

## 03 Генерация суммарной частоты от тонкого сферического слоя. I. Аналитическое решение

© В.Н. Капшай, А.А. Шамына

Гомельский государственный университет им. Ф. Скорины,  
246019 Гомель, Беларусь

e-mail: anton.shamyna@gmail.com, kapshai@rambler.ru

Поступила в редакцию 22.02.2018 г.

В тензорном виде в обобщенном приближении Релея–Ганса–Дебая решена задача о генерации гармоники суммарной частоты от тонкого нелинейного слоя, нанесенного на диэлектрическую сферическую частицу, помещенную в диэлектрическую среду. Тензор нелинейной диэлектрической восприимчивости второго порядка выбран в общей форме, содержащей киральные компоненты. В векторной и тензорной формах получены выражения, описывающие пространственное распределение поля излучения суммарной частоты, генерируемого двумя плоскими электромагнитными эллиптически поляризованными волнами. Получены предельные выражения, описывающие пространственное распределение гармоники суммарной частоты при малых и больших радиусах сферического слоя. Обнаружено, что при малых радиусах сферического слоя излучение, обусловленное киральными коэффициентами анизотропии, вносит доминирующий вклад в генерацию.

DOI: 10.21883/OS.2018.06.46083.55-18

### Введение

Дипольная модель, используемая для описания нелинейных оптических явлений, запрещает нелинейные эффекты второго порядка в центросимметричных средах. Это ограничение снимается при рассмотрении эффектов на поверхности частиц, где условие центросимметричности нарушается [1]. Преимуществом основанного на этом метода исследования поверхностей частиц перед другими является его избирательность, так как отсутствует сигнал суммарной частоты от их объема (если они расположены хаотично) и среды, в которую помещены частицы. Для усиления нелинейного сигнала часто прибегают к нанесению красителей, обладающих нелинейными оптическими свойствами, на исследуемые частицы [2–7]. Чаще других в научной литературе в роли красителей выступают малахитовый зеленый и пиридин. В работах [2–7] экспериментально исследованы их нелинейные свойства при генерации второй гармоники.

Одним из важнейших параметров, влияющих на нелинейные эффекты второго порядка от поверхности частицы, является ее размер [2–9]. Поэтому роль модели Релея–Ганса–Дебая возросла, когда стало возможным экспериментально зафиксировать излучение второй гармоники от поверхности частиц размером порядка 50 nm [4]. Сложности с этим возникали из-за того, что для малых частиц (значительно меньших длины волны падающего излучения) молекулы красителя, не обладающего киральными свойствами, на противоположных концах диаметра испускают электромагнитные волны, находящиеся почти в противофазе, вызывая значительное ослабление регистрируемого сигнала.

Нелинейные оптические эффекты от поверхностей могут быть использованы для определения поверхностной плотности адсорбированного вещества, поверхностного потенциала, свободной энергии [10], пространственной ориентации адсорбированных молекул [11]. Причем это возможно для адсорбированных красителей и поверхностно активных веществ на поверхности полистироловых шариков [2,3,7]. В медицине с помощью нелинейных оптических эффектов были исследованы мембраны липосом [12] и других везикул [13].

### Дипольная модель

#### Приближение Релея–Ганса–Дебая

В дипольной модели генерация гармоники суммарной частоты математически описывается нелинейной частью поляризации  $\mathbf{P}^{(2)}$ , компоненты которой в общем виде можно записать с использованием правила суммирования по повторяющимся индексам:

$$P_i^{(2)} = \chi_{ijk}^{(2)} E_j^{(1)} E_k^{(2)}, \quad (1)$$

где  $\chi_{ijk}^{(2)}$  — тензор диэлектрической восприимчивости второго порядка,  $E_j^{(1)}$ ,  $E_k^{(2)}$  — компоненты векторов напряженности электрического поля падающих волн. Для центросимметричных сред все компоненты тензора  $\chi_{ijk}^{(2)}$  равны нулю из-за выполнения свойств симметрии относительно поворотов и инверсии, и явление генерации гармоники суммарной частоты не наблюдается.

Точный расчет гармоники суммарной частоты требует учета рассеяния на границе раздела, что сильно усложняет задачу. Поэтому мы применим приближения

Релея–Ганса–Дебая. Оно заключается в том, что рассеяние на границе раздела считается слабым, и нелинейная часть поляризации создается только падающими электромагнитными волнами (без учета рассеянных). Данная модель накладывает ограничения на возможные значения размера слоя и показателей преломления сред:

$$\left| \frac{n_p}{n_m} - 1 \right| \ll 1, \quad 4\pi \frac{R}{\lambda} \left| \frac{n_p}{n_m} - 1 \right| \ll 1. \quad (2)$$

Здесь  $n_p$  и  $n_m$  — показатели преломления диэлектрической частицы под нелинейным слоем и окружающей среды,  $R$  — характерный размер частицы (для сферической частицы — ее радиус),  $\lambda$  — длина волны падающего излучения.

Общий вид падающих электромагнитных волн в задаче выберем в форме

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}, t) = E_0 \mathbf{e} \exp(i\mathbf{k}\mathbf{x} - i\omega t), \quad (3)$$

где  $E_0$  — комплексная амплитуда волны,  $\mathbf{e}$  — единичный комплексный вектор поляризации (в общем случае эллиптической поляризации),  $\mathbf{k}$  — волновой вектор,  $\omega$  — соответствующие циклические частоты.

### Уравнения Максвелла

Рассмотрим генерацию только от тонкого нелинейного слоя на поверхности диэлектрической сферы, помещенной в диэлектрик. Тогда индукция электрического поля зависит от напряженности электрического поля в точке  $\mathbf{x}$  следующим образом (здесь и далее используется Гауссова система единиц):

$$\mathbf{D}(\mathbf{x}, t) = \varepsilon \mathbf{E}(\mathbf{x}, t) + 4\pi \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}, t), \quad (4)$$

где вектор  $\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}, t)$  отличается от нуля только в объеме нелинейного слоя на поверхности сферы,  $\varepsilon$  — диэлектрическая проницаемость среды. Индукция магнитного поля зависит от напряженности магнитного поля линейно ( $\mu$  — магнитная проницаемость среды):

$$\mathbf{B}(\mathbf{x}, t) = \mu \mathbf{H}(\mathbf{x}, t). \quad (5)$$

Тогда используя уравнения Максвелла, стандартным образом вводя потенциалы  $\mathbf{A}(\mathbf{x}, t)$  и  $\Phi(\mathbf{x}, t)$  и используя калибровку Лоренца, получаем для векторного потенциала  $\mathbf{A}(\mathbf{x}, t)$  уравнение

$$\frac{\varepsilon\mu}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} \mathbf{A}(\mathbf{x}, t) - \nabla^2 \mathbf{A}(\mathbf{x}, t) = \mu \frac{4\pi}{c} \frac{\partial \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}, t)}{\partial t}. \quad (6)$$

Поскольку нелинейная поляризация  $\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}, t)$  обусловлена падающими монохроматическими волнами, то ее зависимость от времени имеет вид  $\exp(-i\omega_p t)$ , где  $\omega_p$  — циклическая частота гармонических колебаний вектора  $\mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}, t)$  (в данной работе  $\omega_p$  — суммарная частота). Частное решение неоднородного уравнения (6) будем

