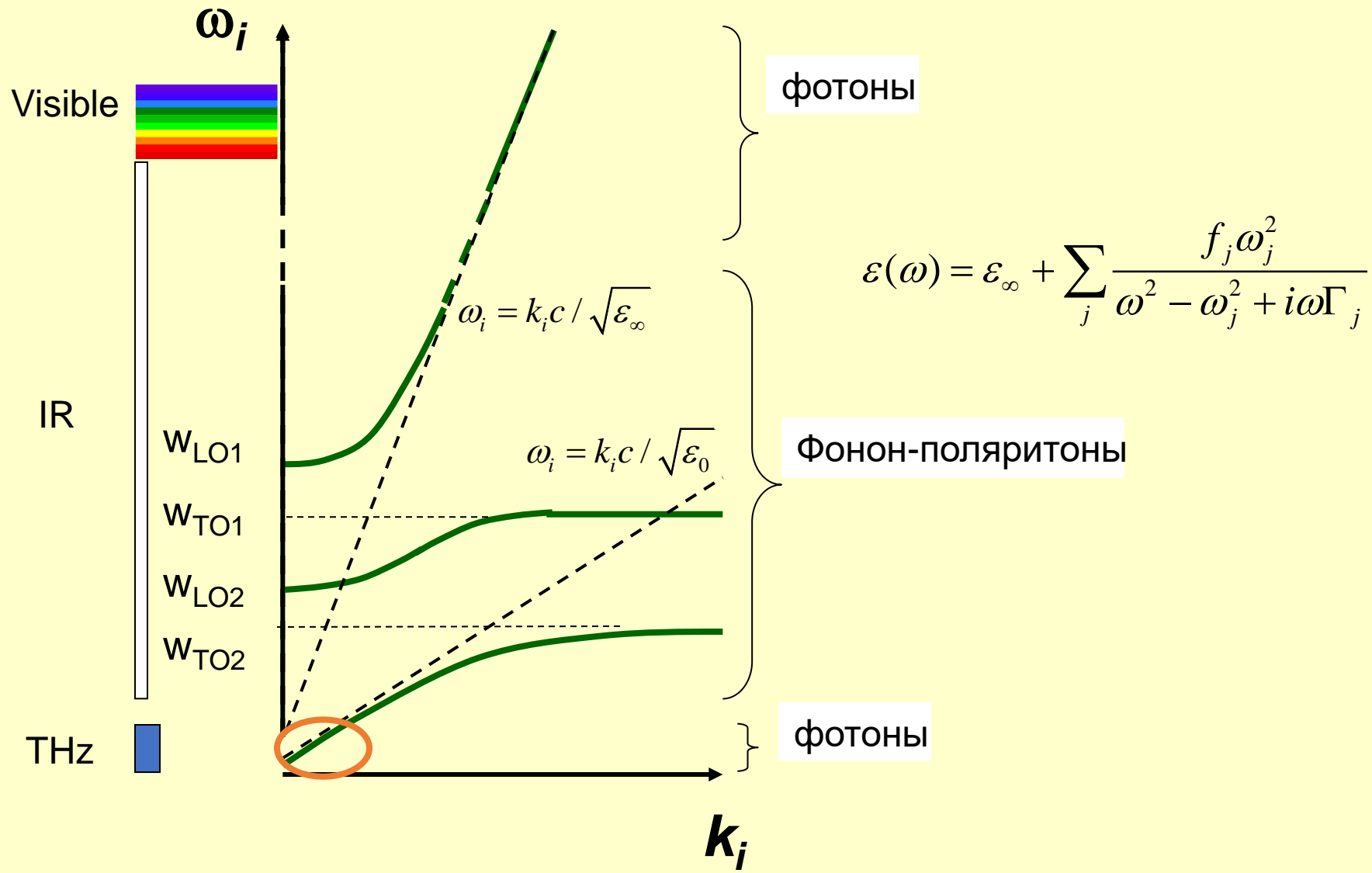


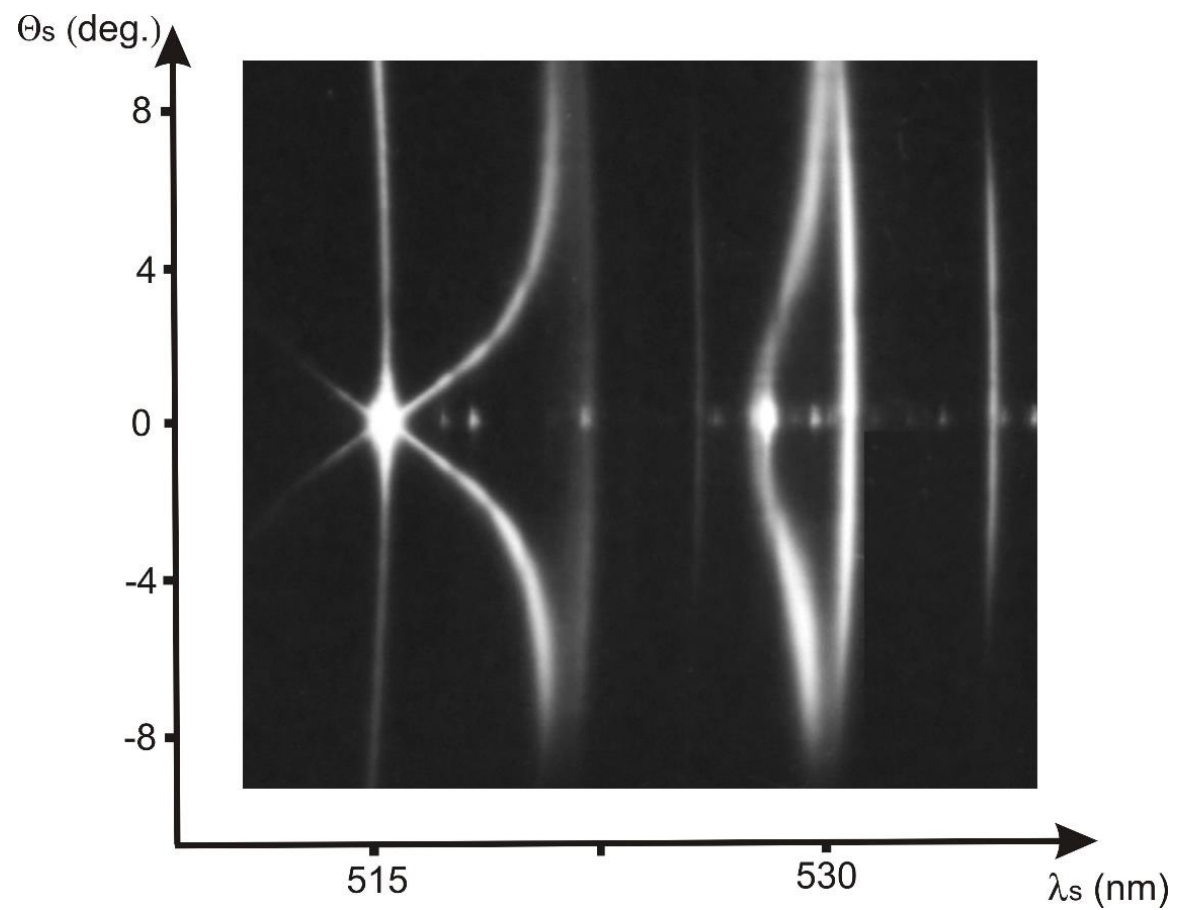
Семинар №5. Рассеяние света на поляритонах (продолжение)

1. Спектроскопия спонтанного параметрического рассеяния
2. КАРС-спектроскопия поляритонов
3. Нестационарное рассеяние света на поляритонах

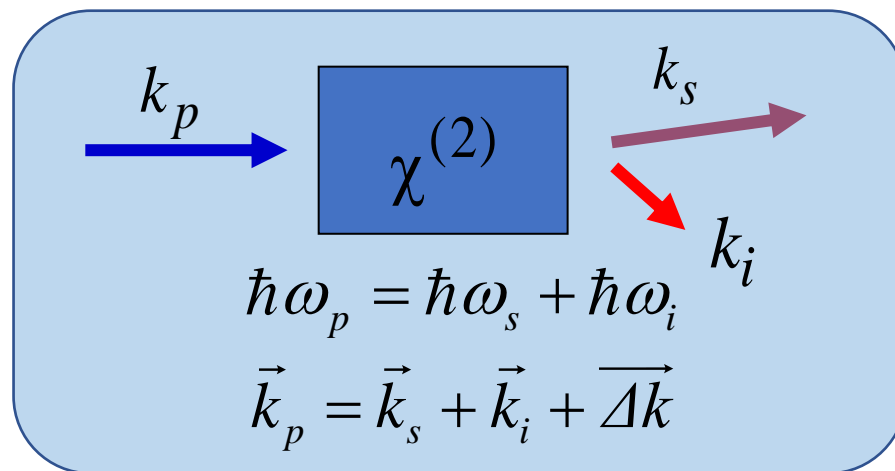
Фононные поляритоны



Частотно-угловой спектр рассеяния света на поляритонах



Спонтанное параметрическое рассеяние света (СПР)



Гамильтониан возмущения, отвечающий за СПР в дипольном приближении, можно представить в виде:

$$\hat{H} = -\int_V d^3r \chi^{(2)} E_p^{(+)}(r, t) \hat{E}_s^{(-)}(r, t) \hat{E}_i^{(-)}(r, t) + \text{э.с.}$$

Волновая функция рассеянного поля в первом порядке теории возмущений определяется следующим образом:

$$|\psi\rangle = |0\rangle - \left\{ \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \hat{H}(t') \right\} |0\rangle \equiv |0\rangle + \sum_{\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s} F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s) |1\rangle_i |1\rangle_s$$

