POZNAŃSKIE TOWARZYSTWO PRZYJACIÓŁ NAUK
WYDZIAŁ MATEMATYCZNO-PRZYRODNICZY
PRACE KOMISJI MATEMATYCZNO-PRZYRODNICZEJ
FIZYKA DIELEKTRYKÓW I RADIOSPEKTROSKOPIA
IX – 1977
Nadbitka

STANISŁAW KIELICH, ROMAN ZAWODNY, HALINA SITARZ

NIELINIOWE ZMIANY WSPÓŁCZYNNIKA ZAŁAMANIA KRYSZTAŁÓW WYWOŁANE SILNYM ŚWIATŁEM LASEROWYM

WSTĘP

Współczesna technika laserowa pozwala obserwować wiele zjawisk wywołanych zmianami współczynnika załamania ośrodka pod wpływem silnej wiązki światła. Jednym ze zjawisk jest optyczny efekt Kerra (OEK), polegający na tym, że ośrodek izotropowy analizowany światłem o częstości ω_A doznaje dwójłomności optycznej pod wpływem silnego światła polaryzującego o częstości ω_p. OEK został odkryty przez Mayera [1] w kilku cieczach i następnie był badany w rozmaitych cieczach przez wielu badaczy (patrz przegląd [2]). W ostatnim czasie badano OEK w materiałach szklistych [3, 4], w ciekłych kryształach [5,6] oraz w kryształach plastycznych [7]. Zależność współczynnika załamania od intensywności światła występuje w samoindukowanej rotacji elipsy polaryzacji światła obserwowanej najpierw w cieczach przez Terhune'a i Makera [8] i badanej ostatnio również w szkłach [3] oraz kryształach kubicznych [9]. Samoindukowany efekt Kerra, jak również optykostrykcja i efekty cieplne odgrywają ważną rolę w samoogniskowaniu światła w cieczach i ciałach stałych [10 - 17]. W ciałach optycznie aktywnych mamy do czynienia z samoindukowaną zmianą kąta rotacji lub z nieliniową zmianą aktywności optycznej [18, 19], którą obserwowano w barwionym kwarcu [20].

Omówione wyżej zjawiska odgrywają dużą rolę również w innych zjawiskach nieliniowych [2, 21] i dostarczają informacji o nieliniowych polaryzowalnościach molekuł [2, 8, 22, 23] oraz szkieł [24] i innych materiałów [25], statystyczno-molekularnej strukturze cieczy [26] oraz strukturze ciekłych kryształów [27] i plastycznych kryształów [28]. Nieliniowe współczynniki załamania mają również praktyczne znaczenie w samomodulacji fazowej [29], filtracji natężenia światła laserowego [30], pomiarach ultrakrótkich impulsów [31] i w ogniskowaniu fal optycznych [4, 32].

W niniejszej pracy chcemy rozszerzyć dobrze znaną liniową krystalooptykę [33 - 35] na przypadek nieliniowej krystalooptyki zjawisk dwójłomności indukowanej. U podstaw tych procesów leży nieliniowa elektrodynamika sformułowana w ogólności dla anizotropowych ciał [36 - 42] również z uwzględnieniem multipoli elektrycznych i magnetycznych [39, 41]. Współczynniki załamania obliczamy zgodnie z wcześniejszą pracą [43] przy założeniu, że silne pole laserowe zmienia zarówno przenikalność elektryczną, jak również przenikalność magnetyczną ośrodka. Uwzględniona zostanie również dyspersja przestrzenna liniowa [35] oraz nieliniowa [39]. Podajemy niezerowe i niezależne składowe wyższych rzędów tensorów nieliniowych podatności elektrycznych i magnetyczno-elektrycznych otrzymane metodami teorii grup [44 - 47].

FENOMENOLOGICZNE PODSTAWY TEORII

Współczynnik załamania światła kryształu analizujemy falą świetlną drgającą z częstością ω_A i rozchodzącą się w kierunku $\vec{s}$ z wektorami: elektrycznym i magnetycznym

$$\begin{aligned} \vec{E}^A(\vec{r},t) &= \mathrm{Re}\{\vec{E}(\omega_A,\vec{k}_A)e^{i(\vec{k}_A\vec{r}-\omega_A t)}\}, \\ \vec{H}^A(\vec{r},t) &= \mathrm{Re}\{\vec{H}(\omega_A,\vec{k}_A)e^{i(\vec{k}_A\vec{r}-\omega_A t)}\}, \end{aligned} \tag{1}$$

gdzie $\vec{k}_A=(\omega_A/c)\vec{s}$ jest wektorem falowym w próżni. Przyjmując, że pola w ośrodku nieprzewodzącym mają postać (1), ale z wektorem falowym $\vec{k}_A^*=n_A(\omega_A/c)\vec{s}$, otrzymujemy równania Maxwella w postaci

$$\begin{aligned} n_A\varepsilon_{ijK}H_j^A(\vec{r},t)s_K &= \varepsilon_{ij}E_j^A(\vec{r},t), \\ -n_A\varepsilon_{ijK}E_j^A(\vec{r},t)s_K &= \mu_{ij}H_j^A(\vec{r},t), \end{aligned} \tag{2}$$

z których określamy współczynniki załamania n_A kryształów swobodnych.