искать в виде  $\mathbf{A}(\mathbf{x}, t) = \mathbf{A}(\mathbf{x}) \exp(-i\omega_p t)$ , тогда для  $\mathbf{A}(\mathbf{x})$  имеем неоднородное уравнение Гельмгольца

$$\nabla^2 \mathbf{A}(\mathbf{x}) + \varepsilon\mu k_p^2 \mathbf{A}(\mathbf{x}) = 4\pi i\mu k_p \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}), \quad (7)$$

$$k_p = \omega_p/c,$$

из которого векторный потенциал  $\mathbf{A}(\mathbf{x})$  находится методом функции Грина [14]:

$$\mathbf{A}(\mathbf{x}) = -ik_p \mu \int_V \frac{e^{ik_p \sqrt{\varepsilon\mu} |\mathbf{x} - \mathbf{x}'|}}{|\mathbf{x} - \mathbf{x}'|} \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}') d^3 \mathbf{x}'. \quad (8)$$

Затем воспользуемся приближением для дальней зоны:

$$\exp(ik_p |\mathbf{x} - \mathbf{x}'|) \approx \exp(ik_p r) \exp(-i\mathbf{k}^{(P)} \mathbf{x}'), \quad (9)$$

$$|\mathbf{x}| \gg |\mathbf{x}'|,$$

где  $r = |\mathbf{x}|$ , а вектор  $\mathbf{k}^{(P)} = k_p \sqrt{\varepsilon\mu} \mathbf{e}_r$  выражается через  $\mathbf{e}_r$  — один из базисных векторов ( $\mathbf{e}_r, \mathbf{e}_\theta, \mathbf{e}_\varphi$ ) сферической системы координат ( $r, \theta, \varphi$ ), тогда

$$\mathbf{A}(\mathbf{x}) = -ik_p \mu \frac{e^{ik_p \sqrt{\varepsilon\mu} r}}{r} \times \int_V \exp(-i\mathbf{k}^{(P)} \mathbf{x}') \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}') d^3 \mathbf{x}'. \quad (10)$$

Индукцию магнитного поля и напряженность электрического поля генерируемой волны в дальней зоне можно найти затем по следующим формулам:

$$\mathbf{B}(\mathbf{x}) = \text{rot } \mathbf{A}(\mathbf{x}) \approx \mu k_p^2 \sqrt{\varepsilon\mu} \frac{e^{ik_p \sqrt{\varepsilon\mu} r}}{r} \times \left[ \mathbf{e}_r \times \int_V \exp(-i\mathbf{k}^{(P)} \mathbf{x}') \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}') d^3 \mathbf{x}' \right], \quad (11)$$

$$\mathbf{E}(\mathbf{x}) = \frac{i}{\left(\frac{\omega}{c} \varepsilon\mu\right)} \text{rot } \mathbf{B}(\mathbf{x}) \approx \mu k_p^2 \frac{e^{ik_p \sqrt{\varepsilon\mu} r}}{r} \times \left[ \left[ \mathbf{e}_r \times \int_V \exp(-i\mathbf{k}^{(P)} \mathbf{x}') \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}') d^3 \mathbf{x}' \right] \times \mathbf{e}_r \right] = \mu k_p^2 \frac{e^{ik_p \sqrt{\varepsilon\mu} r}}{r} (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \times \int_V \exp(-i\mathbf{k}^{(P)} \mathbf{x}') \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}') d^3 \mathbf{x}', \quad (12)$$

где символ  $\otimes$  означает тензорное произведение векторов, а для векторного произведения используется обозначение  $[\mathbf{a} \times \mathbf{b}]$ , где  $\mathbf{a}$  и  $\mathbf{b}$  — произвольные векторы.

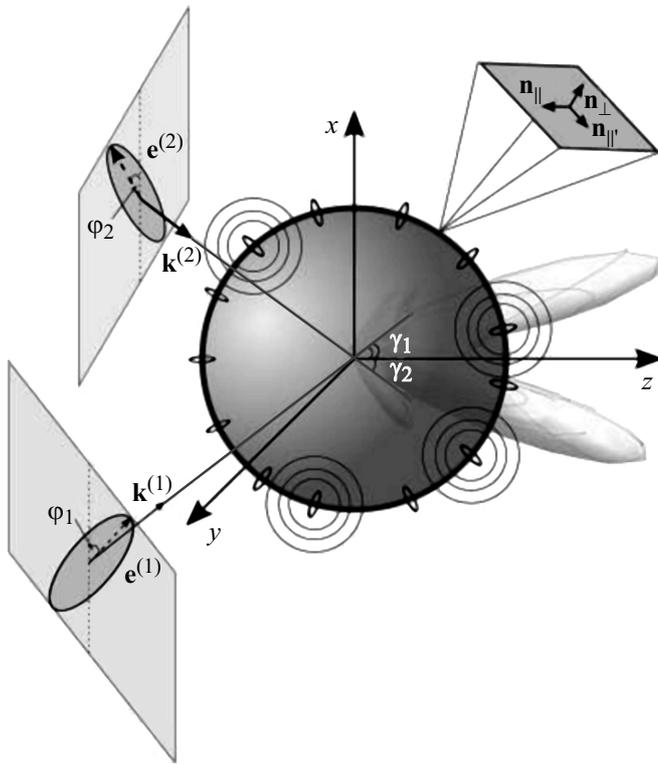


Схема задачи о генерации излучения суммарной частоты.

### Генерация гармоник суммарной частоты в обобщенной модели Релея–Ганса–Дебая

#### Аналитическое решение

Для решения задачи используем подход, описанный нами в работах [15,16]. Расположим сферическую частицу радиуса  $a$ , покрытую тонким нелинейным слоем толщины  $d_0 \ll a$ , таким образом, чтобы ее центр совпадал с центром сферической системы координат (рисунок). Записав выражение (12) для напряженности электрического поля гармоник суммарной частоты  $\mathbf{E}^{(12)}(\mathbf{x})$ , получим

$$\mathbf{E}^{(12)}(\mathbf{x}) = (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \mu_{12} \frac{(\omega_{12})^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{12}r)}{r} \times \int_V \exp(-ik^{(12)}\mathbf{x}') \mathbf{P}^{(2)}(\mathbf{x}') d\mathbf{x}', \quad (13)$$

где  $\omega_{12} = \omega_1 + \omega_2$  — циклическая частота генерируемых волн,  $\mathbf{k}^{(12)}$  — волновой вектор гармоник суммарной частоты,  $k_{12} = |\mathbf{k}^{(12)}| = \sqrt{\epsilon_{12}\mu_{12}} \frac{\omega_{12}}{c}$ ,  $\epsilon_{12}$ ,  $\mu_{12}$  — диэлектрическая и магнитная проницаемости среды на частоте  $\omega_{12}$ . Интегрирование ведется по всему объему нелинейного сферического слоя  $V$ .

