

Московский Физико-Технический Институт
(Государственный Университет)

Факультет Общей Прикладной Физики
Кафедра Физики Твердого Тела

Генерация бифотонов в кристалле CdS методом
четырёхволнового смешения.

Щекин Алексей Андреевич

Научный руководитель:
доктор физико-математических наук
Кулаковский В.Д.

ИФТТ, Черноголовка 2006

1 Введение.

Неклассическое световое поле представляет собой весьма интересный объект для исследований. Бифотонное поле, являющееся частным случаем неклассического поля, изначально используется для проверки основ квантовой механики [1,2], уже давно нашло применение в различных областях квантовой оптики. Это, прежде всего, квантовая метрология, где бифотонное поле применяется для абсолютной калибровки фотодетекторов [4], квантовая криптография.

Представляется интересным использовать бифотонное поле как инструмент исследования свойств нелинейных процессов в твердых телах. Например, применение вырожденных по энергии бифотонов для накачки в процессах двухволнового поглощения позволило бы существенно увеличить вероятность этих процессов. Однако, для этого нужен значительно более мощный источник бифотонов, чем существующие на данный момент времени. Проблема нахождения такого источника заключается в том, что бифотоны могут быть получены лишь в результате нелинейного процесса, имеющего, как правило, достаточно малую вероятность.

В данной работе проверена возможность применения процесса гиперкомбинационного рассеяния для генерации бифотонов, найдены оптимальные условия их генерации.

2 Коррелированные пары фотонов. Обратный процесс гиперкомбинационного рассеяния как способ их генерации.

Под понятием "неклассический свет" обычно понимают свет, наблюдаемые свойства которого не поддаются описанию с точки зрения привычных представлений, например, рассматривая пучок света как совокупность волн.

Понятие неклассического поля тесно связано с концепцией "перепутанных" квантовых состояний, впервые введенной Шредингером [1]. Статья появилась в результате дискуссии, связанной с известной работой Эйнштейна, Подольского и Розена [2], где обсуждались свойства квантовых систем, в которых некоторые физические величины являются коррелированными. Например, некоторые характеристики каждой из подсистем, взятой в отдельности могут быть произвольными, но, при образовании общей системы, подчиняются условиям связи, вследствие чего коррелируют. Квантовые системы, аналогичные рассмотренным в [2], были названы Шредингером "перепутанными". Неклассическое бифотонное поле является по сути как раз такой системой.

На сегодняшний день для генерации бифотонов наиболее широко применяются два способа: двухфотонные атомные переходы и спонтанное параметрическое рассеяние в среде с квадратичной нелинейностью. В работе [3] описывалась экспериментальная процедура, где излучение при двухфотонном атомном переходе посылается на два детектора. Поскольку общая энергия перехода фиксирована, то мы имеем условие связи в виде

$$\Delta E = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 \quad (1)$$

Оба фотона излучаются практически одновременно, значит, если один из детекторов в некоторый момент времени зарегистрировал прилет фотона $\hbar\omega_1$, то можно с уверенностью говорить о генерации фотона $\hbar\omega_2$ в тот же момент времени. Второй детектор в некотором смысле является лишним, а первый косвенно, без всякого возмущения измеряет момент рождения второго фотона. В этом, собственно и заключается парадокс, предсказанный в [2]: меняя параметры детекторов, можно по выбору измерять без возмущения или энергию, или время рождения фотонов, то есть априори они наделены обоими этими качествами одновременно, что противоречит принципу неопределенности. Разрешением парадокса является тот факт, что принцип неопределенности верен лишь для "чистых" систем, а нашу систему строго можно характеризовать лишь матрицей плотности.

