

Научная статья

УДК 53.097

DOI: <https://doi.org/10.18721/JPM.14407>

## ГЕНЕРАЦИЯ ВТОРОЙ ОПТИЧЕСКОЙ ГАРМОНИКИ ПОВЕРХНОСТЬЮ ПОЛЯРИЗОВАННЫХ СТЕКОЛ: МОДЕЛИРОВАНИЕ И ИЗМЕРЕНИЕ ПОЛОС МЕЙКЕРА

**С. А. Щербак<sup>1,2,3</sup> ✉, И. В. Решетов<sup>1,2</sup>,  
В. В. Журихина<sup>2,1</sup>, А. А. Липовский<sup>1,2</sup>**

<sup>1</sup> Санкт-Петербургский академический университет имени Ж. И. Алферова  
Российской академии наук, Санкт-Петербург, Россия;

<sup>2</sup> Санкт-Петербургский политехнический университет Петра Великого,  
Санкт-Петербург, Россия;

<sup>3</sup> Высшая школа экономики, Санкт-Петербург, Россия

✉ [sergeygt@yandex.ru](mailto:sergeygt@yandex.ru)

**Аннотация.** В работе представлен подробный теоретический анализ явления генерации второй оптической гармоники двумя поверхностями плоскопараллельного изотропного стеклянного образца. Измерена зависимость интенсивности излучения второй гармоники, генерируемой термически поляризованными натрий-силикатными стеклами, от угла падения фундаментальной волны (полосы Мейкера). Проведено качественное и количественное сравнение результатов моделирования и эксперимента, оценено относительное увеличение квадратичной нелинейной восприимчивости приповерхностной области стекла вследствие поляризации.

**Ключевые слова:** нелинейная оптика, генерация второй гармоники, поляризованное стекло, полосы Мейкера

**Финансирование:** работа выполнена в рамках Государственного задания «Исследование структур микро- и нанопластики, формируемых в аморфных диэлектриках под действием сильных полей» (код темы FSRM -2020-001).

**Для цитирования:** Щербак С. А., Решетов И. В., Журихина В. В., Липовский А. А. Генерация второй оптической гармоники поверхностью поляризованных стекол: моделирование и измерение полос Мейкера // Научно-технические ведомости СПбГПУ. Физико-математические науки. 2021. Т. 14, № 4. С. 95–113. DOI: <https://doi.org/10.18721/JPM.14407>

Статья открытого доступа, распространяемая по лицензии CC BY-NC 4.0 (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>)

Original article

DOI: <https://doi.org/10.18721/JPM.14407>

## SECOND HARMONIC GENERATION BY SURFACE OF POLED GLASSES: MODELING AND MEASUREMENT OF MAKER FRINGES

S. A. Scherbak<sup>1,2,3</sup> ✉, I. V. Reshetov<sup>1,2</sup>,

V. V. Zhurikhina<sup>2,1</sup>, A. A. Lipovskii<sup>1,2</sup>

<sup>1</sup> Alferov University, St. Petersburg, Russia;

<sup>2</sup> Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University, St. Petersburg, Russia

<sup>3</sup> Higher School of Economics, St. Petersburg, Russia

✉ [sergeygt@yandex.ru](mailto:sergeygt@yandex.ru)

**Abstract.** This paper presents a detailed theoretical analysis of the phenomenon of the second optical harmonic generation by two surfaces of a transparent isotropic glass plate. The dependence of intensity of the second harmonic wave generated by thermally-poled soda-lime glass plate on the incidence angle of fundamental wave (Maker fringes) has been measured. The obtained results of the modeling and the experiment were compared qualitatively and quantitatively. The comparison showed that thermal poling significantly increased quadratic nonlinear susceptibility  $\chi$  of the sub-surface region of the poled glass. We estimated this relative increase and obtained the following:  $\chi_{xxx}$ ,  $\chi_{xyx}$ ,  $\chi_{yxx}$  increased about 6, 9 and 19 times respectively.

**Keywords:** nonlinear optics, second harmonic generation, poled glass, Maker fringe

**Funding:** the work was done within the framework of a State assignment “Studies in micro- and nanophotonics structures formed in the amorphous dielectrics under the action of strong fields” (subject code FSRM -2020-001).

**For citation:** Scherbak S. A., Reshetov I. V., Zhurikhina V. V., Lipovskii A. A., Second harmonic generation by surface of poled glasses: modeling and measurement of Maker fringes, St. Petersburg Polytechnical State University Journal. Physics and Mathematics. 14 (3) (2021) 95–113 DOI: <https://doi.org/10.18721/JPM.14407>

This is an open access article under the CC BY-NC 4.0 license (<https://creativecommons.org/licenses/by-nc/4.0/>)



## Введение

Развитие производства лазеров с высокой импульсной выходной мощностью обеспечило повышение интереса к процессам генерации второй гармоники (ГВГ) светового излучения, протекающим в отсутствие фазового синхронизма. Из них наиболее эффективными и достаточно широко используемыми являются так называемые черенковская ГВГ [1] и квазисинхронная ГВГ, реализуемая в периодических структурах [2]. Оба этих нелинейно-оптических процесса, как и те, в которых используется фазовый синхронизм, достаточно давно реализованы в материалах, не обладающих центром инверсии. Центральные-симметричные же, в частности изотропные, среды проявляют квадратичные нелинейно-оптические свойства в областях, где эта центральная симметрия нарушается – вблизи их поверхности [3]. Такая поверхностная нелинейность обычно не только обладает достаточной для исследований величиной, но и представляет большой интерес для приложений в сенсорах и датчиках [4, 5]. Дополнительная приповерхностная нелинейность может также появляться при наличии локальных зарядов и полей в образце [6], в частности, при термической поляризации изначально изотропных стекол [7]. При этом нелинейно-оптическая восприимчивость второго порядка локализована в областях, размеры которых могут лежать в диапазоне от единиц нанометров (в случае чисто поверхностной нелинейности) до единиц микрометров (в случае нелинейности, индуцированной термической поляризацией).

При исследовании оптической нелинейности широко используется метод полос Мейкера [8], основанный на измерении угловой зависимости интенсивности излучения второй гармоники при качании образца. Этот подход применяется как при исследовании ГВГ в объеме кристаллов [9], так и при изучении поверхностной/приповерхностной ГВГ поляризованными стеклами [10, 11].

На сегодняшний день в литературе можно найти подробные выкладки для вывода формул угловых зависимостей интенсивности излучения второй гармоники, генерируемой на одном интерфейсе [12] и на интерфейсах многослойной структуры [13 – 15], но есть лишь итоговые выражения для случая ГВГ двумя интерфейсами плоскопараллельного образца, хотя именно этот случай и представляет наибольший практический интерес [16]. Предполагается, что указанные выражения можно получить как частный случай более общих моделей [13, 14]. Однако во всех отмеченных выше работах имеются расхождения в обозначениях, общие модели достаточно громоздки, а вывод итогового выражения для интенсивности ГВГ для случая двух интерфейсов не представлен. Все это затрудняет осознанное использование теоретических моделей для анализа относительно простого, но практически значимого случая ГВГ двумя интерфейсами плоскопараллельного образца. В результате наблюдается несоответствие соотношений, используемых для расчетов различными авторами [16, 17]; более того, выражения, по которым в литературе оценивают квадратичную оптическую нелинейность термически поляризованных стекол, также различны [18, 19].

Настоящая работа посвящена анализу ГВГ двумя интерфейсами плоскопараллельного образца. В ней представлен подробный вывод точных и приближенных аналитических выражений, описывающих полосы Мейкера в рассматриваемом случае и применимых, в частности, к поляризованным стеклам.

Кроме того, полученные теоретические результаты сопоставляются с выполненными экспериментами.

## Теоретическое описание явления

**Постановка задачи.** На рис. 1 приведена схема решаемой задачи. Рассматриваемый образец представляет собой плоскопараллельную пластину толщиной  $d$ . Материал образца (область 2 на рисунке) считается изотропным, т. е. не обладающим объемной квадратичной нелинейностью. Квадратичной нелинейностью в данном случае обладают интерфейсы образца, где симметрия нарушается. Величины поверхностной нелинейной поляризации верхнего (первого) и нижнего (второго) интерфейсов обозначены как  $P_1$  и  $P_2$ , соответственно. В большинстве случаев образец окружен воздухом, однако ниже для общности рассматриваются произвольные показатели преломления верхнего (область 1) и нижнего (область 3) окружений образца, обозначенные как  $n_1$  и  $n_3$ , соответственно; показатель пре-

ломления образца –  $n_2$ . На рис. 1 схематично показан ход световых лучей основной ( $\omega$ ) и удвоенной ( $2\omega$ ) частот. Предполагается, что образец освещается плоской монохроматической волной. В настоящей работе рассматривается только  $p$ -поляризация (в плоскости падения) фундаментальной волны, поскольку нелинейный отклик для фундаментальной волны  $s$ -поляризации (перпендикулярна плоскости падения) для поляризованного стекла ниже, как минимум, на порядок [20].