$$\sum_{\mathbf{k}_s, \mathbf{k}_i} |N_s, N_i\rangle \equiv |0\rangle$$

Амплитуда бифотона зависит от проекции волновой расстройки на нормаль к слою Δk_x

$$F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s) = -i\beta e^{i\Delta k_x L/2} \text{sinc}(\Delta k_x L/2)$$

Коэффициент параметрического усиления $\beta \equiv \frac{2\pi\omega_s\omega_i}{c^2\sqrt{k_{sx}k_{ix}}} E_p L \chi^{(2)}$

СПР $\beta \ll 1$

ПР $\beta \geq 1$

Число фотонов в моде сигнального поля:

$$N_s = \langle \psi | a_s^+ a_s | \psi \rangle = \sum_{\mathbf{k}_i', \mathbf{k}_s'} F^*(\mathbf{k}_i', \mathbf{k}_s') \sum_{\mathbf{k}_i'', \mathbf{k}_s''} F(\mathbf{k}_i'', \mathbf{k}_s'') \langle 1 |_i' \langle 1 | a_s^+ a_s | 1 \rangle_{i''} | 1 \rangle_{s''} = \sum_{\mathbf{k}_i} |F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)|^2.$$

Число фотонов в моде холостого поля:

$$N_i = \langle \psi | a_i^+ a_i | \psi \rangle = \sum_{\mathbf{k}_s} |F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)|^2$$