Аналогичными свойствами обладает поле, получаемое при параметрическом рассеянии [4]. В кристаллах с квадратичной нелинейностью возможен распад фотонов монохроматической накачки на пары с выполнением закона сохранения энергии

$$\hbar\omega_0 = \hbar\omega_1 + \hbar\omega_2 \quad (2)$$

Поскольку рассеяние происходит не на отдельных молекулах, а на всей возбужденной области кристалла, при распаде с большой точностью выполняется закон сохранения импульса

$$\vec{k}_0 = \vec{k}_1 + \vec{k}_2 \quad (3)$$

Это равенство, называемое обычно *условием синхронизма*, вместе с законами частотной и угловой дисперсии для необыкновенной и обыкновенной волн в кристалле определяет угловую зависимость частоты рассеянного излучения. Таким образом, в отличие от двухфотонного атомного перехода, здесь мы имеем направленный источник бифотонов. В частности, бифотоны, вырожденные по направлению и имеющие равную энергию, представляют собой интересный инструмент для исследования различных нелинейных процессов в твердых телах. Причина корреляции та же: обнаружение фотона в моде \vec{k}_1 автоматически означает присутствие другого фотона в моде \vec{k}_2 . Такая полная корреляция фактически означает, что

$$\langle N_1 \rangle = \langle N_2 \rangle \equiv \langle N_1 N_2 \rangle \quad (4)$$

где $\langle N_1 \rangle$ и $\langle N_2 \rangle$ - числа заполнения мод 1 и 2, соответственно. Это равенство обычно принимается за определение двухфотонного поля.

Более подробно причины сильной парной корреляции фотонов в процессе параметрического рассеяния рассмотрены в [5,6].

К сожалению, из-за малой вероятности процессов, общий поток бифотонов, полученных в вышеописанных процессах слишком слаб (на уровне 10^3 бифотонов в секунду), чтобы их можно было использовать как инструмент для исследований в различных областях физики твердого тела.

Целью данной работы является получение максимально интенсивного бифотонного поля. Для этого использовался четырехволновой процесс (в отличие от описанных двух- и трехволнового) гиперкомбинационного рассеяния света на биэкситонах при низких температурах в кристаллах сульфида кадмия.

Кристаллы сульфида кадмия имеют структуру вюрцита, их кристаллическую решетку можно представить как состоящую из двух взаимопроникающих гексагональных плотноупакованных решеток, в узлах одной из которых расположены атомы кадмия, в узлах другой - атомы серы. Пространственная группа такой решетки - $P6_3mc$ [7].

Зона Бриллюэна имеет вид шестиугольной призмы. Сульфид кадмия - прямозонный полупроводник: энергетические максимумы валентной зоны и минимум зоны проводимости совпадают в \vec{k} - пространстве и расположены в центре зоны Бриллюэна (рис. 1). При этом спин - орбитальное вырождение в валентной зоне полностью снято вследствие пониженной симметрии структуры. В кристалле выделенным направлением является ось C, совпадающая с осью шестого порядка. Поэтому тензор эффективных масс удобнее представить в виде диагонального с двумя компонентами - перпендикулярно и параллельно оси C. В таблице на рисунке 1 приведены значения компонент тензоров электронной и дырочной масс [7]. Отметим полную изотропность электронной массы и сильную анизотропию эффективной массы дырок.

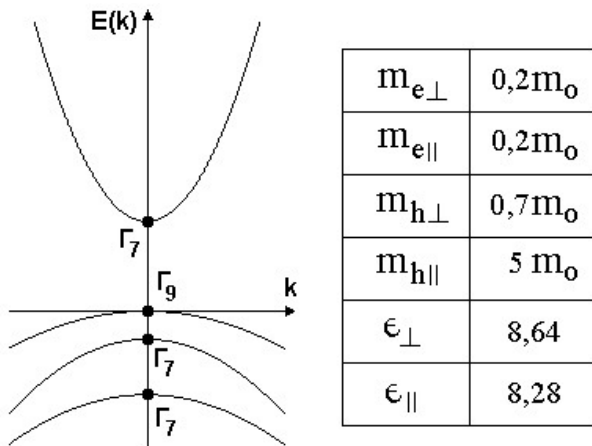


Рис. 1: Зонная структура вблизи $k=0$, оптические характеристики CdS.

