

В ряде случаев, как и в линейной оптике, необходимо учитывать влияние на нелинейную поляризацию в выбранной точке среды полей в разл. других точках (нелокальные нелинейнооптич. явления). Относит. вклад нелокальных нелинейных процессов в поляризацию P среды определяется т. н. параметром пространственной дисперсии d/λ (λ — длина волны излучения, d — характерный размер в среде: диаметр молекулы, параметр кристаллич. решётки и т. п.). В оптич. диапазоне частот параметр дисперсии пространственной мал: $d/\lambda \approx 10^{-4} - 10^{-3}$, и, как правило, вклад эффектов, связанных с нелокальностью нелинейного отклика, несуществен. Но в отд. случаях, напр. при исследовании нелинейного изменения поляризац. характеристик света, генерации чётных оптич. гармоник в изотропных веществах, учёт эффектов пространственной дисперсии обязателен. Велика роль пространственной дисперсии в рентг. диапазоне и для объектов с сильной нелокальностью нелинейного отклика, таких как жидкие кристаллы, экситоны в полупроводниках, биол. макромолекулы.

Измерение Н. в. При измерении Н. в. принято использовать систему единиц СГСЭ. Связь с системой СИ даётся след. соотношениями:

$$\chi^{(2)}[\text{СГСЭ}] = \frac{3}{4} \pi \cdot 10^4 \chi^{(2)}[m/V, \text{СИ}],$$

$$\chi^{(3)}[\text{СГСЭ}] = \frac{9}{4} \pi \cdot 10^8 \chi^{(3)}[m^2/V^2, \text{СИ}].$$

Восприимчивости измеряют, связывая эффективность нелинейного процесса с интенсивностью взаимодействующих в нелинейном процессе волн (напр., в случае генерации 2-й гармоники Н. в. 2-го порядка связывают с интенсивностью накачки) [6,7]. При этом используется информация о пространственно-временном профиле взаимодействующих пучков, их спектральном составе, длине исследуемого образца, его ориентации, поляризации излучения и выполнении условий фазового синхронизма. Абс. измерения оптич. нелинейностей — сложная задача, поэтому часто используют относит. измерения. Эталонным кристаллом для относит. измерения 2-й гармоники является кристалл КДР (KN_2PO_4), у которого $\chi^{(2)} = 1,4 \cdot 10^{-9}$ СГСЭ (длина волны накачки $\lambda = 1,06$ мкм), в ИК-области — кристалл арсенида галлия с $\chi^{(2)} = 3,2 \cdot 10^{-7}$ СГСЭ ($\lambda = 10,6$ мкм). Для поиска новых нелинейных материалов широко применяется методика измерения относит. Н. в. в порошках, позволяющая оценить оптич. нелинейность кристаллов и установить возможность синхронных нелинейных взаимодействий, не располагая большими монокристаллич. образцами. Коэф. преломления подавляющего большинства оптич. материалов отличаются не более чем на порядок, а различие кубич. Н. в. составляет более десяти порядков величины. Нерезонансное значение $\chi^{(3)}$ для оптич. стёкол и щёлочно-галогидных кристаллов изменяется в диапазоне ($10^{-15} - 10^{-13}$) СГСЭ, напр. для LiF $\chi^{(3)} = 4 \cdot 10^{-15}$ СГСЭ, для прозрачных жидкостей — в диапазоне ($10^{-13} - 10^{-14}$) СГСЭ, напр. CS_2 имеет $\chi^{(3)} = 9 \cdot 10^{-14}$ СГСЭ. Полупроводниковые кристаллы имеют, как правило, большую нелинейность: для GaAs $\chi^{(3)} = 1,5 \cdot 10^{-10}$ СГСЭ, для Si $\chi^{(3)} = 2 \cdot 10^{-10}$ СГСЭ. Удельные (на одну частицу) нерезонансные значения кубич. Н. в. для газов лежат в диапазоне ($10^{-39} - 10^{-33}$) СГСЭ, напр. для Ar $\chi^{(3)} = 3 \cdot 10^{-38}$ СГСЭ, для атм. воздуха $\chi^{(3)} = 10^{-38}$ СГСЭ. Резонансные Н. в. для газов могут быть на пять-шесть порядков больше. «Гигантские» Н. в. обнаружены в условиях однофотонного резонанса поглощения в узкозонных полупроводниках [для InSb , HgCdTe $\chi^{(3)} = (10^{-1} - 10^{-4})$ СГСЭ]. Исключительно большая нелинейность $\chi^{(3)} \approx (10^{-2} - 10^{-8})$ СГСЭ связана с резонансными процессами поглощения с участием экситонов и биэкситонов в полупроводниках [8]. Коллективные ориентац. нелинейности

в жидких кристаллах достигают величины $\chi^{(3)} \approx (10^{-1} - 10^{-2})$ СГСЭ. При этом время установления нелинейного отклика ~ 1 с.