Второй корреляционный момент по полю:

$$\langle \hat{N}_i \hat{N}_s \rangle = \langle \psi | a_i^+ a_i a_s^+ a_s | \psi \rangle = |F(\mathbf{k}_i, \mathbf{k}_s)|^2$$

Более общее описание, выходящее за рамки слабого усиления, основано на использовании уравнений для медленно меняющихся операторов Гейзенберга :

$$\frac{da_s(x)}{dx} = i\gamma a_i^+(x) e^{i\Delta k_x \cdot x}, \quad \gamma \equiv \beta / L$$

$$\frac{da_i^+(x)}{dx} = -i\gamma^* a_s(x) e^{-i\Delta k_x \cdot x},$$

Эти уравнения можно получить, например, из широко применяющихся в нелинейной оптике уравнений для медленно меняющихся амплитуд полей заменой:

$$E_{i,s} \rightarrow \hat{E}_{i,s}^{(+)} \rightarrow ic_{k_{i,s}} a_{i,s}, \quad E_{i,s}^* \rightarrow \hat{E}_{i,s}^{(-)} \rightarrow -ic_{k_{i,s}} a_{i,s}^+, \quad c_{k_{i,s}} - \text{нормировочные коэффициенты}$$

Решая систему уравнений получим выражения, связывающие операторы Гейзенберга на входе и выходе из среды для параметрического усилителя:

Соотношения такого типа характерны для класса линейных преобразований Боголюбова:

$$a_s(L) = U a_s(0) + V a_i^+(0),$$

$$a_i^+(L) = V^* a_s(0) + U^* a_i^+(0)$$

Коэффициенты усиления и преобразования:

$$U = e^{i\Delta k \cdot L/2} \left(ch\Gamma - i \frac{\Delta k \cdot L}{2} \cdot \frac{sh\Gamma}{\Gamma} \right), \quad \text{где } \Gamma \equiv \sqrt{\beta^2 - (\Delta k_x L/2)^2}$$

$$V = i\beta e^{i\Delta k \cdot L/2} \frac{sh\Gamma}{\Gamma}.$$

При точном пространственном синхронизме: $U = ch\Gamma$, $V = ish\Gamma$.

Среднее число сигнальных фотонов в одномодовом приближении:

$$N_s = \langle 0 | a_s^+(L) a_s(L) | 0 \rangle = \langle 0 | \left[U^* a_s^+(0) + V^* a_i(0) \right] \left[U a_s(0) + V a_i^+(0) \right] | 0 \rangle = |V|^2 = \left(\frac{sh\beta}{\beta} \right)^2$$

Но! Помимо квантовых флуктуаций также возможны классические тепловые (планковские) флуктуации поля на достаточно низких холостых частотах. В ряде задач необходимо также учитывать фотоны от возможных внешних источников излучения холостых частот.

$$N_s = |V|^2 \left[1 + N_i^0 + N_T(\omega_i, T) \right]$$

$$N_T(\omega_i, T) = \frac{1}{e^{\hbar\omega_i/kT} - 1}.$$

В реальных экспериментах приходится иметь дело не с одной модой поля, а с набором мод, занимающих определенный спектральный и пространственный интервалы. Переход от числа фотонов в моде к мощности излучения частоты, рассеянного в заданном направлении приходящейся на бесконечно малые спектральный и угловой интервалы, приводит к следующему выражению для дифференциальной мощности сигнального излучения:

$$P_{\omega\Omega} = \frac{2\hbar\omega_s^4\omega_i |\chi_{eff}^{(2)}|^2 P_p L^2}{c^5 n_i n_s \cos\theta_i} g(\Delta k_x)$$

СПР

РП

$$g(\Delta k_x) = \left(\frac{\sin(\Delta k_x \cdot L/2)}{\Delta k_x \cdot L/2} \right)^2$$

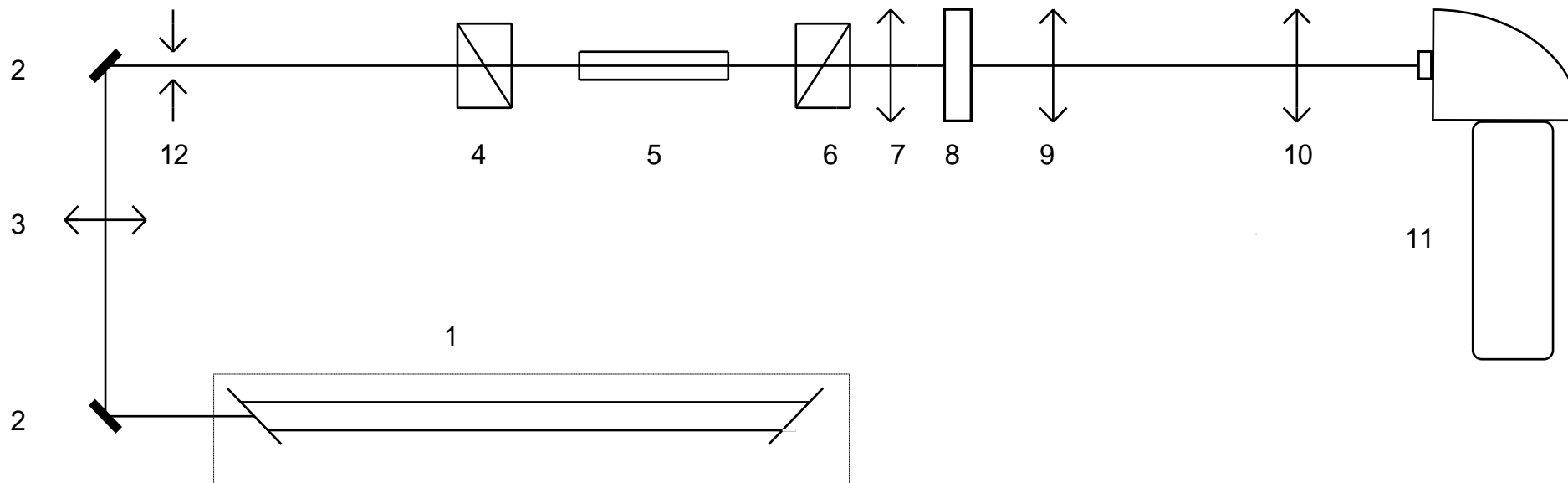
$$g(\Delta k_x) = \frac{2 \frac{\alpha_i \cdot L}{2 \cos\theta_i}}{(\Delta k_x \cdot L)^2 + \left(\frac{\alpha_i \cdot L}{2 \cos\theta_i} \right)^2}$$

