

“Крюки” Рождественского при двухфотонном параметрическом рассеянии света

Д. Ю. Корыстов, С. П. Кулик, А. Н. Пенин

Физический факультет МГУ им. М. В. Ломоносова, 119899 Москва, Россия

Поступила в редакцию 8 февраля 2001 г.

Наблюдалась интерференция спонтанного параметрического излучения испущенного из двух нелинейных кристаллов, разделенных макроскопическим слоем линейного вещества и возбуждаемых общим пучком накачки. При наличии сильной дисперсии диэлектрической проницаемости слоя в частотно-угловых спектрах возникают особенности, аналогичные “крюкам” Д. С. Рождественского. Длина волны “крюка” соответствует компенсации дисперсии групповых скоростей в нелинейных кристаллах и слое.

PACS: 03.65.Bz, 42.50.Dv

К настоящему времени известен целый ряд экспериментальных процедур, позволяющих наблюдать интерференцию двухфотонного (бифотонного) излучения либо во втором, либо в четвертом порядках по полю [1]. Такая интерференция лежит в основе многих эффектов квантовой оптики [2]. Отсутствие адекватных классических аналогов бифотонным состояниям электромагнитного поля ведет к чисто квантовой интерпретации двухфотонной интерференции (ДИ). Действительно, некоторые регистрируемые в эксперименте величины принимают значения, в принципе недостижимые в соответствующих классических опытах. Вместе с тем, при качественном сравнении классических и квантовых интерференционных оптических эффектов обнаруживается много общих закономерностей. Существующие аналогии служат иногда единственными “ниточками”, связывающими квантовый и классический мир на уровне интерпретации результатов экспериментов [3].

В работе обсуждается эффект искажения интерференционной картины на частотах, близких к полюсе поглощения в слое вещества, помещенного между двумя кристаллами, спонтанно излучающими пары фотонов. Такие искажения вызваны явлением, впервые использованным Рождественским в 1912 г. в методе “крюков”. Этот изящный метод в дальнейшем применялся при точном количественном исследовании аномальной дисперсии в парах металлов [4].

Источником двухфотонного излучения служит спонтанное параметрическое рассеяние (СПР) света в кристаллах с квадратичной восприимчивостью [5]. СПР можно интерпретировать как результат распада фотонов накачки с частотой ω_p на пары коррелированных фотонов с частотами ω_s и ω_i по схеме

$\hbar\omega_p \rightarrow \hbar\omega_s + \hbar\omega_i$ за счет квадратичной восприимчивости $\chi^{(2)}$ кристалла. В случае однородного кристалла и плоской монохроматической волны накачки спонтанное излучение пар фотонов происходит преимущественно в направлениях, определяемых условиями стационарности $\omega_s + \omega_i - \omega_p = 0$ и пространственной однородности $\Delta\mathbf{k} \equiv \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i - \mathbf{k}_p$ (здесь \mathbf{k}_j , – волновые вектора внутри кристалла в сигнальной (s), холостой (i) модах и моде накачки (p) $j = s, i, p$). Эти равенства, называемые условиями синхронизма, вместе с законом дисперсии кристалла $\omega(\mathbf{k})$ обеспечивают связь частот и углов рассеянного излучения $\theta_s = \theta_s(\omega_s)$. Наличие пространственной неоднородности рассеивающего объема приводит к существенному изменению частотно-углового спектра СПР.