W niniejszej pracy interesują nas zmiany własności optycznych kryształów wywołane działaniem silnej wiązki laserowej, której wektory $E^p(\vec{r},t)$ i $H^p(\vec{r},t)$ powodują nieliniową polaryzację kryształu przy częstości drgań ω_p na ogół różnej od ω_A i przy wektorze falowym $\vec{k}_p$. Zgodnie z wcześniejszą teorią Piekary i Kielicha [43] zarówno tensor przenikalności elektrycznej ε_{ij}, jak i magnetycznej μ_{ij} będą nieliniowymi funkcjami silnego pola laserowego. Oczywiście na mocy równań Maxwella (2) również i współczynniki załamania będą zależały nieliniowo od natężenia I_p silnej wiązki laserowej. A więc możemy napisać

$$\{\varepsilon_{ij}(I_p)-\delta_{ij}\}E_j(\omega_A,\vec{k}_A)=4\pi P_{ei}(\omega_A,\vec{k}_A,I_p), \tag{3}$$

$$\{\mu_{ij}(I_p)-\delta_{ij}\}H_j(\omega_A,\vec{k}_A)=4\pi P_{mi}(\omega_A,\vec{k}_A,I_p). \tag{4}$$

Pola elektryczne i magnetyczne analizującej wiązki (lub mierzącej) są małego natężenia i wywołują tylko liniową polaryzację elektryczną i magnetyczną kryształu

$$P_{ei}(\omega_A,\vec{k}_A,I_p)=\chi_{ij}^e(\omega_A,\vec{k}_A,I_p)E_j(\omega_A,\vec{k}_A), \tag{5}$$

$$P_{mi}(\omega_A,\vec{k}_A,I_p)=\chi_{ij}^m(\omega_A,\vec{k}_A,I_p)H_j(\omega_A,\vec{k}_A). \tag{6}$$

Tutaj $\chi_{ij}^e(\omega_A,k_A,I_p)$ jest tensorem liniowej podatności elektrycznej przy dyspersji częstości ω_A oraz dyspersji przestrzennej $\vec{k}_A$ w obecności silnego światła laserowego o natężeniu $I_p\approx EE^*$. Jeśli nieliniowość indukowana silnym światłem nie jest na tyle duża, aby nie było dopuszczalne rozwinięcie perturbacyjne możemy napisać z wystarczającą dokładnością

$$\begin{aligned} \chi_{ij}^e(\omega_A,\vec{k}_A,I_p) &= \chi_{ij}^e(\omega_A,\vec{k}_A)+\chi_{ijkl}^{ee}(\omega_A,\vec{k}_A,\omega_p)E_k(\omega_p)E_l^*(\omega_p)+ \\ &+\chi_{ijklmn}^{ee}(\omega_A,\vec{k}_A,\omega_p)E_k(\omega_p)E_l^*(\omega_p)E_m(\omega_p)E_n^*(\omega_p)+\dots \end{aligned} \tag{7}$$

gdzie $\chi^e_{ij}(\omega_A, \vec{k}_A)$ jest tensorem liniowej podatności kryształu w nieobecności silnego światła ($I_p=0$). Tensor czwartej rangi $\chi^{ee}_{ijkl}(\omega_A, \vec{k}_A, \omega_p)$ określa nieliniową podatność trzeciego rzędu, zaś tensor 6 rangi χ^{ee}_{ijklmn} – piątego rzędu.

Jak widać z rozwinięcia (7) nie uwzględniliśmy dla prostoty dyspersji przestrzennej związanej z wektorem silnego światła $\vec{k}_p$, ale uwzględniamy dyspersję częstości ω_p. Ponieważ polaryzacje elektryczna i magnetyczna występujące w równaniach (3) i (4) zawierają w ogólności wszystkie przyczynki multipolowe elektryczne i magnetyczne [39], przeto rozwinięcie (7) jest tak formalnie zapisane, że ujmuje nie tylko wkłady dipolowe, ale również wyższe multipolowości. Oznacza to, że w przypadku niezbyt silnej dyspersji przestrzennej możemy napisać [35]

$$\chi^e_{ij}(\omega_A, \vec{k}_A) = \chi^e_{(ij)}(\omega_A) + i\eta^e_{[ij]m}(\omega_A)\,k_m + \eta^e_{(ij)mn}(\omega_A)\,k_m k_n + \ldots, \tag{8}$$

gdzie $\chi^e_{ij}(\omega_A)$ jest tensorem liniowej podatności w funkcji ω_A w nieobecności dyspersji przestrzennej. Tensor $\eta^e_{ijm}(\omega_A)$ określający liniową dyspersję przestrzenną zawiera wkłady elektryczno-dipolowo-kwadrupolowy oraz elektryczno-dipolowy – magnetyczno-dipolowy [39]. Podobnie tensor $\eta^e_{ijmn}(\omega_A)$ obejmuje następne multipolowe wkłady elektryczne i magnetyczne (oktopolowe elektryczne i magnetyczne kwadrupolowe). Nawiasy półokrągłe i prostokątne wydzielają wskaźniki, względem których tensory są odpowiednio symetryczne i antysymetryczne. Analogicznie do (8) możemy napisać rozwinięcia dla pozostałych tensorów w (7), a mianowicie

$$\chi^{ee}_{ijkl}(\omega_A, \vec{k}_A, \omega_P) = \chi^{ee}_{ijkl}(\omega_A, \omega_P) + i\eta^{ee}_{ijklm}(\omega_A, \omega_P)\,k_m + \eta^{ee}_{ijklmn}(\omega_A, \omega_P)\,k_m k_n + \ldots \tag{9}$$

gdzie $\chi^{ee}_{ijkl}(\omega_A, \omega_p)$ jest tensorem nieliniowej podatności w nieobecności dyspersji przestrzennej przy częstościach ω_A i ω_p. Następne tensory $\eta^{ee}_{ijklm}(\omega_A, \omega_p)$, $\eta^{ee}_{ijklmn}(\omega_A, \omega_p)$, ... określają nieliniowe dyspersje przestrzenne i zawierają odpowiednie wkłady multipolowe elektryczne i magnetyczne wynikające z kwantowo-mechanicznego rachunku zaburzeń [39]. Na podstawie (3), (5) i (7) otrzymujemy na zmianę tensora przenikalności elektrycznej kryształu wywołaną silnym światłem laserowym o natężeniu I_p

$$\begin{aligned}\varepsilon_{ij}(I_P) - \varepsilon_{ij}(0) = 4\pi\,\{&\chi^{ee}_{ijkl}(\omega_A, \vec{k}_A, \omega_P)\,E_k(\omega_P)\,E^*_l(\omega_P) + \\ &+ \chi^{ee}_{ijklmn}(\omega_A, \vec{k}_A, \omega_P)\,E_k(\omega_P)\,E^*_l(\omega_P)\,E_m(\omega_P)\,E^*_n(\omega_P) + \ldots,\end{aligned} \tag{10}$$

gdzie tensor przenikalności elektrycznej w nieobecności intensywności $I_p=0$ jest

$$\varepsilon_{ij}(0) = \delta_{ij} + 4\pi\chi^e_{ij}(\omega_A, \vec{k}_A), \tag{11}$$

przy czym mamy w ogólności rozwinięcia (8), (9) itd. dla słabej dyspersji przestrzennej kryształu.