Зная положение максимумов и угловые полуширины, можно измерить :

$$n_i = \frac{c}{\omega_i} |\vec{k}_i| = \frac{1}{\omega_i} \sqrt{(n_p \omega_p)^2 + (n_s \omega_s)^2 - 2n_s n_p \omega_s \omega_p \cos\theta_{s0}}$$

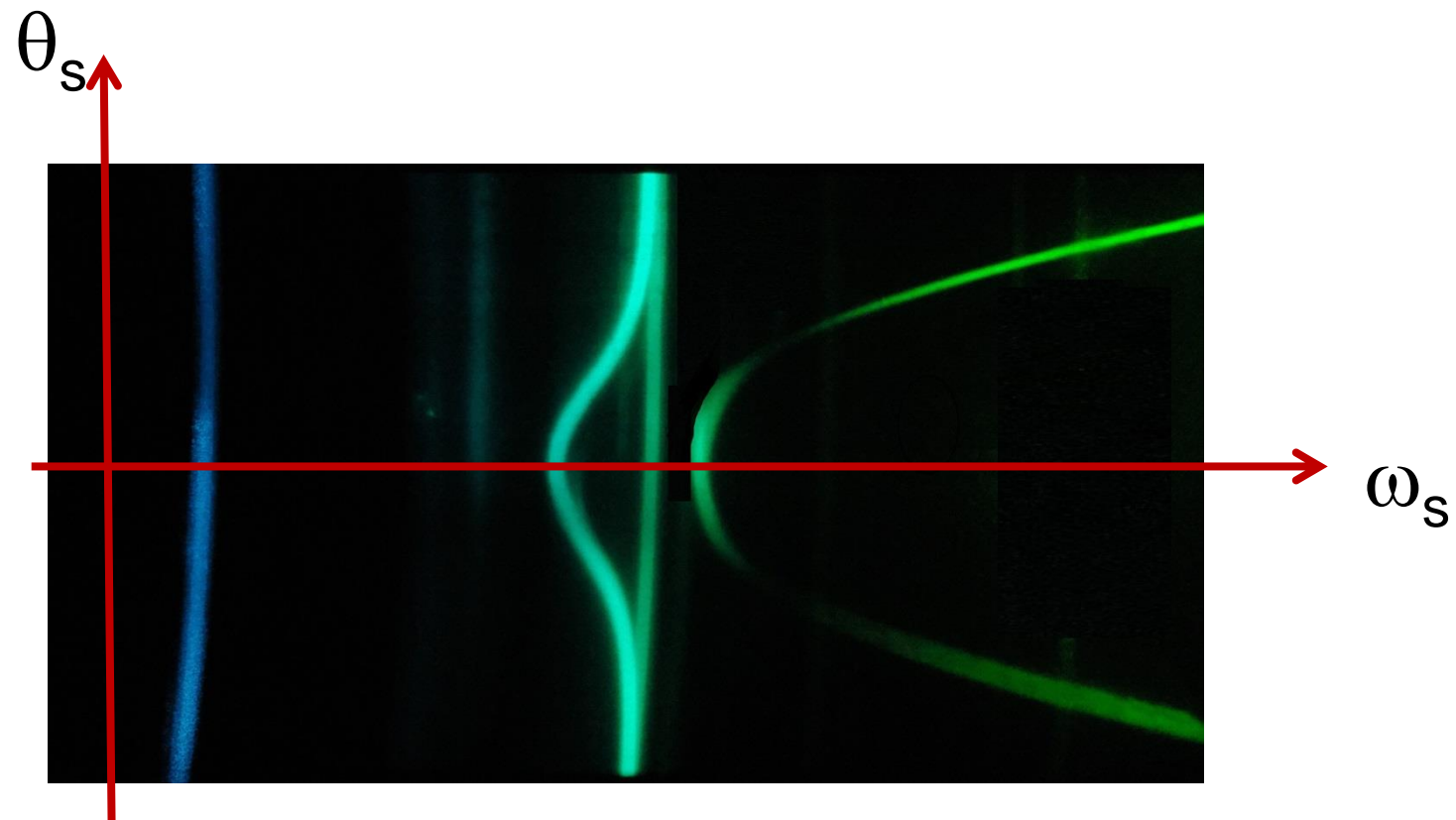
$$\alpha_i = \frac{2k_p \sin\theta_{i0}}{\pi} \Delta\theta_s$$

Экспериментальная установка для наблюдения и регистрации спектров СПР и РП:



1 - лазер, 2 - поворотные зеркала, 3 - длиннофокусная линза, 4 - поляризатор, 5 - исследуемый кристалл, 6 - анализатор, 7, 9, 10 - оптическая система линз, 8 - светофильтр, 11 - спектрограф, 12 - диафрагма.

