4. — С. 385–415. — ISSN 0570-0833. — DOI: 10.1002/anie.196603851. — URL: <https://doi.org/10.1002/anie.196603851>.
6. Wagnière G. H. On Chirality and the Universal Asymmetry: Reflections on Image and Mirror Image. — Weinheim, Germany : Wiley, 2007. — ISBN 978-3-90639038-3. — URL: <https://books.google.co.ma/books?id=TrQwdNh5q6YC>.
7. Meierhenrich U. Amino Acids and the Asymmetry of Life: Caught in the Act of Formation. — Berlin, Germany : Springer, 2008. — ISBN 978-3-54076886-9. — URL: https://books.google.ru/books?id=a2J23yPEaBQC&redir_esc=y.
8. Amabilino D. B. Chirality at the Nanoscale: Nanoparticles, Surfaces, Materials and More. — Weinheim, Germany : Wiley-VCH, 2009. — ISBN 978-3-52732013-4. — URL: <https://www.amazon.com/Chirality-Nanoscale-Nanoparticles-Surfaces-Materials/dp/352732013X>.

9. Eliel E. L., Wilen S. H. Stereochemistry of Organic Compounds. — Hoboken, NJ, USA : Wiley, 1994. — ISBN 978-0-471-01670-0. — URL: <https://www.wiley.com/en-us/Stereochemistry+of+Organic+Compounds-p-9780471016700>.
10. Nguyen L. A., He H., Pham-Huy C. Chiral drugs: an overview // Int. J. Biomed. Sci. — 2006. — T. 2, № 2. — С. 85–100. — ISSN 1550-9702. — eprint: 23674971. — URL: <https://pubmed.ncbi.nlm.nih.gov/23674971>.
11. Mitra S., Chopra P. Chirality and anaesthetic drugs: A review and an update // Indian J. Anaesth. — 2011. — T. 55, № 6. — С. 556–562. — ISSN 0976-2817. — DOI: 10.4103/0019-5049.90608. — eprint: 22223897. — URL: <https://doi.org/10.4103/0019-5049.90608>.
12. Brooks W. H., Guida W. C., Daniel K. G. The significance of chirality in drug design and development // Curr. Top. Med. Chem. — 2011. — T. 11, № 7. — С. 760–770. — ISSN 1873-4294. — DOI: 10.2174/156802611795165098. — eprint: 21291399. — URL: <https://doi.org/10.2174/156802611795165098>.
13. Francotte E., Lindner W. Chirality in Drug Research. — John Wiley & Sons, Ltd., 2006. — ISBN 978-3-52731076-0. — DOI: 10.1002/3527609431. — URL: <https://doi.org/10.1002/3527609431>.
14. Hutt A. J., O'Grady J. Drug chirality: a consideration of the significance of the stereochemistry of antimicrobial agents // J. Antimicrob. Chemother. — 1996. — T. 37, № 1. — С. 7–32. — ISSN 0305-7453. — DOI: 10.1093/jac/37.1.7. — eprint: 8647776. — URL: <https://doi.org/10.1093/jac/37.1.7>.
15. De Silva A. H. N. C. [и др.]. Using Circular Dichroism to Control Energy Transfer in Multiphoton Ionization // Phys. Rev. Lett. — 2021. — ЯНВ. — Т. 126, № 2. — С. 023201. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.126.023201.
16. Greenfield N. J. Using circular dichroism spectra to estimate protein secondary structure // Nat. Protoc. — 2006. — Т. 1. — С. 2876–2890. — ISSN 1750-2799. — DOI: 10.1038/nprot.2006.202. — URL: <https://doi.org/10.1038/nprot.2006.202>.

17. Hopkins B. [и др.]. Circular dichroism induced by Fano resonances in planar chiral oligomers // *Laser Photonics Rev.* — 2016. — Т. 10, № 1. — С. 137–146. — ISSN 1863-8880. — DOI: 10.1002/lpor.201500222. — URL: <https://doi.org/10.1002/lpor.201500222>.
18. Graf F. [и др.]. Achiral, Helicity Preserving, and Resonant Structures for Enhanced Sensing of Chiral Molecules // *ACS Photonics.* — 2019. — Т. 6, № 2. — С. 482–491. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.8b01454. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.8b01454>.
19. Fasman G. *Circular Dichroism and the Conformational Analysis of Biomolecules.* — Springer US, 1996. — ISBN 978-1-4757-2508-7. — URL: <https://link.springer.com/book/10.1007/978-1-4757-2508-7>.
20. Barron L. D. *Molecular Light Scattering and Optical Activity.* — Cambridge, England, UK : Cambridge University Press, 2004. — ISBN 978-0-52181341-9. — DOI: 10.1017/CBO9780511535468. — URL: <https://doi.org/10.1017/CBO9780511535468>.
21. Tang Y., Cohen A. E. Optical Chirality and Its Interaction with Matter // *Phys. Rev. Lett.* — 2010. — Т. 104, № 16. — С. 163901. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.163901. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.104.163901>.
22. García-Etxarri A., Dionne J. A. Surface-enhanced circular dichroism spectroscopy mediated by nonchiral nanoantennas // *Phys. Rev. B.* — 2013. — Т. 87, № 23. — С. 235409. — ISSN 2469-9969. — DOI: 10.1103/PhysRevB.87.235409. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.87.235409>.
23. Yoo S., Park Q.-H. Chiral Light-Matter Interaction in Optical Resonators // *Phys. Rev. Lett.* — 2015. — Т. 114, № 20. — С. 203003. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.114.203003. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.114.203003>.
24. Schäferling M. [и др.]. Tailoring Enhanced Optical Chirality: Design Principles for Chiral Plasmonic Nanostructures // *Phys. Rev. X.* — 2012. — Т. 2, № 3. — С. 031010. — ISSN 2160-3308. — DOI: 10.1103/PhysRevX.2.031010. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevX.2.031010>.