В таблице приведены также компоненты тензора диэлектрической проницаемости вдоль и поперек оптической оси, которые, как видно, не сильно различаются.

В прямозонных полупроводниках световое возбуждение электронной системы является более эффективным, чем в непрямозонных полупроводниках вследствие того, что в последних для выполнения законов сохранения энергии и импульса требуется участие фононов. В частности, в CdS при низких температурах возможно двухфотонное поглощение с резонансным рождением экситонных молекул [8]. Законы дисперсии экситонов и экситонных молекул имеют вид:

$$\varepsilon_{ex}(\vec{k}_{ex}) = \varepsilon_{ex}(0) + \frac{\hbar^2 k_{ex}^2}{2m_{ex}} \quad (5)$$

$$\varepsilon_{biox}(\vec{k}_{biox}) = \varepsilon_{biox}(0) + \frac{\hbar^2 k_{biox}^2}{2m_{biox}} \quad (6)$$

где $m_{biox} = 2m_{ex}$, а m_{ex} - тензор с компонентами $m_{ex\perp} = m_{e\perp} + m_{h\perp} = 0, 9m_e^0$ и $m_{ex\parallel} = m_{e\parallel} + m_{h\parallel} = 5, 2m_e^0$. Таким образом, масса и закон дисперсии экситонов сильно анизотропны.

В совершенных кристаллах CdS при низких температурах затухание экситонной моды оказывается меньше константы экситон - фотонного взаимодействия. В этих условиях экситон - фотонное взаимодействие приводит к образованию смешанных экситон - фотонных состояний, получивших название *поляритоны*.

Закон дисперсии поляритонов показан на рисунке **2А**. Он имеет две ветви: верхнюю, переходящую в закон дисперсии фотонов при больших k (больше 10^6 cm^{-1}) и в закон дисперсии экситонов при $k \rightarrow 0$, и нижнюю, наоборот описывающую "фотоноподобный" поляритон при $k \rightarrow 0$, и "экситоноподобный" поляритон при больших k . На рисунке **2В** приведен закон дисперсии поляритонов в CdS, вычисленный исходя из выражения для диэлектрической проницаемости вблизи резонанса:

$$\frac{c^2 k^2}{\omega^2} = \epsilon(\omega) = \epsilon_b + \frac{4\pi\beta\omega_{ex}^2}{\omega_{ex}^2 - \omega^2 - 2i\gamma_{ex}\omega} \quad (7)$$

где $\epsilon_b = 7, 4$ - высокочастотная диэлектрическая проницаемость, $4\pi\beta = 0, 013$ - экситонная поляризуемость, $\hbar\gamma_{ex} = 0, 5 \text{ meV}$ - затухание экситонного состояния, $\hbar\omega_{ex} = \varepsilon_{ex}$ - экситонная энергия. Численные данные взяты из работы [9].

При резонансной накачке лазерными импульсами в кристалле происходит образование "фотоноподобных" поляритонов с импульсом \vec{k}_i и энергией $\hbar\omega_i$. Если их энергия равна половине энергии экситонной молекулы, то резонансно рождаются биэкситоны, при излучательной рекомбинации которых образуются два поляритона: "сигнальный" с импульсом \vec{k}_R и энергией E_R , который является "фотоноподобным" и который, собственно, наблюдается в экспериментах, связанных с гиперкомбинационным рассеянием, и "поляритон отдачи" с импульсом \vec{k}_f и энергией E_f , являющийся "фотоноподобным", или "экситоноподобным" в зависимости от условий наблюдения. Если же сумма энергий двух поляритонов, возникающих при наличии лазерного излучения не равна энергии биэкситона, то процесс рассеяния поляритонов происходит с меньшей вероятностью, а о промежуточном биэкситонном состоянии можно говорить как о виртуальном.