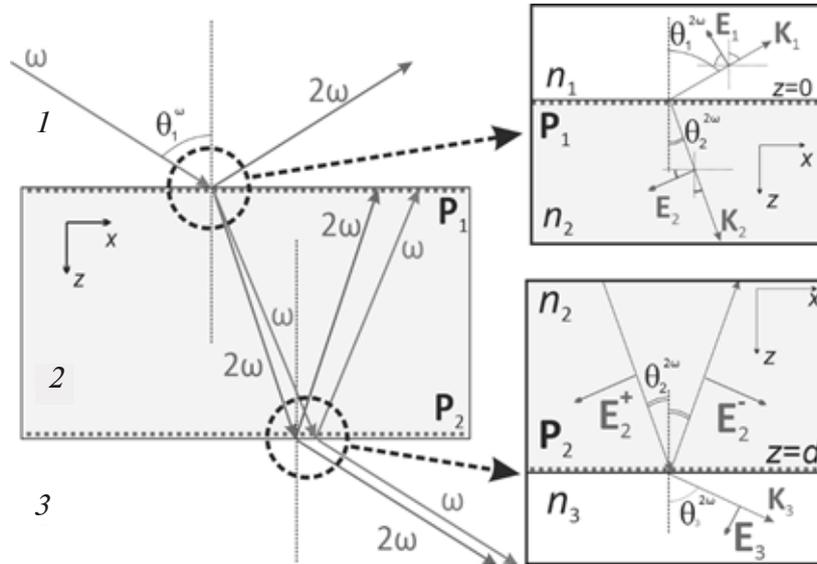


Рис. 1. Схема, иллюстрирующая постановку задачи:

2 – плоскопараллельная пластина (образец); 1, 3 – области верхнего и нижнего окружений образца; стрелки указывают ход лучей.  $P_1, P_2$  – величины поверхностной нелинейной поляризации верхнего и нижнего интерфейсов;  $\omega, 2\omega$  – основная и удвоенная частоты светового излучения;  $E_i$  – векторы электрического поля волны гармоника,  $K_i$  – волновые векторы гармоника.

На вставках – детальный ход лучей гармоника у верхнего и нижнего интерфейсов

**Генерация второй гармоники на верхнем интерфейсе.** Запишем в общем виде выражения для электрического поля волны второй гармоники в средах 1, 2 и 3 (см. рис. 1):

$$\mathbf{E}_1 = E_1 \begin{pmatrix} -\cos \theta_1^{2\omega} \\ -\sin \theta_1^{2\omega} \end{pmatrix} \exp[-in_1^{2\omega} K \sin \theta_1^{2\omega} x + in_1^{2\omega} K \cos \theta_1^{2\omega} z], \quad (1)$$

$$\mathbf{E}_2 = E_2^+ \begin{pmatrix} -\cos \theta_2^{2\omega} \\ \sin \theta_2^{2\omega} \end{pmatrix} \exp[-in_2^{2\omega} K \sin \theta_2^{2\omega} x - in_2^{2\omega} K \cos \theta_2^{2\omega} z] + E_2^- \begin{pmatrix} -\cos \theta_2^{2\omega} \\ -\sin \theta_2^{2\omega} \end{pmatrix} \exp[-in_2^{2\omega} K \sin \theta_2^{2\omega} x + in_2^{2\omega} K \cos \theta_2^{2\omega} (z - d)], \quad (2)$$

$$\mathbf{E}_3 = E_3 \begin{pmatrix} -\cos \theta_3^{2\omega} \\ \sin \theta_3^{2\omega} \end{pmatrix} \exp[-in_3^{2\omega} K \sin \theta_3^{2\omega} x - in_3^{2\omega} K \cos \theta_3^{2\omega} (z - d)]. \quad (3)$$

Искомой здесь выступает величина  $E_3$  – амплитуда электрического поля прошедшей волны второй гармоники. В больших круглых скобках записаны  $x$ - и  $z$ -компоненты поля:

$\begin{pmatrix} E_x \\ E_z \end{pmatrix}$ . В выражении (2) учтено, что электрическое поле  $\mathbf{E}_2$  является суперпозицией полей



двух волн: бегущей вверх от нижней границы ( $\mathbf{E}_2^-$ ) и вниз от верхней границы ( $\mathbf{E}_2^+$ ). Индекс  $2\omega$  у поля опускается для удобства записи. Кроме того, здесь и далее опускается осциллирующий во времени множитель  $\exp(-i2\omega t)$ . Также здесь учтен вид волновых векторов гармоники:

$$\mathbf{K}_1 = n_1^{2\omega} K \begin{pmatrix} \sin \theta_1^{2\omega} \\ -\cos \theta_1^{2\omega} \end{pmatrix}, \quad \mathbf{K}_2 = n_2^{2\omega} K \begin{pmatrix} \sin \theta_2^{2\omega} \\ \cos \theta_2^{2\omega} \end{pmatrix},$$

где  $K = \frac{2\omega}{c} = \frac{4\pi}{\lambda}$  – волновое число волны второй гармоники ( $\lambda$  – длина фундаментальной световой волны).

Выражение для квадратичной поляризации слоя  $\mathbf{P}_1$  имеет вид:

$$\mathbf{P}_1 = \hat{\chi}_1^{(2)} : \mathbf{E}^\omega \cdot \mathbf{E}^\omega (z = 0+), \quad (4)$$

где  $\hat{\chi}_1^{(2)}$  – тензор поверхностной квадратичной восприимчивости верхнего интерфейса ( $z = 0$ );  $\mathbf{E}^\omega$  – электрическое поле фундаментальной волны, порождающее нелинейность.

В данном случае это поле фундаментальной волны сразу под верхней поверхностью стекла, и оно выражается как

$$\mathbf{E}^\omega (z = 0+) = E_0 T_{n_1 \rightarrow n_2}^\omega \begin{pmatrix} -\cos \theta_2^\omega \\ \sin \theta_2^\omega \end{pmatrix} \exp[-in_2^\omega k \sin \theta_2^\omega x], \quad (5)$$

где  $k$  – волновое число фундаментальной волны,  $k = \frac{\omega}{c} = \frac{4\pi}{\lambda}$ ;  $T_{n_1 \rightarrow n_2}^\omega$  – амплитудный коэффициент прохождения  $p$ -поляризованной волны.

Указанный коэффициент определяется формулой Френеля:

$$T_{n_1 \rightarrow n_2}^\omega = \frac{2n_1^\omega \cos \theta_1^\omega}{n_2^\omega \cos \theta_1^\omega + n_1^\omega \cos \theta_2^\omega}. \quad (6)$$

Выражение (5) представлено без учета поля фундаментальной волны, отразившейся от нижней границы стекла. Это допустимо, поскольку нелинейные оптические свойства ярче проявляются при использовании достаточно сфокусированных световых пучков и при их скользком падении на образец.

Квадратичная поляризация слоя  $\mathbf{P}_1$ , записанная без учета конкретного вида тензора  $\hat{\chi}^{(2)}$ , имеет следующий общий вид:

$$\mathbf{P}_1 = \begin{pmatrix} P_1^x \\ P_1^z \end{pmatrix} \exp[-i2n_2^\omega k \sin \theta_2^\omega x]. \quad (7)$$

Для изотропной среды  $Y$ -компонента поляризации отсутствует.

Чтобы найти амплитуды полей гармоники, которые определены выражениями (1) – (3), необходимо использовать граничные условия при наличии нелинейно-поляризованного слоя [21] для электрического поля  $\mathbf{E}$ , электрической индукции  $\mathbf{D}$ , магнитного поля  $\mathbf{H}$  и магнитной индукции  $\mathbf{B}$ :

$$\mathbf{E}_2^\parallel - \mathbf{E}_1^\parallel = -\frac{4\pi}{\epsilon_1'} \nabla_\parallel \mathbf{P}_1^\perp, \quad (8)$$

$$\mathbf{D}_2^\perp - \mathbf{D}_1^\perp = -4\pi \nabla_\parallel \cdot \mathbf{P}_1, \quad (9)$$

$$\mathbf{B}_2^\perp - \mathbf{B}_1^\perp = 0, \quad (10)$$

$$\mathbf{H}_2^\parallel - \mathbf{H}_1^\parallel = \frac{4\pi}{c} \left[ \frac{\partial \mathbf{P}_1}{\partial t} \times \hat{\mathbf{z}} \right]. \quad (11)$$

Индексы  $\perp$  и  $\parallel$  обозначают перпендикулярную и параллельную компоненты векторов по отношению к плоскости интерфейса;  $\varepsilon'_1$  – диэлектрическая проницаемость интерфейсного слоя.

