

ТРЕХЧАСТОТНАЯ ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ С УЧАСТИЕМ ПОЛЯРИТОНОВ

А. В. Бурлаков, Ю. Б. Мамаева, А. Н. Пенин, М. В. Чехова*

*Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119899, Москва, Россия*

Поступила в редакцию 14 февраля 2001 г.

Исследована интерференция второго порядка по полю при спонтанном параметрическом рассеянии света в условиях поглощения на частотах холостых (поляритонных) мод. Получено выражение, описывающее зависимость интенсивности рассеяния от угла рассеяния для произвольной формы области нелинейного взаимодействия. Указанная интерференция исследована экспериментально при рассеянии на поляритонах в кристалле, перед которым в пучок накачки помещалась двойная щель. Использовались кристаллы йодата лития и йодноватой кислоты.

PACS: 42.50.Ct

1. ВВЕДЕНИЕ

Спонтанное параметрическое рассеяние (СПР) света — процесс когерентного распада фотона накачки на два фотона с меньшими частотами (бифотон) [1]. В настоящее время этот эффект нашел применение в двух областях: в квантовой оптике и спектроскопии.

В квантовой оптике основное внимание сосредоточено на преобразовании бифотонного поля, полученного в результате СПР, и использовании его неклассических свойств. Известен обширный класс экспериментов по наблюдению интерференции во втором и четвертом моментах поля (см. [2] и цитированную там литературу). В таких экспериментах, как правило, демонстрируется существенное различие квантового и классического подходов к описанию такой интерференции. Бифотонные поля в последнее время привлекают большое внимание как с точки зрения методических вопросов квантовой теории [3], так и для использования их в устройствах квантовой криптографии [4], квантовой телепортации [5] и др.

В спектроскопии исследуются свойства вещества, в котором происходит параметрическое рассеяние. Выбором условий эксперимента реализуется ситуация, когда частота одного из фотонов

(сигнального) находится в видимом диапазоне, в области прозрачности рассеивающего вещества, в то время как частота сопряженного ему (холостого) — в ИК-области. При этом регистрируются частотно-угловые спектры рассеянного сигнального излучения, по которым определяются дисперсионные зависимости оптических характеристик среды в ИК-диапазоне — диэлектрической проницаемости, нелинейной восприимчивости второго и третьего порядков и др. [6]. Основное достоинство спектроскопии СПР — простота реализации и возможность получения информации в труднодоступной части спектра вблизи частот оптических фононов [7]. В этой области необходимо учитывать смешанную электромагнитно-механическую природу холостых волн (поляритонов) и рассеянное поле нельзя представлять как пары свободных коррелированных фотонов [8].

В данной работе рассматривается такая ситуация, в которой подходы квантовой оптики и спектроскопии СПР тесно связаны. Теоретически и экспериментально исследуется интерференция второго порядка по полю в сигнальном излучении, когда параметрическое рассеяние происходит с участием поляритонов. При анализе этого явления устанавливается связь между понятиями и методами квантовой оптики и спектроскопии параметрического рассеяния, а также обсуждается возможность развития новых методов нелинейной спектроскопии [9].

Структура изложения материала следующая. В

*E-mail: postmast@opt.phys.msu.su

разд. 2 кратко рассмотрены основные определения и подходы, используемые для описания интерференции в квантовой оптике. В разд. 3 исследуется трехчастотная интерференция второго порядка по полю при условии, что рассеивающее вещество непрозрачно для холостого излучения. Получено общее выражение для углового распределения интенсивности сигнального излучения, а также рассчитана угловая форма линии сигнала для условий, соответствующих экспериментальным. В разд. 4 приведены результаты экспериментальных исследований трехчастотной интерференции.

2. ТРЕХЧАСТОТНАЯ ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ ПРИ СПР

Спонтанное параметрическое рассеяние наглядно интерпретируют как распад фотона накачки с частотой ω_p на два фотона, сигнальный и холостой, с частотами $\omega_s, \omega_i < \omega_p$ (традиционно считается, что $\omega_i \leq \omega_s$). Феноменологическое описание процесса СПР основывается на использовании эффективного гамильтониана взаимодействия [10]

$$\hat{H}(t) = \int_V d^3r \chi_{eff}(\mathbf{r}) E_p^{(+)}(\mathbf{r}, t) \times \times \hat{E}_s^{(-)}(\mathbf{r}, t) \hat{E}_i^{(-)}(\mathbf{r}, t) + \text{H.c.}, \quad (1)$$

где E_p — поле накачки, которое полагается заданным и классическим, \hat{E}_s и \hat{E}_i — операторы полей соответственно сигнальной и холостой волн, индексы «+» и «-» означают положительно- и отрицательно-частотную части, а $\chi_{eff} = \hat{\chi}^{(2)} : \mathbf{e}_p \mathbf{e}_s \mathbf{e}_i$ (\mathbf{e}_σ — единичные векторы поляризации соответствующих волн, $\sigma = p, s, i$, а знак $\hat{\cdot}$ означает тензорную свертку). В первом порядке теории возмущений волновая функция рассеянного поля выглядит как

$$|\psi\rangle = |vac\rangle + \sum_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s} F(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) |1\rangle_s |1\rangle_i, \quad (2)$$