Пусть излучение бифотонов происходит из двух одинаковых плоских нелинейных кристаллов, разделенных слоем прозрачного вещества (рис.1). Тогда форма линии рассеяния, т.е. нормированная интенсивность, как функция угла рассеяния и частоты, определяется из условия:

$$g_0(\theta_s, \omega_s) = \left[\frac{\sin(\delta/2)}{\delta/2} \cos\left(\frac{\delta + \delta'}{2}\right) \right]^2, \quad (1)$$

где δ и δ' – волновые расстройки в нелинейном кристалле и слое, соответственно:

$$\begin{aligned} \delta(\omega_s, \theta_s) &= \Delta L = (k_p - k_s - k_i)L, \\ \delta'(\omega_s, \theta_s) &= \Delta' L' = (k'_p - k'_s - k'_i)L', \end{aligned} \quad (2)$$

θ_s – угол внутри кристалла, а k_j, k'_j – проекции волновых векторов на направление, перпендикулярное слоям. Выражение (1) получено без учета поглощения в

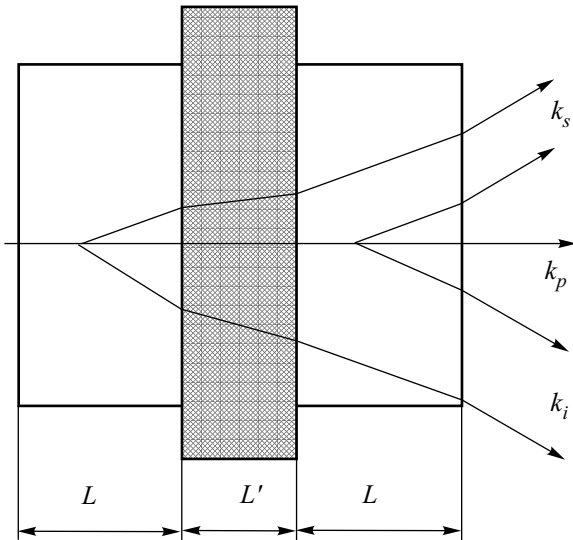


Рис.1. Схема нелинейного интерферометра. Два нелинейно-оптических кристалла толщиной L , разделенные слоем оптически линейного вещества толщиной L' , помещены в общий пучок накачки

промежуточном слое. Функция $g(\theta_s, \omega_s)$ пропорциональна квадрату модуля амплитуды бифотона

$$|F_{k_s k_i}|^2 = g(\theta_s, \omega_s) \left\{ \frac{2\pi}{c} E_p m L \chi^{(2)} \right\}^2 \omega_s \omega_i,$$

определяющей вклад двухфотонных фоковских состояний в волновую функцию поля СПР при заданном поле накачки E_p [6] ($m = 2$ – число нелинейных кристаллов). Соотношение (1) описывает эффект ДИ во втором порядке по полю [7]: набег фаз во всех трех модах в промежуточном слое L' модулируют форму линии по закону $\cos^2[(\delta + \delta')/2]$. Согласно (1) на некоторых частотах и углах спонтанное излучение полностью подавляется. Поскольку дисперсионные свойства промежуточного слоя влияют только на модуляционный множитель, ДИ можно использовать для определения закона дисперсии вещества, помещенного между кристаллами [8, 9]. Особенностью такой спектроскопии является то, что интенсивность рассеяния обеспечивается нелинейным процессом СПР, в то время как интерференционная модуляция вызывается набегом фаз в слое, где в общем случае $\chi^{(2)} = 0$, т.е. вещество может быть линейным.

Выражая явно волновые расстройки δ и δ' через частоты и углы [8] можно найти условие, при котором наклон интерференционных максимумов $(\delta + \delta' =$

$= 2\pi m)$ равен нулю, т.е. $\partial\vartheta_s/\partial\omega_s = 0$, где ϑ – внешний (наблюдаемый) угол рассеяния:

$$\frac{\partial\vartheta_s}{\partial\omega_s} = \frac{(\tau_s - \tau_i) + (\tau'_s - \tau'_i)}{\vartheta_s \left(\frac{\omega_s}{c}\right)^2 \left\{ L \left(\frac{1}{k_s} + \frac{1}{k_i}\right) + L' \left(\frac{1}{k'_s} + \frac{1}{k'_i}\right) \right\}} = 0. \quad (3)$$