Пусть векторы напряженности электрического поля падающих электромагнитных волн задаются уравнениями:

$$\mathbf{E}^{(1)}(\mathbf{x}) = E_1 \mathbf{e}^{(1)} \exp(i\mathbf{k}^{(1)}\mathbf{x}),$$

$$\mathbf{E}^{(2)}(\mathbf{x}) = E_2 \mathbf{e}^{(2)} \exp(i\mathbf{k}^{(2)}\mathbf{x}), \quad (14)$$

где  $\mathbf{k}^{(1)}$  и  $\mathbf{k}^{(2)}$  — волновые векторы падающих электромагнитных волн, а  $\mathbf{e}^{(1)}$  и  $\mathbf{e}^{(2)}$  — векторы поляризации падающих волн. Обозначения аналогичны указанным для уравнения (3). Тогда, подставляя (14) в (1), а результат в (13), получим

$$E_i^{(12)}(\mathbf{x}) = \mu_{12} \frac{(\omega_{12})^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{12}r)}{r} E_1 E_2 \times (\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) e_j^{(1)} e_k^{(2)} \int_{4\pi} d\Omega_{\mathbf{x}'} \times \int_a^{a+d_0} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}') \chi_{mjk}^{(2)}(\mathbf{x}') r'^2 dr', \quad (15)$$

где  $\mathbf{q}$  — вектор рассеяния, вычисляемый по формуле

$$\mathbf{q} = \mathbf{k}^{(1)} + \mathbf{k}^{(2)} - \mathbf{k}^{(12)}, \quad q = |\mathbf{q}|. \quad (16)$$

После вычисления интеграла по  $r'$  в (15) получаем выражение, где интегрирование ведется по телесному углу:

$$E_i^{(12)}(\mathbf{x}) = \mu_{12} \frac{(\omega_{12})^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{12}r)}{r} d_0 a^2 E_1 E_2 \times (\delta_{im} - e_{r,i}e_{r,m}) e_j^{(1)} e_k^{(2)} \times \int_{4\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}') \chi_{mjk}^{(2)}(\mathbf{x}') d\Omega_{\mathbf{x}'} \quad (17)$$

Тензор  $\chi_{mjk}^{(2)}$  в выражении (17) в самом общем виде содержит 27 компонент. Выполнение свойств симметрии при поворотах и инверсии приводят к тому, что только 7 из них остаются независимыми. Тогда тензор нелинейной диэлектрической восприимчивости второго порядка для поверхности можно представить в виде

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_1^{(2)} n_i n_j n_k + \chi_2^{(2)} n_i \delta_{jk} + \chi_3^{(2)} n_j \delta_{ki} + \chi_4^{(2)} n_k \delta_{ij} + \chi_5^{(2)} n_m n_i \epsilon_{mjk} + \chi_6^{(2)} n_m n_k \epsilon_{ijm} + \chi_7^{(2)} n_m n_j \epsilon_{imk}. \quad (18)$$

Здесь  $n_i$  — компоненты вектора нормали  $\mathbf{n}$  к поверхности,  $\delta_{ij}$  — дельта-символ Кронекера,  $\epsilon_{ijk}$  — символ Леви-Чивита,  $\chi_{1-7}^{(2)}$  — значения независимых

компонент тензора диэлектрической восприимчивости. Последние три коэффициента  $\chi_{5-7}^{(2)}$  в (18) называют киральными, они возможны только при наличии у слоя киральных свойств. В отсутствие этих свойств ( $\chi_{5-7}^{(2)} = 0$ ) поверхность обладает зеркальной симметрией. Коэффициенты  $\chi_{1-7}^{(2)}$  связаны с также широко используемыми в научной литературе [4–6,8,17,18] компонентами тензора диэлектрической восприимчивости следующим образом (вывод формул в Приложении А):

$$\begin{aligned}\chi_1^{(2)} &= \chi_{\perp\perp\perp}^{(2)} - \chi_{\perp\parallel\parallel}^{(2)} - \chi_{\parallel\perp\parallel}^{(2)} - \chi_{\parallel\parallel\perp}^{(2)}, \\ \chi_2^{(2)} &= \chi_{\perp\parallel\parallel}^{(2)} = \chi_{\perp\parallel'\parallel'}^{(2)}, \quad \chi_3^{(2)} = \chi_{\parallel\perp\parallel}^{(2)} = \chi_{\parallel'\perp\parallel'}^{(2)}, \\ \chi_4^{(2)} &= \chi_{\parallel\parallel\perp}^{(2)} = \chi_{\parallel'\parallel'\perp}^{(2)}, \\ \chi_5^{(2)} &= \chi_{\perp\parallel\parallel'}^{(2)} = -\chi_{\perp\parallel'\parallel}^{(2)}, \\ \chi_6^{(2)} &= \chi_{\parallel\parallel'\perp}^{(2)} = -\chi_{\parallel'\parallel\perp}^{(2)}, \\ \chi_7^{(2)} &= \chi_{\parallel'\perp\parallel}^{(2)} = -\chi_{\parallel\perp\parallel'}^{(2)},\end{aligned}\quad (19)$$

где  $\perp, \parallel, \parallel'$  — компоненты тензора вдоль осей, сонаправленных базисным векторам  $\mathbf{n}_\perp = \mathbf{n}, \mathbf{n}_\parallel, \mathbf{n}_{\parallel'}$ , где  $\mathbf{n}_\perp$  перпендикулярен поверхности, а  $\mathbf{n}_\parallel, \mathbf{n}_{\parallel'}$  параллельны поверхности, причем  $\mathbf{n}_\perp, \mathbf{n}_\parallel, \mathbf{n}_{\parallel'}$  образуют правую тройку векторов (рисунок). В дальнейшем для расчетов будут использоваться коэффициенты  $\chi_{1-7}^{(2)}$ , так как в этом случае описывающие генерацию формулы имеют более простой вид.

После подстановки (18) в (17) получаем выражение с тремя следующими интегралами (подробный вывод в Приложении В), где индексы  $i, j, k = x, y, z$ :

$$\int_{4\pi} \exp(i\mathbf{a}\mathbf{q}\mathbf{n}) n_k d\Omega_{\mathbf{x}'} = 4\pi i v_k j_1(qa), \quad (20)$$

$$\begin{aligned}\int_{4\pi} \exp(i\mathbf{a}\mathbf{q}\mathbf{n}) n_i n_j d\Omega_{\mathbf{x}'} \\ = 4\pi \left[ \delta_{ij} \frac{1}{3} (j_0(qa) + j_2(qa)) - v_i v_j j_2(qa) \right],\end{aligned}\quad (21)$$

$$\begin{aligned}\int_{4\pi} \exp(i\mathbf{a}\mathbf{q}\mathbf{n}) n_i n_j n_k d\Omega_{\mathbf{x}'} = 4\pi i \left[ \frac{1}{5} (j_1(qa) + j_3(qa)) \right. \\ \left. \times (v_i \delta_{jk} + v_j \delta_{ki} + v_k \delta_{ij}) - j_3(qa) v_i v_j v_k \right],\end{aligned}\quad (22)$$

где  $j_m(z)$  — сферические функции Бесселя порядка  $m$ ,  $v_i$  — компоненты единичного вектора вдоль  $\mathbf{q}$ , а символ  $i$  вне индексов означает мнимую единицу. Пользуясь (20)–(22), получаем выражение для тензора

эффективной нелинейной диэлектрической восприимчивости:

$$\begin{aligned}\mathbf{X}_{ijk}^{(12)} &= \frac{1}{4\pi} \int_{4\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}') \chi_{ijk}^{(2)}(\mathbf{x}') d\Omega_{\mathbf{x}'} \\ &= i\chi_1^{(2)} \left[ -j_3(qa) v_i v_j v_k + \frac{1}{5} (j_1(qa) + j_3(qa)) \right. \\ &\quad \left. \times (v_i \delta_{jk} + v_j \delta_{ki} + v_k \delta_{ij}) \right] \\ &\quad + i j_1(qa) [\chi_2^{(2)} v_i \delta_{jk} + \chi_3^{(2)} v_j \delta_{ik} + \chi_4^{(2)} v_k \delta_{ij}] \\ &\quad + \frac{1}{3} (j_0(qa) + j_2(qa)) (\chi_5^{(2)} + \chi_6^{(2)} + \chi_7^{(2)}) \varepsilon_{ijk} \\ &\quad - j_2(qa) (\chi_5^{(2)} v_i v_m \varepsilon_{mjk} + \chi_6^{(2)} v_k v_m \varepsilon_{ijm} \\ &\quad + \chi_7^{(2)} v_j v_m \varepsilon_{imk}).\end{aligned}\quad (23)$$