Нелинейности высших порядков $\chi^{(n)}$ ($n \geq 3$) существенны для описания таких эффектов, как генерация высших оптич. гармоник в газах и кристаллич. средах, многофотонное поглощение, многофотонная ионизация атомов; ими объясняются ограничение диаметра фокального пятна при самофокусировке света, насыщение эффективности нелинейных процессов при высоких уровнях оптич. возбуждения. При расчёте и измерении высших ($n \geq 3$) Н. в. нелинейнооптич. процессы разделяют на «прямые» и «каскадные» [5]. Напр., 3-я оптич. гармоника в нелинейной среде без центра инверсии может возникнуть как в результате процесса нелинейного смещения трёх волн накачки одинаковой частоты на Н. в. $\chi^{(3)}$, так и каскадно (ступенчатого) при генерации 2-й оптич. гармоники и сложении двух волн с частотами 2ω и ω . Такой комбиниров. процесс может быть описан в терминах эфф. кубич. нелинейностей, причём

$$\chi_{\text{каскад}}^{(3)}(3\omega, \omega, \omega, \omega) \sim \chi^{(2)}(2\omega, \omega, \omega) \cdot \chi^{(2)}(3\omega, 2\omega, \omega).$$

В более общем случае

$$\chi_{\text{эфф}}^{(n)} = \chi^{(n)} + \sum_{n_i=1}^n \prod_i \chi^{(n_i)} \psi(n_i),$$

причём ф-ции $\psi(n_i)$ определяются линейными дисперсионными свойствами среды. Свойства симметрии тензоров $\chi_{\text{каскад}}^{(n)}$ и $\chi^{(n)}$, как правило, идентичны.

Нерезонансные значения величин Н. в. высоких порядков невелики, напр. Н. в. кристалла формиата лития для генерации 4-й гармоники $\chi^{(4)} \sim 1 \cdot 10^{-21}$ СГСЭ, значение восприимчивости 5-го порядка для кристалла кальцита $\chi^{(5)} \sim 1 \cdot 10^{-27}$ СГСЭ. Удельные (на один атом) нерезонансные Н. в. паров Na , K , Rb , Li измерены вплоть до $\chi^{(9)}$; напр., для натрия в единицах СГСЭ: $\chi^{(3)} = 8,1 \cdot 10^{-34}$, $\chi^{(5)} = 1,7 \cdot 10^{-43}$, $\chi^{(7)} = 7,0 \cdot 10^{-59}$, $\chi^{(9)} = -4,3 \cdot 10^{-69}$.

Сильный нелинейный отклик. Концепция Н. в. успешно используется для описания большинства задач нелинейной оптики, однако она имеет ограниченную область применения. В мощных световых полях или в сильнонелинейных средах высшие члены разложения поляризации перестают быть малыми: $\chi^{(n)} E^{n-1} \approx \chi^{(1)}$, тогда разложение (1) теряет смысл, а соответствующий ряд (2) перестаёт сходиться. Такие проблемы возникают, в частности, при исследовании насыщения перехода в системе двухуровневых атомов в поле эл.-магн. волн или при описании сильно возбуждённых полупроводниковых кристаллов, когда их отклик на внеш. световое воздействие перестаёт быть однозначной ф-цией интенсивности света, т. е. наблюдаются оптич. гистерезисные явления (напр., гистерезис преломления или поглощения нелинейной средой, *оптическая бистабильность* и неустойчивость). В этом случае материальные ур-ния могут быть записаны только в неявном виде $f(E, P) = 0$. Напр., для сильнонелинейной изотропной гиротропной среды с учётом кубич. нелинейности ангармонич. осцилляторов, составляющих молекулы, можно записать [9]:

$$P = \chi^{(1)} E - iA[kP] + B\{2(PP^*)P + (PP)P^*\} \rightarrow -iC\{P[k(PP^*)] + [kP](PP^*)\}.$$

Здесь A, B, C — частотно-зависимые коэф., k — волновой вектор. Это ур-ние имеет более широкую, чем (3), область применимости и допускает гистерезисные решения для поляризации P .

Лит.: 1) А х м а н о в С. А., Х о х л о в Р. В., Проблемы нелинейной оптики, М., 1964; 2) Б л о м б е р г е н Н., Нелинейная оптика, пер. с англ., М., 1966; 3) Ш е н И. Р., Принципы нелинейной оптики, пер. с англ., М., 1989; 4) С и р о т и н Ю. И., Ш а с к о л ь с к а я М. П., Основы кристаллофизики, 2 изд.,