25. Li J. [и др.]. Tunable Chiral Optics in All-Solid-Phase Reconfigurable Dielectric Nanostructures // *Nano Lett.* — 2021. — Т. 21, № 2. — С. 973–979. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/acs.nanolett.0c03957. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.0c03957>.
26. Hentschel M. [и др.]. Chiral plasmonics // *Sci. Adv.* — 2017. — Т. 3, № 5. — e1602735. — ISSN 2375-2548. — DOI: 10.1126/sciadv.1602735. — URL: <https://doi.org/10.1126/sciadv.1602735>.
27. Collins J. T. [и др.]. Chirality and Chiroptical Effects in Metal Nanostructures: Fundamentals and Current Trends // *Adv. Opt. Mater.* — 2017. — Т. 5, № 16. — С. 1700182. — ISSN 2195-1071. — DOI: 10.1002/adom.201700182. — URL: <https://doi.org/10.1002/adom.201700182>.
28. Chen W. [и др.]. Extremize Optical Chiralities through Polarization Singularities // *Phys. Rev. Lett.* — 2021. — Т. 126, № 25. — С. 253901. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.126.253901. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.126.253901>.
29. Kondratov A. V. [и др.]. Extreme optical chirality of plasmonic nanohole arrays due to chiral Fano resonance // *Phys. Rev. B.* — 2016. — Т. 93, № 19. — С. 195418. — ISSN 2469-9969. — DOI: 10.1103/PhysRevB.93.195418. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.93.195418>.
30. Liu Z. [и др.]. Fano-Enhanced Circular Dichroism in Deformable Stereo Metasurfaces // *Adv. Mater.* — 2020. — Т. 32, № 8. — С. 1907077. — ISSN 0935-9648. — DOI: 10.1002/adma.201907077. — URL: <https://doi.org/10.1002/adma.201907077>.
31. Gorkunov M. V., Antonov A. A., Kivshar Y. S. Metasurfaces with Maximum Chirality Empowered by Bound States in the Continuum // *Phys. Rev. Lett.* — 2020. — Т. 125, № 9. — С. 093903. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.125.093903. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.125.093903>.
32. Decker M. [и др.]. Circular dichroism of planar chiral magnetic metamaterials // *Opt. Lett.* — 2007. — Т. 32, № 7. — С. 856–858. — ISSN 1539-4794. — DOI: 10.1364/OL.32.000856. — URL: <https://doi.org/10.1364/OL.32.000856>.

33. Wang Z. [и др.]. Optical chiral metamaterials: a review of the fundamentals, fabrication methods and applications // *Nanotechnology*. — 2016. — Т. 27, № 41. — С. 412001. — ISSN 0957-4484. — DOI: 10.1088/0957-4484/27/41/412001. — URL: <https://doi.org/10.1088/0957-4484/27/41/412001>.
34. Funck T. [и др.]. Sensing Picomolar Concentrations of RNA Using Switchable Plasmonic Chirality // *Angew. Chem. Int. Ed.* — 2018. — Т. 57, № 41. — С. 13495–13498. — ISSN 1433-7851. — DOI: 10.1002/anie.201807029. — URL: <https://doi.org/10.1002/anie.201807029>.
35. Mohammadi E. [и др.]. Nanophotonic Platforms for Enhanced Chiral Sensing // *ACS Photonics*. — 2018. — Т. 5, № 7. — С. 2669–2675. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.8b00270. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.8b00270>.
36. Zhao Y. [и др.]. Chirality detection of enantiomers using twisted optical metamaterials // *Nat. Commun.* — 2017. — Т. 8, № 14180. — С. 1–8. — ISSN 2041-1723. — DOI: 10.1038/ncomms14180. — URL: <https://doi.org/10.1038/ncomms14180>.
37. Kang L. [и др.]. Preserving Spin States upon Reflection: Linear and Nonlinear Responses of a Chiral Meta-Mirror // *Nano Lett.* — 2017. — Т. 17, № 11. — С. 7102–7109. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/acs.nanolett.7b03882. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.7b03882>.
38. Sun L. [и др.]. Separation of valley excitons in a MoS₂ monolayer using a subwavelength asymmetric groove array // *Nat. Photonics*. — 2019. — Т. 13. — С. 180–184. — ISSN 1749-4893. — DOI: 10.1038/s41566-019-0348-z. — URL: <https://doi.org/10.1038/s41566-019-0348-z>.
39. Wu Z. [и др.]. Chiral Metamaterials: Room-Temperature Active Modulation of Valley Dynamics in a Monolayer Semiconductor through Chiral Purcell Effects (Adv. Mater. 49/2019) // *Adv. Mater.* — 2019. — Т. 31, № 49. — С. 1970347. — ISSN 0935-9648. — DOI: 10.1002/adma.201970347. — URL: <https://doi.org/10.1002/adma.201970347>.
40. Hu G. [и др.]. Coherent steering of nonlinear chiral valley photons with a synthetic Au-WS₂ metasurface // *Nat. Photonics*. — 2019. — Т. 13. — С. 467–472. — ISSN 1749-4893. — DOI: 10.1038/s41566-019-0399-1. — URL: <https://doi.org/10.1038/s41566-019-0399-1>.

41. Gansel J. K. [и др.]. Gold Helix Photonic Metamaterial as Broadband Circular Polarizer // *Science*. — 2009. — Т. 325, № 5947. — С. 1513–1515. — ISSN 0036-8075. — DOI: 10.1126/science.1177031. — URL: <https://doi.org/10.1126/science.1177031>.
42. Zhao Y., Belkin M. A., Alù A. Twisted optical metamaterials for planarized ultrathin broadband circular polarizers // *Nat. Commun.* — 2012. — Т. 3, № 870. — С. 1–7. — ISSN 2041-1723. — DOI: 10.1038/ncomms1877. — URL: <https://doi.org/10.1038/ncomms1877>.
43. Li W. [и др.]. Circularly polarized light detection with hot electrons in chiral plasmonic metamaterials // *Nat. Commun.* — 2015. — Т. 6, № 8379. — С. 1–7. — ISSN 2041-1723. — DOI: 10.1038/ncomms9379. — URL: <https://doi.org/10.1038/ncomms9379>.
44. Chen Y., Yang X., Gao J. Spin-controlled wavefront shaping with plasmonic chiral geometric metasurfaces // *Light Sci. Appl.* — 2018. — Т. 7, № 84. — С. 1–10. — ISSN 2047-7538. — DOI: 10.1038/s41377-018-0086-x. — URL: <https://doi.org/10.1038/s41377-018-0086-x>.
45. Wang Q. [и др.]. Reflective chiral meta-holography: multiplexing holograms for circularly polarized waves // *Light Sci. Appl.* — 2018. — Т. 7, № 25. — С. 1–9. — ISSN 2047-7538. — DOI: 10.1038/s41377-018-0019-8. — URL: <https://doi.org/10.1038/s41377-018-0019-8>.
46. Chen Y., Gao J., Yang X. Chiral Grayscale Imaging with Plasmonic Metasurfaces of Stepped Nanoapertures // *Adv. Opt. Mater.* — 2019. — Т. 7, № 6. — С. 1801467. — ISSN 2195-1071. — DOI: 10.1002/adom.201801467. — URL: <https://doi.org/10.1002/adom.201801467>.
47. Li J. [и др.]. Addressable metasurfaces for dynamic holography and optical information encryption // *Sci. Adv.* — 2018. — Т. 4, № 6. — eaar6768. — ISSN 2375-2548. — DOI: 10.1126/sciadv.aar6768. — URL: <https://doi.org/10.1126/sciadv.aar6768>.
48. Chen Y., Yang X., Gao J. 3D Janus plasmonic helical nanoapertures for polarization-encrypted data storage // *Light Sci. Appl.* — 2019. — Т. 8, № 45. — С. 1–9. — ISSN 2047-7538. — DOI: 10.1038/s41377-019-0156-8. — URL: <https://doi.org/10.1038/s41377-019-0156-8>.