Na podstawie równań (4) i (6) otrzymujemy analogicznie do (10) w obecności silnego światła zmiany w tensorze przenikalności magnetycznej

$$\begin{aligned}\mu_{ij}(I_P) - \mu_{ij}(0) = 4\pi\,\{&\chi^{me}_{ijkl}(\omega_A, \vec{k}_A, \omega_P)\,E_k(\omega_P)\,E^*_l(\omega_P) + \\ &+ \chi^{me}_{ijklmn}(\omega_A, \vec{k}_A, \omega_P)\,E_k(\omega_P)\,E^*_l(\omega_P)\,E_m(\omega_P)\,E^*_n(\omega_P) + \ldots,\end{aligned} \tag{12}$$

gdzie dla zerowej intensywności mamy

$$\mu_{ij}(0) = \delta_{ij} + 4\pi\chi^m_{ij}(\omega_A, \vec{k}_A). \tag{13}$$

Tensor liniowej podatności magnetycznej $\chi^{m}_{ij}(\omega_A, \vec{k}_A)$ zależy od dyspersji przestrzennej analogicznie do (8)*. Analogicznie do (9) określona jest dyspersja przestrzenna tensora χ^{me}_{ijkl} określającego magnetyczno-elektryczną nieliniową podatność trzeciego rzędu.

OBLICZANIE NIELINIOWYCH ZMIAN WSPÓŁCZYNNIKÓW ZAŁAMANIA

Na podstawie równań Maxwella (2) obliczymy teraz współczynniki załamania dla kilku konfiguracji kierunku propagacji fali względem odpowiedniej osi optycznej kryształu. Przyjmujemy, że macierzowa postać tensora przenikalności jest

$$(\varepsilon_{ij})=\begin{pmatrix}\varepsilon_x & \varepsilon_{xy} & 0\\ \varepsilon_{yx} & \varepsilon_y & 0\\ 0 & 0 & \varepsilon_z\end{pmatrix} \tag{14}$$

i analogiczna postać tensora przenikalności magnetycznej.

(i) Niech światło analizujące rozchodzi się wzdłuż osi x, wtedy otrzymujemy z (2) i (14) na współczynniki załamania mierzone w kierunkach prostopadłych do propagacji fali

$$n_y^2=\varepsilon_y\mu_z-\left(\frac{\mu_z}{\varepsilon_x}\right)\varepsilon_{xy}\varepsilon_{yx},\qquad n_z^2=\varepsilon_z\mu_y-\left(\frac{\varepsilon_z}{\mu_x}\right)\mu_{xy}\mu_{yx}. \tag{15}$$

(ii) Dla propagacji światła analizującego wzdłuż osi y mamy analogicznie

$$n_x^2=\varepsilon_x\mu_z-\left(\frac{\mu_z}{\varepsilon_y}\right)\varepsilon_{xy}\varepsilon_{yx},\qquad n_z^2=\varepsilon_z\mu_x-\left(\frac{\varepsilon_z}{\mu_y}\right)\mu_{xy}\mu_{yx}. \tag{16}$$

(iii) Jeśli światło analizujące rozchodzi się wzdłuż osi z, wtedy otrzymujemy na podstawie równań (2) i (14) dwa współczynniki załamania dla fal kołowo spolaryzowanych prawo- i lewoskrętnie

$$n_\pm^2=\tfrac{1}{2}\{\varepsilon_x\mu_y+\varepsilon_y\mu_x-\varepsilon_{xy}\mu_{xy}-\varepsilon_{yx}\mu_{yx}\pm[(\varepsilon_x\mu_y-\varepsilon_y\mu_x+\varepsilon_{xy}\mu_{xy}-\varepsilon_{yx}\mu_{yx})^2+$$
$$+4(\varepsilon_x\mu_{xy}-\varepsilon_{yx}\mu_x)(\varepsilon_y\mu_{yx}-\varepsilon_{xy}\mu_y)]^{\frac{1}{2}}\}. \tag{17}$$

DYSKUSJA

Kryształy, które w naturalnych warunkach nie wykazują dwójłomności, poddane działaniu silnego światła laserowego stają się dwójłomne. Przyczyną tego są nieliniowe zmiany współczynnika załamania w obecności światła laserowego. Szczegółowo zjawisko indukowanej dwójłomności dyskutujemy dla diamentu. Diament jest centrosymetrycznym kubicznym kryształem (O_h), nie wykazującym ani naturalnej dwójłomności, ani naturalnej aktywności optycznej. Poza tym cechują go stosunkowo duże nieliniowe właściwości w porównaniu z innymi nieliniowymi materiałami [8, 48]. Tensory przenikalności elektrycznej i magnetycznej w obecności przestrzennych niejednorodności wektora falowego i silnego światła

* Jednakże w obszarze optycznym wystarczy rozwinięcie (8) dla $\chi^{m}_{ij}(\omega_A, \vec{k}_A)$ ograniczyć jedynie do pierwszego wyrazu.