где $|1\rangle_s |1\rangle_i$ — двухфотонное фоковское состояние в модах s, i . Функцию $F(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i)$ можно интерпретировать как форму бифотонного волнового пакета в восьмимерном пространстве $\omega \otimes \mathbf{k}$ (\mathbf{k}_σ — волновые векторы взаимодействующих волн, $|\mathbf{k}_\sigma| = \omega_\sigma n(\omega_\sigma)/c$). Ее фурье-образ определяет распределение амплитуды бифотона в восьмимерном пространстве $\mathbf{r} \otimes t$. В наиболее общем виде $F(\mathbf{r}, t)$ можно записать следующим образом:

$$F(\mathbf{r}_s, t_s; \mathbf{r}_i, t_i) \propto \int_t^{t+\tau} dt' \int_V d\mathbf{r} \chi_{eff}^{(2)}(\mathbf{r}) E_p(\mathbf{r}, t') \times \times D_s(\mathbf{r}_s, t_s; \mathbf{r}, t') D_i(\mathbf{r}_i, t_i; \mathbf{r}, t'). \quad (3)$$

Здесь D_s и D_i — пропагаторы, описывающие распространение сигнального и холостого излучения, V и τ — объем и время взаимодействия. При этом полагается, что вещество, в котором происходит рассеяние, прозрачно на частотах излучения накачки, холостого и сигнального полей. Вероятность регистрации бифотона — вероятность одновременного появления фотоотсчетов в двух идеальных детекторах, регистрирующих излучение в модах \mathbf{k}_s и \mathbf{k}_i . Она определяется квадратом модуля амплитуды бифотона [10]:

$$P_c(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i) = |F(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i)|^2. \quad (4)$$

Вероятность появления фотоотсчета в детекторе, регистрирующем только сигнальное излучение, вычисляется как

$$P_s(\mathbf{k}_s) = \int d\mathbf{k}_i P_c(\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i). \quad (5)$$

Исходя из (3), можно выделить несколько способов влияния на пространственно-временную структуру бифотонного поля:

- 1) изменение пространственного распределения квадратичной восприимчивости $\chi_{eff}^{(2)}(\mathbf{r})$ [11];
- 2) модуляция пространственного распределения амплитуды поля накачки $E_p(\mathbf{r})$ [12];
- 3) формирование заданным образом пропагаторов $D_{i,s}$.

Последний способ широко используется в квантовой оптике. Он позволяет с максимальной простотой осуществлять преобразования бифотонного волнового пакета в процессе его распространения. При этом используют рассеянное излучение с частотами, принадлежащими видимому (или ближнему ИК) диапазону спектра и попадающими в область прозрачности используемых нелинейных кристаллов. Преобразования пропагаторов осуществляются с помощью линейных оптических (в том числе поляризационных) устройств, таких как интерферометры, фазовращатели, линии задержки и др.

Неоднородные пространственные распределения нелинейности $\chi_{eff}^{(2)}(\mathbf{r})$ и накачки $E_p(\mathbf{r})$ одинаково влияют на угловое распределение интенсивности рассеянного излучения в бездифракционном приближении ($L/k_p a^2 \ll 1$, L — длина нелинейного слоя вдоль

волнового вектора накачки, a — характерный размер поперечных неоднородностей). Не конкретизируя вид пространственных неоднородностей рассеивающего объема, можно показать, что угловая форма линии рассеяния определяется фурье-образом неоднородностей [13]:

$$R_s(\mathbf{k}_s) = \int dk_i \left| \int f(\mathbf{r}) \exp(i\Delta_{\mathbf{k}} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r} \right|^2, \quad (6)$$

где $\Delta_{\mathbf{k}} = \mathbf{k}_p - \mathbf{k}_s - \mathbf{k}_i$ — волновая расстройка, $f(\mathbf{r}) = \chi_{eff}^{(2)}(\mathbf{r})E_p(\mathbf{r})$ и $R_s(\mathbf{k}_s) = P_s(\mathbf{k}_s)/\tau$ — скорость появления фотоотсчетов, пропорциональная интенсивности параметрического рассеяния. Например, если рассеивающий объем имеет вид плоского бесконечного слоя толщиной L , ориентированного перпендикулярно волновому вектору накачки, частотно-угловая форма линии описывается функцией

$$R_s(\mathbf{k}_s) = \left[\frac{\sin(\Delta_k L/2)}{\Delta_k L/2} \right]^2,$$

характерной для параметрических процессов. Если рассеяние происходит в нескольких областях (например, в N кристаллах), то двухфотонные амплитуды вероятности складываются:

$$F = \sum_{n=1}^N F_n \exp(i\Delta\varphi_n),$$

где $\Delta\varphi_n = \varphi_n^s + \varphi_n^i - \varphi_n^p$ — фазовый сдвиг на трех частотах.

Форма линии определяется фазовыми набегам на всех трех частотах, участвующих в процессе рассеяния, и это дает основание говорить о трехчастотной интерференции. Использование сложного по форме объема взаимодействия приводит к модификации частотно-углового спектра рассеянного поля: возникает дополнительная тонкая структура, имеющая интерференционную природу.