49. Dong F. [и др.]. Information Encoding with Optical Dielectric Metasurface via Independent Multichannels // ACS Photonics. — 2019. — Т. 6, № 1. — С. 230–237. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.8b01513. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.8b01513>.
50. Yao K., Liu Y. Enhancing circular dichroism by chiral hotspots in silicon nanocube dimers // Nanoscale. — 2018. — Т. 10, № 18. — С. 8779–8786. — ISSN 2040-3364. — DOI: 10.1039/C8NR00902C. — URL: <https://doi.org/10.1039/C8NR00902C>.
51. Mohammadi E. [и др.]. Accessible Superchiral Near-Fields Driven by Tailored Electric and Magnetic Resonances in All-Dielectric Nanostructures // ACS Photonics. — 2019. — Т. 6, № 8. — С. 1939–1946. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.8b01767. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.8b01767>.
52. Mohammadi E. [и др.]. Dual Nanoresonators for Ultrasensitive Chiral Detection // ACS Photonics. — 2021. — Т. 8, № 6. — С. 1754–1762. — ISSN 2330-4022. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.1c00311. — eprint: 34164565. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.1c00311>.
53. Rui G. [и др.]. Surface-Enhanced Circular Dichroism by Localized Superchiral Hotspots in a Dielectric Dimer Array Metasurface // J. Phys. Chem. C. — 2022. — Т. 126, № 4. — С. 2199–2206. — ISSN 1932-7447. — DOI: 10.1021/acs.jpcc.1c09618. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.1c09618>.
54. Ho C.-S. [и др.]. Enhancing Enantioselective Absorption Using Dielectric Nanospheres // ACS Photonics. — 2017. — Т. 4, № 2. — С. 197–203. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.6b00701. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.6b00701>.
55. Vestler D., Ben-Moshe A., Markovich G. Enhancement of Circular Dichroism of a Chiral Material by Dielectric Nanospheres // J. Phys. Chem. C. — 2019. — Т. 123, № 8. — С. 5017–5022. — ISSN 1932-7447. — DOI: 10.1021/acs.jpcc.8b10975. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.jpcc.8b10975>.

56. Yoo S., Park Q.-H. Enhancement of Chiroptical Signals by Circular Differential Mie Scattering of Nanoparticles // *Sci. Rep.* — 2015. — T. 5, № 14463. — С. 1–8. — ISSN 2045-2322. — DOI: 10.1038/srep14463. — URL: <https://doi.org/10.1038/srep14463>.
57. Smirnova D., Smirnov A. I., Kivshar Y. S. Multipolar second-harmonic generation by Mie-resonant dielectric nanoparticles // *Phys. Rev. A.* — 2018. — T. 97, № 1. — С. 013807. — ISSN 2469-9934. — DOI: 10.1103/PhysRevA.97.013807. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.97.013807>.
58. Chen W. [и др.]. Global Mie Scattering: Polarization Morphologies and the Underlying Topological Invariant // *ACS Omega.* — 2020. — T. 5, № 23. — С. 14157–14163. — DOI: 10.1021/acsomega.0c01843. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsomega.0c01843>.
59. Smirnova D. A. [и др.]. Multipolar Third-Harmonic Generation Driven by Optically Induced Magnetic Resonances // *ACS Photonics.* — 2016. — T. 3, № 8. — С. 1468–1476. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.6b00036. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.6b00036>.
60. Díaz-Escobar E. [и др.]. Radiationless anapole states in on-chip photonics // *Light Sci. Appl.* — 2021. — T. 10, № 204. — С. 1–12. — ISSN 2047-7538. — DOI: 10.1038/s41377-021-00647-x. — URL: <https://doi.org/10.1038/s41377-021-00647-x>.
61. Hu H., Gan Q., Zhan Q. Achieving maximum scattering circular dichroism through the excitation of anapole states within chiral Mie nanospheres // *Phys. Rev. B.* — 2022. — T. 105, № 24. — С. 245412. — ISSN 2469-9969. — DOI: 10.1103/PhysRevB.105.245412. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.105.245412>.
62. Koshelev K., Kivshar Y. Dielectric Resonant Metaphotonics // *ACS Photonics.* — 2021. — T. 8, № 1. — С. 102–112. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.0c01315. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.0c01315>.
63. Verbiest T. [и др.]. Nonlinear Optical Activity and Biomolecular Chirality // *J. Am. Chem. Soc.* — 1994. — T. 116, № 20. — С. 9203–9205. — ISSN

- 0002-7863. — DOI: 10.1021/ja00099a040. — URL: <https://doi.org/10.1021/ja00099a040>.
64. Koshelev K. [и др.]. Resonant Chiral Effects in Nonlinear Dielectric Metasurfaces // *ACS Photonics*. — 2023. — Т. 10, № 1. — С. 298–306. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.2c01926. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.2c01926>.
65. Weissflog M. A. [и др.]. Far-Field Polarization Engineering from Nonlinear Nanoresonators // *Laser Photonics Rev.* — 2022. — Т. n/a, n/a. — С. 2200183. — ISSN 1863-8880. — DOI: 10.1002/lpor.202200183. — URL: <https://doi.org/10.1002/lpor.202200183>.
66. Belardini A. [и др.]. Circular Dichroism in the Optical Second-Harmonic Emission of Curved Gold Metal Nanowires // *Phys. Rev. Lett.* — 2011. — Т. 107, № 25. — С. 257401. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.107.257401. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.107.257401>.
67. Belardini A. [и др.]. Circular Dichroism in the Second Harmonic Field Evidenced by Asymmetric Au Coated GaAs Nanowires // *Micromachines*. — 2020. — Т. 11, № 2. — С. 225. — ISSN 2072-666X. — DOI: 10.3390/mi11020225. — URL: <https://doi.org/10.3390/mi11020225>.
68. Byers J. D. [и др.]. Second-harmonic generation circular-dichroism spectroscopy from chiral monolayers // *Phys. Rev. B.* — 1994. — Т. 49, № 20. — С. 14643–14647. — ISSN 2469-9969. — DOI: 10.1103/PhysRevB.49.14643. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.49.14643>.
69. Hooper D. C. [и др.]. Strong Rotational Anisotropies Affect Nonlinear Chiral Metamaterials // *Adv. Mater.* — 2017. — Т. 29, № 13. — С. 1605110. — ISSN 0935-9648. — DOI: 10.1002/adma.201605110. — URL: <https://doi.org/10.1002/adma.201605110>.
70. Collins J. T. [и др.]. Second-Harmonic Generation Optical Rotation Solely Attributable to Chirality in Plasmonic Metasurfaces // *ACS Nano*. — 2018. — Т. 12, № 6. — С. 5445–5451. — ISSN 1936-0851. — DOI: 10.1021/acsnano.8b00601. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsnano.8b00601>.

