

соотношения (2), записанный в спектральном представлении для дискретного спектра возбуждения:

$$P_i(\omega) = \sum P^{(n)}(\omega);$$

$$P_i^{(n)}(\omega) = \sum_{j_1, j_2, \dots, j_n} \chi_{ij_1 j_2 \dots j_n}^{(n)}(\omega, \omega_1, \omega_2, \dots, \omega_n) E_{j_1}(\omega) \times \dots \times E_{j_n}(\omega_n), \quad (3)$$

где $\omega = \omega_1 + \omega_2 + \dots + \omega_n$ — частота нелинейного отклика.

Будучи оптич. характеристиками среды, тензоры Н. в. должны обладать определ. симметрией, отражающей структурную симметрию среды [4]. В соответствии с этим нек-рые тензорные элементы оказываются равными нулю, а другие связаны друг с другом, что уменьшает число ненулевых независимых компонент. Напр., тензор кубич. Н. в. $\chi^{(3)}$, в общем случае содержащий 81 компоненту, в изотропной среде имеет только три независимые компоненты. В средах с центром инверсии все Н. в. чётных порядков тождественно равны нулю. В средах без диссипации Н. в. любого порядка — действит. величина.

Действительная и мнимая части восприимчивости $\hat{\chi}^{(n)}$ описывают линейные оптич. эффекты (преломление и поглощение света). Н. в. 2-го порядка $\hat{\chi}^{(2)}$, свойственная средам, не имеющим центра симметрии, описывает генерацию второй оптич. гармоники, оптич. выпрямление (см. *Детектирование света*) и др. процессы нелинейного смещения двух волн с частотами ω_1 и ω_2 , приводящие к рождению излучения на суммарной или разностной частотах $|\omega_1 \pm \omega_2|$. Кубическая Н. в. $\hat{\chi}^{(3)}$, отличная от нуля в средах с симметрией любого типа, описывает разл. процессы самовоздействия света — нелинейное поглощение, самофокусировку и дефокусировку, самоиндуциров. вращения эллипса поляризации. Кубической Н. в. объясняются также процессы, возникающие при взаимодействии трёх волн с разл. частотами ω_1, ω_2 и ω_3 , приводящие к появлению излучения на комбинац. частотах $\omega = |\omega_1 \pm \omega_2 \pm \omega_3|$, напр. генерации третьей гармоники при вынужденном комбинац. рассеянии, вынужденном *Мандельштама* — *Бриллюэна* рассеянии и т. д. Более высокий ранг тензора $\hat{\chi}^{(3)}$ по сравнению с тензором $\hat{\chi}^{(2)}$ проявляется в том, что кристаллы кубич. классов, изотропные с точки зрения своих линейных оптич. свойств, в нелинейной оптике анизотропны. Это приводит к поляризац. особенностям нелинейного поглощения, генерации третьей оптич. гармоники, к самоиндуциров. повороту плоскости поляризации линейно поляризованного света (см. *Нелинейная оптическая активность*).

Микромоделю Н. в. Наиб. универсальная причина нелинейных оптич. эффектов — нелинейный отклик атомарного или молекулярного осциллятора на световое воздействие.

В классич. модели среды как совокупности заряженных ангармонич. осцилляторов удаётся вычислить смещение заряда q_i на расстоянии r_i от положения равновесия под действием электрич. поля световой волны. Поляризацию единицы объёма среды, содержащей N осцилляторов, можно представить в виде $P = N \sum_i q_i r_i(E)$. Движение осциллятора в поле световой волны описывается нелинейным ур-нием

$$\frac{d^2 r}{dt^2} + 2\gamma \frac{dr}{dt} + \omega_0^2 r - \lambda r^2 - \eta r^3 = \frac{q}{m} E.$$

Если решение этого ур-ния ищут в виде ряда по степеням E , то поляризация среды тоже записывается в виде ряда, а коэф. этого ряда являются Н. в. Из решения этого ур-ния следует, что гармониц. эл.-магн. волна индуцирует поляризацию в системе ангармонич.