Отметим, что интерференция здесь понимается не в смысле классического наложения полей в пространстве-времени, а как квантовомеханическая интерференция амплитуд вероятностей рассеяния бифотонного поля в заданные моды, определяемая граничными условиями.

3. ТРЕХЧАСТОТНАЯ ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ ПРИ НАЛИЧИИ ПОГЛОЩЕНИЯ

Положим, что рассеивающее вещество непрозрачно только для холостого излучения. Для излучения накачки и сигнала поглощение пренебрежимо мало. Нас будет интересовать пространственное

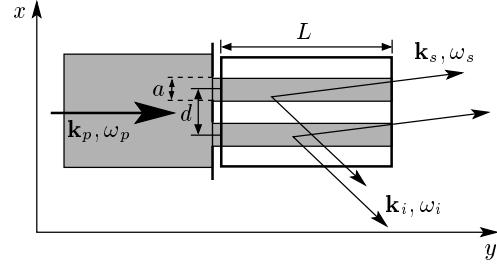


Рис. 1. Вид рассеивающей области. На нелинейный кристалл длиной L падает излучение накачки. На его пути перед кристаллом помещен непрозрачный экран с двумя щелями шириной a , расстояние между центрами щелей d

распределение скорости появления фотоотсчетов в детекторе, пропорциональное интенсивности излучения в моде сигнального поля:

$$R_s(\mathbf{k}_s) = \langle E_s^{(-)}(\mathbf{k}_s) E_s^{(+)}(\mathbf{k}_s) \rangle. \quad (7)$$

Исходя из гамильтониана (1) и учитывая, что холостое поле в веществе не является свободным, в первом порядке теории возмущений можно получить следующее выражение:

$$R_s(\mathbf{k}_s) = \int dk_i \iint_V d\mathbf{r}' d\mathbf{r}'' f(\mathbf{r}') f^*(\mathbf{r}'') \times \\ \times G''(\mathbf{k}_i, \omega_p - \omega_s) \exp[i\Delta_{\mathbf{k}} \cdot (\mathbf{r}' - \mathbf{r}'')]. \quad (8)$$

Здесь $G''(\mathbf{k}_i, \omega')$ — антиэрмитова часть равновесной функции Грина нелинейной среды, \mathbf{k}_i — волновой вектор холостого излучения. В изотропной среде антиэрмитова часть функции Грина равновесного холостого поля в области не очень сильного поглощения, где для диэлектрической проницаемости ϵ выполняется неравенство $\text{Im} \epsilon \ll \text{Re} \epsilon$, имеет следующий вид [8]:

$$G''(k_i, \tilde{\omega}) = \frac{4\pi}{c^2 k(\tilde{\omega})} \tilde{\omega}^2 \frac{\alpha/2}{[k_i - k(\tilde{\omega})]^2 + (\alpha/2)^2}, \quad (9)$$

где α — коэффициент поглощения и $\tilde{\omega} = \omega_p - \omega_s$. В случае пренебрежимо малого поглощения на холостой частоте ($\alpha \rightarrow 0$)

$$G''(k_i, \tilde{\omega}) \propto \delta(k_i - k_i(\tilde{\omega})) \quad (10)$$

и выражение (8) переходит в обсуждавшееся ранее выражение (6), справедливое при отсутствии поглощения.

Перейдем от общей формулы (8) к угловому распределению интенсивности сигнального излучения

на фиксированной частоте ω_s . Для удобства будем считать, что векторы \mathbf{k}_p , \mathbf{k}_s , \mathbf{k}_i лежат в одной плоскости, например xy , причем \mathbf{k}_p параллелен оси y , и наблюдение углового распределения интенсивности происходит также в плоскости xy (рис. 1). Подставляя (9) в (8) и интегрируя по $|\mathbf{k}_i|$, получаем

$$R_s(\theta_s) = \int d\theta_i F_x(\theta_s, \theta_i) F_y(\theta_s, \theta_i),$$

где

$$F_x(\theta_s, \theta_i) = \iint_V dx' dx'' f(x') f^*(x'') \times \exp \left[i(x' - x'') \Delta_x(\theta_s, \theta_i) - \frac{\alpha}{2} |x' - x''| \sin \theta_i \right], \quad (11)$$

$$F_y(\theta_s, \theta_i) = \iint_V dy' dy'' f(y') f^*(y'') \times \exp \left[i(y' - y'') \Delta_y(\theta_s, \theta_i) - \frac{\alpha}{2} |y' - y''| \cos \theta_i \right],$$

$\Delta_{x,y}$ — проекции волновой расстройки на оси x и y , θ_s и θ_i — углы рассеяния сигнальной и холостой волн.

Положим, что L и a — характерные размеры неоднородностей области взаимодействия вдоль осей соответственно y и x и рассмотрим две характерные ситуации. Основное внимание обратим на поперечное (относительно волнового вектора накачки) расположение неоднородностей рассеивающего объема как имеющее непосредственное отношение к эксперименту.

а) Сильное поглощение, $\alpha L \gg 1$, $\alpha a \gg 1$.