71. Schmeltz M. [и др.]. Circular dichroism second-harmonic generation microscopy probes the polarity distribution of collagen fibrils // *Optica*. — 2020. — Т. 7, № 11. — С. 1469–1476. — ISSN 2334-2536. — DOI: 10.1364/OPTICA.399246. — URL: <https://doi.org/10.1364/OPTICA.399246>.
72. Bertolotti M. [и др.]. Second harmonic circular dichroism by self-assembled metasurfaces [Invited] // *J. Opt. Soc. Am. B, JOSAB*. — 2015. — Т. 32, № 7. — С. 1287–1293. — ISSN 1520-8540. — DOI: 10.1364/JOSAB.32.001287. — URL: <https://doi.org/10.1364/JOSAB.32.001287>.
73. Valev V. K. [и др.]. Asymmetric Optical Second-Harmonic Generation from Chiral G-Shaped Gold Nanostructures // *Phys. Rev. Lett.* — 2010. — Т. 104, № 12. — С. 127401. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.104.127401. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.104.127401>.
74. Valev V. K. [и др.]. Plasmonic Ratchet Wheels: Switching Circular Dichroism by Arranging Chiral Nanostructures // *Nano Lett.* — 2009. — Т. 9, № 11. — С. 3945–3948. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/nl9021623. — URL: <https://doi.org/10.1021/nl9021623>.
75. Mamonov E. A. [и др.]. Anisotropy versus circular dichroism in second harmonic generation from fourfold symmetric arrays of G-shaped nanostructures // *Phys. Rev. B*. — 2014. — Т. 89, № 12. — С. 121113. — ISSN 2469-9969. — DOI: 10.1103/PhysRevB.89.121113. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.89.121113>.
76. Kim D. [и др.]. Giant Nonlinear Circular Dichroism from Intersubband Polaritonic Metasurfaces // *Nano Lett.* — 2020. — Т. 20, № 11. — С. 8032–8039. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/acs.nanolett.0c02978. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.0c02978>.
77. Kim K.-H., Kim J.-R. Dielectric Chiral Metasurfaces for Second-Harmonic Generation with Strong Circular Dichroism // *Ann. Phys.* — 2020. — Т. 532, № 8. — С. 2000078. — ISSN 0003-3804. — DOI: 10.1002/andp.202000078. — URL: <https://doi.org/10.1002/andp.202000078>.

78. Collins J. T. [и др.]. Enantiomorphing Chiral Plasmonic Nanostructures: A Counterintuitive Sign Reversal of the Nonlinear Circular Dichroism // *Adv. Opt. Mater.* — 2018. — Т. 6, № 14. — С. 1800153. — ISSN 2195-1071. — DOI: 10.1002/adom.201800153. — URL: <https://doi.org/10.1002/adom.201800153>.
79. Valev V. K. [и др.]. Nonlinear Superchiral Meta-Surfaces: Tuning Chirality and Disentangling Non-Reciprocity at the Nanoscale // *Adv. Mater.* — 2014. — Т. 26, № 24. — С. 4074–4081. — ISSN 0935-9648. — DOI: 10.1002/adma.201401021. — URL: <https://doi.org/10.1002/adma.201401021>.
80. Kang L. [и др.]. Nonlinear Chiral Meta-Mirrors: Enabling Technology for Ultrafast Switching of Light Polarization // *Nano Lett.* — 2020. — Т. 20, № 3. — С. 2047–2055. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/acs.nanolett.0c00007. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.0c00007>.
81. Gandolfi M. [и др.]. Near-unity third-harmonic circular dichroism driven by a quasibound state in the continuum in asymmetric silicon metasurfaces // *Phys. Rev. A.* — 2021. — Т. 104, № 2. — С. 023524. — ISSN 2469-9934. — DOI: 10.1103/PhysRevA.104.023524. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.104.023524>.
82. Rodrigues S. P. [и др.]. Nonlinear Imaging and Spectroscopy of Chiral Metamaterials // *Adv. Mater.* — 2014. — Т. 26, № 35. — С. 6157–6162. — ISSN 0935-9648. — DOI: 10.1002/adma.201402293. — URL: <https://doi.org/10.1002/adma.201402293>.
83. Chen S. [и др.]. Giant Nonlinear Optical Activity of Achiral Origin in Planar Metasurfaces with Quadratic and Cubic Nonlinearities // *Adv. Mater.* — 2016. — Т. 28, № 15. — С. 2992–2999. — ISSN 0935-9648. — DOI: 10.1002/adma.201505640. — URL: <https://doi.org/10.1002/adma.201505640>.
84. Chen S. [и др.]. Strong Nonlinear Optical Activity Induced by Lattice Surface Modes on Plasmonic Metasurface // *Nano Lett.* — 2019. — Т. 19, № 9. — С. 6278–6283. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/acs.nanolett.9b02417. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.9b02417>.

85. Wang F., Harutyunyan H. Observation of a Giant Nonlinear Chiro-Optical Response in Planar Plasmonic-Photonic Metasurfaces // *Adv. Opt. Mater.* — 2019. — Т. 7, № 19. — С. 1900744. — ISSN 2195-1071. — DOI: 10.1002/adom.201900744. — URL: <https://doi.org/10.1002/adom.201900744>.
86. Kruk S. S. [и др.]. Polarization properties of optical metasurfaces of different symmetries // *Phys. Rev. B.* — 2015. — Т. 91, № 19. — С. 195401. — ISSN 2469-9969. — DOI: 10.1103/PhysRevB.91.195401. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.91.195401>.
87. Verbiest T. [и др.]. Optical Activity of Anisotropic Achiral Surfaces // *Phys. Rev. Lett.* — 1996. — Т. 77, № 8. — С. 1456–1459. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.77.1456. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.77.1456>.
88. Maoz B. M. [и др.]. Chiroptical Effects in Planar Achiral Plasmonic Oriented Nanohole Arrays // *Nano Lett.* — 2012. — Т. 12, № 5. — С. 2357–2361. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/nl300316f. — URL: <https://doi.org/10.1021/nl300316f>.
89. Plum E. [и др.]. Metamaterials: Optical Activity without Chirality // *Phys. Rev. Lett.* — 2009. — Т. 102, № 11. — С. 113902. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.113902. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.102.113902>.
90. Gompf B. [и др.]. Periodic Nanostructures: Spatial Dispersion Mimics Chirality // *Phys. Rev. Lett.* — 2011. — Т. 106, № 18. — С. 185501. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.106.185501. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.106.185501>.
91. Volkov S. N. [и др.]. Optical activity in diffraction from a planar array of achiral nanoparticles // *Phys. Rev. A.* — 2009. — Т. 79, № 4. — С. 043819. — ISSN 2469-9934. — DOI: 10.1103/PhysRevA.79.043819. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.79.043819>.
92. Moocarme M., Proscia N. V., Vuong L. T. Meta-Optical Chirality and Emergent Eigen-polarization Modes via Plasmon Interactions // *Sci. Rep.* — 2017. — Т. 7, № 40718. — С. 1–8. — ISSN 2045-2322. — DOI: 10.1038/srep40718. — URL: <https://doi.org/10.1038/srep40718>.

