Письма в ЖЭТФ, том 123, вып. 7, с. 470 – 478 © 2026 г. 10 апреля

Усиление генерации второй гармоники на основе эффекта мультипольной связи в 3R-MoS_2 метаповерхности

А. В. Шестериков[+*1)], *М. Ю. Губин*[+*], *А. В. Арсенин*[×], *В. С. Волков*[×], *А. В. Прохоров*[+*]

[+]*Центр фотоники и двумерных материалов, Московский физико-технический институт (МФТИ), 141701 Долгопрудный, Россия*

[*]*Кафедра физики и прикладной математики, Владимирский государственный университет им. А. Г. и Н. Г. Столетовых (ВлГУ), 600000 Владимир, Россия*

[×]*Emerging Technologies Research Center, XPANCEO, 00000 Dubai, UAE*

Поступила в редакцию 2 декабря 2025 г.
После переработки 28 февраля 2026 г.
Принята к публикации 1 марта 2026 г.

Появление новых оптических материалов с сильной нелинейностью, к которым относятся недавно синтезированные 3R политипы слоистых ван-дер-Ваальсовых (ВдВ) материалов с нарушенной центральной симметрией расположения монослоев, задает новый тренд развития нелинейной и квантовой нанофотоники. В этой работе рассмотрена модель генерации второй гармоники в наноструктурах на основе 3R политипа дисульфида молибдена с накачкой в телекоммуникационном диапазоне длин волн. Для дополнительного повышения эффективности генерации и увеличения яркости второй гармоники использован новый механизм мультипольной связи в диэлектрической метаповерхности, позволяющий возбуждать высокодобротные квазизапертые моды без нарушения структурной симметрии системы. Локализация и усиление ближнего поля в плоскости оптимизированной 3R-MoS_2 метаповерхности позволили получить пик второй гармоники при накачке на длине волны 1.55 мкм шириной на полувысоте 0.98 нм, интенсивность которого значительно превысила интенсивность второй гармоники из той же метаповерхности, но на смещенной от резонансных условий длине волны.

DOI: 10.7868/S3034576626040045

Эффективное нелинейное преобразование частоты света, в частности, генерация второй гармоники (ГВГ), является важным направлением развития современных фотонных технологий – от фотовольтаики и сенсорики до создания квантовых источников света. Исторически эта область развивалась на основе объемных нелинейных кристаллов, таких как ниобат лития ($LiNbO_3$) [1, 2], танталат лития ($LiTaO_3$) [3], β-борат бария (BBO) [4]. Дальнейшее развитие различных физических подходов, а также внедрение тонких пленок и фазового согласования позволили значительно миниатюризировать и повысить эффективность нелинейных преобразований [5, 6]. Целый ряд работ был посвящен субволновому структурированию нелинейных материалов как более вариативному методу управления концентрацией и распределением ближнего поля, используемого в качестве накачки нелинейных процессов [7–12]. Дополнительное увеличение концентрации ближнего поля может быть вызвано использованием связанных состояний в континууме, в том числе в виде так называемых квазизапертых мод (КЗМ) оптических метаповерхностей [13].

Несмотря на значительные успехи, современные подходы имеют ряд технических ограничений: большинство метаповерхностей требуют нарушения симметрии для реализации КЗМ. При этом, концентрация ближнего поля происходит преимущественно локально, внутри или вблизи используемых для нарушения симметрии дефектов [14], тогда как более предпочтительным является усиление поля накачки во всем объеме строительного блока метаповерхности.

В последние несколько лет прорывным направлением стало использование различных, в том числе 3R-MX_2 политипов ван-дер-ваальсовым (ВдВ) материалов для увеличения эффективности нелинейноволновых процессов [15, 16]. Последние из них имеют укладку слоев, нарушающую центральную симметрию в кристалле. Поэтому сами по себе сильные нелинейные отклики от монослоев усиливают друг друга кратно их количеству в таких материалах [17, 18]. Для дополнительного усиления поля накачки применяют все те же, апробированные на

1) e-mail: av_shesterikov@mail.ru

традиционных нелинейных материалах, методы усиления второй гармоники (ВГ) за счет сборки полидоменных структур [19], литографирования флейков [15, 20] и создания 3R-MX_2 ВдВ метаповерхностей [21]. В частности, дополнительное структурирование 3R-MoS_2 пленки для нарушения C_2-C_4 симметрии влечет возбуждение КЗМ и экспериментальное повышение эффективности ГВГ дополнительно до 800 раз по отношению к ВГ в исходной пленке без структурирования [22].

В данной работе мы предлагаем новый подход к увеличению эффективности ГВГ, основанный на концепции мультипольной связи [23, 24] в решетке из 3R-MoS_2 нанорезонаторов. В отличие от традиционных стратегий с нарушением симметрии, данный подход использует эффект мультипольной связи для возбуждения высокодобротных октупольных мод в метаповерхности без нарушения свойств симметрии системы. Критически важным является использование материала 3R-MoS_2, чья сильная анизотропия и исключительно низкие потери для электрической компоненты поля, параллельной слоям материала, позволяют существенно увеличить интенсивность ближнего поля накачки в плоскости метаповерхности. Отметим, что рассматриваемый материал 3R-MoS_2 принадлежит к группе симметрии C_{3v}, которая определяет следующие соотношения для ненулевых элементов нелинейного тензора $\chi^{(2)}_{xxx}=-\chi^{(2)}_{xyy}=-\chi^{(2)}_{yyx}=-\chi^{(2)}_{yxy}$ и при выборе оси y вдоль ZZ (zigzag) направления и оси x вдоль AC (armchair) направлений в решетке [25].