Часто используется допущение, что нелинейно-поляризованный слой располагается на воздушной стороне интерфейса [22], т. е. что  $\varepsilon'_1 = 1$ .

Поскольку электрическое и магнитное поля связаны хорошо известными соотношениями, достаточно использовать два любых граничных условия. Для  $p$ -поляризации удобно использовать (8) и (9). Подставляем выражения (1) и (2) при  $z = 0$  и (7) в формулы (8) и (9). При этом вторым слагаемым в выражении (2), которое соответствует полю волны гармоника, бегущей вверх от нижней границы, можно пренебречь по отмеченным выше причинам. Таким образом, имеем:

$$\begin{aligned} & E_2^+ (-\cos \theta_2^{2\omega}) \exp[-in_2^{2\omega} K \sin \theta_2^{2\omega} x] - \\ & - E_1 (-\cos \theta_1^{2\omega}) \exp[-in_1^{2\omega} K \sin \theta_1^{2\omega} x] = \\ & = -\frac{4\pi}{\varepsilon'_1} (-i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega}) P_1^z \exp[-i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} x]; \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} & \varepsilon_2^{2\omega} E_2^+ (\sin \theta_2^{2\omega}) \exp[-in_2^{2\omega} K \sin \theta_2^{2\omega} x] - \\ & - \varepsilon_1^{2\omega} E_1 (-\sin \theta_1^{2\omega}) \exp[-in_1^{2\omega} K \sin \theta_1^{2\omega} x] = \\ & = -4\pi (-i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega}) P_1^x \exp[-i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} x]. \end{aligned} \quad (13)$$

Здесь учтено материальное соотношение между электрическим полем и индукцией:  $\mathbf{D} = \varepsilon \mathbf{E}$ . Диэлектрическая проницаемость при этом связана с коэффициентом преломления известным соотношением  $\varepsilon = n^2$ .

Чтобы граничные условия (12) и (13) выполнялись для любого  $x$ , необходимо равенство показателей экспонент:

$$n_2^{2\omega} K \sin \theta_2^{2\omega} = n_1^{2\omega} K \sin \theta_1^{2\omega} = 2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} \quad (14)$$

Фактически равенства (14) выражают закон преломления света.

С учетом равенств (14) выражения (12) и (13) приводятся к виду:

$$-E_2^+ \cos \theta_2^{2\omega} + E_1 \cos \theta_1^{2\omega} = \frac{4\pi}{\varepsilon'_1} i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} P_1^z, \quad (15)$$

$$\varepsilon_2^{2\omega} E_2^+ \sin \theta_2^{2\omega} + \varepsilon_1^{2\omega} E_1 \sin \theta_1^{2\omega} = 4\pi i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} P_1^x. \quad (16)$$

Решая совместно уравнения (15) и (16) относительно неизвестных  $E_1$  и  $E_2^+$ , получаем:

$$E_1 = \frac{4\pi i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega}}{\cos \theta_1^{2\omega} + \frac{n_1^{2\omega}}{n_2^{2\omega}} \cos \theta_2^{2\omega}} \left\{ \frac{\cos \theta_2^{2\omega}}{\varepsilon_2^{2\omega} \sin \theta_2^{2\omega}} P_1^x + \frac{1}{\varepsilon'_1} P_1^z \right\}, \quad (17)$$

$$E_2^+ = \frac{4\pi i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega}}{\cos \theta_2^{2\omega} + \frac{n_2^{2\omega}}{n_1^{2\omega}} \cos \theta_1^{2\omega}} \left\{ \frac{\cos \theta_1^{2\omega}}{\varepsilon_1^{2\omega} \sin \theta_1^{2\omega}} P_1^x - \frac{1}{\varepsilon'_1} P_1^z \right\}. \quad (18)$$

Хорошо видно, что выражение (18) получается из выражения (17) перестановкой нижних индексов 1 и 2 и заменой знака у  $P_1^z$ .

Таким образом, выражения (17) и (18) определяют амплитуды электрического поля волн второй гармоники, бегущих «вверх» и «вниз» от интерфейса (см. рис. 1) при его освещении плоской монохроматической волной  $p$ -поляризации. Полученные выражения совпадают с приведенными в статье [12].

**Генерация второй гармоники на нижнем интерфейсе.** Рассмотрим теперь нижний интерфейс объекта ( $z = d$ ). Используем те же самые граничные условия:

$$\mathbf{E}_3^{\parallel} - \mathbf{E}_2^{\parallel} = -\frac{4\pi}{\varepsilon_2'} \nabla_{\parallel} \mathbf{P}_2^{\perp}, \quad (19)$$

$$\mathbf{D}_3^{\perp} - \mathbf{D}_2^{\perp} = -4\pi \nabla_{\parallel} \cdot \mathbf{P}_2. \quad (20)$$

Основное поле, порождающее нелинейную поляризацию второго интерфейса  $\mathbf{P}_2$ , выражается как

$$\begin{aligned} \mathbf{E}^{\omega}(z = d - 0) = & E_0 T_{n_1 \rightarrow n_2}^{\omega} \begin{pmatrix} -\cos \theta_2^{\omega} \\ \sin \theta_2^{\omega} \end{pmatrix} \exp[-in_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} x - in_2^{\omega} k \cos \theta_2^{\omega} d] + \\ & + E_0 T_{n_1 \rightarrow n_2}^{\omega} R_{n_2 \rightarrow n_3}^{\omega} \begin{pmatrix} -\cos \theta_2^{\omega} \\ \sin \theta_2^{\omega} \end{pmatrix} \exp[-in_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} x + in_2^{\omega} k \cos \theta_2^{\omega} d], \end{aligned} \quad (21)$$

где второе слагаемое соответствует полю волны, отраженной от нижней границы, и  $R_{n_2 \rightarrow n_3}^{\omega}$  – френелевский коэффициент отражения по амплитуде.

Френелевский коэффициент отражения имеет вид:

$$R_{n_2 \rightarrow n_3}^{\omega} = \frac{n_3^{\omega} \cos \theta_2^{\omega} - n_2^{\omega} \cos \theta_3^{\omega}}{n_3^{\omega} \cos \theta_2^{\omega} + n_2^{\omega} \cos \theta_3^{\omega}}. \quad (22)$$

По аналогии с выражениями (4) и (7) нелинейная поляризация второго интерфейса имеет вид:

$$\mathbf{P}_2 = \hat{\chi}_2^{(2)} : \mathbf{E}^{\omega} \cdot \mathbf{E}^{\omega}(z = d) = \begin{pmatrix} P_2^x \\ P_2^z \end{pmatrix} \exp[-i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} x]. \quad (23)$$

Подставляем в граничные условия (19), (20) выражение для электрического поля, определяемое формулами (2) и (3) при  $z = d$ , и, сокращая общий экспоненциальный множитель  $\exp[-in_2^{\omega} K \sin \theta_2^{\omega} x]$ , имеем:

$$\begin{aligned} -E_3 \cos \theta_3^{2\omega} - \left( -E_2^+ \cos \theta_2^{2\omega} \exp[-in_2^{2\omega} K \cos \theta_1^{2\omega} d] - E_2^- \cos \theta_2^{2\omega} \right) = \\ = \frac{4\pi}{\varepsilon_2'} i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} P_2^z, \end{aligned} \quad (24)$$

$$\begin{aligned} \varepsilon_3^{2\omega} E_3 \sin \theta_3^{2\omega} - \left( \varepsilon_2^{2\omega} E_2^+ \sin \theta_2^{2\omega} \exp[-in_2^{2\omega} K \cos \theta_2^{2\omega} d] - \varepsilon_2^{2\omega} E_2^- \sin \theta_2^{2\omega} \right) = \\ = 4\pi i2n_2^{\omega} k \sin \theta_2^{\omega} P_2^x. \end{aligned} \quad (25)$$

Введем следующие обозначения:

$$n_2^{2\omega} K \cos \theta_2^{2\omega} d = \Phi_{2\omega}, \quad (26)$$

$$n_2^{\omega} k \cos \theta_2^{\omega} d = \Phi_{\omega}. \quad (27)$$

Тогда выражения (24), (25) приводятся к следующему виду:

$$-E_3 \cos \theta_3^{2\omega} + E_2^- \cos \theta_2^{2\omega} = \frac{4\pi i 2n_2^0 k \sin \theta_2^0}{\varepsilon_2'} P_2^z - \cos \theta_2^{2\omega} E_2^+ \exp[-i\Phi_{2\omega}], \quad (28)$$

$$\varepsilon_3^{2\omega} E_3 \sin \theta_3^{2\omega} + \varepsilon_2^{2\omega} E_2^- \sin \theta_2^{2\omega} = 4\pi i 2n_2^0 k \sin \theta_2^0 P_2^x + \varepsilon_2^{2\omega} E_2^+ \sin \theta_2^{2\omega} \exp[-i\Phi_{2\omega}]. \quad (29)$$