93. Zambrana-Puyalto X., Vidal X., Molina-Terriza G. Angular momentum-induced circular dichroism in non-chiral nanostructures // *Nat. Commun.* — 2014. — Т. 5, № 4922. — С. 4922. — ISSN 2041-1723. — DOI: 10.1038/ncomms5922. — URL: <https://doi.org/10.1038/ncomms5922>.
94. Pan D., Xu H., García de Abajo F. J. Circular Dichroism in Rotating Particles // *Phys. Rev. Lett.* — 2019. — Т. 123, № 6. — С. 066803. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.123.066803. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.123.066803>.
95. Zu S. [и др.]. Deep-Subwavelength Resolving and Manipulating of Hidden Chirality in Achiral Nanostructures // *ACS Nano.* — 2018. — Т. 12, № 4. — С. 3908–3916. — ISSN 1936-0851. — DOI: 10.1021/acsnano.8b01380. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsnano.8b01380>.
96. Li Z. [и др.]. Plasmon-Mediated Chiroptical Second Harmonic Generation from Seemingly Achiral Gold Nanorods // *ACS Nanosci. Au.* — 2022. — Т. 2, № 1. — С. 32–39. — DOI: 10.1021/acsnanoscienceau.1c00014. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsnanoscienceau.1c00014>.
97. Pichen M. [и др.]. Circular Dichroism in Multiphoton Ionization of Resonantly Excited He⁺ Ions // *Phys. Rev. Lett.* — 2017. — Т. 118, № 1. — С. 013002. — ISSN 1079-7114. — DOI: 10.1103/PhysRevLett.118.013002. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevLett.118.013002>.
98. Liu T. [и др.]. Third- and Second-Harmonic Generation in All-Dielectric Nanostructures: A Mini Review // *Front. Nanotechnol.* — 2022. — Т. 0. — ISSN 2673-3013. — DOI: 10.3389/fnano.2022.891892. — URL: <https://doi.org/10.3389/fnano.2022.891892>.
99. Gigli C., Leo G. All-dielectric $\chi^{(2)}$ metasurfaces: recent progress // *OEA.* — 2022. — Т. 5, № 7. — С. 210093-1–210093-14. — ISSN 2096-4579. — DOI: 10.29026/oea.2022.210093. — URL: <https://doi.org/10.29026/oea.2022.210093>.
100. Rocco D. [и др.]. Second order nonlinear frequency generation at the nanoscale in dielectric platforms // *Advances in Physics: X.* — 2022. — Т. 7, № 1. — С. 2022992. — DOI: 10.1080/23746149.2021.2022992. — URL: <https://doi.org/10.1080/23746149.2021.2022992>.

101. Carletti L. [и др.]. Shaping the Radiation Pattern of Second-Harmonic Generation from AlGaAs Dielectric Nanoantennas // ACS Photonics. — 2016. — Т. 3, № 8. — С. 1500–1507. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.6b00050. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.6b00050>.
102. Frizyuk K. [и др.]. Second-harmonic generation in Mie-resonant dielectric nanoparticles made of noncentrosymmetric materials // Phys. Rev. B. — 2019. — Т. 99, № 7. — С. 075425. — ISSN 2469-9969. — DOI: 10.1103/PhysRevB.99.075425. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.99.075425>.
103. Renaut C. [и др.]. Reshaping the Second-Order Polar Response of Hybrid Metal-Dielectric Nanodimers // Nano Lett. — 2019. — Т. 19, № 2. — С. 877–884. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b04089. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.8b04089>.
104. Saerens G. [и др.]. Engineering of the Second-Harmonic Emission Directionality with III-V Semiconductor Rod Nanoantennas // Laser Photonics Rev. — 2020. — Т. 14, № 9. — С. 2000028. — ISSN 1863-8880. — DOI: 10.1002/lpor.202000028. — URL: <https://doi.org/10.1002/lpor.202000028>.
105. Gigli C. [и др.]. All-Dielectric Nanoresonators for $\chi(2)$ Nonlinear Optics // Front. Phys. — 2019. — Т. 7. — ISSN 2296-424X. — DOI: 10.3389/fphys.2019.00221. — URL: <https://doi.org/10.3389/fphys.2019.00221>.
106. Frizyuk K. [и др.]. Nonlinear Circular Dichroism in Mie-Resonant Nanoparticle Dimers // Nano Lett. — 2021. — Май. — Т. 21, № 10. — С. 4381–4387. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/acs.nanolett.1c01025.
107. Karst J. [и др.]. Chiral Scatterometry on Chemically Synthesized Single Plasmonic Nanoparticles // ACS Nano. — 2019. — Т. 13, № 8. — С. 8659–8668. — ISSN 1936-0851. — DOI: 10.1021/acsnano.9b04046. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsnano.9b04046>.
108. Spreyer F. [и др.]. Second Harmonic Optical Circular Dichroism of Plasmonic Chiral Helicoid-III Nanoparticles // ACS Photonics. — 2022. — Т. 9, № 3. — С. 784–792. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.1c00882. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.1c00882>.

109. García-Guirado J. [и др.]. Enhanced Chiral Sensing with Dielectric Nanoresonators // *Nano Lett.* — 2020. — Т. 20, № 1. — С. 585–591. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/acs.nanolett.9b04334. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.9b04334>.
110. Kim T., Park Q.-H. Molecular chirality detection using plasmonic and dielectric nanoparticles // *Nanophotonics.* — 2022. — Т. 11, № 9. — С. 1897–1904. — ISSN 2192-8614. — DOI: 10.1515/nanoph-2021-0649. — URL: <https://doi.org/10.1515/nanoph-2021-0649>.
111. Czajkowski K. M., Antosiewicz T. J. Local versus bulk circular dichroism enhancement by achiral all-dielectric nanoresonators // *Nanophotonics.* — 2022. — Т. 11, № 18. — С. 4287–4297. — ISSN 2192-8614. — DOI: 10.1515/nanoph-2022-0293. — URL: <https://doi.org/10.1515/nanoph-2022-0293>.
112. Both S. [и др.]. Nanophotonic Chiral Sensing: How Does It Actually Work? // *ACS Nano.* — 2022. — Т. 16, № 2. — С. 2822–2832. — ISSN 1936-0851. — DOI: 10.1021/acsnano.1c09796. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsnano.1c09796>.
113. Schoenflies A. *Kristallsysteme und krystallstruktur.* — Wiesbaden, Germany : Teubner, 1891. — URL: https://books.google.ru/books?id=01xEAAAIAAJ&printsec=frontcover&redir_esc=y#v=onepage&q&f=false.
114. Boyd R. *Nonlinear Optics.* — Cambridge, MA, USA : Academic Press, 12.2002. — ISBN 978-0-12121682-5. — URL: <https://www.elsevier.com/books/nonlinear-optics/boyd/978-0-12-121682-5>.
115. Ivchenko E. L., Pikus G. E. *Superlattices and Other Heterostructures.* — Berlin, Germany : Springer, 1997. — ISBN 978-3-642-60650-2. — URL: <https://link.springer.com/book/10.1007/978-3-642-60650-2>.
116. Nikitina A., Nikolaeva A., Frizyuk K. Nonlinear circular dichroism in achiral dielectric nanoparticles // *Phys. Rev. B.* — 2023. — Т. 107, № 4. — С. L041405. — ISSN 2469-9969. — DOI: 10.1103/PhysRevB.107.L041405. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.107.L041405>.