осцилляторов на частотах $\omega, 2\omega, 3\omega$ и т. д. Оптич. резонансы возникают не только при приближении частот действующих полей к собств. частоте осциллятора ω_0 , но и при совпадении с ней тех или иных комбинац. частот, поэтому частотная дисперсия Н. в. имеет сложный вид. Напр., кубич. Н. в. даётся выражением

$$\chi^{(3)}(\omega, \omega_1, \omega_2, \omega_3) = N \frac{e^4}{m^3} \left[\eta + \frac{4}{3} \lambda^2 \{ F(\omega_1 + \omega_2) + F(\omega_2 + \omega_3) + F(\omega_3 + \omega_1) \} \right] \times F(\omega_1) F(\omega_2) F(\omega_3) F(\omega);$$

где

$$F(\omega_n) = \left(\omega_0^2 - 2i\gamma\omega_n - \omega_n^2 \right), \quad n = 1, 2, 3;$$

$$\omega = \omega_1 + \omega_2 + \omega_3.$$

В поле монохроматич. излучения Н. в. $\chi^{(3)}(3\omega, \omega)$, ответственная за генерацию 3-й гармоники, испытывает резонанс при $\omega = \omega_0, 2\omega = \omega_0$ и при $3\omega = \omega_0$.

Расчёт Н. в. производится также методами квантовой механики. Поляризация $P(r, t)$ связана с электрич. полем, действующим на систему, квантовомеханич. ур-ниями

$$P(r, t) = N Sp[\rho(r, t), p],$$

$$i\hbar \frac{\partial \rho}{\partial t} = [\mathcal{H}\rho] + i\hbar \left(\frac{\partial \rho}{\partial t} \right)_{\text{взущ}}$$

(ρ — оператор матрицы плотности, p — оператор электрич. дипольного момента, \mathcal{H} — полный гамильтониан системы), причём восприимчивости n -го порядка можно рассчитывать, решая указанные ур-ния методом возмущений, т. е. представив $\rho(r, t)$ в виде ряда по возрастающим степеням E . Т. о. удаётся получить Н. в. любого порядка для системы, состоящей из атомов. Однако детальное описание сложных молекулярных систем в большинстве случаев затруднительно. Ещё труднее рассчитывать Н. в. вблизи электронных переходов в сложных молекулах и конденсиров. средах. Напр., квантовомеханич. описание нелинейных оптич. свойств кристаллов требует детального знания зонной структуры: эфф. масс носителей тока, симметрии зон, правил отбора, дисперсионных соотношений и т. д. Однако в большинстве практич. случаев частоты переходов и волновые ф-ции достаточно хорошо известны, поэтому для расчёта Н. в. используют разл. приближённые модели [5]. Напр., достаточную точность для расчёта Н. в. даёт модель связей, предполагающая, что индуцированная в кристалле поляризация есть векторная сумма поляризацй, наведённых на всех связях между атомами в единичном объёме, и что идентичные связи в разл. твёрдых телах имеют одинаковые свойства. Взаимодействие между связями не учитывается.

При расчёте Н. в. жидкостей и твёрдых тел необходимо также принимать во внимание фактор локального поля, учитывающий отличие приложенного к среде поля от поля, действующего на отд. молекулу.

Нелинейный отклик отд. атома или молекулы на электрич. поле световой волны — не единств. причина нелинейных оптич. эффектов. Н. в. могут иметь, напр., тепловую природу, когда поглощение света вызывает нагрев, а следовательно, изменение коэф. преломления вещества. К нелинейному изменению коэф. преломления может привести изменение плотности вещества из-за расширения, связанного с квадратичной *электрострикцией* в поле световой волны. В жидкостях и жидких кристаллах существенны нелинейности, обусловленные оптич. ориентацией анизотропных молекул в поле поляризов. лазерной волны. Электронные механизмы нелинейности удаётся отличить от тепловых, стрикционных, ориентационных по временам установления нелинейного отклика и его релаксации, n -ые для электронных процессов, как правило, меньше.