Вектор  $\mathbf{f}^{(12)}$ , компоненты которого определяются по формуле  $f_i^{(12)} = \mathbf{X}_{ijk}^{(12)} e_j^{(1)} e_k^{(2)}$ , запишется следующим образом:

$$\begin{aligned}\mathbf{f}^{(12)} &= i\chi_1^{(2)} \left( -j_3(qa) \mathbf{v} (\mathbf{v} \mathbf{e}^{(1)}) (\mathbf{v} \mathbf{e}^{(2)}) \right. \\ &\quad \left. + \frac{1}{5} (j_1(qa) + j_3(qa)) \right. \\ &\quad \left. \times (\mathbf{v} (\mathbf{e}^{(1)} \mathbf{e}^{(2)}) + \mathbf{e}^{(2)} (\mathbf{v} \mathbf{e}^{(1)}) + \mathbf{e}^{(1)} (\mathbf{v} \mathbf{e}^{(2)})) \right) \\ &\quad + i j_1(qa) (\chi_2^{(2)} \mathbf{v} (\mathbf{e}^{(1)} \mathbf{e}^{(2)}) + \chi_3^{(2)} \mathbf{e}^{(2)} (\mathbf{v} \mathbf{e}^{(1)}) \\ &\quad + \chi_4^{(2)} \mathbf{e}^{(1)} (\mathbf{v} \mathbf{e}^{(2)})) + \frac{1}{3} (j_0(qa) + j_2(qa)) \\ &\quad \times (\chi_5^{(2)} + \chi_6^{(2)} + \chi_7^{(2)}) [\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{e}^{(2)}] \\ &\quad - j_2(qa) (\chi_5^{(2)} \mathbf{v} (\mathbf{v} [\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{e}^{(2)}]) \\ &\quad + \chi_6^{(2)} [\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{v}] (\mathbf{v} \mathbf{e}^{(2)}) \\ &\quad + \chi_7^{(2)} [\mathbf{v} \times \mathbf{e}^{(2)}) (\mathbf{v} \mathbf{e}^{(1)})].\end{aligned}\quad (24)$$

Можно заметить, что киральная часть вектора  $\mathbf{f}^{(12)}$  в (24) отличается от некиральной по фазе на множитель  $i$ , как и при генерации второй гармоники.

Тогда формула для вектора электрического поля гармоники суммарной частоты принимает следующий вид:

$$\mathbf{E}^{(12)}(\mathbf{x}) = 4\pi\mu_{12} \frac{\omega_{12}^2}{c^2} \frac{\exp(ik_{12}r)}{r} \times d_0 a^2 E_1 E_2 (1 - \mathbf{e}_r \otimes \mathbf{e}_r) \mathbf{f}^{(12)}. \quad (25)$$

Магнитную индукцию  $\mathbf{B}^{(12)}$  поля гармоники суммарной частоты, а затем магнитную напряженность  $\mathbf{H}^{(12)}$  можно найти по формуле (11), проделывая совершенно аналогичные вычисления. Но можно также найти вектор магнитной напряженности  $\mathbf{H}^{(12)}$ , используя (25) и уравнения Максвелла. В обоих случаях получаем одинаковый результат:

$$\begin{aligned} \mathbf{H}^{(12)}(\mathbf{x}) &= \frac{1}{\mu_{12}} \frac{c}{i\omega_{12}} \text{rot } \mathbf{E}^{(12)}(\mathbf{x}) \\ &= \frac{n_{12}}{\mu_{12}} [\mathbf{e}_r \times \mathbf{E}^{(12)}(\mathbf{x})], \end{aligned} \quad (26)$$

где  $n_{12}$  — показатель преломления окружающей частицы среды на частоте  $\omega_{12}$ .

Наиболее удобной для наблюдения характеристикой излучения является его мощность, поэтому целесообразно получить выражение для радиальной компоненты вектора Умова–Пойнтинга в дальней зоне на основе выражений (25) и (26):

$$\begin{aligned} S_r^{(12)}(\mathbf{x}) &= \frac{1}{2} \frac{c}{4\pi} \text{Re} \left[ \mathbf{E}^{(12)}(\mathbf{x}) \times (\mathbf{H}^{(12)}(\mathbf{x}))^* \right]_r \\ &= \frac{c}{8\pi} \frac{n_{12}}{\mu_{12}} |\mathbf{E}^{(12)}(\mathbf{x})|^2. \end{aligned} \quad (27)$$

Здесь символ \* означает комплексное сопряжение.

В частном случае, когда  $\gamma = 0$ ,  $\omega_1 = \omega_2$ ,  $\mathbf{k}^{(1)} = \mathbf{k}^{(2)}$ ,  $\varphi_{\text{in}}^{(1)} = \varphi_{\text{in}}^{(2)}$ ,  $\sigma_1 = \sigma_2$ ,  $E_1 = E_2$  описанное решение задачи о генерации суммарной частоты совпадает с решением задачи о генерации второй гармоники [16].

### Предельные формы решения

Для анализа поведения вектора  $\mathbf{f}^{(12)}$  при предельных значениях радиуса частицы  $a$  будем пользоваться приближенными выражениями сферических функций Бесселя для малых и больших значений аргумента  $z$ :

$$\begin{aligned} j_m(z) &= \frac{z^m}{(2n+1)!!}, \quad z \ll 1, \\ j_m(z) &= \frac{\sin(z - \pi m/2)}{z}, \quad z \gg 1. \end{aligned} \quad (28)$$

Тогда вид вектора  $\mathbf{f}^{(12)}$  при малых значениях радиуса сферического слоя ( $qa \ll 1$ )

$$\begin{aligned} \mathbf{f}^{(12)} &= i \frac{qa}{15} \chi_1^{(2)} (\mathbf{v}(\mathbf{e}^{(1)}\mathbf{e}^{(2)}) + \mathbf{e}^{(2)}(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(1)}) + \mathbf{e}^{(1)}(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(2)})) \\ &+ i \frac{qa}{3} (\chi_2^{(2)} \mathbf{v}(\mathbf{e}^{(1)}\mathbf{e}^{(2)}) + \chi_3^{(2)} \mathbf{e}^{(2)}(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(1)}) + \chi_4^{(2)} \mathbf{e}^{(1)}(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(2)})) \\ &+ \frac{1}{3} (\chi_5^{(2)} + \chi_6^{(2)} + \chi_7^{(2)}) [\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{e}^{(2)}], \end{aligned} \quad (29)$$

а при больших значениях радиуса сферического слоя ( $qa \gg 1$ )

$$\begin{aligned} \mathbf{f}^{(12)} &= -\frac{\cos(qa)}{qa} i \left[ \chi_1^{(2)} \mathbf{v}(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(1)})(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(2)}) + \chi_2^{(2)} \mathbf{v}(\mathbf{e}^{(1)}\mathbf{e}^{(2)}) \right. \\ &+ \chi_3^{(2)} \mathbf{e}^{(2)}(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(1)}) + \chi_4^{(2)} \mathbf{e}^{(1)}(\mathbf{v}\mathbf{e}^{(2)}) \left. \right] \\ &+ \frac{\sin(qa)}{qa} (\chi_5^{(2)} \mathbf{v}(\mathbf{v}[\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{e}^{(2)}]) \\ &+ \chi_6^{(2)} [\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{v}](\mathbf{v}\mathbf{e}^{(2)}) + \chi_7^{(2)} [\mathbf{v} \times \mathbf{e}^{(2)}](\mathbf{v}\mathbf{e}^{(1)})). \end{aligned} \quad (30)$$