laserowego, dane są w ogólności przez wyrażenia (10) i (12). Niezerowe i niezależne składowe tensorów biegunowych czwartej i szóstej rangi podane są odpowiednio w tabeli 1 i 3. Współczynniki załamania obliczamy kolejno dla trzech geometrii eksperymentu odpowied-

Tabela 1

Niezerowe i niezależne elementy biegunowego tensora czwartej rangi dla klas krystalograficznych układu regularnego. Dla prostoty niezerowe składowe oznaczamy przez wskaźniki $i=x, y, z$

Klasy krystalograficzne	Liczba elementów niezerowych	Liczba elementów niezależnych	Elementy
23 (T) $m3$ (T_h)	21	7	xxxx = yyyy = zzzz, yyzz = zzxx = xxyy, zzyy = xxzz = yyxx, yzyz = zxzx = xyxy, zyzy = xzxz = yxyx, yzzy = zxxz = xyyx, zyyz = xzzx = yxxy
432 (O) $\bar{4}3m$ (T_d) $m3m$ (O_h)	21	4	xxxx = yyyy = zzzz, xxyy = zzxx = yyzz = zzyy = xxzz = yyxx, yzyz = zxzx = xyxy = zyzy = xzxz = yxyx, yzzy = zxxz = xyyx = zyyz = xzzx = yxxy

Tabela 2

Niezerowe i niezależne elementy biegunowe tensora piątej rangi dla klas krystalograficznych układu regularnego. Dla prostoty niezerowe składowe oznaczyliśmy przez wskaźniki $i=x, y, z$

Klasy krystalograficzne	Liczba elementów niezerowych	Liczba elementów niezależnych	Elementy
23 (T)	60	20	xxxyz = yyyzx = zzzxy, xxxzy = yyyxz = zzzyx, xxzxy = yyxyz = zzyzx, xxyxz = yyzyx = zzxzy, xxzyx = yyxzy = zzyxz, xxyzx = yyzxy = zzxyz, xzxyx = yxyzy = zyzxz, xyxzx = yzyxy = zxzyz, xzxxy = yxyyz = zyzzx, xyxxz = yzyyx = zxzzy, xzyxx = yxzyy = zyxzz, xyzxx = yzxyy = zxyzz, yxxxz = zyyyx = xzzzy, zxxxy = xyyyz = yzzzx, yxxzx = zyyxy = xzzyz, zxxyz = xyyzy = yzzxz, yxzxx = zyxyy = xzyzz, zxyxx = xyzyy = yzxzz, yzxxx = zxyyy = xyzzz, zyxxx = xzyyy = yxzzz.
432 (O)	60	10	xxxyz = yyyzx = zzzxy = −xxxzy = −yyyxz = −zzzyx, xxzxy = yyxyz = zzyzx = −xxyxz = −yyzyx = −zzxzy, xxzyx = yyxzy = zzyxz = −xxyzx = −yyzxy = −zzxyz, xzxyx = yxyzy = zyzxz = −xyxzx = −yzyxy = −zxzyz, xzxxy = yxyyz = zyzzx = −xyxxz = −yzyyx = −zxzzy, xzyxx = yxzyy = zyxzz = −xyzxx = −yzxyy = −zxyzz, yxxxz = zyyyx = xzzzy = −zxxxy = −xyyyz = −yzzzx, yxxzx = zyyxy = xzzyz = −zxxyx = −xyyzy = −yzzxz, yxzxx = zyxyy = xzyzz = −zxyxx = −xyzyy = −yzxzz, yzxxx = zxyyy = xyzzz = −zyxxx = −xzyyy = −yxzzz.
$\bar{4}3m$ (T_d)	60	10	xxxyz = yyyzx = zzzxy = xxxzy = yyyxz = zzzyx, xxzxy = yyxyz = zzyzx = xxyxz = yyzyx = zzxzy, xxzyx = yyxzy = zzyxz = xxyzx = yyzxy = zzxyz, xzxyx = yxyzy = zyzxz = xyxzx = yzyxy = zxzyz, xzxxy = yxyyz = zyzzx = xyxxz = yzyyx = zxzzy, xzyxx = yxzyy = zyxzz = xyzxx = yzxyy = zxyzz, yxxxz = zyyyx = xzzzy = xyyyz = zxxxy = yzzzx, yxxzx = zyyxy = xzzyz = zxxyx = xyyzy = yzzxz, yxzxx = zyxyy = xzyzz = zxyxx = xyzyy = yzxzz. yzxxx = zxyyy = xyzzz = zyxxx = xzyyy = yxzzz.

W klasach $m3$ (T_h) i $m3m$ (O_h) elementy tensorów zanikają.

Tabela 3

Niezerowe i niezależne elementy biegunowego tensora szóstej rangi dla klas krystalograficznych układu regularnego. Dla prostoty niezerowe składowe oznaczamy przez wskaźniki $i = x, y, z$