Видно, что уравнения (28), (29) аналогичны уравнениям (15), (16), и решение для  $E_3$  можно получить из решения для  $E_2^+$  (18) путем следующих замен:

$$\varepsilon_1' \rightarrow \varepsilon_2', \quad \theta_1^{2\omega} \rightarrow \theta_2^{2\omega}, \quad \theta_2^{2\omega} \rightarrow \theta_3^{2\omega}, \quad n_1^{2\omega} \rightarrow n_2^{2\omega}, \quad n_2^{2\omega} \rightarrow n_3^{2\omega},$$

$$P_1^z \rightarrow P_2^z - \frac{\varepsilon_2'}{4\pi i 2n_2^0 k \sin \theta_2^0} \cos \theta_2^{2\omega} E_2 \exp(-i\Phi_{2\omega}),$$

$$P_1^x \rightarrow P_2^x + \frac{\varepsilon_2}{4\pi i 2n_2^0 k \sin \theta_2^0} \sin \theta_2^{2\omega} E_2 \exp(-i\Phi_{2\omega}).$$

Совершая эти замены в выражении (18), получаем:

$$E_3 = \frac{4\pi i 2n_2^0 k \sin \theta_2^0}{\cos \theta_3^{2\omega} + \frac{n_3^{2\omega}}{n_2^{2\omega}} \cos \theta_2^{2\omega}} \left\{ \frac{\cos \theta_2^{2\omega}}{\varepsilon_2^{2\omega} \sin \theta_2^{2\omega}} P_2^x - \frac{1}{\varepsilon_2'} P_2^z \right\} + \frac{2n_2^{2\omega} \cos \theta_2^{2\omega}}{n_3^{2\omega} \cos \theta_2^{2\omega} + n_2^{2\omega} \cos \theta_3^{2\omega}} \exp(-i\Phi_{2\omega}) E_2^+. \quad (30)$$

Таким образом, выражение (30) определяет амплитуду электрического поля волны второй гармоники, прошедшей через образец. Первое слагаемое соответствует полю волны гармоники, которая генерируется на нижней границе (аналогично выражению (18)), второе слагаемое — полю волны гармоники, генерируемой на верхней границе и проходящей через нижнюю.

**Расчет результирующей интенсивности второй гармоники.** Для получения фактического результата при использовании выражения (30) необходимо определить конкретный вид выражений для нелинейных поляризаций  $\mathbf{P}_1$  и  $\mathbf{P}_2$ . Для изотропной среды тензор  $\hat{\chi}^{(2)}$  имеет три ненулевых компоненты:  $\chi_{zzz}$ ,  $\chi_{zxx}$ , и  $\chi_{xxz}$ . Тогда, используя выражения (4), (5) и (21), (23), можно записать в явном виде:

$$\mathbf{P}_1 = \left( E_0 T_{n_1 \rightarrow n_2}^\omega \right)^2 \left[ \left( \chi_{zzz}^1 \sin^2 \theta_2^0 + \chi_{zxx}^1 \cos^2 \theta_2^0 \right) \hat{\mathbf{e}}_z - \chi_{zxx}^1 \sin \theta_2^0 \cos \theta_2^0 \hat{\mathbf{e}}_x \right]; \quad (31)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{P}_2 = & \left( E_0 T_{n_1 \rightarrow n_2}^\omega \right)^2 \left[ \left( \chi_{zzz}^2 \sin^2 \theta_2^0 (e^{-i\Phi_\omega} - R_{n_2 \rightarrow n_3}^\omega e^{i\Phi_\omega})^2 + \right. \right. \\ & \left. \left. + \chi_{zxx}^2 \cos^2 \theta_2^0 (e^{-i\Phi_\omega} + R_{n_2 \rightarrow n_3}^\omega e^{i\Phi_\omega})^2 \right) \hat{\mathbf{e}}_z - \right. \\ & \left. - \chi_{zxx}^2 \sin \theta_2^0 \cos \theta_2^0 (e^{-i\Phi_\omega} - R_{n_2 \rightarrow n_3}^\omega e^{i\Phi_\omega}) (e^{-i\Phi_\omega} + R_{n_2 \rightarrow n_3}^\omega e^{i\Phi_\omega}) \hat{\mathbf{e}}_x \right]. \end{aligned} \quad (32)$$



Таким образом, для вычисления интенсивности волны второй гармоники необходимо осуществить ряд шагов.

*Шаг 1.* Подставить в формулу (30) выражение (18) для  $E_2^+$ .

*Шаг 2.* Подставить в формулу (30) выражения (31), (32) для нелинейной поляризации.

*Шаг 3.* Выразить углы  $\theta_{2,3}^{\omega,2\omega}$  через угол падения светового луча  $\theta_1^\omega$  в соответствии с законами преломления.

*Шаг 4.* Возвести модуль полученного выражения в квадрат для получения интенсивности волны второй гармоники  $I_{2\omega}$ .

### Результаты моделирования и их интерпретация

Рассмотрим следующие параметры структуры:

$$d = 1 \text{ мм}, \lambda = 1064 \text{ нм},$$

$$n_1^\omega = n_3^\omega = n_1^{2\omega} = n_3^{2\omega} = 1,000, n_2^\omega = 1,506, n_2^{2\omega} = 1,518,$$

$$\chi_{zzz}^1 = 1, \chi_{zzz}^2 = -1, \chi_{xzx}^1 = \chi_{zxx}^1 = 1/3, \chi_{xzx}^2 = \chi_{zxx}^2 = -1/3 \quad (33)$$

(здесь и далее  $\hat{\chi}^{(2)}$  в произвольных единицах).

В данном случае рассмотрены компоненты тензора квадратичной восприимчивости интерфейсов, одинаковые по величине, но разные по знаку, что отражает различную ориентацию верхнего и нижнего интерфейсов (верхний – воздух-стекло, нижний – стекло-воздух). Отметим, что соотношение

$$|\chi_{xzx} / \chi_{zzz}| = |\chi_{zxx} / \chi_{zzz}| = 1/3$$

характерно для поляризованных стекол, нелинейность которых, как считается, индуцирована замороженным электрическим полем [23]. Выбранные значения показателей преломления соответствуют типичным натрий-кальций-силикатным стеклам, в частности слайдам для микроскопов компании Agar Scientific (Великобритания) [24].

Также рассмотрим случай, когда нижний и верхний интерфейсы характеризуются различными величинами тензора квадратичной восприимчивости:

$$\chi_{zzz}^1 = 5, \chi_{zzz}^2 = -1, \chi_{xzx}^1 = \chi_{zxx}^1 = 5/3, \chi_{xzx}^2 = \chi_{zxx}^2 = -1/3. \quad (34)$$

На рис. 2 приведены рассчитанные угловые зависимости интенсивности волны второй гармоники для обозначенных наборов параметров, соответственно.

Зависимости, представленные на рис. 2, имеют вид, характерный для полос Мейкера [8, 25, 26], т.е. угловой зависимости интенсивности излучения второй гармоники. У классических полос Мейкера для образца с объемной нелинейностью периодичность связана с длиной синхронизма при генерации второй гармоники в материале. В рассматриваемом случае, хотя вид кривых качественно подобен, периодичность связана с интерференцией волн гармоники, генерируемых на верхней и нижней поверхностях образца. Максимумы кривых соответствуют сложению волн в фазе (конструктивная интерференция), а минимумы – сложению волн в противофазе (деструктивная интерференция). Из формулы (30) после подстановки выражений (31), (32) качественно можно выделить соответствующие фазовые множители:  $e^{-i2\Phi_\omega}$  – для волны гармоники, генерируемой на нижнем интерфейсе, и  $e^{-i\Phi_{2\omega}}$  – для волны гармоники, генерируемой на верхнем. Соответственно, разность фаз, отвечающая за интерференцию, имеет следующий вид:

$$\Delta\Phi = \Phi_{2\omega} - 2\Phi_\omega = 2k(n_2^{2\omega} \cos \theta_2^{2\omega} - n_2^\omega \cos \theta_2^\omega). \quad (35)$$

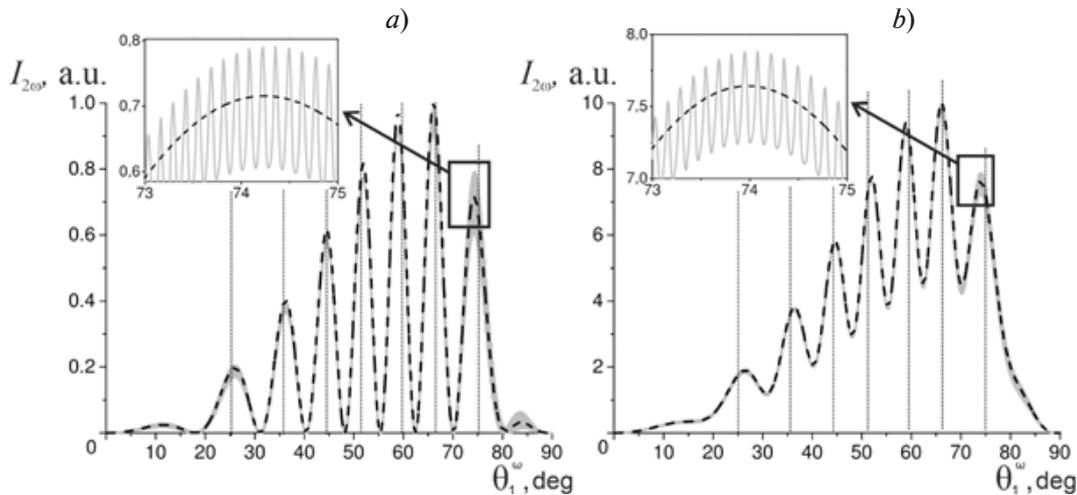


Рис. 2. Расчетные зависимости интенсивности излучения второй гармоники от угла падения фундаментальной волны (полосы Мейкера) для образцов со значениями поверхностной нелинейной восприимчивости (33) (a) и (34) (b).