Экспериментальный спектр СПР И РП кристалла LiIO_3



Осцилляторная модель диэлектрической проницаемости:

$$\varepsilon'(\lambda) = A_{UV} + \sum_{i_{el}} \frac{A_{i_{el}}}{\lambda_{i_{el}}^{-2} - \lambda^{-2}} + \sum_{i_{ph}} \frac{A_{i_{ph}}}{\lambda_{i_{ph}}^{-2} - \lambda^{-2}}$$

$$A_{ph} = \sum_{i_{ph}} A_{i_{ph}}, \quad \lambda \ll \lambda_{i_{ph}}$$

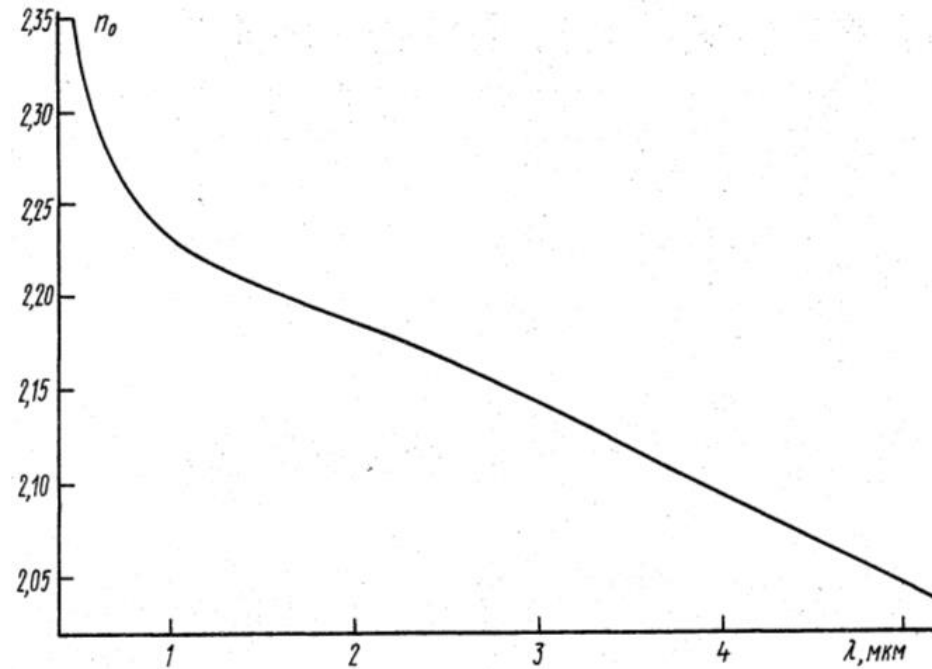
Формула Сельмейера:

$$\varepsilon'(\lambda) = A_{UV} + \sum_{i_{el}} \frac{A_{i_{el}}}{\lambda_{i_{el}}^{-2} - \lambda^{-2}} - A_{ph} \lambda^2$$

Плазмоны

Электронные
межзонные переходы

Полярные
фононы



Дисперсия показателя преломления для обыкновенной волны $n_o(\lambda)$ кристалла ниобата лития с молекулярной примесью MgO 5 %

Активная спектроскопия фононных поляритонов => Когерентное Антистоксовое Рассеяние Света (КАРС)

Пусть три волны накачки попадают в исследуемую среду. Их поля запишем в следующем виде:

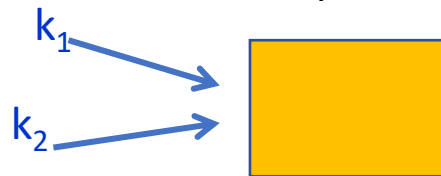
$$\mathbf{E}_i = \mathbf{E}_{i0}(\mathbf{r}) \exp(-i\omega_i t + i\mathbf{k}_i \mathbf{r}) + \text{к.с.}$$

где индексы i могут принимать значения 1,2 и L. Нелинейное взаимодействие полей и порождает поляризацию на разностной частоте:

где $\chi^{(2)}$ - эффективное значение квадратичной восприимчивости для этого процесса. $P^{(1)}(\mathbf{r}, \omega_1 - \omega_2) = \chi_1^{(2)}(\mathbf{r}) E_{10}(\mathbf{r}) E_{20}^*(\mathbf{r}) e^{-i(\omega_1 - \omega_2)t + i(\mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2)\mathbf{r}} + \text{к.с.}$

На первом этапе каскадного рассеяния две волны накачки с частотами ω_1 и ω_2 (“разогревающие” волны) возбуждают поляритонное состояние, если частота поляризации совпадает с частотой поляритона ω_p :