Klasy krystalograficzne	Liczba elementów niezerowych	Liczba elementów niezależnych	Elementy
23 (T) $m3$ (T_h)	183	61	xxxxxx = yyyyyy = zzzzzz, yyyyxx = zzzzyy = xxxxzz, xxxxyy = yyyyzz = zzzzxx, xxyyyy = yyzzzz ≠ zzxxxx, yyxxxx = zzyyyy = xxzzzz, xyxyyy = yzyzzz = zxzxxx, yxyxxx = zyzyyy = xzxzzz, xyyxyy = yzzyzz = zxxzxx, yxxyxx = zyyzyy = xzzxzz, xyyyxy = yzzzyz = zxxxzx, yxxxyx = zyyyzy = xzzzxz, xyyyyx = yzzzzy = zxxxxz, yxxxxy = zyyyyz = xzzzzx, yxxyyy = zyyzzz = xzzxxx, xyyxxx = yzzyyy = zxxzzz, yxyxyy = zyzyzz = xzxzxx, xyxyxx = yzyzyy = zxzxzz, yxyyxy = zyzzyz = xzxxzx, xyxxyx = yzyyzy = zxzzxz, yxyyyx = zyzzzy = xzxxxz, xyxxxy = yzyyyz = zxzzzx, yyxxyy = zzyyzz = xxzzxx, xxyyxx = yyzzyy = zzxxzz, yyxyxy = zzyzyz = xxzxzx, xxyxyx = yyzyzy = zzxzxz, yyxyyx = zzyzzy = xxzxxz, xxyxxy = yyzyyz = zzxzzx, yyyxxy = zzzyyz = xxxzzx, xxxyyx = yyyzzy = zzzxxz, yyyxyx = zzzyzy = xxxzxz, xxxyxy = yyyzyz = zzzxzx, xxyyzz = yyzzxx = zzxxyy, yyxxzz = xxzzyy = zzyyxx, xyxyzz = yzyzxx = zxzxyy, yxyxzz = xzxzyy = zyzyxx, xyyxzz = yzzyxx = zxxzyy, yxxyzz = xzzxyy = zyyzxx, xyyzxz = yzzxyx = zxxyzy yxxzyz = xzzyxy = zyyxzx, xyyzzx = yzzxxy = zxxyyz, yxxzzy = xzzyyx = zyyxxz, xxyzyz = yyzxzx = zzxyxy, yyxzxz = xxzyzy = zzyxyx, xyxzyz = yzyxzx = zxzyxy, yxyzxz = xzxyzy = zyzxyx, xyzxyz = yzxyzx = zxyzxy, yxzyxz = xzyxzy = zyxzyx, xyzyxz = yzxzyx = zxyxzy, yxzxyz = xzyzxy = zyxyzx, xyzyzx = yzxzxy = zxyxyz, yxzxzy = xzyzyx = zyxyxz, xxyzzy = yyzxxz = zzxyyx, yyxzzx = xxzyyz = zzyxxy, xyxzzy = yzyxxz = zxzyyx, yxyzzx = xzxyyz = zyzxxy, xyzxzy = yzxyxz = zxyzyx, yxzyzx = xzyxyz = zyxzxy, xyzzxy = yzxxyz = zxyyzx, yxzzyx = xzyyxz = zyxxzy, xyzzxy = yzxxyz = zxyyzx, yxzzyx = xzyyxz = zyxxzy.
432 (O) $\bar{4}3m$ (T_d) $m3m$ (O_h)	183	31	xxxxxx = yyyyyy = zzzzzz, xxxxyy = xxxxzz = yyyyzz = zzzzyy = zzzzxx = yyyyxx, yyxxxx = zzxxxx = zzyyyy = yyzzzz = xxzzzz = .xxyyyy, yxyxxx = zxzxxx = zyzyyy = yzyzzz = xzxzzz = xyxyyy, yxxyxx = zxxzxx = zyyzyy = yzzyzz = xzzxzz = xyyxyy, yxxxyx = zxxxzx = zyyyzy = yzzzyz = xzzzxz = xyyyxy, yxxxxy = zxxxxz = zyyyyz = yzzzzy = xzzzzx = xyyyyx, xyyxxx = xzzxxx = yzzyyy = zyyzzz = zxxzzz = yxxyyy, xyxyxx = xzxzxx = yzyzyy = zyzyzz = zxzxzz = yxyxyy, xyxxyx = xzxxzx = yzyyzy = zyzzyz = zxzzxz = yxyyxy, xyxxxy = xzxxxz = yzyyyz = zyzzzy = zxzzzx = yxyyyx, xxyyxx = xxzzxx = yyzzyy = zzyyzz = zzxxzz = yyxxyy, xxyxyx = xxzxzx = yyzyzy = zzyzyz = zzxzxz = yyxyxy, xxyxxy = xxzxxz = yyzyyz = zzyzzy = zzxzzx = yyxyyx, xxxyyx = xxxzzx = yyyzzy = zzzyyz = zzzxxz = yyyxxy, xxxyxy = xxxzxz = yyyzyz = zzzyzy = zzzxzx = yyyxyx, xxyyzz = xxzzyy = yyzzxx = yyxxzz = zzxxyy = zzyyxx, xyxyzz = xzxzyy = yzyzxx = yxyxzz = zxzxyy = zyzyxx, xyyxzz = xzzxyy = yzzyxx = yxxyzz = zxxzyy = zyyzxx, xyyzxz = xzzyxy = yzzxyx = yxxzyz = zxxyzy = zyyxzx, xyyzzx = xzzyyx = yzzxxy = yxxzzy = zxxyyz = zyyxxz, xxyzyz = xxzyzy = yyzxzx = yyxzxz = zzxyxy = zzyxyx, xyxzyz = xzxyzy = yzyxzx = yxyzxz = zxzyxy = zyzxyx, xyzxyz = xzyxzy = yzxyzx = yxzyxz = zxyzxy = zyxzyx, xyzyxz = xzyzxy = yzxzyx = yxzxyz = zxyxzy = zyxyzx, xyzyzx = xzyzyx = yzxzxy = yxzxzy = zxyxyz = zyxyxz, xxyzzy = xxzyyz = yyzxxz = yyxzzx = zzxyyx = zzyxxy, xyxzzy = xzxyyz = yzyxxz = yxyzzx = zxzyyx = zyzxxy, xyzxzy = xzyxyz = yzxyxz = yxzyzx = zxyzyx = zyxzxy. xyzzxy = xzyyxz = yzxxyz = yxzzyx = zxyyzx = zyxxzy, xyzzyx = xzyyzx = yzxxzy = yxzzxy = zxyyxz = zyxxyz,

nio ze wzorów (15), (16) i (17) przy założeniu, że silna wiązka z częstością ω_p polaryzująca ośrodek jest propagowana w kierunku osi z. W obu przypadkach, gdy wiązka analizująca i polaryzująca są względem siebie prostopadłe możemy napisać dla różnicy współczynników załamania ogólne wyrażenie