Согласно формуле (29), при малых размерах частицы доминирующую роль в генерации гармоники суммарной частоты будут иметь киральные компоненты. Из формулы (27) также получаем, что  $S_r^{(12)} \sim a^4$ . Если же нелинейный слой не обладает киральными свойствами, то  $S_r^{(12)} \sim a^6$ . Также можно заметить, что излучение, обусловленное некиральными компонентами, отсутствует в направлении, для которого  $q = 0$ , тогда как для киральных компонент излучение в этом направлении сохраняется. Выражение (30) дает только приближительную оценку того, как будет меняться диаграмма направленности (характеризует пространственное распределение мощности генерируемого излучения) при увеличении размеров частицы, так как приближение Релея–Ганса–Дебая применимо для больших по сравнению с длиной волны частиц только при хорошем совпадении показателей преломления внутри и вне частицы. Функции  $\cos(qa)/(qa)$  и  $\sin(qa)/(qa)$  имеют ряд максимумов убывающей амплитуды при росте  $q$ , т.е. при отклонении от направления  $q = 0$ . На диаграмме направленности это проявится как множество побочных лепестков. При этом лепесток максимальной длины на диаграмме направленности будет приближаться к направлению  $q = 0$  и становиться уже с увеличением радиуса частицы  $a$ . Для слоя, обладающего только киральными свойствами ( $\chi_{1-4}^{(2)} = 0$ ), этот лепесток, обусловленный слагаемым  $\frac{1}{3}(\chi_5^{(2)} + \chi_6^{(2)} + \chi_7^{(2)})[\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{e}^{(2)}]$  в (29), будет расположен в направлении  $q = 0$  и также становится уже с увеличением радиуса частицы  $a$ .

## Заключение

В настоящей работе с использованием приближения Релея–Ганса–Дебая получены явные выражения для поля суммарной частоты в дальней зоне. Эти выражения можно будет использовать для вычисления вклада каждой из сферических поверхностей, входящих в состав исследуемой частицы, например многослойной частицы. Учет дисперсии, произведенный в полученном решении, расширяет пределы применимости данной модели, что для генерации второй гармоники было показано ранее [6]. Все аналитические формулы, полученные в работе, проверены численно.

Анализ предельных форм решения для больших и малых радиусов сферического слоя показал, что при генерации суммарной частоты от сферического слоя малого радиуса именно излучение, обусловленное киральными коэффициентами  $\chi_{5-7}^{(2)}$ , вносит наибольший вклад в генерируемое поле. Также обнаружено, что количество максимумов в функции, характеризующей пространственное распределение мощности генерируемого излучения, растет с увеличением радиуса сферического слоя. Причем в направлении, для которого вектор рассеяния равен нулю, наблюдается минимум излучения, обусловленного некиральными коэффициентами анизотропии  $\chi_{1-4}^{(2)}$ , и максимум излучения, обусловленного киральными коэффициентами анизотропии  $\chi_{5-7}^{(2)}$ .

## Приложение А

Произведение  $\chi_{ijk}^{(2)} e_j^{(1)} e_k^{(2)}$ , где  $\mathbf{e}^{(1)}$ ,  $\mathbf{e}^{(2)}$  — произвольные векторы, можно представить в векторном виде следующим образом:

$$\begin{aligned} \chi_{ijk}^{(2)} e_j^{(1)} e_k^{(2)} &= \chi_1^{(2)} n_i (n_j e_j^{(1)}) (n_k e_k^{(2)}) \\ &+ \chi_2^{(2)} n_i (\delta_{jk} e_j^{(1)} e_k^{(2)}) \\ &+ \chi_3^{(2)} \delta_{ki} (n_j e_j^{(1)}) e_k^{(2)} + \chi_4^{(2)} \delta_{ij} e_j^{(1)} (n_k e_k^{(2)}) \\ &+ \chi_5^{(2)} n_i n_m (\varepsilon_{mjk} e_j^{(1)} e_k^{(2)}) + \chi_6^{(2)} (n_k e_k^{(2)}) (\varepsilon_{ijm} n_m e_j^{(1)}) \\ &+ \chi_7^{(2)} (n_j e_j^{(1)}) (n_m \varepsilon_{imk} e_k^{(2)}) = \left[ \chi_1^{(2)} \mathbf{n}(\mathbf{ne}^{(1)})(\mathbf{ne}^{(2)}) \right. \\ &+ \chi_2^{(2)} \mathbf{n}(\mathbf{e}^{(1)} \mathbf{e}^{(2)}) + \chi_3^{(2)} \mathbf{e}^{(2)}(\mathbf{ne}^{(1)}) + \chi_4^{(2)} \mathbf{e}^{(1)}(\mathbf{ne}^{(2)}) \\ &+ \chi_5^{(2)} \mathbf{n}(\mathbf{n}[\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{e}^{(2)}]) + \chi_6^{(2)} [\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{n}](\mathbf{ne}^{(2)}) \\ &\left. + \chi_7^{(2)} [\mathbf{n} \times \mathbf{e}^{(2)}](\mathbf{ne}^{(1)}) \right]_i. \end{aligned} \quad (31)$$

Запишем полученное в (31) выражение через компоненты вдоль осей декартовой системы координат, заданной

векторами  $\mathbf{n}_\perp$ ,  $\mathbf{n}_\parallel$ ,  $\mathbf{n}_{\parallel'}$ :