117. Novotny L., Hecht B. Principles of Nano-Optics. — Cambridge, England, UK : Cambridge University Press, 2006. — ISBN 978-0-52153988-3. — DOI: 10.1017/CBO9780511813535. — URL: <https://doi.org/10.1017/CBO9780511813535>.
118. Doost M. B., Langbein W., Muljarov E. A. Resonant-state expansion applied to three-dimensional open optical systems // Phys. Rev. A. — 2014. — Т. 90, № 1. — С. 013834. — ISSN 2469-9934. — DOI: 10.1103/PhysRevA.90.013834. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevA.90.013834>.
119. Doost M. B., Langbein W., Muljarov E. A. Resonant state expansion applied to two-dimensional open optical systems // Phys. Rev. A. — 2013. — Апр. — Т. 87, вып. 4. — С. 043827. — DOI: 10.1103/PhysRevA.87.043827. — URL: <https://link.aps.org/doi/10.1103/PhysRevA.87.043827>.
120. Lalanne P. [и др.]. Light Interaction with Photonic and Plasmonic Resonances // Laser Photonics Rev. — 2018. — Т. 12, № 5. — С. 1700113. — ISSN 1863-8880. — DOI: 10.1002/lpor.201700113. — URL: <https://doi.org/10.1002/lpor.201700113>.
121. Gigli C. [и др.]. Quasinormal-Mode Non-Hermitian Modeling and Design in Nonlinear Nano-Optics // ACS Photonics. — 2020. — Т. 7, № 5. — С. 1197–1205. — DOI: 10.1021/acsp Photonics.0c00014. — URL: <https://doi.org/10.1021/acsp Photonics.0c00014>.
122. Sauvan C. [и др.]. Normalization, orthogonality, and completeness of quasinormal modes of open systems: the case of electromagnetism [Invited] // Opt. Express. — 2022. — Т. 30, № 5. — С. 6846–6885. — ISSN 1094-4087. — DOI: 10.1364/OE.443656. — URL: <https://doi.org/10.1364/OE.443656>.
123. Bohren C. F., Huffman D. R. Absorption and Scattering by a Sphere. — John Wiley & Sons, Ltd, 1998. — С. 82–129. — ISBN 978-3-52761815-6. — DOI: 10.1002/9783527618156.ch4. — URL: <https://doi.org/10.1002/9783527618156.ch4>.
124. Akhiezer A. I., Berestetsky V. B. Quantum Electrodynamics. — Hoboken, NJ, USA : Interscience Publishers, 1965. — ISBN 978-0-47001848-4.

- URL: <https://archive.org/details/akhiezer-berestetskii-quantum-electrodynamics/page/n1/mode/2up>.
125. Varshalovich D. A., Moskalev A. N., Khersonskii V. K. Quantum Theory Of Angular Momentum: Irreducible Tensors, Spherical Harmonics, Vector Coupling Coefficients, 3nj Symbols. — Singapore : World Scientific Publishing Company, 1988. — ISBN 978-981-441549-1. — DOI: 10.1142/0270. — URL: <https://doi.org/10.1142/0270>.
 126. Xiong Z. [и др.]. On the constraints of electromagnetic multipoles for symmetric scatterers: eigenmode analysis // Opt. Express. — 2020. — T. 28, № 3. — С. 3073–3085. — ISSN 1094-4087. — DOI: 10.1364/OE.382239. — URL: <https://doi.org/10.1364/OE.382239>.
 127. Gladyshev S., Frizyuk K., Bogdanov A. Symmetry analysis and multipole classification of eigenmodes in electromagnetic resonators for engineering their optical properties // Phys. Rev. B. — 2020. — T. 102, № 7. — С. 075103. — ISSN 2469-9969. — DOI: 10.1103/PhysRevB.102.075103. — URL: <https://doi.org/10.1103/PhysRevB.102.075103>.
 128. Landau L. D., Lifshitz E. M. Quantum Mechanics. — Oxford, England, UK : Pergamon, 1977. — ISBN 978-0-08-020940-1. — DOI: 10.1016/C2013-0-02793-4. — URL: <https://doi.org/10.1016/C2013-0-02793-4>.
 129. Zee A. Group Theory in a Nutshell for Physicists. — Princeton, NJ, USA : Princeton University Press, 2016. — ISBN 978-0-69116269-0. — URL: https://books.google.ru/books/about/Group_Theory_in_a_Nutshell_for_Physicist.html?id=FWkujgEACAAJ&redir_esc=y.
 130. Cabuk S. The nonlinear optical susceptibility and electro-optic tensor of ferroelectrics: first-principle study // Open Physics. — 2012. — T. 10, № 1. — С. 239–252. — ISSN 2391-5471. — DOI: 10.2478/s11534-011-0079-3. — URL: <https://doi.org/10.2478/s11534-011-0079-3>.
 131. Nikolaeva A. Tensor-rotation. — 2022. — URL: <https://github.com/kuyzurf/Tensor-rotation> ; [Online; accessed 8. Aug. 2022].
 132. Kater G. Character Tables for Point Groups used in Chemistry. — http://www.gernot-katzers-spice-pages.com/character_tables/index.html.

133. Carletti L. [и др.]. Second harmonic generation in monolithic lithium niobate metasurfaces // *Opt. Express*. — 2019. — Т. 27, № 23. — С. 33391–33398. — ISSN 1094-4087. — DOI: 10.1364/OE.27.033391. — URL: <https://doi.org/10.1364/OE.27.033391>.
134. Timofeeva M. [и др.]. Anapoles in Free-Standing III-V Nanodisks Enhancing Second-Harmonic Generation // *Nano Lett.* — 2018. — Т. 18, № 6. — С. 3695–3702. — ISSN 1530-6984. — DOI: 10.1021/acs.nanolett.8b00830. — URL: <https://doi.org/10.1021/acs.nanolett.8b00830>.
135. Frizyuk K. Second-harmonic generation in dielectric nanoparticles with different symmetries // *J. Opt. Soc. Am. B, JOSAB*. — 2019. — Т. 36, № 8. — F32–F37. — ISSN 1520-8540. — DOI: 10.1364/JOSAB.36.000F32. — URL: <https://doi.org/10.1364/JOSAB.36.000F32>.
136. Stratton J. A. *Electromagnetic Theory*. — 2015. — ISBN 978-0-47013153-4. — DOI: 10.1002/9781119134640. — URL: <https://doi.org/10.1002/9781119134640>.