Получены с учетом (сплошные кривые серого цвета) и без учета (пунктир черного цвета) отражения фундаментальной волны от нижнего интерфейса

Если представить величину  $n_2^{2\omega}$  в виде суммы  $n_2^{2\omega} = n_2^{\omega} + \Delta n$  и разложить выражение (35) по малому параметру  $\Delta n$ , то для набега фазы приближенно можно записать:

$$\Delta\Phi = \frac{2kd\Delta n}{\cos\theta_2^{\omega}}. \quad (36)$$

Таким образом, условия максимума и минимума интенсивности волны второй гармоники имеют, соответственно, следующий приближенный вид:

$$\frac{2kd\Delta n}{\cos\theta_2^{\omega}} = 2\pi(N + 1/2), \quad (37)$$

$$\frac{2kd\Delta n}{\cos\theta_2^{\omega}} = 2\pi N, \quad (38)$$

где  $N$  – целое число.

На рис. 2 вертикальными точечными линиями обозначены положения максимумов интенсивности, оцененные по формуле (37). Видно, что расчет по точной формуле (30) и оценка (37) дают практически идентичные положения максимумов интенсивности. Важно отметить, что такая оценка применима для достаточно малого различия показателей преломления материала на основной и удвоенной частотах, что, как правило, справедливо для материалов с нормальной дисперсией, в частности стекол, вдали от полос поглощения.

Если сравнить зависимости на рис. 2, a и 2, b, то видно, что в случае одинаковых нелинейных восприимчивостей верхнего и нижнего интерфейсов (см. рис. 2, a) интенсивность в минимумах падает практически до нуля. Это связано с интерференционной природой эффекта: в указанном случае амплитуды волн гармоники от верхнего и нижнего интерфейсов одинаковы и их деструктивная интерференция дает нуль. Ситуация, когда интенсивность гармоники в минимумах мейкеровской кривой не равна нулю, свидетельствует о различных величинах нелинейной восприимчивости двух интерфейсов (см. рис. 2, b).



Также на зависимостях, показанных на рис. 2 сплошными линиями серого цвета, видны быстро осциллирующие колебания малой амплитуды (см. изображения на вставках). Их природа кроется в интерференции фундаментальной волны в пластине. В представленной модели за эту интерференцию отвечает слагаемое  $R_{n_2 \rightarrow n_3}^{\omega} e^{i\Phi_{\omega}}$  в выражении (32). Фактической причиной быстрых осцилляций, наблюдаемых в генерации второй гармоники, является отражение фундаментальной волны от нижней границы. Если принять  $R_{n_2 \rightarrow n_3}^{\omega} = 0$ , то этот эффект можно исключить (пунктирные кривые черного цвета на рис. 2). Поскольку в качестве примера рассматривается образец макроскопической толщины (1 мм), то и периодичность этих осцилляций по углу падения крайне мала (менее  $0,1^\circ$ ). Более того, в эксперименте световой пучок фундаментальной частоты, возбуждающий излучение второй гармоники, как правило, сфокусирован, т. е. имеет достаточную расходимость. В связи с этим эти осцилляции усредняются.

### Экспериментальные данные

**Поляризация стекла.** В работе использовалось промышленное щелочно-силикатное стекло марки Menzel (микроскопные слайды) производства компании Agar Scientific [24]. Для того чтобы повысить нелинейный отклик стекла, не обладающего объемной квадратичной нелинейностью (в силу его изотропии), была проведена его термическая поляризация. Пластины стекла толщиной 1 мм зажимали между двумя плоскими стальными электродами и нагревали до  $300^\circ\text{C}$ . Затем к электродам в течение 30 мин прикладывали постоянное электрическое напряжение 800 В. При поляризации присутствующие в стекле катионы щелочных и щелочноземельных металлов отрываются от немостиковых атомов кислорода, с которыми они исходно связаны, и смещаются в сторону катодного электрода, образуя субанодный поляризованный слой, обедненный катионами. В результате в этом слое остаются отрицательно заряженные немостиковые атомы кислорода  $\text{O}^-$ , формирующие нескомпенсированный объемный заряд [27]. После поляризации образец охлаждался до комнатной температуры под приложенным напряжением для предотвращения процесса обратного дрейфа смещенных катионов, затем напряжение отключали. При комнатной температуре этот сформированный в субанодной области объемный заряд и порожденное им электрическое поле могут сохраняться долгое время [28] ввиду кинетических ограничений. Модифицированный таким образом анодный интерфейс стекла обладает значительно большей оптической нелинейностью, чем поверхность исходного стекла [7]. При термической поляризации катодная сторона стекла практически не модифицируется, и ее обычно считают идентичной поверхности исходного стекла [29].

**Схема измерений ГВГ.** Реализованная нами схема измерений интенсивности сигнала второй гармоники методом полос Мейкера [8] приведена на рис. 3.

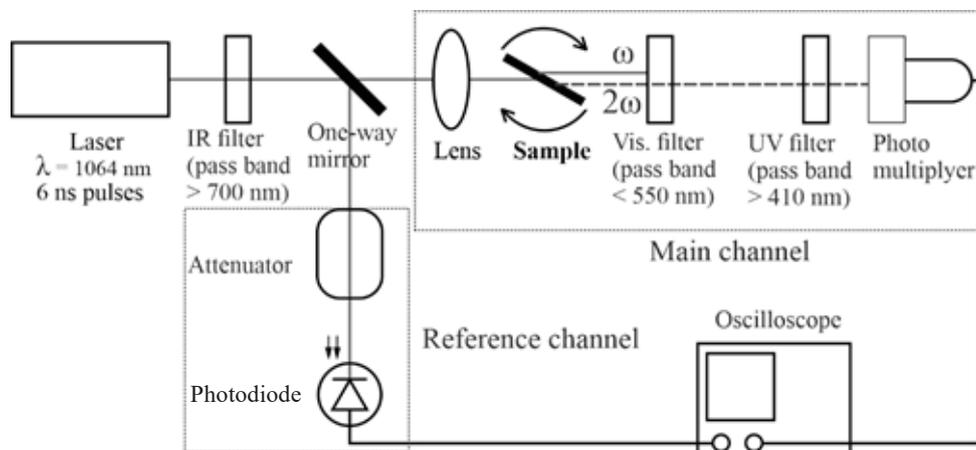


Рис. 3. Схема измерения сигнала второй гармоники

Для возбуждения оптической нелинейности использовался твердотельный лазер Litron Nano L (Великобритания) на основе иттрий-алюминиевого граната (Nd:YAG), генерирующий импульсы излучения с длиной волны 1064 нм длительностью 6 нс. Лазерный луч разделялся на два полупрозрачным зеркалом. Один из них поступал в опорный канал, где происходило контрольное измерение интенсивности лазерного излучения; другой поступал в основной канал, где, проходя через фокусирующую линзу, падал на образец стекла, размещенный во вращающемся держателе. Квадратично нелинейные интерфейсы генерировали волну второй гармоники с частотой  $2\omega$ , которая вместе с фундаментальным излучением частоты  $\omega$  попадала на фильтр, подавляющий фундаментальную волну, и после него на фотоумножитель (ФЭУ). Перед ФЭУ также размещался ультрафиолетовый фильтр, поглощающий третью гармонику, присутствующую в излучении. Измерения ГВГ проводились при непрерывном вращении образца от  $-80$  до  $+80^\circ$  со скоростью вращения  $20^\circ/\text{с}$ . Частота записи измеряемой интенсивности составляла 1,5 Гц.

**Результаты измерений и сравнение с моделью.** Описанным выше методом были измерены угловые зависимости интенсивности излучения второй гармоники (полосы Мейкера), генерируемого образцом исходного стекла и образцом, подвергнутым термической поляризации. Результаты представлены на рис. 4 сплошными серыми линиями. Кривые на рис. 4 нормированы на свой собственный максимум.