$$\Delta n^{NL} = \Delta n^{NL}(\omega_A, \omega_P) + \Delta n^{NL}(\omega_A, k_A, \omega_P), \tag{18}$$

gdzie $\Delta n^{NL}(\omega_A, \omega_p)$ jest przyczynkiem do dwójłomności indukowanym światłem laserowym w nieobecności dyspersji przestrzennej, natomiast $\Delta n^{NL}(\omega_A, k_A, \omega_p)$ jest przyczynkiem dla $k \neq 0$. Jeżeli przez α oznaczymy kąt między kierunkiem drgań wektora elektrycznego z częstością ω_p a osią x, to dla kierunku propagacji wiązki mierzącej zgodnego z osią x możemy napisać

$$\Delta n^{NL} = n_y - n_z = \frac{4\pi}{\bar{n}} (\chi^{ee}_{yyyy}(\omega_A) - \chi^{ee}_{zzyy}(\omega_A)) I(\omega_p) \sin^2\alpha + \frac{4\pi}{\bar{n}} \{(\eta^{ee}_{zzxxyy}(\omega_A) - \eta^{ee}_{yyxxyy}(\omega_A)) k_x^2$$
$$+ \varepsilon(\chi^{me}_{zzyy}(\omega_A) - \chi^{me}_{yyyy}(\omega_A)) + 4\pi\chi^{m}_{yy}(\omega_A)(\chi^{ee}_{yyyy}(\omega_A) - \chi^{ee}_{zzyy}(\omega_A))\} I(\omega_p) \sin^2\alpha, \tag{19}$$

gdzie $\bar{n} = \frac{1}{2}(n_y + n_z)$ jest średnim współczynnikiem załamania, a $I(\omega_p) = (|E_x|^2 + |E_y|^2)/2$.

Jak widać z (19) maksymalna dwójłomność wystąpi wówczas, gdy kierunek drgań wektora elektrycznego silnej wiązki pokrywa się z osią y. Gdy zaś kierunek drgań ω_p będzie zgodny z kierunkiem propagacji wiązki mierzącej nie wystąpi indukowana dwójłomność. Podobne związki można napisać dla diamentu, gdy wiązka mierząca jest propagowana wzdłuż osi y. Wtedy

$$\Delta n^{NL} = n_x - n_z = \frac{4\pi}{\bar{n}} (\chi^{ee}_{xxxx}(\omega_A) - \chi^{ee}_{zzxx}(\omega_A)) I(\omega_p) \cos^2\alpha +$$
$$+ \frac{4\pi}{\bar{n}} \{(\eta^{ee}_{zzyyxx}(\omega_A) - \eta^{ee}_{xxyyxx}(\omega_A)) k_y^2 + \varepsilon(\chi^{me}_{zzxx}(\omega_A) - \chi^{me}_{xxxx}(\omega_A)) +$$
$$+ 4\pi\chi^{m}_{xx}(\omega_A)(\chi^{ee}_{xxxx}(\omega_A) - \chi^{ee}_{zzxx}(\omega_A))\} I(\omega_p) \cos^2\alpha. \tag{20}$$

W przypadku światła naturalnego należy uśrednić funkcję $\cos^2\alpha$ i $\sin^2\alpha$ na wszystkie możliwe wartości kąta w płaszczyźnie prostopadłej do kierunku propagacji silnej wiązki i ponieważ $\overline{\cos^2\alpha} = \overline{\sin^2\alpha} = \frac{1}{2}$ widzimy, że światło niespolaryzowane również indukuje dwójłomność optyczną. Podobna sytuacja jest w przypadku światła kołowo spolaryzowanego. Różnica współczynników załamania określonych równaniem (17) dla przypadku, gdy wiązka mierząca jest propagowana wzdłuż osi z, określa indukowaną silnym światłem laserowym kołową dwójłomność optyczną i ma postać

$$n_+ - n_- = \frac{4\pi}{\bar{n}} \{[4(\chi^{ee}_{xxxx}(\omega_A) - \chi^{ee}_{yyxx}(\omega_A))^2 \cos^2 2\alpha +$$
$$+ (\chi^{ee}_{xyxy}(\omega_A) + \chi^{ee}_{xyyx}(\omega_A))^2 \sin^2 2\alpha] I^2(\omega_p) +$$
$$+ 8[\{(\chi^{ee}_{xxxx}(\omega_A) - \chi^{ee}_{yyxx}(\omega_A))(\eta^{ee}_{yyzzxx}(\omega_A) - \eta^{ee}_{xxzzxx}(\omega_A)) k_z^2 +$$
$$+ \chi^{m}_{xx}(\omega_A)(\chi^{ee}_{xxxx}(\omega_A) - \chi^{ee}_{yyxx}(\omega_A))^2 + \varepsilon(\chi^{ee}_{xxxx}(\omega_A) - \chi^{ee}_{yyxx}(\omega_A)) \times$$

$$\times(\chi^{me}_{yyxx}(\omega_A)-\chi^{me}_{xxxx}(\omega_A))\}\cos^2 2\alpha-\{(\chi^{ee}_{xyxy}(\omega_A)+\chi^{ee}_{xyyx}(\omega_A))\times$$
$$\times\eta^{ee}_{xyzzxy}(\omega_A)+\eta^{ee}_{xyzzyx}(\omega_A))k_z^2-\chi^{m}_{xx}(\omega_A)(\chi^{ee}_{xyxy}(\omega_A)+\chi^{ee}_{xyyx}(\omega_A))^2+$$
$$+\varepsilon(\chi^{ee}_{xyxy}(\omega_A)+\chi^{ee}_{xyyx}(\omega_A))(\chi^{me}_{xyxy}(\omega_A)+\chi^{me}_{xyyx}(\omega_A))\}\sin^2 2\alpha]I^2(\omega_p)+\ldots\}^{\frac{1}{2}}. \quad (21)$$