Основой концепции мультипольной связи служит возможность передачи энергии в решетке от напрямую возбуждаемых нормально падающей волной мультипольных моментов младшего порядка (диполь, квадруполь) к неизлучающим моментам старшего порядка (электрический/магнитный октуполи) [24]. В соответствии с концепцией, строительный блок метаповерхности должен обладать такой геометрией, чтобы при ортогональных вариантах его облучения возбуждались мультипольные резонансы разного порядка на одной длине волны. Например, нормальное облучение диэлектрического диска (перпендикулярно его основанию) должно приводить к низкодобротному дипольному резонансу, тогда как латеральное (боковое) облучение должно возбуждать высокодобротный октупольный резонанс на той же длине волны, см. рис. 1a, b. В этом случае можно подобрать такой период составленной из дисков метаповерхности, что излучающие в дальнюю волновую зону дипольные отклики соседних дисков компенсируют друг друга за счет деструктивной интерференции. При этом за счет мультипольной связи в решетке вся энергия падающей волны будет направлена на резонансное возбуждение высокодобротных октупольных моментов дисков. В целом, механизм накопления энергии в представленной модели обусловлен разностью добротностей дипольного и октупольного резонансов: передача энергии от низкодобротного диполя к высокодобротному октуполю происходит на существенно больших скоростях, чем обратный процесс. Поэтому практически вся энергия падающей волны закачивается в ближнее поле метаповерхности, что и соответствует октупольной квазизапертой моде (ОКЗМ). Особенностью мультипольной связи в решетке является ее установление только между мультиполями одинаковой четности [24]. При этом цепочки соответствующих связанных уравнений имеют следующий вид:

$$p_x = \alpha_{pnxx}E_x^0 + \alpha_{pfxx}\Big(S^{(e)}_{pp}p_x + S^{(e)}_{pM}M_{yz} + S^{(e)}_{pO}O_{yyx}\Big), \tag{1а}$$

$$M_{yz} = ik_z\alpha_{Mnyz}H_y^0 + \alpha_{Mfyz}\Big(S^{(e)}_{\nabla Mp}p_x + S^{(e)}_{\nabla MM}M_{yz} + S^{(e)}_{\nabla MO}O_{yyx}\Big), \tag{1б}$$

$$O_{yyx} = -k_z^2\alpha_{Onyyx}E_x^0 + \alpha_{Ofyyx}\Big(S^{(e)}_{\nabla Op}p_x + S^{(e)}_{\nabla OM}M_{yz} + S^{(e)}_{\nabla OO}O_{yyx}\Big), \tag{1в}$$

$$m_y = \alpha_{mnyy}H_y^0 + \alpha_{mfyy}\Big(S^{(m)}_{mm}m_y + S^{(m)}_{mQ}Q_{xz} + S^{(m)}_{mMO}MO_{xxy}\Big), \tag{2а}$$

$$Q_{xz} = ik_z\alpha_{Qnxz}E_x^0 + \alpha_{Qfxz}\Big(S^{(m)}_{\nabla Qm}m_y + S^{(m)}_{\nabla QQ}Q_{xz} + S^{(m)}_{\nabla QMO}MO_{xxy}\Big), \tag{2б}$$

$$MO_{xxy} = -k_z^2\alpha_{MOnxxy}H_y^0 + \alpha_{MOfxxy}\Big(S^{(m)}_{\nabla MOm}m_y + S^{(m)}_{\nabla MOQ}Q_{xz} + S^{(m)}_{\nabla MOMO}MO_{xxy}\Big), \tag{2в}$$

где $p_x(m_y)$, $Q_{xz}(M_{yz})$ и $O_{yyx}(MO_{xxy})$ представляют собой соответствующие компоненты электрического (магнитного) дипольного, квадрупольного и октупольного моментов соответственно; E_x^0 и H_y^0 – напряженности электрического и магнитного полей падающей волны в плоскости метаповерхности; $\alpha_{pn(f)xx}$,