В этом случае F_x и F_y имеют вид лоренцевых кривых (как функции аргумента θ_i при фиксированном значении θ_s), ширины которых сравнимы по величине. Каждая функция имеет максимум при таком значении θ_i , для которого соответствующая волновая расстройка $\Delta_{x,y} = 0$. Угловая форма линии сигнала также является лоренцевой,

$$R_s(\theta) = \frac{\sigma_s^2}{\theta^2 + \sigma_s^2}, \quad (12)$$

с шириной

$$\sigma_s(\tilde{\omega}) = \frac{\alpha(\tilde{\omega})}{2k_p \sin(\theta_{i0}(\tilde{\omega}))}, \quad (13)$$

здесь $\theta \equiv \theta_s - \theta_{s0}$, а θ_{s0} и θ_{i0} — углы рассеяния соответственно сигнальной и холостой волн, при которых точно выполняется условие фазового синхронизма $\Delta_{\mathbf{k}} = 0$. Выражение (12) хорошо известно

в спектроскопии параметрического рассеяния [14] и именно в таком виде используется для измерения частотной зависимости коэффициента поглощения в области верхней поляритонной ветви спектра [15]. Для этой области спектра частота холостого излучения $\tilde{\omega}$ больше частоты самого высокочастотного продольного оптического колебания кристаллической решетки, $\tilde{\omega} > \omega_{LO}^{max}$.

б) $\alpha L \gg 1$, $\alpha a \approx 1$ (поглощение достаточно велико, чтобы продольные размеры среды не играли роли, но не настолько, чтобы не учитывать размера поперечной неоднородности).

Функция $F_y(\theta_i)$ по-прежнему является лоренцевой, а $F_x(\theta_i)$ определяется точным интегрированием вдоль оси x . Для угловой формы линии при произвольной форме поперечных неоднородностей из (11) получим

$$R_s(\theta) = \iint dx' dx'' f(x') f^*(x'') \times \exp \left[ik_p(x' - x'')\theta - \frac{\alpha}{2 \sin \theta_{i0}} |x' - x''| \right]. \quad (14)$$

Следовательно, влияние поперечных неоднородностей объема взаимодействия на конечную форму линии сигнального излучения уменьшается по мере возрастания поглощения на холостой частоте. Величину $l_x = \alpha^{-1} \sin \theta_{i0} = \tilde{\alpha}_x^{-1}$ можно интерпретировать как «длину свободного пробега» поляритона в поперечном направлении.

Пусть область взаимодействия представляет собой два макроскопических объема, заданных следующим образом (см. рис. 1):

$$f(\mathbf{r}) = \chi_{eff}^{(2)} E_{0p}, \quad x \in [-(d+a)/2, -(d-a)/2] \cup [(d-a)/2, (d+a)/2], \quad y \in [0, L], \quad z \in (-\infty, \infty), \quad (15)$$

$f(\mathbf{r}) = 0$ во всем остальном пространстве.

Этот случай удобен как для теоретического анализа, так и для экспериментальной реализации, например, с помощью непрозрачного экрана с двумя щелями, помещенного перед нелинейным кристаллом. Вычисляя интеграл в (14) с использованием (15), получим

$$R_s(\theta) = 2R_s^a(\theta, \tilde{\alpha}_x) \times \{1 + \exp(-\tilde{\alpha}_x d) \cos[\Delta_x(\theta)d]\} + \Delta R_s^a. \quad (16)$$

Выражение (16) имеет простой физический смысл. Функция $R_s^a(\theta, \tilde{\alpha}_x)$ описывает угловую форму линии рассеяния в слое поперечным размером a (при одной открытой щели шириной a) и длиной L при

произвольном коэффициенте поглощения $\tilde{\alpha}_x$ и имеет вид, промежуточный между лоренцевым контуром и $\text{sinc}^2(x)$; при большом поглощении форма линии описывается лоренцевой кривой, при $\tilde{\alpha}_x \rightarrow 0$ — функцией $(\sin x/x)^2 \equiv \text{sinc}^2 x$ [8]:

$$R_s^a(\theta, \tilde{\alpha}_x) = \frac{\tilde{\alpha}_x a}{\tilde{\alpha}_x^2 + \Delta_x^2(\theta)} + \{ [\Delta_x^2(\theta) - \tilde{\alpha}_x^2] [1 - \exp(-\tilde{\alpha}_x a \cos(\Delta_x(\theta)a)) - 2\tilde{\alpha}_x a \exp(-\tilde{\alpha}_x a) \sin(\Delta_x(\theta)a)] \times [\tilde{\alpha}_x^2 + \Delta_x^2(\theta)]^{-2}. \quad (17)$$

В выражении (16) множитель в фигурных скобках содержит модуляционный член, который пропорционален $\cos[\Delta_x(\theta)d]$ и вызван интерференцией. Его амплитуда определяется экспоненциальным множителем $\exp(-\tilde{\alpha}_x d)$, зависящим от соотношения между поглощением и расстоянием между двумя щелями. Для классической интерференции в схеме Юнга видность интерференционной картины определяется соотношением между радиусом когерентности излучения и расстоянием между щелями [16]. Второе слагаемое, ΔR_s^a , имеет осциллирующий характер; оно появляется только в случае распределенного поглощения. Оценки показывают, что величина второго слагаемого (для реалистичных параметров) на два порядка меньше, чем амплитуда первого слагаемого, $R_s^a(\theta, \tilde{\alpha}_x)$, и его можно исключить из дальнейшего рассмотрения.