ПРИЛОЖЕНИЕ А

Векторные сферические гармоники

Магнитные и электрические векторные сферические гармоники $\mathbf{M}_{\varepsilon mn}, \mathbf{N}_{\varepsilon mn}$, удовлетворяющие векторному волновому уравнению, порождаются скалярными функциями, являющимися решением скалярного волнового уравнения с волновым вектором \mathbf{k} [123]

$$\psi_{emn} = \cos m\varphi P_n^m(\cos \vartheta) z_n(kr) \quad (91)$$

$$\psi_{omn} = \sin m\varphi P_n^m(\cos \vartheta) z_n(kr),$$

где $P_n^m(\cos \theta)$ — присоединенные функции Лежандра первого рода, а $z_n(kr)$ — любая из четырех сферических бесселевых функций: $j_n, y_n, h_n^{(1)}, h_n^{(2)}$.

Векторные сферические гармоники, порождаемые ψ_{emn} и ψ_{omn} , имеют вид

$$\mathbf{M}_{\varepsilon mn} = \nabla \times (\mathbf{r}\psi_{\varepsilon mn}) \quad (92)$$

$$\mathbf{N}_{\varepsilon mn} = \frac{\nabla \times \mathbf{M}_{\varepsilon mn}}{\mathbf{k}}$$

или в компонентной записи

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_{emn}(k, \mathbf{r}) = & \frac{-m}{\sin \theta} \sin m\varphi P_n^m(\cos \theta) z_n(\rho) \hat{\mathbf{e}}_{\theta} - \\ & - \cos m\varphi \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} z_n(\rho) \hat{\mathbf{e}}_{\varphi} \end{aligned} \quad (93)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_{omn}(k, \mathbf{r}) = & \frac{m}{\sin \theta} \cos m\varphi P_n^m(\cos \theta) z_n(\rho) \hat{\mathbf{e}}_{\theta} - \\ & - \sin m\varphi \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} z_n(\rho) \hat{\mathbf{e}}_{\varphi} \end{aligned} \quad (94)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{N}_{emn}(k, \mathbf{r}) = & \frac{z_n(\rho)}{\rho} \cos m\varphi n(n+1) P_n^m(\cos \theta) \hat{\mathbf{e}}_r + \\ & + \cos m\varphi \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \hat{\mathbf{e}}_{\theta} - \\ & - m \sin m\varphi \frac{P_n^m(\cos \theta)}{\sin \theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \hat{\mathbf{e}}_{\varphi} \end{aligned} \quad (95)$$

$$\begin{aligned}
\mathbf{N}_{omn}(k, \mathbf{r}) = & \frac{z_n(\rho)}{\rho} \sin m\varphi n(n+1) P_n^m(\cos \theta) \hat{\mathbf{e}}_r + \\
& + \sin m\varphi \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \hat{\mathbf{e}}_\theta + \\
& + m \cos m\varphi \frac{P_n^m(\cos \theta)}{\sin \theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \hat{\mathbf{e}}_\varphi,
\end{aligned} \tag{96}$$

где введена безразмерная переменная $\rho = kr$.

Векторные сферические гармоники удовлетворяют отношениям ортогональности [136]

$$\begin{aligned}
& \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \mathbf{M}_{\circ mn} \cdot \mathbf{M}_{\circ mn} \sin \vartheta d\vartheta d\varphi = \\
& = (1 + \delta_{m,0}) \frac{2\pi}{2n+1} \frac{(n+m)!}{(n-m)!} n(n+1) [z_n(\rho)]^2 \\
& \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \mathbf{N}_{\circ mn} \cdot \mathbf{N}_{\circ mn} \sin \vartheta d\vartheta d\varphi = \\
& = (1 + \delta_{m,0}) \frac{2\pi}{(2n+1)^2} \frac{(n+m)!}{(n-m)!} n(n+1) \left\{ (n+1) [z_{n-1}(\rho)]^2 + n [z_{n+1}(\rho)]^2 \right\}.
\end{aligned} \tag{97}$$

ПРИЛОЖЕНИЕ Б

Мультипольное разложение плоской волны по векторным сферическим гармоникам

Мультипольное разложение плоской х-поляризованной волны, падающей вдоль оси z, по векторным сферическим гармоникам имеет следующий вид, процедура получения которого подробно описана в [123]

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^{\text{wave},x}(\mathbf{r}) &= E_0 e^{ikr \cos \theta} \hat{\mathbf{e}}_x = \sum_{n=1}^{\infty} (A_{e1n} \mathbf{N}_{e1n} + B_{o1n} \mathbf{M}_{o1n}) = \quad (98) \\ &= E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (-i \mathbf{N}_{e1n} + \mathbf{M}_{o1n}). \end{aligned}$$

Для того, чтобы разложить плоскую у-поляризованную волну, падающую вдоль оси z, по векторным сферическим гармоникам, необязательно пользоваться теми же самыми рассуждениями, что и для х-поляризованной [123]. Можно получить ответ напрямую из мультипольного разложения х-поляризованной (98), а именно повернув его на $\pi/2$ вокруг оси z: повернув векторные сферические гармоники $\mathbf{N}_{e1n}, \mathbf{M}_{o1n}$ на $\pi/2$ вокруг оси z. На этом этапе следует отметить, что при поворотах векторные сферические гармоники ведут себя симметрично точно так же, как порождающие их скалярные функции, то есть как ψ_{e1n}, ψ_{o1n} , соответственно (91). Рассмотрим отдельно скалярные функции ψ_{e11}, ψ_{o11} . Пользуясь явным видом присоединенной функции Лежандра первого рода и связью сферической и декартовой систем координат, можно получить следующие соотношения: $\psi_{e11} = \cos \varphi \sin \theta z_1(kr) = x z_1(kr)$ и $\psi_{o11} = \sin \varphi \sin \theta z_1(kr) = y z_1(kr)$. Таким образом, из полученных выражений для ψ_{e11}, ψ_{o11} можно сделать вывод: при поворотах $\mathbf{N}_{e11}, \mathbf{M}_{o11}$ ведут себя как ψ_{e11}, ψ_{o11} , то есть как x, y , соответственно. В итоге, при повороте на $\pi/2$ вокруг оси z электрическая гармоника \mathbf{N}_{e11} перейдет в \mathbf{N}_{o11} , а магнитная \mathbf{M}_{o11} — в $-\mathbf{M}_{e11}$. То, что более старшие гармоники ведут себя симметрично аналогичным образом, необходимо проверить в отдельном порядке, однако оставим это доказательство вне рамок работы и запишем вывод: при повороте на $\pi/2$ вокруг оси z векторные электрические сферические гармоники $\mathbf{N}_{e1n} \rightarrow \mathbf{N}_{o1n}$, а магнитные $\mathbf{M}_{o1n} \rightarrow -\mathbf{M}_{e1n}$. Соответственно, мультипольное разложение плоской у-поляризованной волны, падающей вдоль оси z, по векторным сферическим гармоникам имеет