Jeżeli wiązkę światła laserowego spolaryzujemy kołowo w prawo lub w lewo, za indukowaną dwójłomność kołową są odpowiedzialne niediagonalne składowe tensorów podatności elektrycznej i magnetycznej. I tak dla wiązki spolaryzowanej w prawo mamy

$$n_+-n_-=\frac{4\pi}{\vec{n}}\{(\chi^{ee}_{xyxy}(\omega_A)-\chi^{ee}_{xyyx}(\omega_A))^2 I_p^2(\omega_p)+$$
$$+8[(\chi^{ee}_{xyxy}(\omega_A)-\chi^{ee}_{xyyx}(\omega_A))(\eta^{ee}_{xyzzyx}(\omega_A)-\eta^{ee}_{xyzzxy}(\omega_A))k_z^2+$$
$$+\varepsilon(\chi^{ee}_{xyxy}(\omega_A)-\chi^{ee}_{xyyx}(\omega_A))(\chi^{me}_{xyyx}(\omega_A)-\chi^{me}_{xyxy}(\omega_A))+$$
$$+\chi^{m}_{xx}(\omega_A)(\chi^{ee}_{xyxy}(\omega_A)-\chi^{ee}_{xyyx}(\omega_A))^2]I_p^2(\omega_p)+\ldots\}^{\frac{1}{2}}, \quad (22)$$

gdzie $I_p(\omega_p)=(E_p(\omega_p)E_p^*(\omega_p))/2$, a $E_p=E_x+iE_y$. Analogiczne wyrażenie można napisać dla wiązki laserowej spolaryzowanej w lewo. Zarówno w (21), jak i w (22) można wyróżnić przyczynek do dwójłomności kołowej indukowany silnym światłem, który jest różny od zera również w nieobecności dyspersji przestrzennej. Dla przypadku gdy wektor elektryczny z częstością ω_p drga w kierunku x lub y i $k=0$ różnica współczynników załamania n_+ i n_- wyraża się prosto

$$n_+-n_-=\frac{8\pi}{\bar{n}}(\chi^{ee}_{xxxx}(\omega_A)-\chi^{ee}_{yyxx}(\omega_A))I(\omega_p). \quad (23)$$

Opierając się na wynikach Levensona i Bloembergena [48] można przyjąć, że zarówno składowe χ^{ee}_{xxxx} i χ^{ee}_{xxyy}, jak i ich różnica dla diamentu są rzędu 10^{-14} jEs. Gdyby w eksperymencie użyć światła laserowego o natężeniu pola elektrycznego 10^6 V/cm różnica n_+-n_- powinna być rzędu 10^{-6}. Z faktu, że we wzorze na kąt skręcenia $\varphi=\frac{\pi d}{\lambda}(n_+-n_-)$, λ jest bardzo małe w porównaniu z makroskopowymi wartościami d, powstaje skręcenie płaszczyzny polaryzacji o dostrzegalny kąt φ. Dla kryształu o długości 1 cm i długości fali 10^{-5} cm

$$\varphi\sim\frac{\pi\cdot 1\cdot 10^{-6}}{10^{-5}}\sim\pi\cdot 10^{-1}\ \text{radiana}.$$

Powinno zatem nastąpić skręcenie płaszczyzny polaryzacji o kąt rzędu stopni.

Instytut Fizyki
Uniwersytetu im. A. Mickiewicza
w Poznaniu

LITERATURA

1. Mayer G., Gires F., C. R. Acad. Sci. Paris, **258B**, 2039 (1964).
2. Kielich S., Ferroelectrics, **4**, 257 (1972).
3. Owyoung A., Hellwarth R. W., George N., Phys. Rev., **B5**, 628 (1972).