В работе [8] была рассчитана вероятность такого процесса. Показано, что процесс образования биэкситонов характеризуется гигантской силой осциллятора, и, как следствие, большой вероятностью перехода. Эта вероятность пропорциональна геометрическому фактору $|(\vec{e}_{f\perp C}, \vec{e}_{R\perp C})|^2$, где $\vec{e}_{f\perp C}$ и $\vec{e}_{R\perp C}$ - проекции векторов поляризации на плоскость, перпендикулярную оси C. Это условие играет роль *правила отбора* для данного процесса.

Время жизни экситонных молекул в CdS составляет $10^{-9} - 10^{-10} \text{ c}$ [8], прямая рекомбинация происходит очень быстро, вследствие чего система биэкситонов сильно неравновесна. Рекомбинация биэкситонов происходит гораздо раньше, чем они успевают рассеяться, поэтому процесс гиперкомбинационного рассеяния через биэкситонные состояния можно также трактовать как неразделимый процесс двухфотонного поглощения и излучательной рекомбинации, при котором выполняются следующие законы сохранения энергии и импульса:

$$2\hbar\omega_i = E_R + E_f \quad 2\vec{k}_i = \vec{k}_R + \vec{k}_f \quad (8)$$

Множество точек в \vec{k} - пространстве, где выполняются эти законы сохранения представляет собой "восьмерку" (рис. **2С**). Для того, чтобы показать это, не ограничивая общности рассуждения, рассмотрим для удобства случай, когда плоскость рассеяния перпендикулярна оси C. В этой плоскости закон дисперсии поляритонов изотропен, имеет аксиальную симметрию. "Фотоноподобный"