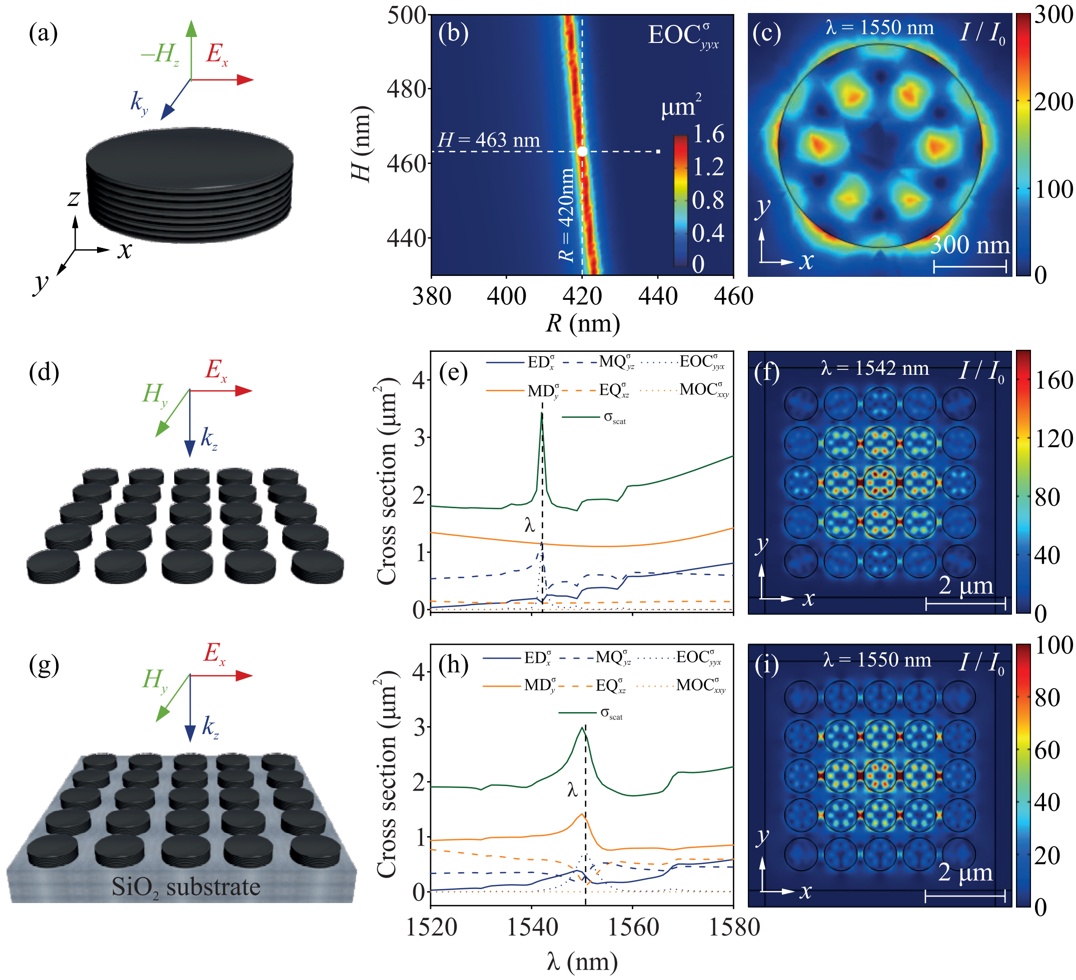

Рис. 1. (Цветной онлайн) (a) – Модель одиночного 3R-MoS_2 диска в воздухе с радиусом R и высотой H, облучаемого линейно-поляризованной волной $E_x(k_y)$. (b) – Контурная зависимость на параметрической плоскости $(R; H)$ для вклада компоненты $\mathrm{EOC}^{\sigma}_{yyx}$ в общее сечение рассеяния на длине волны $\lambda = 1550$ нм; (c) – Распределение интенсивности электрического поля в диске с радиусом $R = 420$ нм на той же длине волны; (d) – Модель олигомера 5×5 из 3R-MoS_2 дисков с радиусом $R = 416$ нм и периодом $P = 985$ нм, расположенного в вакууме и облучаемого волной $E_x(k_z)$. (e) – Зависимости от длины волны накачки λ сечения рассеяния, а также вкладов в него различных мультипольных компонент для центрального диска в олигомере с (d). (f) – Распределение интенсивности электрического поля в олигомере на длине волны $\lambda = 1542$ нм. (g) – Олигомер 5×5, помещенный на кварцевую подложку; (h), (i) – То же, что и на (e), (f) но для олигомера (g) на подложке при длине волны накачки $\lambda = 1550$ нм. Высота дисков фиксирована и составляет $H = 463$ нм. Интегрирование полей в олигомерах осуществляется по центральному диску

$\alpha_{Mn(f)yz}$ и $\alpha_{On(f)yyx}$ – соответствующие элементы тензоров электрической дипольной, магнитной квадрупольной и электрической октупольной поляризуемости для одиночной частицы, облучаемой нормально (сбоку) падающей волной $E_x(k_z)$ $(E_x(k_y))$ соответственно; $\alpha_{mn(f)yy}$, $\alpha_{Qn(f)xz}$ и $\alpha_{MOn(f)xxy}$ – соответствующие элементы тензоров магнитной дипольной, электрической квадрупольной и магнитной октупольной поляризуемости для одиночной частицы, облучаемой нормально (сбоку) падающей волной $E_x(k_z)$ $(-E_z(k_x))$, соответственно; k_z – волновое число падающей волны в окружающей среде вдоль оси z; $S^{(e)}_{pp}$, $S^{(e)}_{pM}$, $S^{(e)}_{pO}$, $S^{(e)}_{\nabla Mp}$, $S^{(e)}_{\nabla MM}$, $S^{(e)}_{\nabla MO}$, $S^{(e)}_{\nabla Op}$, $S^{(e)}_{\nabla OM}$, $S^{(e)}_{\nabla OO}$, $S^{(m)}_{mm}$, $S^{(m)}_{mQ}$, $S^{(m)}_{mMO}$, $S^{(m)}_{\nabla Qm}$, $S^{(m)}_{\nabla QQ}$, $S^{(m)}_{\nabla QMO}$, $S^{(m)}_{\nabla MOm}$, $S^{(m)}_{\nabla MOQ}$ и $S^{(m)}_{\nabla MOMO}$ – соответствующие мультипольные суммы для мультипольного взаимодействия электрического (e) и магнитного (m) типов.

В работе [23] рассматривался вариант с реализацией цепочки типа (1), тогда как в работе [24] использовался тип взаимодействия (2). Особенностью настоящей работы является использование обоих типов мультипольной связи (1)–(2), реализованных на за-данной длине волны, для максимальной концентрации энергии ближнего поля в плоскости метаповерхности. На первом этапе выполнялась оптимизация размеров расположенных в вакууме нанорезонаторов в составе 5×5 олигомера, состоящего из 3R-MoS_2 дисков с расположением слоев материала параллельно их основанию, на рис. 1d. На этом этапе широко использовалась оптическая анизотропия ВдВ материала дисульфида молибдена для достижения требуемых режимов. Во-первых, наличие различных показателей преломления и поглощения вдоль и поперек слоев такого материала дает дополнительную степень свободы для настройки резонансов на нужную длину волны [26]. Во-вторых, практическое отсутствие потерь для внутриплоскостной компоненты коэффициента поглощения позволяет получать более добротные по сравнению с традиционным кремнием октупольные резонансы в ближнем и среднем инфракрасном диапазонах [23]. Последнее обстоятельство связано с преимущественной ориентацией линий напряженности ближнего поля параллельно основанию диска, т.е. вдоль слоев ван-дер-Ваальсова материала, за счет возбуждения MO_{xxy} либо O_{yyx} компонент [24].

Результатом установления мультипольной связи в олигомере служит появление резонансного энергообмена между входящими в систему (1) мультипольными компонентами p_x, M_{yz} и O_{yyx}, что проявляется на рис. 1e в виде возникающих особенностей для соответствующих вкладов ED_x^σ, MQ_{yz}^σ и $\mathrm{EOC}_{yyx}^\sigma$ в общее сечение рассеяния. Картина распределения ближнеполевой энергии в центральном диске олигомера на рис. 1f демонстрирует характерный для октупольного резонанса вид [24]. Вместе с тем у расположенных ближе к краю олигомера дисков яркость таких резонансов заметно падает за счет уменьшения обменного взаимодействия с соседями.