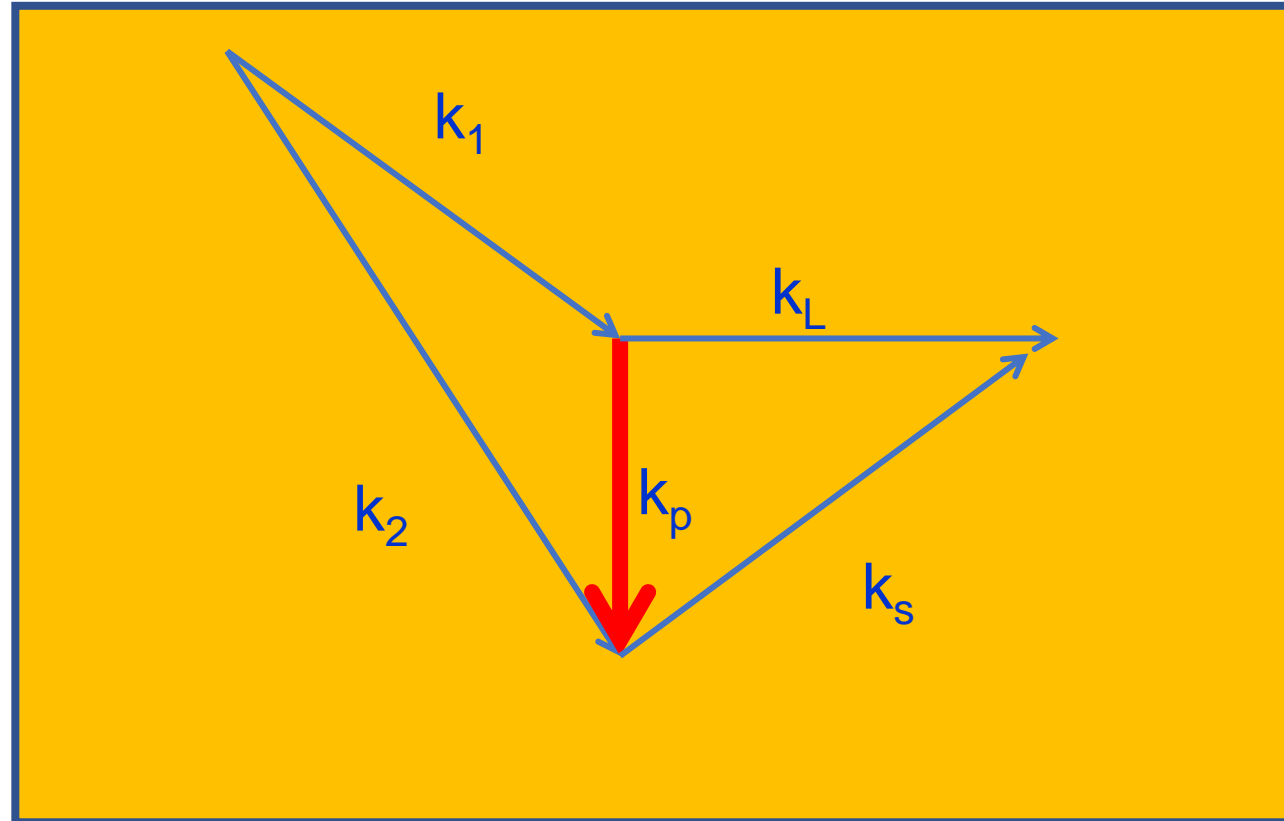
$$\omega_p = \omega_1 - \omega_2$$



На втором этапе третья волна накачки (пробная волна) с частотой ω_L рассеивается на возбужденной поляритонной волне $\omega_s = \omega_L - \omega_p$



Условия синхронизма в процессе КАРС на поляритонах



Фурье-компоненты поляризации и электрического поля - $\mathbf{P}^{(1)}(\mathbf{k}, \omega_p)$ и $\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega_p)$ - связаны через функцию Грина $\mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_p)$ уравнений Максвелла:

$$\mathbf{E}(\mathbf{k}, \omega_p) = \mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_p) P^{(1)}(\mathbf{k}, \omega_p)$$

$$G(\mathbf{k}, \omega_p) = \frac{\omega_p^2}{c^2} \cdot \frac{4\pi}{k^2 - K_p^2(\omega_p)}$$

где $K_p(\omega_p) = k_p + \frac{i\alpha_p}{2}$ - волновой вектор поляритонной волны с частотой ω_p , $k_p = n_p \omega_p / c$, $n_p \approx \sqrt{\text{Re}(\varepsilon(\omega_p))}$ - показатель преломления и α_p коэффициент поглощения на поляритонной частоте ω_p . Применяя обратное Фурье-преобразование, можно получить следующее выражение для напряженности электрического поля поляритонной волны:

$$\mathbf{E}(\mathbf{r}, \omega_p) = \frac{\chi^{(2)} E_{10} E_{20}^* e^{-i\omega_p t}}{(2\pi)^3} \int d\mathbf{k} \mathbf{G}(\mathbf{k}, \omega_p) e^{i\mathbf{k}\mathbf{r}} \int_{V'} d\mathbf{r}' e^{i\Delta\mathbf{k}^{(1)}\mathbf{r}'}$$

где $\Delta\mathbf{k}^{(1)} = \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}$ - расстройка синхронизма. Интегрирование по переменной \mathbf{k} осуществляется по всем возможным направлениям и величинам волновых векторов. Область интегрирования по пространственной координате ограничена объемом, в котором поля “разогревающих” накачек и квадратичная восприимчивость отличны от нуля.



На втором этапе третья волна накачки E_L (пробная волна) с частотой ω_L рассеивается на возбужденной поляритонной волне $E(r, \omega_p)$. Будем рассматривать стоксово рассеяние света на поляритонах. В результате, выражение для поляризации, осциллирующей на стоксовой частоте $\omega_s = \omega_L - \omega_p$ будет иметь следующий вид:

$$P_{\text{сиг}}^{(2)}(r, \omega_L - \omega_p) = \frac{\chi_1^{(2)*} \chi_2^{(2)} E_{L0} E_{10} E_{20} e^{-i\omega_s t + i\mathbf{k}_s \cdot \mathbf{r}}}{(2\pi)^3} \times \int d\mathbf{k} e^{i\Delta\mathbf{k}^{(2)} \cdot \mathbf{r}} G(\mathbf{k}, \omega_p) \int_V d\mathbf{r}' e^{-i\mathbf{k}^{(1)} \cdot \mathbf{r}'}$$