4. Stolen R. H., Ashkin A., Appl. Phys. Letters, **22**, 294 (1973).
5. Wong G. K. L., Shen Y. R., Phys. Rev. Letters, **30**, 895 (1973).
6. Prost J., Lalanne J. R., Phys. Rev., **A8**, 2090 (1973).
7. Bischofberger T., Courtens E., Phys. Rev. Letters, **32**, 163 (1974).
8. Maker P. D., Terhune R. W., Phys. Rev., **137**, A801 (1965).
9. Owyoung A., IEEE J. Quantum Electronics, **QE-9**, 1064 (1973).
10. Brewer R. G., Lifszitz J. R., Garmire E., Chiao R. Y., Townes C. H., Phys. Rev., **166**, 326 (1968).
11. Piekara A. H., IEEE J. Quantum Electronics, **2**, 249 (1966); Japan J. Appl. Phys., **10**, 266 (1971); Kielich S., Acta Phys. Polonica, **34**, 1093 (1968).
12. Steinberg G. N., Phys. Rev., **A4**, 1182 (1971).
13. Kerr E. L., Phys. Rev., **A4**, 1195 (1971); **A6**, 1162 (1972).
14. Feldman A., Horonitz D., Waxler R. M., IEEE J. Quantum Electronics, **QE-9**, 1054 (1973); Moore M., Opto-electronics **5**, 189 (1973).
15. Reintejes J., Carman R. L., Shimizu F., Phys. Rev., **A8**, 1486 (1973).
16. Rao D. V. G. L. N., Jayaraman S., Appl. Phys. Letters, **23**, 539 (1973); O. P. Varnavski, Veduta A. P., Kirsanov B. P., Quantum Electronics (USSR) **1**, 309 (1974); Gordienko V. M., Kolomiets V. G., Chernego P. I., Quantum Electronics (USSR) **1**, 2642 (1974).
17. Akhmanov S. A., Khoklov R. V., Sukhorukov A. P., *Laser Handbuch* (Ed. Arecchi F. T., Schultz E. O. – Dubois, North-Holland, Amsterdam 1972) Vol. 2, p. 1151; Lugovoi V. N., Prokhorov A. M., Usp. Fiz. Nauk, **111**, 203 (1973); Askaryan G. A., ibid, **111**, 249 (1973).
18. Kielich S., Opto-electronics **1**, 75 (1969); Optics Communications, **1**, 129 (1969).
19. Atkins P. W., Woolley R. G., J. Chem. Soc. A, 515 (1969).
20. Vlasov D. V., Zaitsev V. P., JETP Letters, **14**, 112 (1971).
21. Bloembergen N., Amer. J. Phys., **35**, 989 (1967).
22. Helwarth R. W., Owyoung A., George N., Phys. Rev., **A4**, 2342 (1971).
23. Kielich S., Lalanne J. R., Martin F. B., IEEE J. Quantum Electronics, **QE-9**, 601 (1973).
24. Fournier J. T., Smitzer E., IEEE J. Quantum Electronics **QE-10**, 473 (1974).
25. Levenson M. D., IEEE J. Quantum Electronics, **QE-10**, 110 (1974).
26. Kielich S., IEEE J. Quantum Electronics, **QE-4**, 744 (1968); Kielich S., Lalanne J. R., Martin F. B., J. Phys. (Paris) **33**, C1-191 (1972).
27. Flytzanis C., Shen Y. R., Phys. Rev. Letters, **33**, 14 (1974).
28. Courtens E., Phys. Rev., **A10**, 967 (1974).
29. Alfano R. R., Hope L. L., Shapiro S., Phys. Rev., **A6**, 433 (1972); Eckardt R. C., Lee C. H., Bradford J. N., Opto-electronics, **6**, 67 (1974).
30. Thorne J. M., Loree T. R., McCall G. H., J. Appl. Phys., **45**, 3072 (1974).
31. Fabielinskiy I. L., Usp. Fiz. Nauk, **104**, 77 (1971); Zeldovich B. Ya., Kuznietzova T. T., ibid, **106**, 47, (1972); Bradley B. J., New G. H. C., Proc. IEEE, **62**, 313 (1974).
32. Nishizawa J., Otsuka A., Opto-electronics, **6**, 309 (1973).
33. Born M., *Optik*, Springer, Berlin 1933.
34. Bhagavantam S., *Crystal Symmetry and Physical Properties*, Academic Press, London 1966.
35. Agranovich V. M., Ginsburg V. L., *Spatial dispersion in crystal optics and the theory of excitons*, Wiley, New York 1965.
36. Bloembergen N., Pershan P. S., Phys. Rev., **128**, 606 (1962).
37. Akhmanov S. A., Khoklov R. V., *Problemy Nielinieynoy Optiki*, Akad. Nauk USSR, Moscow 1964.
38. Butcher P. N., *Nonlinear Optical Phenomena*, Ohio State Univ., 1965.
39. Kielich S., Proc. Phys. Soc., **86**, 709 (1965); Acta Phys. Polonica, **29**, 875 (1966).
40. Tang C. L., Rabin H., Phys. Rev. **B3**, 4025 (1971).
41. Lax M., Nelson D. F., Phys. Rev., **B4**, 3694 (1971).
42. Musha T., Proc. IEEE, **60**, 1475 (1972).
43. Piekara A., Kielich S., Archives des Sciences, **11**, 304 (1958); Quantum Electronics, Dunod, Paris 1964, p. 1603; Kielich S., Piekara A., Acta Phys. Polonica, **18**, 439 (1959).

44. Wigner E. P., *Group Theory*, Academics Press, New York 1959.
45. Lubarski G. J., *The Application of Group Theory in Physics*, Pergamon Press, Oxford 1960.
46. Birs R. R., *Symmetry and Magnetism*, North Holland, Amsterdam 1964.
47. Kielich S., Zawodny R., Optics Communications, **4**, 132 (1971); Acta Phys. Polonica, **A43**, 579 (1973).
48. Levenson M. D., Bloembergen N., Phys. Rev., **B**, **10**, 4447 (1974).

S. KIELICH. R. ZAWODNY, H. SITARZ

VARIATIONS NON-LINÉAIRES DE L'INDICE DE RÉFRACTION DES CRISTAUX, INDUITES PAR LA LUMIÈRE INTENSE DE LASER

Résumé

Les techniques laser permettent d'observer de différents effets dus aux variations de l'indice du milieu induites par les faisceaux de laser intenses: effet Kerr optique, rotation auto-induite de l'ellipse de polarisation, activité optique non-linéaire, etc. Nous rapportons une généralisation de la cristallo-optique linéaire au cas de la cristallooptique non-linéaire des phénomènes de biréfringence induite. Nous considérons les variations des propriétes optiques des cristaux sous l'influence d'un faisceau intense dont les vecteurs $E^p(\vec{r}, t)$ et $H^p(\vec{r}, t)$ sont la caus d'une polarisation non-linéaire du cristal à la fréquence ω_p (généralement différente de la fréquence ω_A du faisceau de mesure) et au vecteur d'onde $\vec{k}_p$. Conformément à une théorie de Piekara et Kielich, les tenseurs de la permittivité électrique ε_{ij} et magnétique μ_{ij} sont des fonctions non-linéaires du champ intense de laser. Les polarisations électrique et magnétique des équations (3) et (4) contiennent tous les apports multipolaires, tant électriques que magnétiques. D'après les équations de Maxwell les indices de réfraction, elles aussi, dépendent non-linéairement de l'intensité I_p du faisceau de laser. Nous donnons les indices de réfraction pour de différentes géométries expérimentales sous la forme générale des expressions (15), (16) et (17). Une discussion détaillée est donnée pour la biréfringence optique induite dans le diamant, pour différentes directions de propagation du faisceau de mesure ainsi que pour de différents états de polarisation du faisceau à la fréquence ω_p. Les éléments non-nuls et indépendants des tensours de susceptibilité d'ordres élevés sont déterminés.

Institut de Physique
de l'Université A. Mickiewicz
Poznań