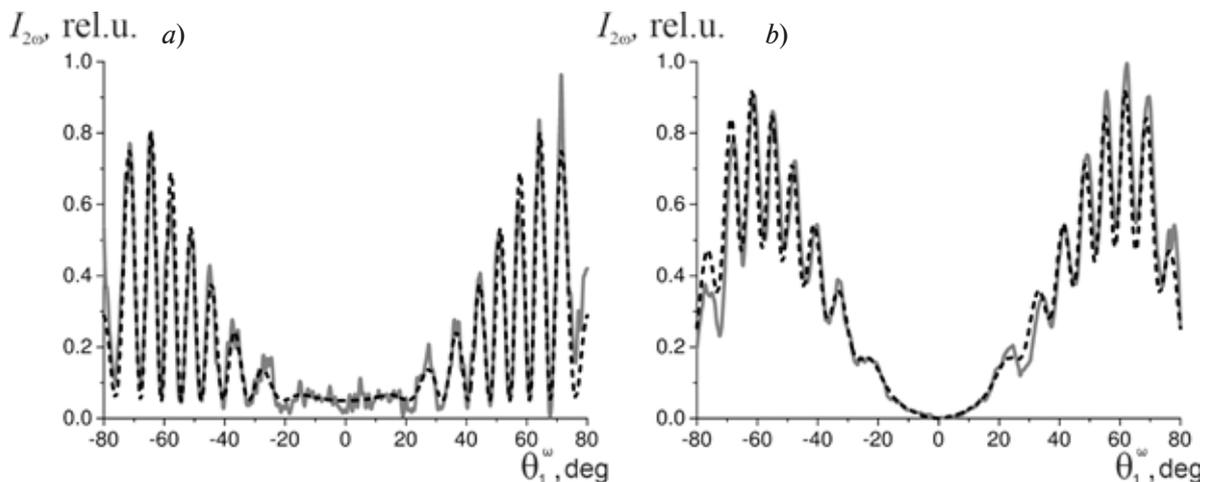


Рис. 4. Экспериментальные (сплошные кривые серого цвета) и расчетные (пунктиры черного цвета) полосы Мейкера для образцов чистого (а) и поляризованного (b) стекла

Экспериментальные зависимости на рис. 4 качественно подобны модельным на рис. 2. Для образца исходного стекла (рис. 4,а) интенсивность излучения второй гармоники в минимумах практически равна нулю, что свидетельствует об одинаковой нелинейной восприимчивости интерфейсов. Для поляризованного образца (рис. 4,б) интенсивность в минимумах оказывается существенно выше нуля. Это, как отмечалось выше, говорит о том, что нелинейность одного из интерфейсов (субанодный поляризованный слой) значительно выше, чем у другого (катодная сторона стекла).

Полученные экспериментальные зависимости были аппроксимированы модельными путем подбора оптимальных параметров. Аппроксимирующее выражение имело вид:

$$I_{2\omega}(\theta) \sim A + |E_3(\theta_1^\circ - \theta_0)|^2, \quad (39)$$

где  $E_3$  определяется выражением (30), тогда как  $A$ ,  $\theta_0$  – вспомогательные параметры, позволяющие учесть, соответственно, шумовую «подставку» в экспериментальных данных и возможный сбой нулевого угла при измерениях.

Наборы параметров, дающие наилучшую аппроксимацию измеренных полос



Мейкера, представлены в табл. 1. Прочие фиксированные параметры:  $d = 1$  мм,  $\lambda = 1064$  нм,  $n_1^{\omega} = n_3^{\omega} = n_1^{2\omega} = n_3^{2\omega} = 1$ .

Таблица 1

**Наборы модельных параметров, дающие наилучшее совпадение с экспериментальными данными**

Параметр	Единица измерения	Значение параметра для образца	
		исходного	поляризованного
$n_2^{\omega}$	—	1,505	1,505
$\Delta n$		0,01345	0,01318
$\theta_0$	Градусы	-0,12	0,54
$A$	Произвольные единицы	0,05	0
$\chi_{zzz}^1$		$1,5 \cdot 10^6$	$3,5 \cdot 10^6$
$\chi_{zxx}^1$		$0,4 \cdot 10^6$	$1,5 \cdot 10^6$
$\chi_{xxz}^1$		$0,3 \cdot 10^6$	$2,3 \cdot 10^6$
$\chi_{zzz}^2$		$-1,5 \cdot 10^6$	$-0,6 \cdot 10^6$
$\chi_{zxx}^2$		$0,4 \cdot 10^6$	$-0,10 \cdot 10^6$
$\chi_{xxz}^2$		$0,3 \cdot 10^6$	$-0,06 \cdot 10^6$

Следует отметить, что для исходного стекла при моделировании считалось, что  $\chi_{ijk}^1 = -\chi_{jik}^2$ ; кроме того, нелинейная восприимчивость поляризованного стекла не является строго поверхностной, а распределена в объеме поляризованного субанодного слоя [8]. Толщина этого слоя составляет несколько микрометров, что существенно ниже длины синхронизма для поляризованного стекла ( $\lambda/(2\Delta n) \approx 50$  мкм). Поэтому с точки зрения макроскопического проявления эффекта ГВГ такая объемная нелинейность практически не отличается от поверхностной. Чтобы все же учесть, что нелинейная поляризация для случая поляризованного стекла распределена в модифицированной субанодной области, мы полагали, что  $\epsilon_1' = n_2^2 \approx 2,25$ .

Значения  $\chi_{ijk}^{1,2}$  здесь получены в произвольных единицах, однако особый интерес представляет увеличение нелинейной восприимчивости субанодного (первого) интерфейса после поляризации. Далее в табл. 2 приведены относительные значения нелинейной восприимчивости интерфейсов после нормировки на величину  $\chi_{zzz}^2$  (полагаем, что для чистого стекла и для катодного интерфейса поляризованного стекла поверхностные нелинейные восприимчивости одинаковы [29]).

Важно отметить, что проведенная аппроксимация не является достаточно строгой ввиду большого числа варьируемых параметров. Скорее, полученный результат следует воспринимать как характерную оценку. На основе данных, представленных в табл. 2, можно сделать следующие выводы. Во-первых, значение компоненты  $\chi_{zzz}$  заметно выше

Таблица 2

**Расчетные относительные значения  
нелинейной восприимчивости интерфейсов**

Нормализованный параметр	Значение параметра для образца	
	исходного	поляризованного
$ \chi_{zzz}^1 / \chi_{zzz}^2 $	1,00	5,80
$ \chi_{zxx}^1 / \chi_{zzz}^2 $	0,27	2,50
$ \chi_{xzx}^1 / \chi_{zzz}^2 $	0,20	3,80
$ \chi_{zzz}^2 / \chi_{zzz}^2 $	1,00	1,00
$ \chi_{zxx}^2 / \chi_{zzz}^2 $	0,27	0,17
$ \chi_{xzx}^2 / \chi_{zzz}^2 $	0,20	0,10

значений компонент  $\chi_{zxx}$  и  $\chi_{xzx}$ , как и предполагалось выше. При этом значения  $\chi_{zxx}$  и  $\chi_{xzx}$  близки, как и должно быть из соображений симметрии [30]. Во-вторых, значения нелинейной восприимчивости поляризованного интерфейса существенно выше значений восприимчивости поверхности чистого стекла: начиная с  $\chi_{zzz}$  (примерно в 6 раз) и кончая  $\chi_{zxx}$  (примерно в 19 раз).

Таким образом, наглядно показано, что поляризация стекла в разы повышает нелинейную восприимчивость относительно поверхности чистого стекла.

**Заключение**

В работе представлен подробный теоретический анализ генерации второй оптической гармоники двумя поверхностями плоскопараллельного изотропного образца при наклонном падении фундаментальной световой волны.

Получено итоговое выражение для интенсивности выходного излучения второй гармоники, учитывающее как генерацию волн второй гармоники на двух интерфейсах образца, так и их интерференцию.

Рассмотрены модельные случаи одинаковых и различных нелинейных восприимчивостей двух интерфейсов, проанализированы их различия в плане интерференционных эффектов.

Измерена зависимость интенсивности излучения второй гармоники от угла падения фундаментальной волны (полосы Мейкера) на термически поляризованные образцы натрий-силикатного стекла.

Проведено качественное и количественное сравнение результатов моделирования и данных эксперимента. Показано, что поляризация существенно повышает нелинейную восприимчивость субанодной поверхности стекла: начиная с  $\chi_{zzz}$  (примерно в 6 раз) и кончая  $\chi_{zxx}$  (примерно в 19 раз). Полученные количественные результаты отражают характерные тенденции: доминирование компоненты  $\chi_{zzz}$  над остальными и близость значений  $\chi_{zxx}$  и  $\chi_{xzx}$ .