Таким образом, из (16) видно, что поглощение холостой волны должно влиять как на форму огибающей, так и на видность интерференционной картины. Влияние поглощения на видность интерференции второго порядка при СПР исследовалось в работе [17], но лишь для случая, когда элемент, не полностью пропускающий холостое излучение, располагался между двумя областями, излучающими бифотонное поле. Сравнение результатов этой работы и выводов настоящей приводится в следующем разделе.

4. ЭКСПЕРИМЕНТАЛЬНЫЕ РЕЗУЛЬТАТЫ И ИХ ОБСУЖДЕНИЕ

Схема экспериментальной установки изображена на рис. 2 и представляет собой традиционный СПР-спектрограф. Частотно-угловой спектр рассеянного сигнального поля анализируется по методу скрещенной дисперсии [18]: линза 6 (с фокусным расстоянием $F = 85$ мм) размещается так, чтобы ее фокус совпадал с плоскостью входной щели спектрографа ИСП-51. При этом в плоскости выходной

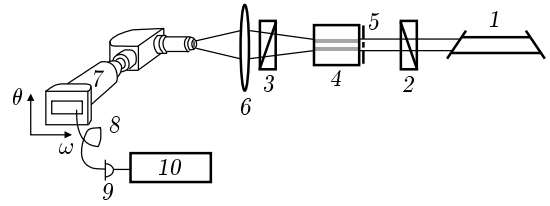


Рис. 2. Принципиальная схема экспериментальной установки: 1 — лазер Ar^+ , $\lambda = 488$ нм; 2, 3 — призмы Глана; 4 — нелинейный кристалл (LiIO_3 , $\alpha\text{-HfO}_3$); 5 — маска с двумя щелями ($a = 85$ мкм, $d = 195$ мкм); 6 — объектив; 7 — спектрограф ИСП-51; 8 — световод; 9 — детектор; 10 — счетчик

щели спектрографа формируется двумерное распределение интенсивности в координатах угол—длина волны ($\theta_s - \lambda_s$), которое регистрировалось фотографической либо фотоэлектрической методикой. Длина волны сигнального излучения выбиралась в диапазоне $\lambda_s = 600\text{--}700$ нм, чтобы длина волны сопряженного холостого излучения попадала в область $\lambda_i = 5\text{--}2$ мкм ($\nu_i = 2000\text{--}5000$ cm^{-1}). Таким образом, частота холостого излучения близка к частотам собственных колебаний кристаллической решетки, т. е. реализуется случай рассеяния на поляритонах.

Две макроскопические области взаимодействия формируются с помощью непрозрачного экрана с двумя щелями, установленного перед нелинейным кристаллом. Использовались кристаллы йодата лития (LiIO_3) и йодноватой кислоты ($\alpha\text{-HfO}_3$). Таким образом, если кристалл расположен в ближней дифракционной зоне, то накачка внутри него имеет пространственное распределение, определяемое параметрами щелей. Размер каждой щели $a = 85$ мкм, расстояние между центрами щелей $d = 195$ мкм. В качестве накачки использовался Ar^+ -лазер, с длиной волны $\lambda_p = 514.5$ нм, работающий в режиме одной поперечной моды, и мощностью до 4 Вт. Радиус поперечной когерентности накачки заведомо превышал расстояние между щелями, так что параметрическое рассеяние когерентно возбуждалось в двух параллельных слоях (см. рис. 1).

Нужно отметить, что для наблюдения неклассической интерференции необходимо удовлетворить критерию, связывающему угловые и пространственные параметры эксперимента [12]. Для интерференции второго порядка по полю, о которой идет речь, этот критерий при отсутствии поглощения имеет вид

$$L \text{tg} \theta_{i0} \gg d. \quad (18)$$

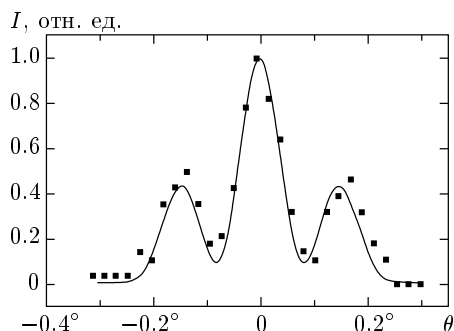


Рис. 3. Угловое распределение интенсивности сигнала на выходе нелинейного интерферометра Юнга. Рассеяние происходит в кристалле йодата лития (LiIO₃), λ_s = 588 нм, θ = θ_s - θ_{0s}

Физически условие (18) означает, что холостое излучение пересекает поперечные неоднородности объема рассеяния, не выходя за его пределы в продольном направлении. Благодаря этому в обеих излучающих областях СПР происходит с участием одних и тех же холостых мод¹⁾. В нашем эксперименте выбор кристаллов, размеров щелей и углов рассеяния определялся исходя из (18).