На следующем этапе была выполнена оптимизация системы при размещении олигомера на кварцевой подложке (рис. 1g). Отметим, что все изучаемые режимы соответствуют субдифракционным условиям, поскольку для самой длины волны накачки $\lambda = 1550$ нм, а также рассматриваемого спектрального диапазона, выполняется условие $\lambda/n_{\mathrm{sub}} > P$. В данном случае $n_{\mathrm{sub}} = n_{\mathrm{SiO_2}} = 1.47$ представляет собой показатель преломления подложки на рассматриваемой длине волны и определяет дифракцию в нижнюю полуплоскость. Для ВГ субдифракционный режим не выполняется, но геометрия возможного эксперимента предполагает ее детектирование исключительно вдоль оси z. В целом, наличие подложки должно приводить к уменьшению яркости и добротности ОКЗМ [24]. Однако нарушение инверсной симметрии системы путем внесения подложки привело к установлению значимых взаимных корреляций между электрической p_x и магнитной m_y компонентами дипольных моментов [27] и возникновению особенности для m_y вблизи длины волны 1550 нм (рис. 1h). Это инициировало цепочку взаимодействий (2) и послужило основой для резонансных изменений компоненты Q_{xz} электроквадрупольного момента. Отметим, что возбуждение компоненты магнитного октуполя MO_{xxy} в этих условиях не происходит, тем не менее возникает возможность непосредственной передачи энергии от всех входящих в (1) и (2) и напрямую возбуждаемых падающей волной младших мультипольных моментов к O_{yyx}. В итоге, интенсивность электрической компоненты ближнего поля в центральном диске почти в 100 раз превысила интенсивность волны накачки (рис. 1i). Отметим, что при переходе от одиночного диска с рис. 1a к олигомеру на рис. 1d радиус диска был немного скорректирован, что привело к изменению длины волны октупольного резонанса. Это было сделано с целью возвращения этого резонанса на телекоммуникационную длину волны 1550 нм при размещении олигомера на подложке.

Переходя от оптимизированного олигомера к бесконечной метаповерхности со сходными размерными характеристиками, удалось наблюдать высокодобротную особенность спектра отражения на длине волны 1550 нм, см. рис. 2a. При этом интенсивность ближнего поля внутри самих дисков почти в 400 раз превысила интенсивность падающей волны (рис. 2b). Настолько значимое усиление является результатом одновременной перекачки энергии от входящих как в систему (1), так и в (2) мультипольных моментов младшего порядка p_x, m_y, Q_{xz} и M_{yz} (см. провалы для соответствующих кривых вблизи 1550 нм), приводящей к резкому росту электрического октупольного момента O_{yyx}. На рисунке 2c представлены вклады соответствующих мультипольных компонент в коэффициент отражения:

$$\mathrm{R} \cong \left| K\left(p_x - \frac{m_y}{v_d} + \frac{ik_d}{6}Q_{xz} - \frac{ik_d}{2v_d}M_{yz} - \right.\right. \left.\left. - \frac{k_d^2}{6}O_{xzz} - \frac{k_d^2}{6v_d}MO_{yzz}\right)\right|^2, \tag{3}$$

где $\mathrm{ED}_x = |Kp_x|^2$, $\mathrm{MD}_y = |Km_y/v_d|^2$, $\mathrm{EQ}_{xz} = |KQ_{xz}ik_d/6|^2$ и $\mathrm{MQ}_{yz} = |KM_{yz}ik_d/(2v_d)|^2$, $\mathrm{EOC}_{xzz} = |KO_{xzz}k_d^2/6|^2$ и $\mathrm{MOC}_{yzz} = |KMO_{yzz}k_d^2/(6v_d)|^2$, а также, нормированные коэффициенты $\mathrm{EOC}_{yyx} = |KO_{yyx}k_d^2/6|^2$ и

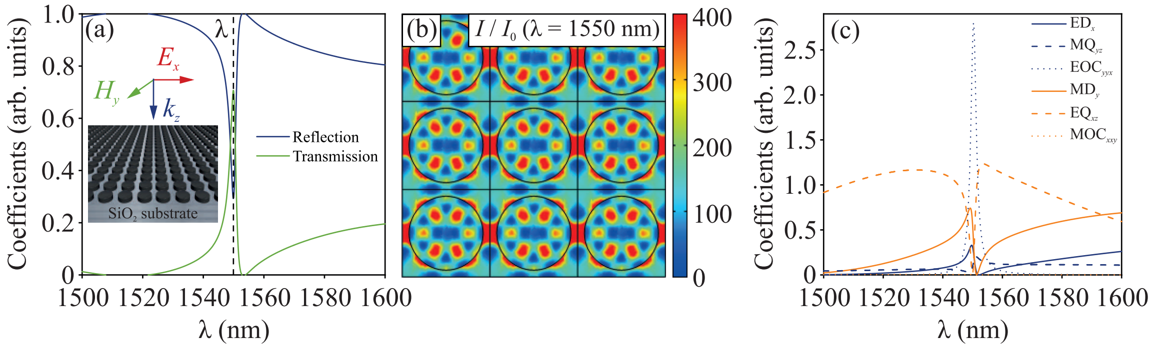

Рис. 2. (Цветной онлайн) (a) – Спектры отражения и пропускания бесконечной метаповерхности с периодом $P = 985$ нм, составленной из 3R-$\mathrm{MoS_2}$ дисков с параметрами, соответствующими рис. 1d–i, расположенной на кварцевой подложке; (b) – распределение ближнего электрического поля в условии резонанса ОКЗМ ($\lambda = 1550$ нм); (c) – спектры для приведенных мультипольных коэффициентов

$\mathrm{MOC}_{xxy} = |KMO_{xxy}k_d^2/(6v_d)|^2$ показывают эффективность возбуждения соответствующих октупольных резонансов [28, 29]. Здесь вводятся следующие параметры: $K = ik_d/(2E_x^0 S_L \varepsilon_0 \varepsilon_d)$, $S_L = P^2$ – площадь элементарной ячейки решетки, $k_d \equiv k_z = k_0\sqrt{\varepsilon_d}$, k_0 – волновое число в вакууме, $v_d = 1/\sqrt{\varepsilon_0 \mu_0 \varepsilon_d}$ – скорость света в окружающей среде с относительной диэлектрической проницаемостью ε_d, ε_0 – диэлектрическая проницаемость вакуума и μ_0 – магнитная восприимчивость вакуума. Таким образом, представленная на рис. 2 спектральная особенность обусловлена совокупным действием эффекта мультипольной связи в решетке и нарушением симметрии системы со стороны подложки. Физически подавление отражения обусловлено почти полным обнулением входящих в (3) компонент p_x, m_y, Q_{xz}, M_{yz} на длине волны 1550 нм. На примере уравнения (1а) это возможно, когда внешняя волна возбуждает в каждом диске электрический дипольный момент, равный по величине и противоположный по фазе дипольному моменту, возбуждаемому в нем суммарным полем октупольных моментов дисков, окружающих выбранный, т.е. $\alpha_{pnxx}E_x^0 = -\alpha_{pfxx} \cdot S_{pO}^{(e)} O_{yyx}$, см. [23]. Для уравнения (1б) это условие принимает вид $ik_z \alpha_{Mnyz} H_y^0 = -\alpha_{Mfyz} \cdot S_{\nabla MO}^{(e)} O_{yyx}$, но распространение подобных условий на (2), с учетом нарушения инверсной симметрии подложкой, будет иметь более сложный вид и здесь обсуждается лишь качественно. В итоге, поскольку оставшиеся неподавленными октупольные компоненты O_{yyx} дисков излучают исключительно в плоскости метаповерхности, наблюдается усиление энергии ближнего поля всей метаповерхности.

