реализованных мощных лазерных импульсов с релятивистскими электронами может привести к наблюдению ряда принципиальных эффектов. При $I > 10^{20}$ Вт/см^2 реализуются условия наблюдения нелинейного томсоновского и нелинейного комптоновского рассеяний; возможна регистрация влияния лазерного поля на β-распад. При $I > 10^{23} - 10^{24}$ Вт/см^2 возможно наблюдение черенковского излучения в вакууме, поляризованном мощной световой волной.

2. Нелинейный отклик и нелинейные восприимчивости

Нелинейный отклик свободных и связанных «оптич.» электронов — универсальная, но не единственная причина возникновения нелинейных оптич. явлений. Существенными оказываются нелинейные колебания многоатомных молекул и кристаллич. решётки, возбуждение светом явлений дрейфа, диффузии зарядов в кристаллах (фоторефрактивный эффект), индуцированная световой волной ориентация анизотропных молекул в жидкостях и жидких кристаллах (оптический *Керра эффект*), электрострикция, разл. тепловые эффекты и т. п. Перечисленные механизмы приводят к появлению оптич. нелинейностей, существенно различающихся по величине и времени установления нелинейного отклика $\tau_{нл}$. Для наиб. быстрой нерезонансной электронной нелинейности $\tau_{нл} \leqslant 10^{-14}$ с, для инерционной тепловой нелинейности $\tau_{нл} > 10^{-3}$ с.

Слабый локальный нелинейный отклик. В большинстве практически интересных случаев локальный нелинейный отклик много меньше линейного ($P_{нл} \ll P_{лин}$) и нелинейные свойства среды хорошо описываются разложениями (5), (6), набором гиперполяризуемостей $\hat{\gamma}^{(n)}$ и нелинейных восприимчивостей $\hat{\chi}^{(n)}$.

В световом поле

$$\boldsymbol{E} = \sum_m \boldsymbol{E}_m = \sum_m \boldsymbol{e}_m A_m \exp i(\omega_m t - \mathbf{k}_m \boldsymbol{r})$$

возникает бесконечный набор волн нелинейной поляризации на частотах $\omega = \sum_{m=1}^{n} \omega_m$

$$\boldsymbol{P}_{нл}(\omega) = \hat{\chi}^{(n)} \boldsymbol{E}_1 \boldsymbol{E}_2 \boldsymbol{E}_3 \cdot \ldots \cdot \boldsymbol{E}_n, \tag{10}$$

где определяющая макроскопич. нелинейный отклик спектральная компонента тензора $(n+1)$-го ранга $\hat{\chi}^{(n)}$:

$$\chi^{(n)}_{ij\mathbf{k}\ldots n+1}(\omega = \omega_1 \pm \omega_2 \pm \ldots \pm \omega_n) = N\langle \gamma^{(n)}_{ij\mathbf{k}\ldots n+1}(\omega)\rangle L^{(n)}; \tag{11}$$

здесь $\langle \gamma^{(n)}_{ij\mathbf{k}\ldots n+1}\rangle$ — усреднённый по ориентациям атомов или молекул тензор гиперполяризуемости, $L^{(n)}$ — фактор локального поля — поправка, учитывающая диполь-дипольное взаимодействие (обобщение лоренцевского фактора)

$$L^{(n)} = L(\omega_1)L(\omega_2)\ldots L(\omega_n) = \left[\frac{n_0^2(\omega)+2}{3}\right] \cdot \left[\frac{n_0^2(\omega_1)+2}{3}\right] \cdot \ldots \cdot \left[\frac{n_0^2(\omega_n)+2}{3}\right], \tag{12}$$

$n_0(\omega_m)$ — линейный показатель преломления. Ф-ла (11) является естеств. обобщением соотношения (7а). Расчёт величин $\gamma^{(n)}$ и $\chi^{(n)}$ должен основываться на микроскопических теоретич. моделях. Информацию о нелинейном отклике даёт и феноменологич. теория, апеллирующая к общим свойствам симметрии среды, рассматривающая такие простые модельные системы, как классич. ангармонич. осциллятор, квантовая *двухуровневая система*.

Квадратичные нелинейные восприимчивости. Младший нелинейный член в разложении (6) — квадратичный по полю $\boldsymbol{P}_{нл} = \hat{\chi}^{(2)}\boldsymbol{EE}$. Квадратичная нелинейная восприимчивость $\chi^{(2)}_{ij\mathbf{k}}$ — тензор 3-го ранга; поэтому оптич. эффекты, квадратичные по полю, возникают только в средах, не имеющих центра симметрии.