$$\begin{aligned} &\chi_1^{(2)} \mathbf{n}(\mathbf{ne}^{(1)})(\mathbf{ne}^{(2)}) + \chi_2^{(2)} \mathbf{n}(\mathbf{e}^{(1)} \mathbf{e}^{(2)}) + \chi_3^{(2)} \mathbf{e}^{(2)}(\mathbf{ne}^{(1)}) \\ &+ \chi_4^{(2)} \mathbf{e}^{(1)}(\mathbf{ne}^{(2)}) + \chi_5^{(2)} \mathbf{n}(\mathbf{n}[\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{e}^{(2)}]) \\ &+ \chi_6^{(2)} [\mathbf{e}^{(1)} \times \mathbf{n}](\mathbf{ne}^{(2)}) + \chi_7^{(2)} [\mathbf{n} \times \mathbf{e}^{(2)}](\mathbf{ne}^{(1)}) \\ &= \chi_1^{(2)} \mathbf{n}_\perp e_\perp^{(1)} e_\perp^{(2)} + \chi_2^{(2)} \mathbf{n}_\perp (e_\perp^{(1)} e_\perp^{(2)} + e_\parallel^{(1)} e_\parallel^{(2)} + e_\parallel' e_\parallel'^{(2)}) \\ &+ \chi_3^{(2)} (\mathbf{n}_\perp e_\perp^{(2)} + \mathbf{n}_\parallel e_\parallel^{(2)} + \mathbf{n}_{\parallel'} e_\parallel'^{(2)}) e_\perp^{(1)} \\ &+ \chi_4^{(2)} (\mathbf{n}_\perp e_\perp^{(1)} + \mathbf{n}_\parallel e_\parallel^{(1)} + \mathbf{n}_{\parallel'} e_\parallel'^{(1)}) e_\perp^{(2)} \\ &+ \chi_5^{(2)} \mathbf{n}_\perp (e_\parallel^{(1)} e_\parallel'^{(2)} - e_\parallel'^{(1)} e_\parallel^{(2)}) + \chi_6^{(2)} (\mathbf{n}_\parallel e_\parallel^{(1)} - \mathbf{n}_{\parallel'} e_\parallel'^{(1)}) e_\perp^{(2)} \\ &+ \chi_7^{(2)} e_\perp^{(1)} (\mathbf{n}_{\parallel'} e_\parallel'^{(2)} - \mathbf{n}_\parallel e_\parallel^{(2)}) \\ &= \mathbf{n}_\perp (\chi_1^{(2)} + \chi_2^{(2)} + \chi_3^{(2)} + \chi_4^{(2)}) e_\perp^{(1)} e_\perp^{(2)} \\ &+ \mathbf{n}_\perp \chi_2^{(2)} (e_\parallel^{(1)} e_\parallel^{(2)} + e_\parallel'^{(1)} e_\parallel'^{(2)}) + \chi_3^{(2)} e_\perp^{(1)} (\mathbf{n}_\parallel e_\parallel^{(2)} + \mathbf{n}_{\parallel'} e_\parallel'^{(2)}) \\ &+ \chi_4^{(2)} (\mathbf{n}_\parallel e_\parallel^{(1)} + \mathbf{n}_{\parallel'} e_\parallel'^{(1)}) e_\perp^{(2)} + \chi_5^{(2)} \mathbf{n}_\perp (e_\parallel^{(1)} e_\parallel'^{(2)} - e_\parallel'^{(1)} e_\parallel^{(2)}) \\ &+ \chi_6^{(2)} (\mathbf{n}_\parallel e_\parallel'^{(1)} - \mathbf{n}_{\parallel'} e_\parallel^{(1)}) e_\perp^{(2)} + \chi_7^{(2)} e_\perp^{(1)} (\mathbf{n}_{\parallel'} e_\parallel'^{(2)} - \mathbf{n}_\parallel e_\parallel^{(2)}) \\ &= \mathbf{n}_\perp \chi_{\perp\perp\perp}^{(2)} e_\perp^{(1)} e_\perp^{(2)} + \mathbf{n}_\perp \chi_{\perp\parallel\parallel}^{(2)} e_\parallel^{(1)} e_\parallel^{(2)} + \mathbf{n}_\perp \chi_{\perp\parallel\parallel'}^{(2)} e_\parallel'^{(1)} e_\parallel'^{(2)} \\ &+ \mathbf{n}_\parallel \chi_{\parallel\perp\perp}^{(2)} e_\perp^{(1)} e_\perp^{(2)} + \mathbf{n}_\parallel \chi_{\parallel'\perp\perp}^{(2)} e_\perp^{(1)} e_\perp^{(2)} + \mathbf{n}_\parallel \chi_{\parallel\parallel\perp}^{(2)} e_\parallel^{(1)} e_\perp^{(2)} \\ &+ \mathbf{n}_\parallel \chi_{\parallel'\parallel\perp}^{(2)} e_\parallel'^{(1)} e_\perp^{(2)} + \mathbf{n}_\perp \chi_{\perp\parallel\parallel}^{(2)} e_\parallel^{(1)} e_\parallel^{(2)} - \mathbf{n}_\perp \chi_{\perp\parallel\parallel'}^{(2)} e_\parallel'^{(1)} e_\parallel'^{(2)} \\ &+ \mathbf{n}_\parallel \chi_{\parallel\parallel\perp}^{(2)} e_\parallel^{(1)} e_\perp^{(2)} - \mathbf{n}_\parallel \chi_{\parallel'\parallel\perp}^{(2)} e_\parallel'^{(1)} e_\perp^{(2)} \\ &+ \mathbf{n}_\parallel \chi_{\parallel'\perp\parallel}^{(2)} e_\perp^{(1)} e_\parallel^{(2)} - \mathbf{n}_\parallel \chi_{\parallel\perp\parallel}^{(2)} e_\perp^{(1)} e_\parallel^{(2)}. \end{aligned} \quad (32)$$

Здесь выполнена следующая замена:

$$\begin{aligned} \chi_{\perp\perp\perp}^{(2)} &= \chi_1^{(2)} + \chi_2^{(2)} + \chi_3^{(2)} + \chi_4^{(2)}, \quad \chi_{\perp\parallel\parallel}^{(2)} = \chi_{\perp\parallel\parallel'}^{(2)} = \chi_2^{(2)}, \\ \chi_{\parallel\perp\perp}^{(2)} &= \chi_{\parallel'\perp\perp}^{(2)} = \chi_3^{(2)}, \quad \chi_{\parallel\parallel\perp}^{(2)} = \chi_{\parallel'\parallel\perp}^{(2)} = \chi_4^{(2)}, \\ \chi_{\perp\parallel\parallel'}^{(2)} &= -\chi_{\perp\parallel\parallel}^{(2)} = \chi_5^{(2)}, \quad \chi_{\parallel\parallel'\perp}^{(2)} = -\chi_{\parallel\parallel\perp}^{(2)} = \chi_6^{(2)}, \\ \chi_{\parallel'\perp\parallel}^{(2)} &= -\chi_{\parallel\perp\parallel}^{(2)} = \chi_7^{(2)}. \end{aligned} \quad (33)$$

Преобразуя формулы (33), получаем выражения (19).

## Приложение В

Перейдем в систему отсчета, в которой вектор  $\mathbf{q}$  направлен вдоль оси  $Oz'$ . Выражение старых базисных векторов ( $\mathbf{e}_x$ ,  $\mathbf{e}_y$ ,  $\mathbf{e}_z$ ) через новые ( $\mathbf{e}'_x$ ,  $\mathbf{e}'_y$ ,  $\mathbf{e}'_z$ ) при таком

переходе выглядит следующим образом:

$$\begin{bmatrix} \mathbf{e}_x \\ \mathbf{e}_y \\ \mathbf{e}_z \end{bmatrix} = \begin{bmatrix} \cos \theta_q \cos \varphi_q & -\sin \varphi_q & \sin \theta_q \cos \varphi_q \\ \cos \theta_q \sin \varphi_q & \cos \varphi_q & \sin \theta_q \sin \varphi_q \\ -\sin \theta_q & 0 & \cos \theta_q \end{bmatrix} \begin{bmatrix} \mathbf{e}'_x \\ \mathbf{e}'_y \\ \mathbf{e}'_z \end{bmatrix}. \quad (34)$$

Здесь углы  $\theta_q, \varphi_q$  — угловые координаты вектора  $\mathbf{q}$  в старой сферической системе координат. В новой системе координат вектор  $\mathbf{n}$  запишется в виде

$$\mathbf{n} = \sin \theta \cos \varphi \mathbf{e}'_x + \sin \theta \sin \varphi \mathbf{e}'_y + \cos \theta \mathbf{e}'_z. \quad (35)$$

Тогда его проекции на старые базисные векторы равны

$$\begin{aligned} n_x = \mathbf{n} \mathbf{e}_x &= \cos \theta_q \cos \varphi_q \sin \theta \cos \varphi - \sin \varphi_q \sin \theta \sin \varphi \\ &\quad + \sin \theta_q \cos \varphi_q \cos \theta, \\ n_y = \mathbf{n} \mathbf{e}_y &= \cos \theta_q \sin \varphi_q \sin \theta \cos \varphi + \cos \varphi_q \sin \theta \sin \varphi \\ &\quad + \sin \theta_q \sin \varphi_q \cos \theta, \\ n_z = \mathbf{n} \mathbf{e}_z &= -\sin \theta_q \sin \theta \cos \varphi + \cos \theta_q \cos \theta. \end{aligned} \quad (36)$$

Для вычисления (20)–(22) понадобились интегралы

$$\begin{aligned} &\int_0^\pi \exp(iz \cos \theta) \cos^m \theta \sin \theta d\theta \\ &= \frac{2}{i^m} \frac{d^m}{dz^m} j_0(z) = \frac{2}{i^m} j_0^{(m)}(z), \end{aligned} \quad (37)$$

где верхний индекс ( $m$ ) означает производную порядка  $m$  по аргументу.