Отметим, что в рассматриваемом случае коэффициент ε_d должен рассчитываться на основе метода эффективной среды. Однако в этой работе мы ограничиваемся исключительно численно-рассчитанными в COMSOL Multiphysics зависимостями для коэффициентов пропускания и отражения (рис. 2a). Тогда как относительные вклады мультипольных моментов в эти коэффициенты на рис. 2c приводятся без сравнения их суммы (3) с численно-рассчитанной.

Резонансное усиление интенсивности ближнего поля в толще 3R-$\mathrm{MoS_2}$ дисков является основой для увеличения эффективности генерации и повышения добротности ВГ, спектр интенсивности $I_{2\omega}$ которой может быть описан приближенным соотношением вида:

$$I_{2\omega} = A(H,\theta)\big(\chi_\omega^{(2)}\big)^2 I_\omega^2, \tag{4}$$

где $I_\omega = \frac{W_\omega}{n_\parallel^{\mathrm{3RMoS_2}}} I_0$ соответствует усредненной по объему взаимодействия, т.е. объему, занимаемому материалом 3R-$\mathrm{MoS_2}$, интенсивности поля накачки при ее воздействии на материал с зависящей от частоты нелинейной восприимчивостью $\chi_\omega^{(2)}$, и в условиях дополнительного усиления энергии ближнего поля в W_ω раз по отношению к падающей волне накачки с интенсивностью I_0 в вакууме, что, фактически, отражено на рис. 2b. Коэффициент $A(H,\theta)$ может иметь зависимость как от H, так и от угла θ между поляризацией накачки и ориентацией кристаллографических осей используемого ВдВ материала при детектировании сигнала ВГ с анализатором [30]. Также $I_{2\omega}$ будет определяться рассогласованием волновых векторов накачки и ВГ [31]. Однако далее мы приводим количественные оценки только для относительных величин усиления ВГ в сравнении с интенсивностью ВГ в этих же структурах на близкой, но нерезонансной длине волны

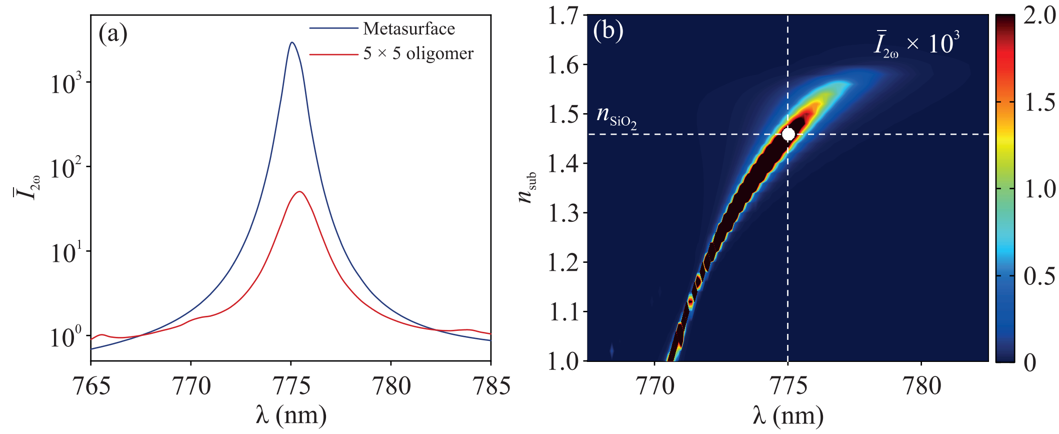

Рис. 3. (Цветной онлайн) (a) – Спектры интенсивности второй гармоники, построенные для олигомера размерности 5×5 дисков и бесконечной метаповерхности на кварцевых подложках. (b) – Контурная зависимость на параметрической плоскости (λ; n_{sub}) для интенсивности второй гармоники в метаповерхности с параметрами с рис. 2, расположенной на непоглощающей подложке с показателем преломления n_{sub}. Все спектры нормированы на интенсивность ВГ в нерезонансном режиме ($\lambda = 767$ нм) для тех же структур

$\lambda = 767$ нм. Поскольку геометрия системы в обоих случаях сохраняется, зависимостью $A(H,\theta)$ можно пренебречь. В связи с этим, основным ключевым эффектом в представленной модели будет являться увеличение эффективности ГВГ за счет ОКЗМ-индуцированного усиления коэффициента W_ω ближнего поля. Отметим, что обычно в качестве источника накачки для ГВГ используется перестраиваемый фемтосекундный лазер. Однако, используя механизмы мультипольной связи для значительного усиления энергии ближнего поля, требования к мощности и иным характеристикам систем накачки могут быть существенно снижены. Необходимо также отметить, что в неструктурированном материале и при выбранной геометрии зависимость интенсивности ВГ от угла θ имеет вид $I_{2\omega} \sim |\cos(3\theta)|^2$ в том случае, если сигнал ВГ проходит через анализатор, плоскость которого вращается синхронно с поляризацией накачки и параллельна ей. Вид аналогичной зависимости для изучаемой модели имеет самостоятельный интерес. Однако, в работе оценивается интегральная интенсивность ВГ, которая определяется исключительно добротностью соответствующих резонансов [32].

Принципиальным моментом является то, что поляризация на удвоенной частоте будет определяться полями октупольной моды, возбуждаемой накачкой. В итоге, наведенный на частоте ВГ октупольный момент O_{yyx} через механизм мультипольного каплинга будет приводить к генерации вторичного дипольного момента в дисках метаповерхности на частоте ВГ, см. слагаемое $\alpha_{pfxx} S_{pO}^{(e)} O_{yyx}$ в правой части (1a). Однако, поскольку падающая волна на частоте ВГ будет отсутствовать (слагаемое $\alpha_{pnxx} E_x^0 \equiv 0$ в правой части (1a)), результирующий дипольный момент $p_x \sim \alpha_{pfxx} S_{pO}^{(e)} O_{yyx}$ для ВГ уже не будет скомпенсированным, как это происходит для накачки, и система перейдет в режим эффективной ГВГ.