В квадратичной среде бигармонич. световое поле

$$\boldsymbol{E} = \boldsymbol{E}_1 + \boldsymbol{E}_2 = \boldsymbol{e}_1 A_1 \exp i(\omega_1 t - \mathbf{k}_1 \boldsymbol{r}) + \boldsymbol{e}_2 A_2 \exp i(\omega_2 t - \mathbf{k}_2 \boldsymbol{r}) \tag{13}$$

возбуждает волны нелинейной поляризации на частотах $2\omega_1$, $2\omega_2$, $\omega_1 \pm \omega_2$, являющихся результатом трёхчастотных (трёхфотонных) взаимодействий вида $\omega = \omega_i \pm \omega_j$ ($i, j = 1,2$). Соответствующие спектральные компоненты тензора восприимчивости $\chi^{(2)}(2\omega_i)$, $\chi^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2)$ связаны с быстрыми (электронными) механизмами нелинейного отклика, для к-рых $\tau_{нл} \leqslant \omega_i^{-1} \approx 10^{-14}$ с. Эти процессы приводят к модуляции показателя преломления с оптич. частотой. Наиб. важный среди них — нерезонансный нелинейный отклик связанных оптич. электронов. Пользуясь (9), можно оценить $\chi^{(2)}$:

$$\chi^{(1)} E_а \approx \chi^{(2)} E_а^2; \quad \chi^{(1)} \simeq 1; \quad \chi^{(2)} \sim E_а^{-1}. \tag{14}$$

Если взять для $E_а$ значение для атома водорода, то $\chi^{(2)} \sim 10^{-7}$ [СГС]. Реальные значения $\chi^{(2)}(2\omega)$ (в видимом диапазоне) для диэлектриков лежат в пределах от 10^{-9} [СГС] (кварц) до $1{,}7 \cdot 10^{-8}$ СГС для одного из наиб. нелинейных кристаллов $Ba_2NaNb_5O_{15}$. Существенно больше значения $\chi^{(2)}(2\omega)$ в полупроводниках; в GaAs на $\lambda_1 = 1{,}06$ мкм $\chi^{(2)}(2\omega) \approx 5{,}2 \cdot 10^{-7}$ СГС; в кристалле Те в ИК-диапазоне ($\lambda = 10{,}6$ мкм) $\chi^{(2)} \approx 2{,}2 \cdot 10^{-6}$ СГС. Т. о., в средах, линейные восприимчивости к-рых различаются меньше чем на порядок, различие в величинах нелинейного отклика достигает почти четырёх порядков. Для нелинейностей более высокого порядка по полю сказанное проявляется ещё сильнее (см. ниже). Количеств. расчёт $\chi^{(2)}$ кристаллов основывается в большинстве случаев на полуфеноменологич. моделях. Структуру квадратичного нелинейного отклика можно определить с помощью модели классич. ангармонич. осциллятора. Полагая в (4б) $F_{нл} = \alpha x^2$ и подставляя в (4а) поле (13), методом возмущений получим $d = \gamma^{(1)} E + \gamma^{(2)} E^2$ и

$$\gamma^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2) \equiv \gamma^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2, \omega_1, \omega_2) = \frac{\alpha e^3}{m^2} R(\omega_1) R(\omega_2) R(\omega_1 \pm \omega_2), \tag{15}$$

где $R(\omega_i) = (\omega_0^2 - \omega_i^2 - i\omega_i \Gamma)^{-1}$ — резонансные множители, Γ — полуширина линии поглощения. Тогда для $\chi^{(2)}$ [ср. (11)] получим:

$$\chi^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2) = N\gamma^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2) \times \left[\frac{n^2(\omega_1 \pm \omega_2)+2}{3}\right]\left[\frac{n^2(\omega_1)+2}{3}\right]\left[\frac{n^2(\omega_2)+2}{3}\right], \tag{15a}$$

поскольку в кристалле элементарные «ячейки» ориентированы одинаково. К аналогичным ф-лам для $\gamma^{(2)}$ и $\chi^{(2)}$ приводит и модель двухуровневой системы, в к-рой вместо классич. фактора $D = \alpha e^3/m^2$ появляется произведение трёх матричных элементов переходов

$$\chi^{(2)}(\omega_1 \pm \omega_2) = DR(\omega_1 \pm \omega_2) R(\omega_1) R(\omega_2) L(\omega_1 \pm \omega_2) \times L(\omega_1) L(\omega_2). \tag{16}$$

Кубичная нелинейная восприимчивость $\chi^{(3)}_{ij\mathbf{k}l}$, являясь тензором 4-го ранга, отлична от нуля в центросимметричных средах: в газах, жидкостях, аморфных и кристаллич. твёрдых телах. В этих средах в результате четырёхчастотных (четырёхфотонных) взаимодействий вида $\omega = \omega_i \pm \omega_j \pm \omega_\mathbf{k}$ ($i,j,k = 1, 2, 3$) бигармонич. поле (13) возбуждает широкий спектр волн нелинейной поляризации на комбинац. частотах и гармониках $3\omega_1$, $3\omega_2$, $2\omega_1 \pm \omega_2$, $2\omega_2 \pm \omega_1$ и т. п. Кубичные восприимчивости $\chi^{(3)}_{ij\mathbf{k}l}(3\omega_i, \omega_i, \omega_i, \omega_i)$, $\chi^{(3)}_{ij\mathbf{k}l}(2\omega_1 \pm \omega_2, \omega_1, \omega_1 \pm \omega_2)$ и т. п. для сильно различающихся