## СПИСОК ЛИТЕРАТУРЫ

1. **Falsi L., Tartara L., Di Mei F., et al.** Constraint-free wavelength conversion supported by giant optical refraction in a 3D perovskite supercrystal // *Communications Materials*. 2020. Vol. 1. No. 1. P. 76.
2. **Alden D., Troha T., Kirste R., Mita S., Guo Q., Hoffmann A., Zgonik M., Collazo R., Sitar Z.** Quasi-phase-matched second harmonic generation of UV light using AlN waveguides // *Applied Physics Letters*. 2019. Vol. 114. No. 10. P. 103504.
3. **Krause D., Teplin C. W., Rogers C. T.** Optical surface second harmonic measurements of isotropic thin-film metals: Gold, silver, copper, aluminum, and tantalum // *Journal of Applied Physics*. 2004. Vol. 96. No. 7. Pp. 3626–3634.
4. **Tran R. J., Sly K. L., Conboy J. C.** Applications of surface second harmonic generation in biological sensing // *Annual Review of Analytical Chemistry*. 2017. Vol. 10. No. 1. Pp. 387–414.
5. **Ghirardini L., Baudrion A.-L., Monticelli M., Petti D., Biagioni P., Duò L., Pellegrini G., Adam P.-M., Finazzi M., Celebrano M.** Plasmon-enhanced second harmonic sensing // *The Journal of Physical Chemistry C*. 2018. Vol. 122. No. 21. Pp. 11475–11481.
6. **Huang L., Ren G., Gao Y., Zhu B.** Second-harmonic generation of second-order modes in thermally poled double-anode optical fibers // *Journal of the Optical Society of America B*. 2017. Vol. 34. No. 12. P. 2640.
7. **Poirier G., Dussauze M., Rodriguez V., Adamietz F., Karam L., Cardinal T., Fargin E.** Second harmonic generation in sodium tantalum germanate glasses by thermal poling // *The Journal of Physical Chemistry C*. 2019. Vol. 123. No. 43. Pp. 26528–26535.
8. **Maker P. D., Terhune R. W., Nisenoff M., Savage C. M.** Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics // *Physical Review Letters*. 1962. Vol. 8. No. 1. Pp. 21–23.
9. **Notake T., Takeda M., Okada S., Hosobata T., Yamagata Y., Minamide H.** Characterization of all second-order nonlinear-optical coefficients of organic N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline crystal // *Scientific Reports*. 2019. Vol. 9. No. 1. P. 14853.
10. **Dussauze M., Fargin E., Lahaye M., Rodriguez V., Adamietz F.** Large second-harmonic generation of thermally poled sodium borophosphate glasses // *Optics Express*. 2005. Vol. 13. No. 11. P. 4064.
11. **Karam L., Adamietz F., Rodriguez V., Bondu F., Lepicard A., Cardinal T., Fargin E., Richardson K., Dussauze M.** The effect of the sodium content on the structure and the optical properties of thermally poled sodium and niobium borophosphate glasses // *Journal of Applied Physics*. 2020. Vol. 128. No. 4. P. 043106.
12. **Shen Y.** Optical second harmonic generation at interfaces // *Annual Review of Physical Chemistry*. 1989. Vol. 40. No. 1. Pp. 327–350.
13. **Sipe J. E.** New Green-function formalism for surface optics // *Journal of the Optical Society of America B*. 1987. Vol. 4. No. 4. P. 481.
14. **Zdanowicz M., Harra J., Mäkelä J. M., Heinonen E., Ning T., Kauranen M., Genty G.** Second-harmonic response of multilayer nanocomposites of silver-decorated nanoparticles and silica // *Scientific Reports*. 2014. Vol. 4. No. 1. P. 5745.
15. **Pakhomov A. V., Hammerschmidt M., Burger S., Pertsch T., Setzpfandt F.** Modeling of surface-induced second-harmonic generation from multilayer structures by the transfer matrix method // *Optics Express*. 2021. Vol. 29. No. 6. P. 9098.
16. **Hermans A., Kieninger C., Koskinen K., et al.** On the determination of  $\chi^{(2)}$  in thin films: a comparison of one-beam second-harmonic generation measurement methodologies // *Scientific Reports*. 2017. Vol. 7. No. 1. P. 44581.
17. **Javůrek D., Peřina J.** Analytical model of surface second-harmonic generation // *Scientific Reports*. 2019. Vol. 9. No. 1. P. 4679.
18. **Lasbrugnas C., Thomas P., Masson O., Champarnaud-Mesjard J. C., Fargin E., Rodriguez V., Lahaye M.** Second harmonic generation of thermally poled tungsten tellurite glass // *Optical Materials* (Elsevier). 2009. Vol. 31. No. 6. Pp. 775–780.
19. **Quiquempois Y., Kudlinski A., Martinelli G.** Zero-potential condition in thermally poled silica samples: evidence of a negative electric field outside the depletion layer // *Journal of the Optical Society of America B*. 2005. Vol. 22. No. 3. P. 598.
20. **Yang G., Dussauze M., Rodriguez V., et al.** Large scale micro-structured optical second harmonic

generation response imprinted on glass surface by thermal poling // *Journal of Applied Physics*. 2015. Vol. 118. No. 4. P. 043105.

21. **Heinz T. F.** Second-order nonlinear optical effects at surfaces and interfaces // *Journal of Modern Optics*. 1991. Vol. 39. No. 7. Pp. 353–416.

22. **Butet J., Russier-Antoine I., Jonin C., Lascoux N., Benichou E., Brevet P.-F.** Nonlinear Mie theory for the second harmonic generation in metallic nanoshells // *Journal of the Optical Society of America B*. 2012. Vol. 29. No. 8. Pp. 2213–2221.

23. **Kazansky P. G., Russel P. S. J.** Thermally poled glass: frozen-in electric field or oriented dipoles? // *Optics Communications*. 1994. Vol. 110. No. 5–6. Pp. 611–614.

24. Agar Scientific. Режим доступа: <http://www.agarscientific.com/microscope-slides.html> (дата обращения: 14.08.2021).

25. **Jafari S. H., Aljamimi S. M., Albert J., Smelser C. W.** Maker fringe measurement of thermally poled thin-film layered silica structures // *Advanced Photonics*. 2018 (BGPP, IPR, NP, NOMA, Sensors, Networks, SPPCom, SOF), Washington, D.C.: OSA Technical Digest (online) (Optical Society of America), 2018. Part F108. Paper NpTh1C.7. <https://doi.org/10.1364/NP.2018.NpTh1C.7>

26. **Zdanowicz M., Mroczyński R., Szczepański P.** Strong second-harmonic response from semiconductor–dielectric interfaces // *Applied Optics*. 2021. Vol. 60. No. 5. P. 1132.

27. **Redkov A. V., Melehin V. G., Lipovskii A. A.** How does thermal poling produce interstitial molecular oxygen in silicate glasses? // *The Journal of Physical Chemistry C*. 2015. Vol. 119. No. 30. Pp. 17298–17307.

28. **Anan'ev A. V., Lipovskii A. A., Tagantsev D. K.** Is frozen space charge responsible for SHG in poled silicate glasses only? // *Journal of Non-Crystalline Solids*. 2017. Vol. 458. 15 February. Pp. 118–120.

29. **Quiquempois Y., Martinelli G., Duthéage P., Bernage P., Niay P., Douay M.** Localisation of the induced second-order non-linearity within Infrasil and Suprasil thermally poled glasses // *Optics Communications*. 2000. Vol. 176. No. 4–6. Pp. 479–487.

30. **Alejo-Molina A., Hardhienata H.** The role of Kleinman symmetry in the simplified bond hyperpolarizability model // *IOP Conference Series: Earth and Environmental Science*. 2016. Vol. 31. No. 1. P. 012020.

## REFERENCES

1. **Falsi L., Tartara L., Di Mei F., et al.**, Constraint-free wavelength conversion supported by giant optical refraction in a 3D perovskite supercrystal, *Commun. Mater.* 1 (1) (2020) 76.

2. **Alden D., Troha T., Kirste R., et al.**, Quasi-phase-matched second harmonic generation of UV light using AlN waveguides, *Appl. Phys. Lett.* 114 (10) (2019) 103504.

3. **Krause D., Teplin C. W., Rogers C. T.**, Optical surface second harmonic measurements of isotropic thin-film metals: Gold, silver, copper, aluminum, and tantalum, *J. Appl. Phys.* 96 (7) (2004) 3626–3634.

4. **Tran R. J., Sly K. L., Conboy J. C.**, Applications of surface second harmonic generation in biological sensing, *Annu. Rev. Anal. Chem.* 10 (1) (2017) 387–414.

5. **Ghirardini L., Baudrion A.-L., Monticelli M., et al.**, Plasmon-enhanced second harmonic sensing, *J. Phys. Chem. C*. 122 (21) (2018) 11475–11481.