На рисунке 3a представлены рассчитанные с учетом (4), а также приводимых на рис. 1i и 2b зависимостей, нормированные спектры ВГ для случаев 5×5 олигомера и бесконечной метаповерхности из 3R-MoS_2 дисков на кварцевых подложках с параметрами с рис. 1g–i и 2. При расчете коэффициента усиления запасенной энергии W_ω в 3R-MoS_2 материале использовалось выражение $W_\omega = \frac{E_{\mathrm{loc}}}{E_{\mathrm{inc}}}$ аналогично работе [33]. Здесь $E_{\mathrm{loc(inc)}} = \int_{V_{\mathrm{arr}}} u_{loc(\mathrm{inc})} dV$ соответствует энергии электромагнитного поля E_{loc}, усредненной по периоду осцилляций, в объеме частиц V_{arr}, изготовленных из материала 3R-MoS_2, и энергии E_{inc} падающей волны накачки, усредненной по периоду волны, в том же объеме пространства V_{arr}, но состоящем из материала окружающей среды. Плотность энергии, усредненная по периоду осцилляций, рассчитывается по формуле $u_{\mathrm{loc(inc)}} = \frac{1}{2} \mathbf{E}_{\mathrm{loc(inc)}} \cdot \mathbf{D}_{\mathrm{loc(inc)}}$ [34], где $\mathbf{E}_{\mathrm{loc(inc)}}$, $\mathbf{D}_{\mathrm{loc}} = \varepsilon_0 \mathrm{Re}(\varepsilon_{i,j}^{\mathrm{3RMoS_2}}) E_{\mathrm{loc},j}$ и $\mathbf{D}_{\mathrm{inc}} = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \varepsilon_d E_x^0 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix}$ – векторы электрического поля и смещения электрического поля в материале 3R-MoS_2 и окружающей среде соответственно; $i,j = \{x,y,z\}$. При этом предполагается, что слои материала 3R-MoS_2 расположены в плоскости xy, т.е. $\mathbf{D}_{\mathrm{loc}} = \varepsilon_0 \begin{pmatrix} \mathrm{Re}(\varepsilon_{\parallel}^{3\mathrm{RMoS}_2})E_x \\ \mathrm{Re}(\varepsilon_{\parallel}^{3\mathrm{RMoS}_2})E_y \\ \mathrm{Re}(\varepsilon_{\perp}^{3\mathrm{RMoS}_2})E_z \end{pmatrix}$, где $\varepsilon_{\parallel}^{3\mathrm{RMoS}_2} = \varepsilon_{xx}^{3\mathrm{RMoS}_2} = \varepsilon_{yy}^{3\mathrm{RMoS}_2}$, $\varepsilon_{\perp}^{3\mathrm{RMoS}_2} = \varepsilon_{zz}^{3\mathrm{RMoS}_2}$ и $\varepsilon_{\parallel(\perp)}^{3\mathrm{RMoS}_2}$ соответствует параллельной (ортогональной) относительной диэлектрической проницаемости материала 3R-MoS_2 [34]. Отметим, что в расчетах используется только действительная часть $\varepsilon_{ij}^{3\mathrm{RMoS}_2}$, поскольку оптические потери в рассматриваемом диапазоне практически отсутствуют.

Таким образом, на длине волны 775 нм наблюдаются яркие пики ГВГ в 3R-MoS_2 5×5 олигомере и метаповерхности, которые примерно в 50 и 3000 раз соответственно превышают интенсивность ВГ в тех же структурах, но в нерезонансных условиях, при накачке на длине волны $\lambda = 1534$ нм. Добротность пика ВГ в метаповерхности составляет 791, что может быть с успехом использовано при проектировании узкополосных частотных преобразователей, усилителей, а также выступать основой для проектирования нелинейных лазирующих систем.

В заключение остановимся на особенностях, связанных с использованием различных оптических подложек для изучаемых метаповерхностей. Выбор подложки имеет принципиальное значение, поскольку изготовление метаповерхностей включает начальный этап отслоения тонкой пленки от кристалла с ее переносом на твердую подложку [35], свойства которой будут непосредственно влиять на процесс генерации ВГ. На рисунке 3b представлена контурная зависимость для интенсивности ВГ от длины волны и показателя преломления подложки для метаповерхности с рис. 2. Изменение показателя преломления подложки в диапазоне от 1 до 1.55 приводит к красному сдвигу центральной длины волны ВГ на 8 нм и сопровождается небольшим уширением спектра. Для подложек с показателем преломления более 1.6 наблюдается значительное уменьшение интенсивности ВГ, что связано с развитием дифракционных эффектов в системе. Также следует отметить, что бесконечные структуры не могут быть созданы чисто технически, а в случае ВдВ материалов их размер дополнительно ограничен размерами исходных флейков, используемых для литографии. Однако представленную на рис. 1g–i структуру 5×5 уже можно рассматривать как самостоятельный нелинейный конвертер, обладающий пусть и заниженными в плане эффективности генерации ВГ характеристиками, но с технически приемлемыми размерами около 5×5 микрометров.

В целом, в работе представлена стратегия повышения эффективности ГВГ в метаповерхностях, создаваемых на основе недавно синтезированных нелинейных 3R политипов ВдВ материалов и возбуждения октупольных квазизапертых мод в них. В работе впервые продемонстрировано одновременное возбуждение обеих цепочек мультипольной связи (электрической и магнитной) на одной длине волны, что приводит к усилению интенсивности ближнего поля в 3R-MoS_2 метаповерхности почти в 400 раз и увеличению эффективности ГВГ на три порядка по сравнению с нерезонансными режимами в той же метаповерхности. Это открывает практические возможности для создания нового поколения нелинейных нанофотонных устройств для применений в телекоммуникациях и спектроскопии, где рекордная эффективность достигается за счет фундаментальных эффектов межмодового взаимодействия в метаструктурах без нарушения их свойств симметрии.

Финансирование работы. Работа выполнена в рамках государственного задания в сфере научной деятельности Министерства науки и высшего образования Российской Федерации (тема FZUN-2024-0019, госзадание Владимирского государственного университета им. А. Г. и Н. Г. Столетовых (ВлГУ)), а также поддержана грантом Российского научного фонда # 25-12-00154.