Условие (3) получено в приближении малых углов рассеяния, когда $\vartheta_s \ll 1$ и без учета анизотропии групповых и фазовых скоростей в нелинейных кристаллах. Для неколлинеарного режима рассеяния ($\vartheta_s \neq 0$) производная $\partial\vartheta_s/\partial\omega_s$ обращается в нуль, если

$$(\tau_s - \tau_i) + (\tau'_s - \tau'_i) = 0. \quad (4)$$

Здесь $\tau_s = L/u_s$, $\tau_i = L/u_i$, $\tau'_s = L'/u'_s$, $\tau'_i = L'/u'_i$ – имеют смысл времен пролета сигнальных и холостых фотонов через нелинейный кристалл (τ_q) и промежуточный слой (τ'_q), $u_q = d\omega_q/dk_q$ ($u'_q = d\omega_q/dk'_q$) – соответствующие групповые скорости, $q = s, i$.

При регистрации СПР по методу скрещенных дисперсий [10] на выходе спектрального прибора образуется двумерное распределение интенсивности рассеянного излучения в координатах $\{\omega_s, \vartheta_s\}$ (1). В этих координатах интерференционная картина имеет вид чередующихся полос, наклон которых определяется дисперсией нелинейных кристаллов и промежуточного слоя. Когда наклон полос становится нулевым ($\partial\vartheta_s/\partial\omega_s = 0$) – интерференционный максимум образует “крюк”. На соответствующих частотах сигнальных (ω_s) и холостых ($\omega_i = \omega_p - \omega_s$) волн происходит компенсация дисперсии групповых скоростей в нелинейных кристаллах и промежуточном слое – разности времен пролета сигнальных и холостых фотонов через кристалл и слой совпадают по величине и противоположны по знаку: $\Delta\tau = -\Delta\tau'$. Увеличение наклона происходит в диапазоне сильной дисперсии вещества – вблизи полос поглощения. Если нелинейные кристаллы прозрачны в широком спектральном диапазоне на всех трех частотах, а слой прозрачен в диапазоне сигнальных волн и накачки, но имеет резонансы диэлектрической проницаемости на холостых частотах (в ИК области), то интерференционная картина будет отображать изменение дисперсии холостых волн в промежуточном слое. Специфика ДИ проявляется в том, что поглощение в слое между кристаллами, возрастающее по мере приближения частоты к резонансу, не приводит к уменьшению интегральной интенсивности рассеянного излучения. В этом случае падает лишь видимость интерференции и в пределе, когда коэффициент поглощения оказывается порядка обратной толщины слоя $\alpha'_i \approx 1/L'$, видимость стремится к нулю [11]. Выражение для формы

линии рассеяния при учете поглощения на холостых частотах принимает вид:

$$g_1(\theta_s, \omega_s) = \text{sinc}^2\left(\frac{\delta}{2}\right) \left(\frac{1 + e^{-\alpha_i L'} \cos(\delta + \delta')}{2}\right). \quad (5)$$

Здесь под видностью, как следует из (5), понимается функция, равная $e^{-\alpha_i L'}$. Единица во втором множителе (5) учитывает спонтанную природу эффекта ДИ.

Образующиеся при ДИ частотно-угловые спектры, их особенности, аналогичны по своей физической природе интерферограммам, полученным Рождественским. В его методе “крюков” регистрация двумерных интерференционных спектров также производится по методу скрещенных дисперсий, когда на входной щели спектрографа проецируется картина, образующаяся на выходе интерферометра. В одно из плеч интерферометра помещается исследуемое вещество, а в другое – стеклянные пластины разной толщины. “Так как в исследуемом веществе вблизи полосы поглощения дисперсия меняется очень сильно, то найдется такая длина волны, для которой действие исследуемого вещества будет точно скомпенсировано действием стеклянной пластинки, так что в этом месте наклон интерференционной кривой пройдет через нуль; слева от этого значения длины волны кривые опускаются, а справа – поднимаются (или наоборот), образуя “крюк”, положение которого в шкале длин волн можно точно измерить” [12]. Конечно, в методе Рождественского речь идет о линейном эффекте – компенсации скоростей распространения света в разных веществах на одной частоте, при широкополосном освещении интерферометра. Условие на частоту, отвечающей вершине “крюка” можно выразить в терминах групповых и фазовых задержек в исследуемом веществе и пластине:

$$(\tau'_{gr} - \tau_{gr}) + (\tau'_{vac} - \tau_{vac}) = 0. \quad (6)$$

Здесь $\tau_{gr} = L(d\omega/dk)^{-1}$, $\tau_{vac} = L/c$, $\tau'_{vac} = L'/c$, $\tau'_{gr} = L'(d\omega/dk')^{-1}$ – групповые задержки в исследуемом веществе (длиной L) и пластинке (длиной L'). Как и в (3) использовано приближение малых углов $\theta_m \ll 1$, m – порядок интерференции. Таким образом, для появления “крюка” в методе Рождественского необходимо, чтобы разность групповых задержек в веществе и пластинке $\tau'_{gr} - \tau_{gr}$ совпадало по величине и было противоположно по знаку разности групповых (фазовых) задержек в вакууме $\tau'_{vac} - \tau_{vac}$.

Сравнение выражений (4) и (6) показывает, что в обоих случаях для наблюдения “крюков”

необходима компенсация дисперсии исследуемого вещества. При ДИ компенсируются разности времен пролета сигнальных и холостых фотонов через нелинейный кристалл и промежуточный слой. В методе Рождественского дисперсия вещества проявляется как различие групповых задержек света в исследуемом и опорном веществах относительно вакуумных. Отметим важную особенность двухфотонной интерферометрии: несмотря на то, что регистрация производится в видимом диапазоне, вклад в интерференционную картину определяется групповой задержкой на сопряженной частоте, лежащей в ИК области спектра.

В эксперименте СПР возбуждалось в двух тонких ($L = 440$ мкм) кристаллах ниобата лития, расположенных последовательно в общем пучке аргонового лазера. Эти кристаллы прозрачны в широком диапазоне (0.4–5 мкм); их спектры параметрического рассеяния хорошо изучены. Зазор между кристаллами заполнялся слоем вазелинового масла. Толщина слоя менялась в пределах $1 < L' < 50$ мкм. Масло имеет уединенную полосу поглощения на частоте 2950 см^{-1} с шириной 95 см^{-1} . Фотография фрагмента частотно-углового спектра ДИ в системе кристалл – масло – кристалл приведена на рис.2а. Для сравнения на рис.2б приведен спектр СПР одного кристалла ниобата лития ($L = 440$ мкм), т.е. в отсутствие ДИ. В диапазоне 2950 см^{-1} (сигнальная длина волны $\lambda_s = 5700 \text{ \AA}$) отчетливо видно нарушение монотонного хода порядков ДИ, вызванное наличием резонанса. В пределах ширины линии поглощения видность интерференционной картины близка к нулю. В этой частотной области спонтанное излучение из двух кристаллов происходит независимо, поскольку холостые фотоны поглощаются в зазоре. Резкое изменение наклона интерференционных максимумов проявляется в непосредственной близости к резонансу. Именно здесь показатель преломления масла $n'(\omega_i)$ сильно зависит от частоты. Для некоторых частот ($\omega_i \approx 3105 \text{ см}^{-1}$, $\omega_i \approx 2805 \text{ см}^{-1}$) наклон порядков обращается в нуль – в спектре наблюдаются “крюки” (показаны линиями): разности времен пробега сигнальных и холостых фотонов через ниобат лития и вазелиновое масло совпадают. Меняя толщину зазора между кристаллами L' , согласно (4), можно сдвигать положение “крюков” по оси частот, также как это происходит и в методе Рождественского. Заметим, что нулевой наклон интерференционных порядков может наблюдаться и вдали от резонанса – при слабом изменении дисперсии вещества компенсация

Рис.2. Частотно-угловые спектры СПР: (а) – два кристалла LiNbO₃ ($L = 440\mu$) разделены слоем ($L' = 50\mu$) вазелинового масла; “крюки” отмечены линиями, параллельными угловой оси; (б) – один кристалл LiNbO₃

возможна, просто “крюки” оказываются сильно растянуты по частоте.