следующий вид

$$\begin{aligned}\mathbf{E}^{\text{wave},y}(\mathbf{r}) &= E_0 e^{ikr \cos \theta} \hat{\mathbf{e}}_y = \sum_{n=1}^{\infty} (A_{o1n} \mathbf{N}_{o1n} + B_{e1n} \mathbf{M}_{e1n}) = \\ &= E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} (-i \mathbf{N}_{o1n} - \mathbf{M}_{e1n}).\end{aligned}\quad (99)$$

Таким образом, разложение циркулярно поляризованной плоской волны, падающей вдоль оси z , по векторным сферическим гармоникам с учетом (98) и (99) представимо следующим образом

$$\begin{aligned}\mathbf{E}^{\text{wave}}(\mathbf{r}) &= \mathbf{E}^{\text{wave},x}(\mathbf{r}) \pm i \mathbf{E}^{\text{wave},y}(\mathbf{r}) = \\ &= \sum_{n=1}^{\infty} \{(A_{e1n} \mathbf{N}_{e1n} + B_{o1n} \mathbf{M}_{o1n}) \pm i (A_{o1n} \mathbf{N}_{o1n} + B_{e1n} \mathbf{M}_{e1n})\} = \\ &= E_0 \sum_{n=1}^{\infty} i^n \frac{2n+1}{n(n+1)} \{(-i \mathbf{N}_{e1n} + \mathbf{M}_{o1n}) \pm i (-i \mathbf{N}_{o1n} - \mathbf{M}_{e1n})\},\end{aligned}\quad (100)$$

где \pm соответствует левой (ЛКП) и правой (ПКП) циркулярной поляризации падающей волны, соответственно.

ПРИЛОЖЕНИЕ В

Пример представления тензора нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ в цилиндрических координатах

Тензор нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ кристаллической решетки GaAs[001]||z, обладающей группой симметрии правильного тетраэдра Td, имеет всего одну независимую компоненту $\chi_{xyz} = \chi_{yxz} = \chi_{xzy} = \chi_{yzx} = \chi_{zxy} = \chi_{zyx} = \chi$. Используя введенное ранее представление тензора третьего ранга в виде $\hat{\chi}^{(2)} = \chi_{\alpha\beta\gamma} \hat{\mathbf{e}}_\alpha \hat{\mathbf{e}}_\beta \hat{\mathbf{e}}_\gamma$ и соотношения между базисными векторами декартовой и цилиндрической системы координат (7), можно представить тензор $\hat{\chi}^{(2)}$ в цилиндрических координатах. Рассмотрим только две ненулевые компоненты тензора $\hat{\chi}^{(2)}$

$$\begin{aligned} \chi_{zyx} \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_y \hat{\mathbf{e}}_x = \chi \left(\sin \varphi \cos \varphi \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_r \hat{\mathbf{e}}_r - \sin^2 \varphi \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_r \hat{\mathbf{e}}_\varphi + \right. \\ \left. + \cos^2 \varphi \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_\varphi \hat{\mathbf{e}}_r - \sin \varphi \cos \varphi \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_\varphi \hat{\mathbf{e}}_\varphi \right) \end{aligned} \quad (101)$$

$$\begin{aligned} \chi_{zxy} \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_x \hat{\mathbf{e}}_y = \chi \left(\sin \varphi \cos \varphi \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_r \hat{\mathbf{e}}_r + \cos^2 \varphi \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_r \hat{\mathbf{e}}_\varphi - \right. \\ \left. - \sin^2 \varphi \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_\varphi \hat{\mathbf{e}}_r - \sin \varphi \cos \varphi \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_\varphi \hat{\mathbf{e}}_\varphi \right) \end{aligned} \quad (102)$$

и их сумму

$$\begin{aligned} \chi_{zyx} \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_y \hat{\mathbf{e}}_x + \chi_{zxy} \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_x \hat{\mathbf{e}}_y = \chi \left(\hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_y \hat{\mathbf{e}}_x + \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_x \hat{\mathbf{e}}_y \right) = \\ = \chi \sin [2\varphi] \left(\hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_r \hat{\mathbf{e}}_r - \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_\varphi \hat{\mathbf{e}}_\varphi \right) + \chi \cos [2\varphi] \left(\hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_\varphi \hat{\mathbf{e}}_r + \hat{\mathbf{e}}_z \hat{\mathbf{e}}_r \hat{\mathbf{e}}_\varphi \right). \end{aligned} \quad (103)$$

Остальные ненулевые компоненты тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ после идентичных преобразований будут таким же образом зависеть от угла поворота φ , как $\sin [2\varphi]$ и $\cos [2\varphi]$. При этом, стоит отметить, что, во-первых, в работе не требуется знать точное выражение тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ в цилиндрических координатах, для симметричного анализа необходимо только его симметричное поведение при поворотах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях. Во-вторых, базисные векторы $\hat{\mathbf{e}}_\varphi$ меняют знак при $\varphi \rightarrow -\varphi$. С учетом вышесказанного, пользуясь выражением (103), можно утверждать, что при по-

воротах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях тензор нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ кристаллической решетки GaAs[001]|| z симметрично ведет себя как $\sin [2\varphi]$. Кроме того, поскольку кристаллографические оси кристаллической решетки в работе могут быть повернуты вокруг оси z на угол β , тензор $\hat{\chi}^{(2)}$ ведет себя как $\sin [2(\varphi - \beta)]$. Аналогичная процедура может быть проделана с тензором нелинейной восприимчивости $\hat{\chi}^{(2)}$ любой другой кристаллической решетки. Однако поскольку для других кристаллических решеток с большим числом независимых компонент расчеты могут оказаться не столь прозрачными и более громоздкими, важно еще раз подчеркнуть, что в работе требуется только симметричное поведение тензора $\hat{\chi}^{(2)}$ при поворотах вокруг оси z и отражениях в вертикальных плоскостях, но не точное его выражение. Последним комментарием стоит отметить, что тензор $\hat{\chi}^{(2)}$ любой кристаллической решетки — тензор третьего ранга, поэтому он не может себя ввести как $\sin [k\varphi]$ (или $\cos [k\varphi]$), где $k \geq 4$.