Конфликт интересов. Авторы данной работы заявляют, что у них нет конфликта интересов.

1. Л. М. Дорожкин, В. А. Кизель, В. Д. Шигорин, Г. П. Шипуло, "Дисперсия квадратичной оптической восприимчивости кристаллов ниобата лития и ниобата бария натрия", Письма в ЖЭТФ **24**, 363 (1976) [L. M. Dorozhkin, V. A. Kizel', V. D. Shigorin, and G. P. Shipulo, "Dispersion of quadratic optical susceptibility of lithium niobate and barium sodium niobate crystals", JETP Lett. **24**, 329 (1976)].
2. A. V. Syuy, N. V. Sidorov, M. N. Palatnikov, N. A. Teplyakova, D. S. Shtarev, and N. N. Prokopiv, "Optical properties of lithium niobate crystals", Optik **156**, 239 (2018).
3. В. Я. Шур, Е. В. Николаева, Е. И. Шишкин, В. Л. Кожевников, А. П. Черных, "Кинетика доменной структуры и токи переключения в монокристаллах конгруэнтного и стехиометрического танталата лития", Физика твердого тела **44**, 2055 (2002) [V. Ya. Shur, E. V. Nikolaeva, E. I. Shishkin, V. L. Kozhevnikov, and A. P. Chernykh, "Kinetics of domain structure and switching currents in single crystals of congruent and stoichiometric lithium tantalate", Physics of the Solid State **44**, 2151 (2002)].
4. Д. З. Сулейманова, Н. А. Жидовцев, Ф. В. Потемкин, "Генерация мощного фемтосекундного излучения ближнего и среднего ИК диапазона (1.2–2.4 мкм)

с использованием широкополосного параметрического преобразования частоты в кристалле BBO (II типа взаимодействия) с накачкой титан-сапфировым лазером и его применение для генерации ТГц излучения в органических кристаллах", Письма в ЖЭТФ **115**, 71 (2022) [D. Z. Suleimanova, N. A. Zhidovtsev, and F. V. Potemkin, "Generation of Intense Near and Mid-Infrared Femtosecond Radiation (1.2–2.4 μm) with the Use of the Broadband Parametric Down-Conversion in a Type-II BBO Crystal Pumped by a Ti:Sapphire Laser and Its Application for the Generation of Terahertz Radiation in Organic Crystals", JETP Lett. **115**, 63 (2022)].

5. J. Liu, G. Xia, P. Zhu, K. Zhang, P. Xu, and Z. Zhu, "Efficient Second-Harmonic Generation in Thin-Film Lithium Tantalate Through Modal Phase-Matching", Photonics **11**, 1150 (2024).
6. F. Yang, J. Lu, M. Shen, G. Yang, and H. X. Tang, "Symmetric second-harmonic generation in sub-wavelength periodically poled thin film lithium niobate", Optica **11**, 1050 (2024).
7. Т. В. Долгова, А. И. Майдыковский, М. Г. Мартемьянов, Г. Маровский, Дж. Маттеи, Д. Шумахер, В. А. Яковлев, А. А. Федянин, О. А. Акципетров, "Гигантская вторая гармоника в микрорезонаторах на основе фотонных кристаллов пористого кремния", Письма в ЖЭТФ **73**, 8 (2001) [T. V. Dolgova, A. I. Maidikovskii, M. G. Martem'yanov, G. Marovsky, G. Mattei, D. Schuhmacher, V. A. Yakovlev, A. A. Fedyanin, and O. A. Aktsipetrov, "Giant second harmonic generation in microcavities based on porous silicon photonic crystals", JETP Lett. **73**, 6 (2001)].
8. О. А. Акципетров, И. М. Баранова, С. С. Еловиков, П. В. Елютин, Д. А. Есиков, А. А. Никулин, Н. Н. Фоминых, "Гигантская вторая гармоника и размерные эффекты в ультрамалых металлических частицах", Письма в ЖЭТФ **41**, 505 (1985) [O. A. Aktsipetrov, I. M. Baranova, S. S. Elovikov, P. V. Elyutin, D. A. Esikov, A. A. Nikulin, and N. N. Fominykh, "Giant second harmonic generation in microcavities based on porous silicon photonic crystals", JETP Lett. **41**, 615 (1985)].
9. E. V. Melik-Gaykazyan, K. L. Koshelev, J. H. Choi, S. S. Kruk, H. G. Park, A. A. Fedyanin, and Y. S. Kivshar, "Enhanced Second-Harmonic Generation with Structured Light in AlGaAs Nanoparticles Governed by Magnetic Response", JETP Lett. **109**, 131 (2019).
10. J. Beermann, S. M. Novikov, K. Leosson, and S. I. Bozhevolnyi, "Surface enhanced Raman imaging: periodic arrays and individual metal nanoparticles", Opt. Express **17**, 12698 (2009).
11. S. Beer, J. Gour, U. A. Mir, A. Alberucci, T. Siefke, U. D. Zeitner, and S. Nolte, "Second harmonic generation in periodic metal–insulator–metal nanoparticle arrays", APL Photonics **10**, 076112 (2025).
12. Q. Zhang, K. Liu, S.-J. Fu, X.-H. Hong, C. Zhang, Y. Lu, Y.-Y. Zhu, Y.-F. Chen, and X. Zhang, "Boosting Optical Nonlinearity of van der Waals Materials with High-Order Multipoles", Laser Photonics Rev. **19**, 2401850 (2025).
13. R. Li, and J. Sun, "Second harmonic generation enhancement based on quasi-BICs in centrosymmetric materials", Opt. Express **32**, 30311 (2024).
14. J. T. Wang, P. Tonkaev, K. Koshelev, F. Lai, S. Kruk, Q. Song, Yu. Kivshar, and N. C. Panoiu, "Resonantly enhanced second- and third-harmonic generation in dielectric nonlinear metasurfaces", Opto-Electron. Adv. **7**, 230186 (2024).
15. A. A. Popkova, I. M. Antropov, G. I. Tselikov, G. A. Ermolaev, I. Ozerov, R. V. Kirtaev, S. M. Novikov, A. B. Evlyukhin, A. V. Arsenin, V. O. Bessonov, V. S. Volkov, and A. A. Fedyanin, "Nonlinear Exciton-Mie Coupling in Transition Metal Dichalcogenide Nanoresonators", Laser Photonics Rev. **16**, 2100604 (2022).
16. R. Verre, D. G. Baranov, B. Munkhbat, J. Cuadra, M. Käll, and T. Shegai, "Transition metal dichalcogenide nanodisks as high-index dielectric Mie nanoresonators", Nat. Nanotechnol. **14**, 679 (2019).
17. J. Shi, P. Yu, F. Liu et al. (Collaboration), "3R MoS_2 with Broken Inversion Symmetry: A Promising Ultrathin Nonlinear Optical Device", Adv. Mater. **29**, 1701486 (2017).
18. Y. Wang, J. Xiao, S. Yang, Y. Wang, and X. Zhang, "Second harmonic generation spectroscopy on two-dimensional materials [Invited]", Opt. Mater. Express **9**, 1136 (2019).
19. C. Trovatello, C. Ferrante, B. Yang et al. (Collaboration), "Quasi-phase-matched up- and down-conversion in periodically poled layered semiconductors", Nature Photon. **19**, 291 (2025).
20. M. Nauman, J. Yan, D. de Ceglia, M. Rahmani, K. Z. Kamali, C. De Angelis, A. E. Miroshnichenko, Y. Lu, and D. N. Neshev, "Tunable unidirectional nonlinear emission from transition-metal-dichalcogenide metasurfaces", Nature Commun. **12**, 5597 (2021).
21. L. Seidt, T. Weber, A. A. Seredin, T. Possmayer, R. Savelev, M. I. Petrov, S. A. Maier, A. Tittl, L. de S. Menezes, and L. Sortino, "Ultrafast all-optical switching in nonlinear 3R MoS_2 van der Waals metasurfaces", npj Nanophoton. **2**, 37 (2025).
22. G. Zograf, B. Küçköz, A. Yu. Polyakov, A. B. Yankovich, A. Ranjan, M. Bancerek, A. V. Agrawal, E. Olsson, W. Wieczorek, T. J. Antosiewicz, and T. O. Shegai, "Ultrathin 3R-MoS_2 metasurfaces with atomically precise edges for efficient nonlinear nanophotonics", Commun. Phys. **8**, 271 (2025).