где $\Delta\mathbf{k}^{(2)} = \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s - \mathbf{k}$ - волновая расстройка на втором этапе каскадного рассеяния. Чтобы получить общее выражение для поляризации на сигнальной частоте ω_s , следует учесть и прямые четырёхволновые процессы, возникающие за счет отличной от нуля кубической восприимчивости $\chi^{(3)}$. Окончательное выражение для интенсивности сигнальной волны в зависимости от волновых расстройек имеет следующий вид:

$$I_s \sim \left| \chi^{(3)} f''(\Delta\mathbf{k}) + \frac{\chi_1^{(2)*} \chi_2^{(2)}}{(2\pi)^3} \int G^*(\mathbf{k}, \omega_p) \cdot f''(\mathbf{q}_1 - \mathbf{k}) \cdot f''(\mathbf{q}_2 - \mathbf{k}) \cdot d\mathbf{k} \right|^2$$

где $\mathbf{q}_1 \equiv \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$, $\mathbf{q}_2 \equiv \mathbf{k}_L - \mathbf{k}_s$, $\Delta\mathbf{k} \equiv \mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1$

$f(\mathbf{k})$ – форм-фактор, зависящий от формы и размеров области взаимодействия. Зависимость данной функции от произвольного вектора $\vec{\zeta}$ имеет следующий вид:

$$f(\vec{\zeta}) \equiv \int_V \exp(i \vec{\zeta} \cdot \mathbf{r}) d\mathbf{r}$$

Например, для рассеивающего объема, имеющего форму прямоугольного параллелепипеда со сторонами a , b и c , форм-фактор имеет следующий вид:

$$f(\Delta\mathbf{k}) = V \cdot \frac{\sin(\Delta k_x a / 2)}{\Delta k_x a / 2} \cdot \frac{\sin(\Delta k_y b / 2)}{\Delta k_y b / 2} \cdot \frac{\sin(\Delta k_z c / 2)}{\Delta k_z c / 2}$$

где Δk_x , Δk_y , Δk_z - декартовы координаты вектора волновой расстройки $\Delta\mathbf{k}$

Рассмотрим частный случай, когда объемы взаимодействия V' и V'' имеют произвольную форму, но их линейные размеры l достаточно большие и удовлетворяют условию $\alpha_p l \gg 1$. В этом случае поляритонная функция Грина может быть вынесена из под интеграла в выражении (1.43), т.к. она меняется очень медленно по сравнению с функциями f' и f'' . Интегрирование произведения функций f' и f'' в случае, когда объемы V' и V'' имеют форму куба и примерно равны, приводит к следующему результату:

$$\int f'^*(\mathbf{q}_1 - \mathbf{k}) \cdot f''(\mathbf{q}_2 - \mathbf{k}) \cdot d\mathbf{k} = (2\pi)^3 f''(\mathbf{q}_2 - \mathbf{q}_1)$$

Используя этот результат, из (1.43) получаем следующее выражение:

$$I_s \sim \left| \chi_{\text{eff}}^{(3)} \right|^2 |f''(\Delta \mathbf{k})|^2,$$

$$\chi_{\text{eff}}^{(3)} \equiv \chi^{(3)} + \chi_1^{(2)*} \chi_2^{(2)} G^*(\mathbf{q}_1, \omega_p)$$

Обобщенная кубическая нелинейная восприимчивость $\chi_{\text{eff}}^{(3)}$ в выражении содержит “каскадный” член $G^*(\mathbf{q}_1, \omega_p) \chi_1^{(2)*} \chi_2^{(2)}$, описывающий поляритонные свойства.

Для случая:

- больших объемов каскадного взаимодействия
- обычных поляритонов
- действительных нелинейных восприимчивостей $\chi_1^{(2)}, \chi_2^{(2)}, \chi^{(3)}$:

$$I_s \sim \left\{ (\eta \chi^{(3)})^2 + \frac{2\eta \chi_1^{(2)} \chi_2^{(2)} \chi^{(3)} \tau_p}{(\alpha_p/2)^2 + \tau_p^2} + \frac{(\chi_1^{(2)} \chi_2^{(2)})^2}{(\alpha_p/2)^2 + \tau_p^2} \right\} |f''(\Delta \mathbf{k})|^2$$

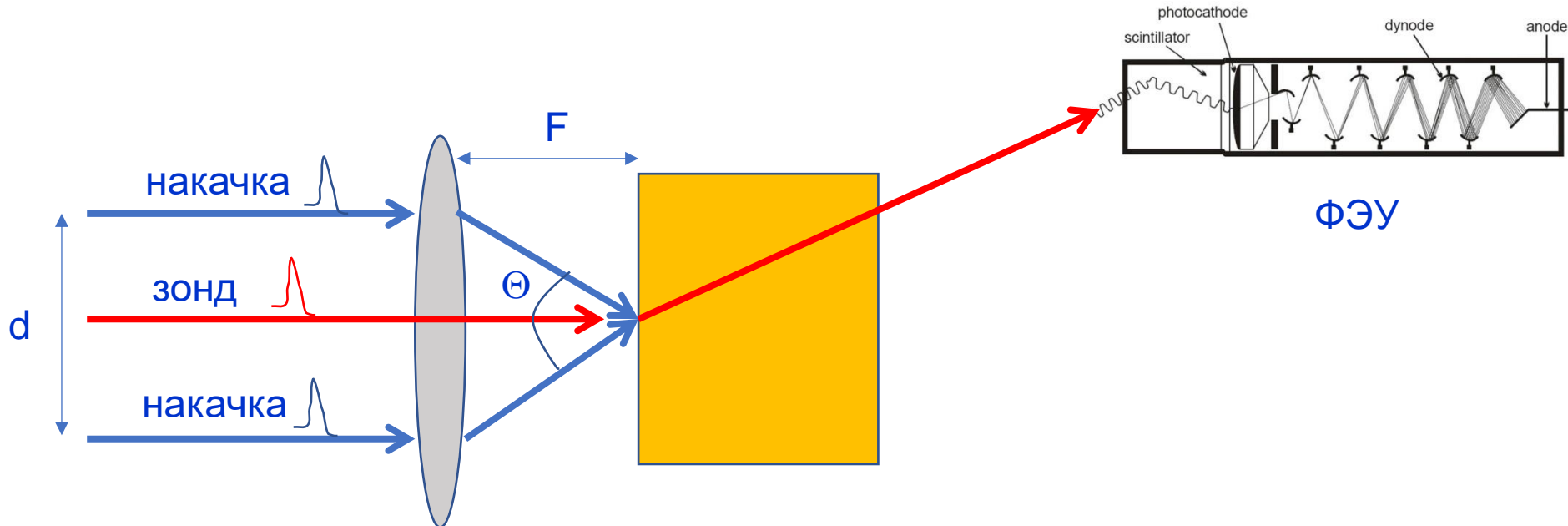
где $\tau_p \equiv k_1 - k_2 - k_p$, $\eta = n_p c / 2\pi \omega_p$.