6. **Huang L., Ren G., Gao Y., Zhu B.**, Second-harmonic generation of second-order modes in thermally poled double-anode optical fibers, *J. Opt. Soc. Am. B*. 34 (12) (2017) 2640.

7. **Poirier G., Dussauze M., Rodriguez V., et al.**, Second harmonic generation in sodium tantalum germanate glasses by thermal poling, *J. Phys. Chem. C*. 123 (43) (2019) 26528–26535.

8. **Maker P. D., Terhune R. W., Nisenoff M., Savage C. M.**, Effects of dispersion and focusing on the production of optical harmonics, *Phys. Rev. Lett.* 8 (1) (1962) 21–23.

9. **Notake T., Takeda M., Okada S., et al.**, Characterization of all second-order nonlinear-optical coefficients of organic N-benzyl-2-methyl-4-nitroaniline crystal, *Sci. Rep.* 9 (1) (2019) 14853.

10. **Dussauze M., Fargin E., Lahaye M., et al.**, Large second-harmonic generation of thermally poled sodium borophosphate glasses, *Opt. Express*. 13 (11) (2005) 4064.

11. **Karam L., Adamietz F., Rodriguez V., et al.**, The effect of the sodium content on the structure and the optical properties of thermally poled sodium and niobium borophosphate glasses, *J. Appl. Phys.* 128 (4) (2020) 043106.



12. **Shen Y.**, Optical second harmonic generation at interfaces, *Annu. Rev. Phys. Chem.* 40 (1) (1989) 327–350.
13. **Sipe J. E.**, New Green-function formalism for surface optics, *J. Opt. Soc. Am. B.* 4 (4) (1987) 481.
14. **Zdanowicz M., Harra J., Mäkelä J. M., et al.**, Second-harmonic response of multilayer nanocomposites of silver-decorated nanoparticles and silica, *Sci. Rep.* 4 (1) (2014). 5745.
15. **Pakhomov A. V., Hammerschmidt M., Burger S., et al.**, Modeling of surface-induced second-harmonic generation from multilayer structures by the transfer matrix method, *Opt. Express.* 29 (6) (2021) 9098.
16. **Hermans A., Kieninger C., Koskinen K., et al.**, On the determination of  $\chi^{(2)}$  in thin films: a comparison of one-beam second-harmonic generation measurement methodologies, *Sci. Rep.* 7 (1) (2017) 44581.
17. **Javůrek D., Peřina J.**, Analytical model of surface second-harmonic generation, *Sci. Rep.* 9 (1) (2019) 4679.
18. **Lasbrugnas C., Thomas P., Masson O., et al.**, Second harmonic generation of thermally poled tungsten tellurite glass, *Opt. Mater. (Elsevier)*. 31 (6) (2009) 775–780.
19. **Quiquempois Y., Kudlinski A., Martinelli G.**, Zero-potential condition in thermally poled silica samples: evidence of a negative electric field outside the depletion layer, *J. Opt. Soc. Am.* 22 (3) (2005) 598.
20. **Yang G., Dussauze M., Rodriguez V., et al.**, Large scale micro-structured optical second harmonic generation response imprinted on glass surface by thermal poling, *J. Appl. Phys.* 118 (4) (2015) 043105.
21. **Heinz T. F.**, Second-order nonlinear optical effects at surfaces and interfaces, *J. Mod. Opt.* 39 (7) (1991) 353–416.
22. **Butet J., Russier-Antoine I., Jonin C., et al.**, Nonlinear Mie theory for the second harmonic generation in metallic nanoshells, *J. Opt. Soc. Am. B.* 29 (8) (2012) 2213–2221.
23. **Kazansky P. G., Russel P. S. J.**, Thermally poled glass: frozen-in electric field or oriented dipoles? *Opt. Commun.* 110 (5–6) (1994) 611–614.
24. Agar Scientific, URL: <http://www.agarscientific.com/microscope-slides.html>, Accessed Aug. 14, 2021.
25. **Jafari S. H., Aljamimi S. M., Albert J., Smelser C. W.**, Maker fringe measurement of thermally poled thin-film layered silica structures, *Advanced Photonics*. 2018 (BGPP, IPR, NP, NOMA, Sensors, Networks, SPPCom, SOF), Washington, D.C.: OSA Technical Digest (online) (Optical Society of America), 2018. Part F108. Paper NpTh1C.7. <https://doi.org/10.1364/NP.2018.NpTh1C.7>
26. **Zdanowicz M., Mroczyński R., Szczepański P.**, Strong second-harmonic response from semiconductor–dielectric interfaces, *Appl. Opt.* 60 (5) (2021) 1132.
27. **Redkov A. V., Melehin V. G., Lipovskii A. A.**, How does thermal poling produce interstitial molecular oxygen in silicate glasses? *J. Phys. Chem. C.* 119 (30) (2015) 17298–17307.
28. **Anan'ev A. V., Lipovskii A. A., Tagantsev D. K.**, Is frozen space charge responsible for SHG in poled silicate glasses only? *J. Non-Cryst. Solids.* 458 (15 February) (2017) 118–120.
29. **Quiquempois Y., Martinelli G., Duthérage P., et al.**, Localisation of the induced second-order non-linearity within Infrasil and Suprasil thermally poled glasses, *Opt. Commun.* 176 (4–6) (2000) 479–487.
30. **Alejo-Molina A., Hardhienata H.**, The role of Kleinman symmetry in the simplified bond hyperpolarizability model, *IOP Conf. Ser.: Earth Environ. Sci.* 31 (1) (2016) 012020.

## СВЕДЕНИЯ ОБ АВТОРАХ

**ЩЕРБАК Сергей Александрович** – кандидат физико-математических наук, научный сотрудник Лаборатории оптики гетерогенных структур и оптических материалов Санкт-Петербургского академического университета имени Ж. И. Алферова Российской академии наук; доцент Высшей школы фундаментальных физических исследований Физико-механического института Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого; научный сотрудник Санкт-Петербургской школы физико-математических и компьютерных наук Высшей школы экономики, Санкт-Петербург, Россия.

194021, Россия, г. Санкт-Петербург, ул. Хлопина, 8, к. 3  
sergeygt@yandex.ru  
ORCID: 0000-0002-0507-5621

**РЕШЕТОВ Илья Валентинович** – инженер Лаборатории оптики гетерогенных структур и оптических материалов Санкт-Петербургского академического университета имени Ж. И. Алферова Российской академии наук; инженер научно-исследовательской лаборатории «Многофункциональные стеклообразные материалы» Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия.

194021, Россия, г. Санкт-Петербург, ул. Хлопина, 8, к. 3  
reshetov\_iv@spbstu.ru  
ORCID: 0000-0002-8661-3654

**ЖУРИХИНА Валентина Владимировна** – доктор физико-математических наук, профессор Высшей школы фундаментальных физических исследований Физико-механического института Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого; профессор кафедры физики и технологии наногетероструктур Санкт-Петербургского академического университета имени Ж. И. Алферова Российской академии наук; Санкт-Петербург, Россия.

195251, Россия, г. Санкт-Петербург, Политехническая ул., 29  
jourikhina@mail.ru  
ORCID: 0000-0003-0685-9409

**ЛИПОВСКИЙ Андрей Александрович** – доктор физико-математических наук, профессор, заведующий кафедрой физики и технологии наногетероструктур Санкт-Петербургского академического университета имени Ж. И. Алферова Российской академии наук; профессор Высшей школы фундаментальных физических исследований Физико-механического института Санкт-Петербургского политехнического университета Петра Великого, Санкт-Петербург, Россия.

194021, Россия, г. Санкт-Петербург, ул. Хлопина, 8, к. 3  
lipovskii@mail.ru  
ORCID: 0000-0001-9472-9190

## THE AUTHORS

### **SCHERBAK Sergey A.**

*Alferov University*  
8/3 Khlopina St., 194021, St. Petersburg, Russia  
sergeygt@yandex.ru  
ORCID: 0000-0002-0507-5621

### **RESHETOV Ilya V.**

*Alferov University*  
8/3 Khlopina St., 194021, St. Petersburg, Russia  
reshetov\_iv@spbstu.ru  
ORCID: 0000-0002-8661-3654



**ZHURIKHINA Valentina V.**

*Peter the Great St. Petersburg Polytechnic University*  
29 Politechnicheskaya St., 195251, St. Petersburg, Russia  
jourikhina@mail.ru  
ORCID: 0000-0003-0685-9409

**LIPOVSKII Andrey A.**

*Alferov University*  
8/3 Khlopina St., 194021, St. Petersburg, Russia  
lipovskii@mail.ru  
ORCID: 0000-0001-9472-9190

*Статья поступила в редакцию 14.08.2021; одобрена после рецензирования 24.08.2021;  
принята к публикации 24.08.2021.*

*Received 14.08.2021; approved after reviewing 24.08.2021; accepted 24.08.2021.*