23. A. V. Prokhorov, P. D. Terekhov, M. Yu. Gubin, A. V. Shesterikov, X. Ni, V. R. Tuz, and A. B. Evlyukhin, “Resonant light trapping via lattice-induced multipole coupling in symmetrical metasurfaces”, ACS Photonics **9**, 3869 (2022).
24. A. V. Prokhorov, S. M. Novikov, M. Yu. Gubin, R. V. Kirtaev, A. V. Shesterikov, D. V. Grudinin, M. K. Tatmyshevskiy, D. I. Yakubovsky, E. S. Zhukova, A. V. Arsenin, and V. S. Volkov, “Far-Field and Near-Field Manipulation via Multipole Coupling Phenomenon in Van der Waals Metasurfaces”, Laser Phot. Rev. **19**, 2401666 (2025).
25. M. A. Weissflog, A. Fedotova, Y. Tang et al. (Collaboration), “A tunable transition metal dichalcogenide entangled photon-pair source”, Nat. Commun. **15**, 7600 (2024).
26. G. A. Ermolaev, D. V. Grudinin, Y. V. Stebunov et al. (Collaboration), “Giant optical anisotropy in transition metal dichalcogenides for next-generation photonics”, Nat. Commun. **12**, 854 (2021).
27. A. V. Prokhorov, S. M. Novikov, M. Yu. Gubin, R. V. Kirtaev, A. V. Shesterikov, K. M. Stankevich, D. Yakubovsky, A. V. Arsenin, E. Zhukova, S. S. Zhukov, V. G. Leiman, and V. S. Volkov, “Cross-polarization effects in metasurfaces based on nanoscale silicon cuboids with a shape defect: implications for polarization conversion”, ACS Appl. Nano Mater. **5**, 14582 (2022).
28. P. D. Terekhov, V. E. Babicheva, K. V. Baryshnikova, A. S. Shalin, A. Karabchevsky, and A. B. Evlyukhin, “Multipole analysis of dielectric metasurfaces composed of nonspherical nanoparticles and lattice invisibility effect”, Phys. Rev. B **99**, 045424 (2019).
29. A. V. Prokhorov, M. Yu. Gubin, A. V. Shesterikov, A. V. Arsenin, V. S. Volkov, and A. B. Evlyukhin, “Tunable Resonant Invisibility of All-Dielectric Metasurfaces on a Stretchable Substrate: Implications for Highly Sensitive Opto-Mechanical Modulators”, ACS Appl. Nano Mater. **8**, 2319 (2025).
30. M. Zhao, Z. Ye, R. Suzuki, Y. Ye, H. Zhu, J. Xiao, Y. Wang, Y. Iwasa, and X. Zhang, “Atomically phase-matched second-harmonic generation in a 2D crystal”, Light Sci. Appl. **5**, e16131 (2016).
31. F. Abtahi, A. Shaji, G. Q. Ngo, B. Laudert, H. Esfandiar, S. W. Schmitt, and F. Eilenberger, “Thickness Dependence of Linear and Nonlinear Optical Properties of Multilayer 3R-MoS_2”, Adv. Optical Mater. **14**, e03498 (2025).
32. L. M. Malard, T. V. Alencar, A. P. M. Barboza, M. K. Fai, and A. M. de Paula, “Observation of intense second harmonic generation from MoS_2 atomic crystals”, Phys. Rev. B **87**, 201401 (2013).
33. M. Matthiae, K. E. S. Nielsen, A. Larroche, C. Zhou, A. Kristensen, and S. Raza, “Probing optical resonances of silicon nanostructures using tunable-excitation Raman spectroscopy”, Opt. Express **27**, 38479 (2019).
34. F. D. Nunes, T. C. Vasconcelos, M. Bezerra, and J. Weiner, “Electromagnetic energy density in dispersive and dissipative media”, J. Opt. Soc. Am. B **28**, 1544 (2011).
35. A. S. Slavich, G. A. Ermolaev, M. K. Tatmyshevskiy et al. (Collaboration), “Exploring van der Waals materials with high anisotropy: geometrical and optical approaches”, Light Sci. Appl. **13**, 68 (2024).