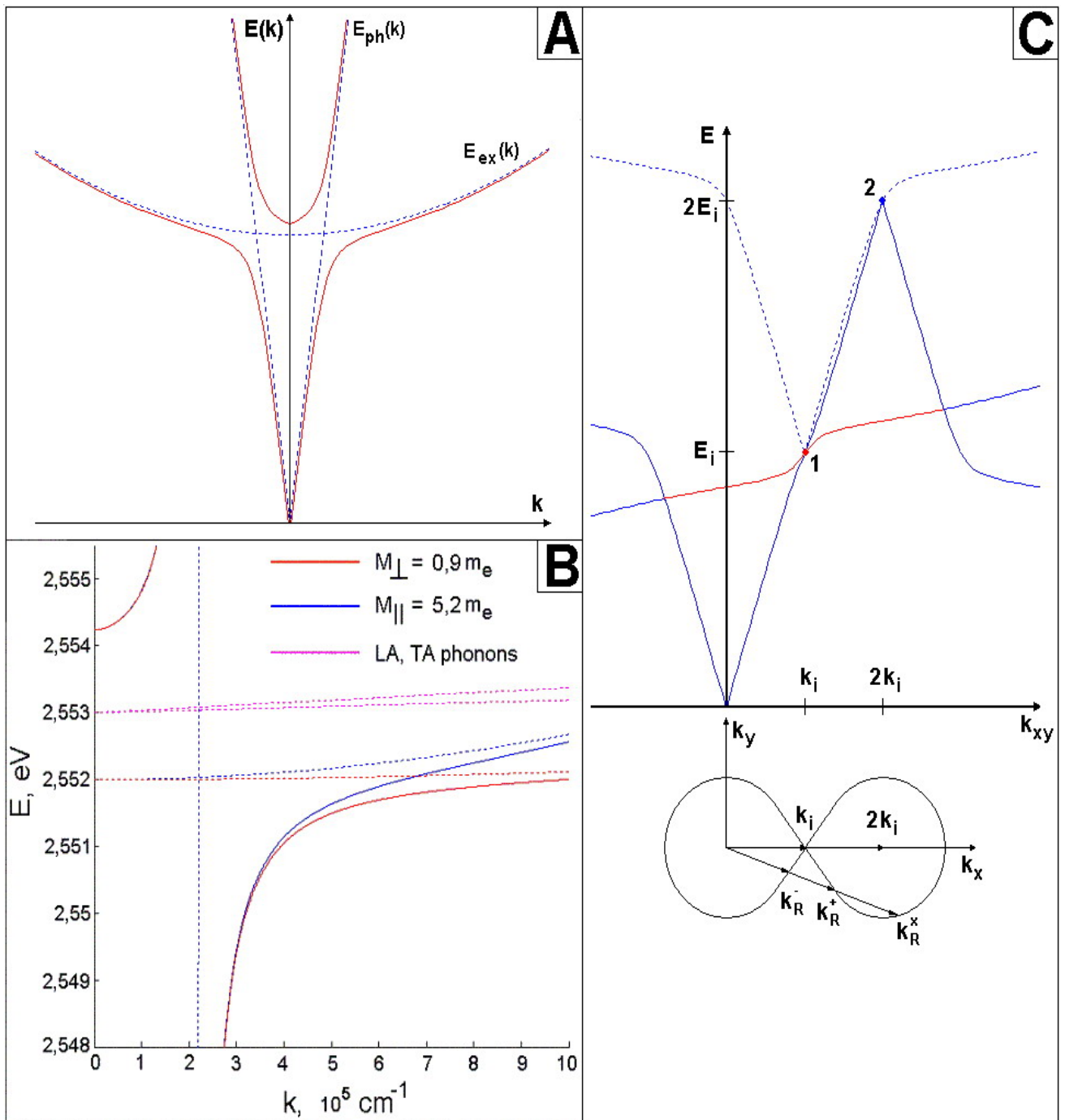


Рис. 2: **A:** Дисперсия поляритонов. Пунктиром изображены зависимости энергии от квазиимпульса для фотонов (линейный закон) и экситонов (квадратичный закон). Сплошная линия - закон дисперсии смешанного - поляритонного - состояния. **B:** Рассчитанный закон дисперсии поляритонов в CdS вблизи резонанса. В том же масштабе приведен наклон дисперсии акустических фононов. **C:** Схема гиперкомбинационного рассеяния в (E, \vec{k}) - пространстве и в проекции на \vec{k} - пространство. Направлению накачки соответствует вектор \vec{k}_x .

поляритон накачки с энергией E_i , близкой к нулевой энергии экситона, и импульсом \vec{k}_i , очевидно, принадлежит нижней ветви дисперсии (точка 1 на рис. 2С). Два таких поляритона при поглощении образуют биэкситон (точка 2). Далее этот (виртуальный или реальный) биэкситон распадается на два поляритона. "Вычитая" поляритон с некоторым импульсом и некоторой энергией из состояния 2, мы получаем поляритон с энергией в окрестности E_i на исходной ветви дисперсии. Таким образом, пересечение исходной ветви дисперсии поляритона и "перевернутой" ветви в (E, \vec{k}) - пространстве и есть множество состояний, в которые разрешено рассеяние. Очевидно, что в проекции на \vec{k} - пространство это множество представляет собой "восьмерку".

Нетрудно показать, что в случае, когда ось С лежит в плоскости рассеяния, анизотропия экситонной ветви дисперсии не сильно исказит картину. Действительно, форма "восьмерки" определяется преимущественно узкой, фотонной областью нижней поляритонной ветви, форма которой, в свою очередь, зависит от показателя преломления среды в данном направлении. Из таблицы 1 видно, что диэлектрические проницаемости, а, следовательно, и показатели преломления в направлениях параллельно и перпендикулярно оси С практически не отличаются, то есть закон дисперсии чистых фотонов почти изотропен. Значит, и формы "восьмерки" для разных геометрий эксперимента почти одинаковые.