Экспериментально исследовались два случая. В первом (слабое поглощение) поперечная «длина свободного пробега» поляритонов $l_x \sim \tilde{\alpha}_x^{-1}$ превышает размеры поперечных неоднородностей объема рассеяния. Во втором длина свободного пробега была порядка или меньше расстояния между щелями: $l_x \lesssim d - a$.

1) Слабое поглощение ($\alpha < 10 \text{ см}^{-1}$, $L = 18 \text{ мм}$).

В качестве нелинейной среды использовался кристалл LiIO₃. Интерференция проявляется в виде четкого углового расщепления перестроечных кривых в диапазоне $1800 < \nu_i < 3000 \text{ см}^{-1}$ (верхнее значение частоты ограничивалось условием пространственного синхронизма использовавшегося образца). На рис. 3 изображена угловая форма линии на длине волны сигнала 588 нм (длина волны сопряженного поляритона $\lambda_i = 2.869 \text{ мкм}$, $\nu_i = 3485 \text{ см}^{-1}$), полученная с помощью электронного сканирования²⁾ спектра. Сплошная линия пред-

ставляет собой численную аппроксимацию, проведенную на основе (16). Коэффициент поглощения оценивается как $\alpha < 0.3 \text{ см}^{-1}$, что не противоречит данным, приведенным в [19]: $\alpha < 2 \text{ см}^{-1}$. При увеличении холостой частоты значение коэффициента поглощения в пределах ошибки измерения остается постоянным.

2) Не слишком сильное поглощение ($10 < \alpha < 150 \text{ см}^{-1}$, $L = 26 \text{ мм}$).

В данном случае нелинейной средой служил кристалл α-НlO₃. Хорошо известно, что коэффициент поглощения поляритонной волны увеличивается при приближении ее частоты к частоте собственных колебаний кристаллической решетки, где $\text{Im} \varepsilon(\omega)$ испытывает значительный рост. Мы использовали этот факт, выбрав область изменения частоты поляритона $3300 < \nu_i < 5000 \text{ см}^{-1}$, которая лежит в окрестности валентного колебания ОН-группы, $\nu_i^{\text{OH}} = 2950 \text{ см}^{-1}$, кристалла α-НlO₃. Использовалась геометрия рассеяния $Y(X, Z)Y + \Delta X^3$. Обозначения осей (рис. 1) совпадают с кристаллографическими; при этом для кристалла α-НlO₃ выбрана та система обозначений, при которой для видимого диапазона показатели преломления удовлетворяют неравенству $n_x < n_y < n_z$. При выбранном изменении частоты поляритона угол между его волновым вектором и осью y изменялся в диапазоне $30^\circ < \theta_i < 45^\circ$. На рис. 4 показаны три характерные угловые формы линии, зарегистрированные для различных длин волн сигнала излучения. Видно, что при приближении частоты холостого излучения к резонансу с собственным колебанием решетки видность интерференционной картины уменьшается. Сплошные кривые представляют собой теоретический расчет согласно (16), (17). Для определения дисперсии коэффициента поглощения на холостых частотах была проведена серия подобных измерений на различных длинах волн. В каждой из них с помощью численного анализа определялся коэффициент поглощения α. Результаты изображены на рис. 5. Сплошная линия на этом рисунке представляет дисперсию коэффициента поглощения для выбранной геометрии рассеяния, рассчитанную на основе осцилляторной модели. Параметры колебаний ОН-связи взяты из [20]. Вдали от резонанса поглощение соответствует «фоновому» значению ($40\text{--}50 \text{ см}^{-1}$), практически не зависящему от геомет-

¹⁾ В работе [17] выполнение критерия (18) интерпретировалось как эффект индуцированной когерентности.

²⁾ Детектор (лавинный фотодиод EG&G, работающий в режиме счета фотонов) перемещался с помощью шагового двигателя в фокальной плоскости спектрографа. Усиленные импульсы с выхода детектора подавались на дискриминатор, а затем на счетчик. Управление шаговым двигателем и обработка сигналов со счетчика осуществлялись с помощью компьютера.

³⁾ Используется стандартная в спектроскопии комбинационного рассеяния запись: внешние индексы задают направление падающего и рассеянного света, внутренние — соответствующую поляризацию

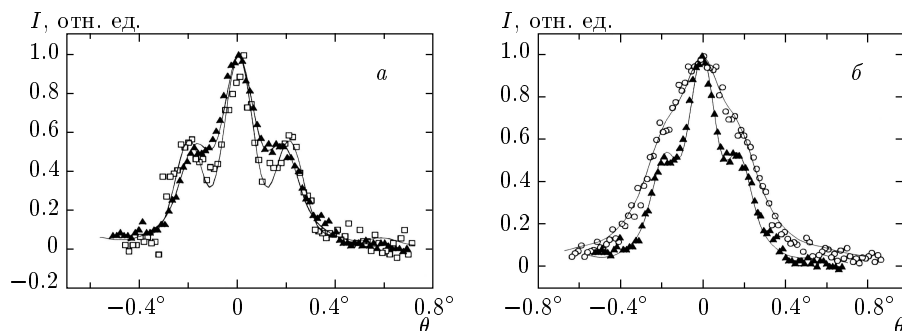


Рис. 4. Угловые спектры рассеяния в нелинейном интерферометре Юнга, полученные с использованием кристалла йодноватой кислоты ($\alpha\text{-HfO}_3$) при различных частотах холостого излучения в окрестности резонанса с колебанием $\nu = 2950 \text{ см}^{-1}$: \square — $\nu_i = 4569 \text{ см}^{-1}$, $\lambda_s = 673 \text{ нм}$ (a); \blacktriangle — $\nu_i = 4206 \text{ см}^{-1}$, $\lambda_s = 657 \text{ нм}$ (a, б); \circ — $\nu_i = 3357 \text{ см}^{-1}$, $\lambda_s = 622 \text{ нм}$ (б)