Подставляя (36) в формулу (20) для индекса  $k = z$ , получаем интеграл

$$\begin{aligned} &\int_{4\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}) n_z d\Omega_{\mathbf{x}'} \\ &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(iqa \cos \theta) (\mathbf{n} \mathbf{e}_z) d\varphi \\ &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(iqa \cos \theta) \\ &\quad \times (-\sin \theta_q \sin \theta \cos \varphi + \cos \theta_q \cos \theta) d\varphi \\ &= 2\pi \cos \theta_q \int_0^\pi \exp(iqa \cos \theta) \cos \theta \sin \theta d\theta \\ &= -4\pi i \cos \theta_q j_0^{(1)}(qa) = -4\pi i v_z j_0^{(1)}(qa). \end{aligned} \quad (38)$$

Здесь  $v_z$  —  $z$ -компонента единичного вектора  $\mathbf{v}$  вдоль вектора  $\mathbf{q}$  в старой системе координат. Аналогично

вычисляя интегралы для индексов  $k = x$  и  $k = y$  и применяя рекуррентное соотношение

$$(2m + 1)j_m^{(1)}(z) = mj_{m-1}(z) - (m + 1)j_{m+1}(z), \quad (39)$$

получаем формулу (20).

Для вычисления интеграла (21) воспользуемся этим же переходом в новую систему отсчета. Рассмотрим случай  $i = j = z$ :

$$\begin{aligned} &\int_{4\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}) (n_z)^2 d\Omega_{\mathbf{x}'} = \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{n}a) (\mathbf{n} \mathbf{e}_z)^2 d\varphi \\ &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(iqa \cos \theta) (-\sin \theta_q \sin \theta \cos \varphi \\ &\quad + \cos \theta_q \cos \theta)^2 d\varphi = \int_0^\pi \exp(iqa \cos \theta) (\pi \sin^2 \theta_q \sin^2 \theta \\ &\quad + 2\pi \cos^2 \theta_q \cos^2 \theta) \sin \theta d\theta = \pi \sin^2 \theta_q 2(j_0(qa) + j_0^{(2)}(qa)) \\ &\quad + 2\pi \cos^2 \theta_q (-2)j_0^{(2)}(qa) = 2\pi(1 - v_z^2) \\ &\quad \times (j_0(qa) + j_0^{(2)}(qa)) - 4\pi v_z^2 j_0^{(2)}(qa). \end{aligned} \quad (40)$$

А для  $i = x, j = z$  интеграл примет вид

$$\begin{aligned} &\int_{4\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}) n_x n_z d\Omega_{\mathbf{x}'} = \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{n}a) (\mathbf{n} \mathbf{e}_x) (\mathbf{n} \mathbf{e}_z) d\varphi \\ &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(iqa \cos \theta) (\cos \theta_q \cos \varphi_q \sin \theta \cos \varphi \\ &\quad - \sin \varphi_q \sin \theta \sin \varphi + \sin \theta_q \cos \varphi_q \cos \theta) \\ &\quad \times (-\sin \theta_q \sin \theta \cos \varphi + \cos \theta_q \cos \theta) d\varphi \\ &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(iqa \cos \theta) \\ &\quad \times (-\cos \theta_q \sin \theta_q \cos \varphi_q \sin^2 \theta \cos^2 \varphi \\ &\quad + \sin \theta_q \cos \theta_q \cos \varphi_q \cos^2 \theta) d\varphi \\ &= \pi(-\cos \theta_q \sin \theta_q \cos \varphi_q) 2(j_0(qa) + j_0^{(2)}(qa)) \\ &\quad + 2\pi \sin \theta_q \cos \theta_q \cos \varphi_q (-2)j_0^{(2)}(qa) \\ &= -2\pi v_x v_z (j_0(qa) + j_0^{(2)}(qa)) - 4\pi v_x v_z j_0^{(2)}(qa). \end{aligned} \quad (41)$$

Аналогично рассматривая другие комбинации  $i$  и  $j$ , приходим к обобщенной формуле (21).

Для нахождения интеграла (22) рассмотрим случай  $i = x, j = y, k = z$ :

$$\begin{aligned} \int_{4\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}) n_x n_y n_z d\Omega_{\mathbf{x}'} &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \\ &\times \exp(i\mathbf{q}\mathbf{n}\mathbf{a})(\mathbf{n}\mathbf{e}_x)(\mathbf{n}\mathbf{e}_y)(\mathbf{n}\mathbf{e}_z) d\varphi \\ &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(iqa \cos \theta) (\cos \theta_q \cos \varphi_q \sin \theta \cos \varphi \\ &- \sin \varphi_q \sin \theta \sin \varphi + \sin \theta_q \cos \varphi_q \cos \theta) \\ &\times (\cos \theta_q \sin \varphi_q \sin \theta \cos \varphi + \cos \varphi_q \sin \theta \sin \varphi \\ &+ \sin \theta_q \sin \varphi_q \cos \theta) (-\sin \theta_q \sin \theta \cos \varphi + \cos \theta_q \cos \theta) d\varphi \\ &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(iqa \cos \theta) \cos \theta_q \sin \varphi_q \cos \varphi_q \cos \theta \\ &\times (\cos^2 \theta_q \sin^2 \theta \cos^2 \varphi + \sin^2 \theta_q \cos^2 \theta \\ &- 2 \sin^2 \theta_q \sin^2 \theta \cos^2 \varphi - \sin^2 \theta \sin^2 \varphi) d\varphi \\ &= 2\pi i \cos \theta_q \sin \varphi_q \cos \varphi_q ((-\cos^2 \theta_q + 2 \sin^2 \theta_q + 1) \\ &\times (j_0^{(1)}(qa) + j_0^{(3)}(qa)) + 2 \sin^2 \theta_q j_0^{(3)}(qa)) \\ &= 2\pi i \sin^2 \theta_q \cos \theta_q \sin \varphi_q \cos \varphi_q (3j_0^{(1)}(qa) + 5j_0^{(3)}(qa)) \\ &= 2\pi i v_x v_y v_z (3j_0^{(1)}(qa) + 5j_0^{(3)}(qa)). \end{aligned} \quad (42)$$