Диаграмма на рисунке 2С показывает, что при наблюдении под определенным углом к накачке, направленной вдоль k_x , должны быть видны три поляритонные линии рассеяния, соответствующие квазиимпульсам \vec{k}_R^- , \vec{k}_R^+ и \vec{k}_R^{ex} [9]. Из-за большого показателя преломления, даже при больших (порядка 45°) углах наблюдения, в кристалле реальный угол между накачкой и направлением импульса поляритонов рассеяния достаточно мал. Поэтому поляритон \vec{k}_R^{ex} является "экситоноподобным", то есть имеет сравнительно малую скорость. За время пролета кристалла он успевает рассеяться на примесях и соответствующая ему линия в спектрах наблюдается только в очень чистых образцах [9].

Отметим, что, как и в процессе параметрического рассеяния, здесь рассеяние происходит практически мгновенно в областях порядка нескольких боровских радиусов экситона, то есть порядка 100 \AA . Кроме того, есть условия связи - законы сохранения энергии и импульса. *На основании этих фактов, можно предположить, что в процессе гиперкомбинационного рассеяния, как и в процессе спонтанного параметрического рассеяния, происходит рождение коррелированных пар фотонов.*

В четырехволновом процессе гиперкомбинационного рассеяния, в отличие от трехволнового процесса параметрического рассеяния, возникает проблема фильтрации накачки. Здесь поток бифотонов также направленный, но вырожденные по энергии бифотоны распространяются в направлении, близком к направлению накачивающего луча, поэтому помимо неклассического поля на выходе имеется сильный фон классического когерентного состояния поля.

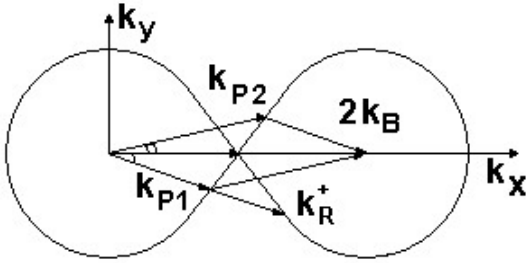


Рис. 3: Схема обратного процесса рассеяния с генерацией бифотонов. Здесь \vec{k}_{P1} и \vec{k}_{P2} - волновые векторы фотонов накачки, \vec{k}_B - волновой вектор фотона, "входящего в состав" бифотона.

Для генерации бифотонов с одинаковой энергией в данной работе осуществлялся обратный процесс гиперкомбинационного рассеяния, схема которого изображена на рисунке 3. Кристалл облучается двумя пучками. При правильном выборе энергий и направлений относительно нормали к поверхности образца, на выходе нормально к поверхности кристалла (направление k_x на диаграмме) можно получить резонансное рождение вырожденных по направлению и энергии бифотонов.

Подбор энергий и углов падения двух лазерных пучков можно осуществить на основании результатов исследований прямого процесса рассеяния. Действительно, поскольку угол между импульсами поляритонов рассеяния и поляритонов накачки мал (в нашем случае порядка 10°), то накачки \vec{k}_{P1} и \vec{k}_{P2} следует направлять приблизительно симметрично относительно направления наблюде-

ния, совпадающего с нормалью к поверхности кристалла. Теперь, если энергию одного пучка сделать равной энергии линии рассеяния RT^- , соответствующей данному углу падения накачки, то из геометрических соображений (рис. 3) видно, что энергия другого пучка должна быть выставлена чуть ниже энергии соответствующей линии RT^+ . После нахождения оптимума по энергии следует выполнить дополнительную юстировку второго пучка по углу падения, поскольку первоначальное предположение о симметричной направленности верно лишь приблизительно.

При выполнении данных условий вдоль направления наблюдения происходит рассеяние фотонов с одинаковыми энергиями и импульсами. Как будет показано ниже, линия В при слабой расстройке начинает двоиться, то есть по сути мы наблюдаем бифотоны, невырожденные по энергии. Таким образом, заключение о вырожденности по направлению и по энергии можно сделать на основании анализа спектра сигнала на выходе.

3 Экспериментальная установка.

3.1 Лазер на красителе с двумя пучками.