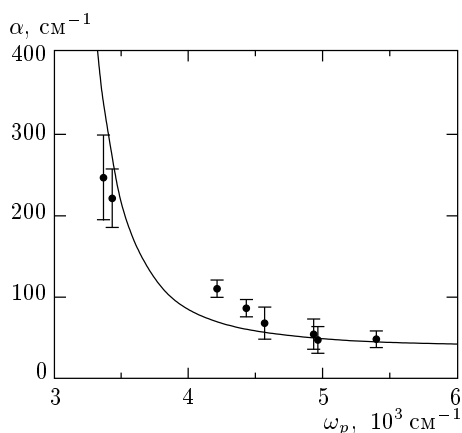


Рис. 5. Зависимость поглощения поляритонной волны от частоты поляритона. Экспериментальные данные получены из аппроксимации угловых спектров (см. рис. 4). Сплошная линия — результат расчета поглощения в $\alpha\text{-HfO}_3$

рии рассеяния [21].

Рисунок 5 демонстрирует соответствие результатов эксперимента и расчета, что в целом подтверждает правильность использованного подхода. На рис. 6 показан фрагмент частотно-углового спектра параметрического рассеяния в окрестности колебания ОН-группы.

Тот факт, что поглощение на холостой частоте влияет на видность интерференции второго порядка при СПР, был установлен в [17] для ситуации, когда поглощение сосредоточено между рассеивающими областями. Два нелинейных кристалла располагались таким образом, что холостое излучение из первого кристалла проходило через второй, причем юстировкой кристаллов обеспечивалось полное сов-

Рис. 6. Фотография частотно-углового спектра рассеяния на верхней поляритонной ветви в кристалле $\alpha\text{-HfO}_3$ в области валентного колебания ОН-группы с резонансной частотой $\nu_{\text{ОН}} = 2950 \text{ см}^{-1}$. Перед кристаллом в пучок накачки ($\lambda_p = 514.5 \text{ нм}$) помещен непрозрачный экран с двумя щелями (ширина каждой щели $a = 85 \text{ мкм}$, расстояние между центрами щелей $d = 195 \text{ мкм}$)

мещение холостых мод. Таким образом достигалось выполнение критерия (18). Параметрическое рассеяние возбуждалось общей когерентной накачкой. Между кристаллами в холостую моду помещался светоделитель с заданным коэффициентом пропускания T . Исследовалась интенсивность сопряженного сигнального излучения из обоих кристаллов, которое смешивалось на делителе после кристаллов, как функция пропускания светоделителя на холо-

стой частоте. Было обнаружено, что видность картины интерференции зависит линейно от коэффициента пропускания.

Следуя логике раздела 2, можно сказать, что в работе [17] осуществлялось изменение пропагаторов холостого и сигнального поля при параметрическом рассеянии. Бифотонное поле «приготавливалось» в обоих кристаллах и затем подвергалось определенному воздействию (поглотитель в общей холостой моде). В настоящей работе воздействие происходило как в самом процессе «приготовления» бифотонного поля, так и при его распространении от одной рассеивающей области к другой (влияние поляритонного поглощения). Другими словами, было представлено *распределенное* поглощение, в то время как в [17] поглощение вносилось локально в свободное поле холостой волны, т. е. вне связи с процессом рождения бифотонов. Таким образом, подход, развитый в разд. 3, является более общим; он включает в себя как предельный случай выводы, сделанные в [17]. Экспоненциальная зависимость видности картины интерференции от поляритонного поглощения (см. (16)) согласуется с линейной зависимостью видности от коэффициента пропускания T , если учесть, что для поглощающего слоя

$$T \equiv \frac{I}{I_0} = \exp(-\tilde{\alpha}_x d).$$

Вместе с тем, согласно (17), огибающая формы линии рассеяния при наличии интерференции также несет информацию о поглощении, что служит основой метода спектроскопии рассеяния на поляритонах [7, 8].

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе проведен анализ влияния распределенного поглощения на частотах холостых мод на интерференцию второго порядка по полю при спонтанном параметрическом рассеянии. Получены выражения (16), (17), описывающие форму линии рассеяния на поляритонах для произвольной формы рассеивающего объема. Таким образом, при анализе дисперсии коэффициента поглощения нелинейных кристаллов в ИК-диапазоне можно пользоваться одной из двух методик.

1. Стандартная спектроскопия рассеяния на поляритонах. Размеры образца выбираются так, чтобы обеспечить максимальную интенсивность рассеяния, причем $a_0\alpha \gg 1$, где a_0 — характерный размер образца. Анализируется форма линии рассеяния.