Кроме того, необходимо рассмотреть еще два случая  $i = z, j = z, k = z$  и  $i = z, j = z, k = x$ :

$$\begin{aligned} \int_{4\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}) (n_z)^3 d\Omega_{\mathbf{x}'} &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{n}\mathbf{a})(\mathbf{n}\mathbf{e}_z)^3 d\varphi \\ &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(iqa \cos \theta) \\ &\times (-\sin \theta_q \sin \theta \cos \varphi + \cos \theta_q \cos \theta)^3 d\varphi \\ &= \int_0^\pi \exp(iqa \cos \theta) (3\pi \sin^2 \theta_q \cos \theta_q \sin^2 \theta \cos \theta \\ &+ 2\pi \cos^3 \theta_q \cos^3 \theta) \sin \theta d\theta = 3\pi \sin^3 \theta_q \cos \theta_q \\ &\times (-2i(j_0^{(1)}(qa) + j_0^{(3)}(qa))) + 2\pi \cos^3 \theta_q 2i j_0^{(3)}(qa) \\ &= -6\pi i (1 - v_z^2) v_z (j_0^{(1)}(qa) + j_0^{(3)}(qa)) + 4\pi i v_z^3 j_0^{(3)}(qa) \\ &= 2\pi i v_z^3 (3j_0^{(1)}(qa) + 5j_0^{(3)}(qa)) \\ &- 6\pi i v_z (j_0^{(1)}(qa) + j_0^{(3)}(qa)), \end{aligned} \quad (43)$$

$$\begin{aligned} \int_{4\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{x}) (n_z)^2 (n_x) d\Omega_{\mathbf{x}'} &= \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(i\mathbf{q}\mathbf{n}\mathbf{a}) \\ &\times (\mathbf{n}\mathbf{e}_z)^2 (\mathbf{n}\mathbf{e}_x) d\varphi = \int_0^\pi \sin \theta d\theta \int_0^{2\pi} \exp(iqa \cos \theta) \\ &\times ((\sin^2 \theta_q \sin^2 \theta \cos^2 \varphi \sin \theta_q \cos \varphi_q \cos \theta) \\ &+ (\cos^2 \theta_q \cos^2 \theta \sin \theta_q \cos \varphi_q \cos \theta) \\ &+ (-2 \sin \theta_q \sin \theta \cos \varphi \cos \theta_q \cos \theta \cos \varphi_q \\ &\times \cos \varphi_q \sin \theta \cos \varphi)) d\varphi = \pi \sin^3 \theta_q \cos \varphi_q \\ &\times \int_0^\pi \exp(iqa \cos \theta) \sin^3 \theta \cos \theta d\theta + 2\pi \cos^2 \theta_q \sin \theta_q \cos \varphi_q \\ &\times \int_0^\pi \exp(iqa \cos \theta) \cos^3 \theta \sin \theta d\theta - 2\pi \sin \theta_q \cos^2 \theta_q \cos \varphi_q \\ &\times \int_0^\pi \exp(iqa \cos \theta) \sin^3 \theta \cos \theta d\theta = \pi \sin^3 \theta_q \cos \varphi_q \\ &\times (-2i(j_0^{(1)}(qa) + j_0^{(3)}(qa))) \\ &+ 2\pi \cos^2 \theta_q \sin \theta_q \cos \varphi_q 2i j_0^{(3)}(qa) \\ &- 2\pi \sin \theta_q \cos^2 \theta_q \cos \varphi_q (-2i(j_0^{(1)}(qa) + j_0^{(3)}(qa))) \\ &= -2\pi i \sin^3 \theta_q \cos \varphi_q (j_0^{(1)}(qa) + j_0^{(3)}(qa)) \\ &+ 4\pi i \cos^2 \theta_q \sin \theta_q \cos \varphi_q (j_0^{(1)}(qa) + 2j_0^{(3)}(qa)) \\ &= -2\pi i (1 - v_z^2) v_x (j_0^{(1)}(qa) + j_0^{(3)}(qa)) \\ &+ 4\pi i v_x v_z^2 (j_0^{(1)}(qa) + 2j_0^{(3)}(qa)) \\ &= 2\pi i v_x v_z^2 (3j_0^{(1)}(qa) + 5j_0^{(3)}(qa)) \\ &- 2\pi i v_x (j_0^{(1)}(qa) + j_0^{(3)}(qa)). \end{aligned} \quad (44)$$

Аналогичные выражения будем получать, проводя вычисления для остальных случаев. Обобщая результаты, получаем формулу (22).

## Список литературы

- [1] *de Beer A.G.F., Roke S.* // Phys. Rev. B. 2007. V. 75. N 24. P. 245438. doi 10.1103/PhysRevB.75.245438
- [2] *Wang H., Yan E.C.Y., Borguet E., Eissenthal K.B.* // Chem. Phys. Lett. 1996. V. 259. N 1–2. P. 15. doi 10.1016/0009-2614(96)00707-5

- [3] Yang N., Angerer W.E., Yodh A.G. // Phys. Rev. Lett. 2001. V. 87. N 10. P. 103902. doi 10.1103/PhysRevLett.87.103902
- [4] Jen S.H., Dai H.L. // J. Phys. Chem. B. 2006. V. 110. N 46. P. 23000. doi 10.1021/jp0644762
- [5] Jen S.-H., Gonella G., Dai H.-L. // J. Phys. Chem. A. 2009. V. 113. N 6. P. 4758. doi 10.1021/jp9009959
- [6] Viarbitskaya S., Kapshai V., van der Meulen P., Hansson T. // Phys. Rev. A. 2010. V. 81. N 5. P. 053850. doi 10.1103/PhysRevA.81.053850
- [7] Shan J., Dadap J.I., Stiofkin I., Reider G.A., Heinz T.F. // Phys. Rev. A. 2006. V. 73. N 2. P. 023819. doi 10.1103/PhysRevA.73.023819
- [8] Roke S., Bonn M., Petukhov A.V. // Phys. Rev. B. 2004. V. 70. N 11. P. 115106. doi 10.1103/PhysRevB.70.115106
- [9] de Beer A.G.F., de Aguiar H.B., Nijssen J.F.W., Roke S. // Phys. Rev. Lett. 2009. V. 102. N 9. P. 095502. doi 10.1103/PhysRevLett.102.095502
- [10] Subir M., Liu J., Eisenthal K.B. // J. Phys. Chem. C. 2008. V. 112. N 40. P. 15809. doi 10.1021/jp8047168
- [11] de Beer A.G.F., Roke S. // J. Chem. Phys. 2010. V. 132. N 23. P. 234702. doi 10.1063/1.3429969
- [12] Liu J., Subir M., Nguyen K., Eisenthal K.B. // J. Phys. Chem. B. 2008. V. 112. N 48. P. 15263–15266. doi 10.1021/jp806690z
- [13] Strader M.L., de Aguiar H.B., de Beer A.G.F., Roke S. // Soft Matter. 2011. V. 7. N 10. P. 4959–4963. doi 10.1039/C0SM01358G
- [14] Jackson J.D. Classical Electrodynamics. N.Y.: Wiley & Sons, 1998. 832 p.; Джексон Д.Д. Классическая электродинамика. М.: Мир, 1965. 702 с.
- [15] Шамына А.А., Капшай В.Н. // Опт. и спектр. 2018. Т. 124. № 1. С. 105–121. doi 10.21883/OS.2018.01.45366.176-177  
Shamyina A.A., Kapshai V.N. // Opt. Spectrosc. 2018. V. 124. N 1. P. 103–120. doi 10.1134/S0030400X18010198;
- [16] Капшай В.Н., Шамына А.А. // Опт. и спектр. 2017. Т. 123. № 3. С. 416–429. doi 10.7868/S003040341709015X  
Kapshai V.N., Shamyina A.A. // Opt. Spectrosc. 2017. V. 123. N 3. P. 440–453. doi 10.1134/S0030400X17090144;
- [17] de Beer A.G.F., Roke S. // Phys. Rev. B. 2009. V. 79. N 15. P. 155420. doi 10.1103/PhysRevB.79.155420
- [18] de Beer A.G.F., Roke S., Dadap J.I. // J. Opt. Soc. Am. B. 2011. V. 28. N 6. P. 1374–1384. doi 10.1103/PhysRevB.79.155420