Для возбуждения кристалла CdS нами был собран лазер на красителе с поперечной накачкой, конструкция которого позволяла получать два пучка с перестраиваемой длиной волны. В качестве красителя в диапазоне длин волн 475 - 490 нм был выбран кумарин 152А. Возбуждение красителя производилось импульсным азотным лазером с мощностью 170 кВт, частотой следования импульсов 25 Нз и длительностью импульса 7 пс.

Схема фокусировки азотного лазера представлена на рисунке 4А. Пятно генерации имело форму нити, что позволило при помощи кварцевой бипризмы (3) и цилиндрической линзы (2) с фокусным расстоянием 60 мм, ориентированных горизонтально, разбить пучок накачки на две одинаковые по мощности части и сфокусировать на кювету (1) с красителем. В результате получались два люминесцирующих шнура длиной 10 мм, и разведенные на 10 мм по вертикали.

Далее каждый шнур помещался в отдельный перестраиваемый резонатор. Рисунок 4В иллюстрирует оптическую схему этих резонаторов. С одной стороны кюветы было установлено общее для двух пучков выходное полупрозрачное в данном диапазоне длин волн диэлектрическое зеркало (5). С другой стороны - избирательная по частоте система: сначала пучок коллимировался короткофокусной линзой (6), далее телескопировался и раскладывался в спектр при помощи объемной голографической решетки, нанесенной на призму (7). И наконец, последний элемент - отражающая объемная голографическая решетка (8), работающая по схеме Литтрова. Она обеспечивала избирательность резонатора по длине волны. Поскольку длина волны отраженного от этой решетки света зависит от угла наблюдения, перестройка лазера могла осуществляться поворотом последней решетки вокруг вертикальной оси. Для генерации двух пучков нужно было собрать два вышеописанных каскада, разнесенных по вертикали.

Подобная конструкция позволила получить линейно поляризованную генерацию с шириной линии 0,5 Å, перестраиваемую в диапазоне 475 - 490 нм. Для поворота плоскости поляризации на выходе лазера установлена пластина $\frac{\lambda}{2}$ (4). Измерение мощности лазера произведено при помощи коаксиального фотоэлемента ФЭК-15КМ путем сравнения сигнала с ФЭКа при освещении катода азотным лазером и лазером на красителе. При этом следовало учесть поправку, вызванную различной спектральной чувствительностью ФЭКа, и поправку на различную длительность импульса (7 пс у азотного лазера и 5 пс у лазера на красителе). В результате для пиковой мощности лазера на красителе получено значение 300 - 350 W, что при радиусе пятна 1 мм соответствует плотности мощности накачки $10 \frac{kW}{cm^2}$

3.2 Система наблюдения и геометрия эксперимента.

В данном эксперименте наблюдалось гиперкомбинационное рассеяние и генерация бифотонов на образцах сульфида кадмия толщиной 20 μm. Исследуемые образцы выращены так, что ось шестого порядка (она же - оптическая ось) лежит в плоскости кристалла. Накачка производилась двумя пучками импульсного лазера на красителе (см. выше), падающими на кристалл симметрично относительно нормали; при этом угол между лучами составлял 90°. Фокусировка на кристалл линзами Л1 и Л2 (рис. 4С,4D) позволяла регулировать плотность мощности и размер прокачиваемой области. Для наблюдения гиперкомбинационного рассеяния достаточно было перекрыть один из пучков.