2. «Интерферометрия поляритонов». Размер поперечной неоднородности a выбирается так, чтобы $a\alpha \approx 1$. Например, форма рассеивающей области задается непрозрачным экраном с двумя щелями, устанавливаемым перед образцом в пучок накачки. Анализируются как огибающая формы линии, так и видность интерференционной модуляции. Заметим, что эта методика пригодна также для исследования закона дисперсии в веществах, не обладающих квадратичной восприимчивостью [9, 17].

Отметим, что исследовать влияние поглощения и отражения от границ рассеивающего объема на форму линии параметрического рассеяния можно с помощью метода матриц рассеяния [22]. Однако использование этого метода для анализа формы линии параметрического рассеяния в случае области рассеяния произвольной формы крайне затруднительно.

В заключение хотелось бы обратить внимание на методическую сторону рассмотренной задачи. Несмотря на то что с момента открытия спонтанного параметрического рассеяния света прошло более тридцати лет, в литературе практически не обсуждались вопросы, связанные с объединением двух исторически выделившихся ветвей этого эффекта — «квантово-оптической» и «спектроскопической». Мы надеемся, что настоящая работа хотя бы отчасти восполнит этот пробел.

Работа выполнена в рамках программы «Интеграция», раздел «Фундаментальная оптика и спектроскопия» при поддержке Российского фонда фундаментальных исследований (проекты 99-02-16419 и 00-15-96541), а также при поддержке программы «Фундаментальная метрология». Авторы глубоко признательны С. П. Кулику за многочисленные плодотворные дискуссии.

ЛИТЕРАТУРА

1. Д. Н. Клышко, Письма в ЖЭТФ **6**, 490 (1967).
2. L. Mandel, Rev. Mod. Phys. **71**, S274 (1999).
3. Д. Н. Клышко, УФН **164**, 1188 (1994); **166**, 613 (1996); A. Zeilinger, Rev. Mod. Phys. **71**, S288 (1999).
4. D. S. Naik, C. G. Peterson, A. G. White et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 4733 (2000); W. Tittel, J. Brendel, H. Zbinden, and N. Gisin, Phys. Rev. Lett. **84**, 4737 (2000); T. Jennewein, C. Simon, G. Weihs et al., Phys. Rev. Lett. **84**, 4729 (2000).
5. C. H. Bennet, G. Brassard, C. Crepeau et al., Phys. Rev. Lett. **70**, 1895 (1993); D. Bouwmeester,

- J.-W. Pan, M. Eibl et al., *Nature* **390**, 575 (1997); D. Boshi, S. Branca, F. De Martini et al., *Phys. Rev. Lett.* **80**, 1121 (1998); A. Furusawa, J. L. Sorensen, S. L. Braunstein et al., *Science* **282**, 706 (1998).
6. О. А. Доильницына, Ю. Н. Поливанов, *Труды ИОФАН* **2**, 11 (1986).
7. Ю. Н. Поливанов, *УФН* **126**, 185 (1978).
8. Д. Н. Клышко, *Фотонь и нелинейная оптика*, Наука, Москва (1980).
9. А. В. Бурлаков, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, М. В. Чехова, *ЖЭТФ* **113**, 1991 (1998); Д. Ю. Корыстов, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, *КЭ* **30**, 922 (2000).
10. A. V. Belinsky and D. N. Klyshko, *Laser Phys.* **4**, 663 (1994).
11. А. Л. Александровский, Г. Х. Китаева, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, *ЖЭТФ* **106**, 993 (1986).
12. А. В. Бурлаков, Д. Н. Клышко, С. П. Кулик и др., *Письма в ЖЭТФ* **65**, 20 (1997); E. J. S. Fonseca, C. H. Monken, and S. Padua, *Phys. Rev. Lett.* **82**, 2868 (1999).
13. A. V. Burlakov, M. V. Chekhova, D. N. Klyshko et al., *Phys. Rev. A* **56**, 3214 (1997).
14. Д. Н. Клышко, *ЖЭТФ* **55**, 1006 (1968).
15. Б. Н. Маврин, Х. Е. Стерин, в сб. *Современные проблемы спектроскопии комбинационного рассеяния света*, Наука, Москва (1978), с. 303.
16. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, Москва (1970), с. 547.
17. L. J. Wang, X. Y. Zou, and L. Mandel, *Phys. Rev. A* **44**, 4614 (1991).
18. Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин, Б. Ф. Полковников, *Письма в ЖЭТФ* **11**, 11 (1970).
19. К. И. Авдиенко, С. В. Богданов, С. М. Архипов, *Йодат лития. Выращивание кристаллов, их свойства и применение*, Наука, Новосибирск (1980), с. 144.
20. Т. В. Лаптинская, Дисс. на соискание степени канд. физ.-мат. наук, МГУ, Москва (1986).
21. Т. В. Лаптинская, А. Г. Михайловский, А. Н. Пенин, *Вестник МГУ, серия 3*, **26**, 62 (1985).
22. Г. Х. Китаева, Д. Н. Клышко, И. В. Таубин, *КЭ* **9**, 560 (1982).