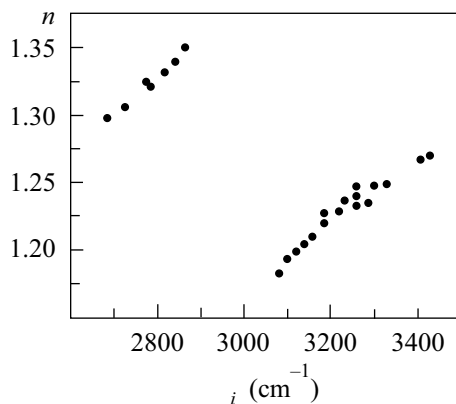


Рис.3. Измеренная по спектрам ДИ частотная зависимость показателя преломления вазелинового масла в окрестности полосы $\omega_0 = 2950\text{ см}^{-1}$

Из спектров ДИ была рассчитана зависимость $n'(\omega_i)$ для вазелинового масла. Используя данные по дисперсии $n(\omega)$ в ниобате лития [13] для частот $\omega_{i1} = 3105\text{ см}^{-1}$ ($\lambda_{s1} = 5752\text{ \AA}$), $\omega_{i2} = 2805\text{ см}^{-1}$ ($\lambda_{s2} = 5654\text{ \AA}$), на которых наблюдаются “крюки” (см. рис.2а), из (4) были определены разности групповых задержек в масле. Они оказались: $\tau'_{s1} - \tau'_{i1} = 330\text{ фс}$ и, соответственно $\tau'_{s2} - \tau'_{i2} = 312\text{ фс}$. Измерив по методу призмы дисперсию масла в видимом

диапазоне, из (5) удалось найти групповые скорости по разные стороны от резонансной частоты $\omega_0 = 2950\text{ см}^{-1}$: $u'_1(\omega_{i1}) \approx u'_2(\omega_{i2}) = (8.3 \pm 0.5)10^9\text{ см/с}$. Эти данные согласуются в пределах ошибки измерения с результатами, полученными при оценке u' из измеренной зависимости $n'(\omega_i)$ (рис.3).

В заключение обратимся к рис.4, где приводится наглядное сравнение двух методик. На рис.4(а,б) показаны схемы линейного и нелинейного интерферометров [14]. Аналогами исследуемого вещества (длиной L') служит промежуточный слой (L'), компенсационных пластинок (длиной L) – нелинейные кристаллы (L). Соответствующие задержки показаны затененными прямоугольниками. На рис.4 (с,д) изображены частотно-угловые спектры ДИ и заимствованные из [4] интерферограммы Рождественского. Для наглядности приводится лишь вид модуляционной компоненты ДИ $\cos^2[(\delta + \delta')/2]$, без учета огибающей $\sin^2(\delta L/2)$ (показана пунктиром). Качественное сходство обеих картин подтверждает адекватность обсуждаемых аналогий. Подчеркнем также, что механизм образования частотно-угловых спектров ДИ около полос поглощения промежуточного вещества имеет много общего с формированием спектров рассеяния на поляритонах, наблюдающихся в кристаллах без центра инверсии [15].