Первый член в квадратных скобках описывает прямое четырёхволновое взаимодействие, последний член - чисто каскадный процесс рассеяния и средний - интерференцию между прямыми и каскадным процессами.

Спектроскопия поляритонов с временным разрешением

(+) непосредственное измерение временной динамики

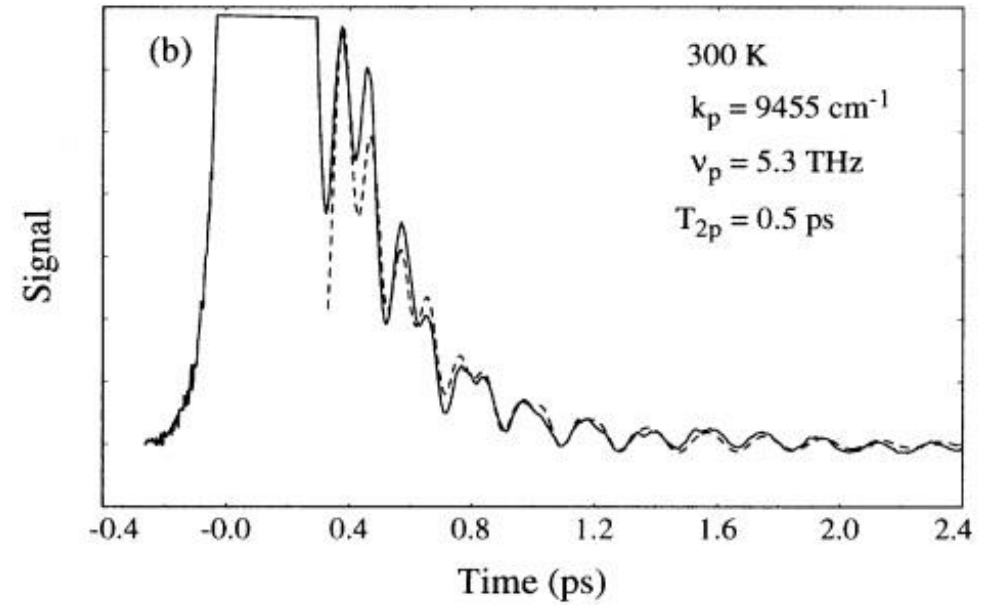
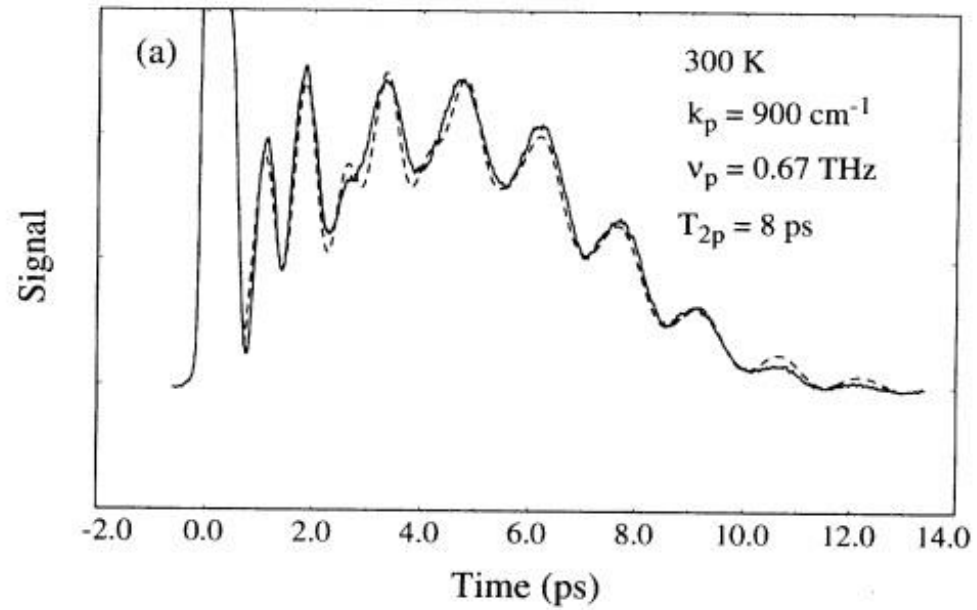
(-) ограничение сверху ТГц диапазона из-за поглощения поляритонов



$$P^{NL}(\omega_p) = \chi^{(2)}(\omega_p) E_{\omega_1} E_{\omega_2}^*$$

$$\Delta k_{pump} = |k_{1x} - k_{2x}| \approx \frac{2\pi}{\lambda_{pump}} \frac{d}{F} = \frac{4\pi \sin \frac{\theta}{2}}{\lambda_{pump}}$$

Спектры рассеяния на когерентных поляритонных в кристалле LiTaO_3



Спасибо за внимание!