Авторы крайне признательны А. Н. Ноздрякову и С. В. Иванченко за помощь в получении спектров ИК поглощения. Работа выполнена при поддержке гран-

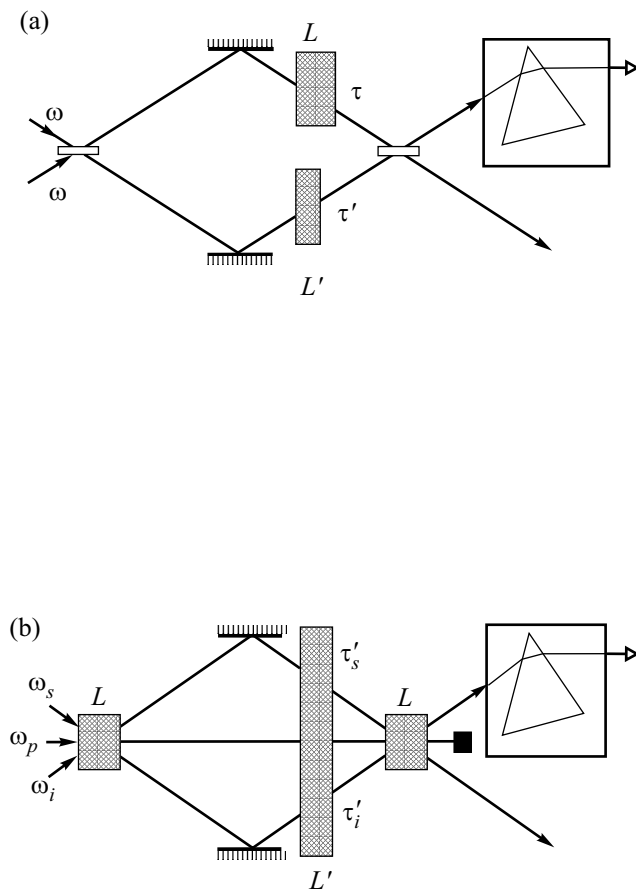


Рис.4. Качественное сравнение “метода крюков” (а,с) и двухфотонной интерферометрии (b,d) Схемы соответствующих интерферометров (а, b); наблюдаемые интерферограммы (с,d). (с) – взята из работы [4], (d) – расчет модуляционной функции ДИ, когда $L = 440\mu$, $L' = 50\mu$. Пунктиром показан ход огибающей $\sin^2(\delta/2)$, ограничивающий наблюдаемый частотно-угловой спектр ДИ

тов Российского фонда фундаментальных исследований # 99-02-16418, 99-02-16419 и 00- 15-96541.

1. A. V. Burlakov, M. V. Chekhova, D. N. Klyshko et al., *Phys. Rev.* **A56**, 3214 (1997).
2. L. Mandel, *Rev. Mod. Phys.* **71**, S274 (1999).
3. Д. Н. Клышко, *УФН* **164**, 1187 (1994).
4. Д. С. Рождественский, *Работы по аномальной дисперсии в парах металлов*, Изд-во АН СССР, Москва, 1951.
5. Д. Н. Клышко, *Фотоны и нелинейная оптика*, Наука, Москва, 1980.
6. A. V. Belinsky and D. N. Klyshko, *Laser Phys.* **2**, 112 (1992).
7. Д. Н. Клышко, *ЖЭТФ* **104**, 2676 (1993).
8. Д. Ю. Корыстов, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, *Квантовая электроника* **30**, 922 (2000).
9. А. В. Бурлаков, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, М. В. Чехова, *ЖЭТФ* **113**, 1991 (1998).
10. Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин, Б. Ф. Полковников, *Письма в ЖЭТФ* **11**, 11 (1970).
11. А. В. Бурлаков, Ю. Б. Мамаева, А. Н. Пенин, М. В. Чехова, *ЖЭТФ*, в печати.
12. Г. С. Ландсберг, *Оптика*, Наука, Москва, 1976.
13. Г. Х. Китаева, К. А. Кузнецов, И. И. Наумова, А. Н. Пенин, *Квантовая электроника* **30**, 726 (2000).
14. В работе [1] было показано, что схемы, показанные на рис.1 и 4b физически эквивалентны.
15. Ю. Н. Поливанов, *УФН* **126**, 185 (1978).