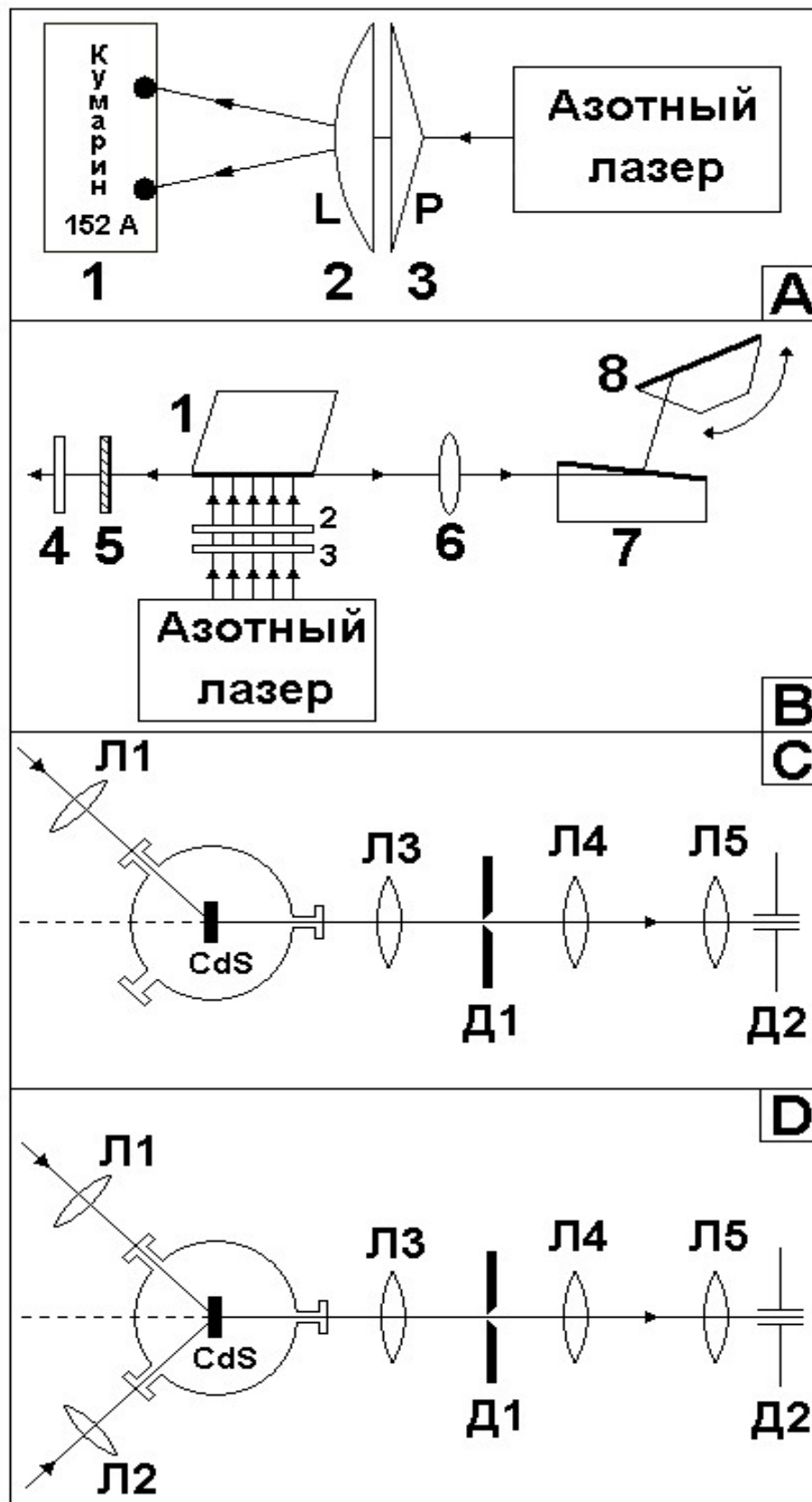


Рис. 4: Экспериментальная установка. Часть А иллюстрирует фокусировку азотного лазера на кювету с красителем, вид сбоку; на рисунке В представлена оптическая схема одного каскада резонатора, вид сверху. 1 - кювета с красителем, 2 - цилиндрическая линза, 3 - бипризма, 4 - пластина $\frac{\lambda}{2}$, 5 - полупрозрачное выходное зеркало, 6 - коллимирующая линза, 7 - призма-телескоп, 8 - отражающая решетка. Рисунок С иллюстрирует схему для наблюдения гиперкомбинационного рассеяния, рисунок D - схему для генерации бифотонов.

Образец был помещен в криостат, температура в котором поддерживалась терморегулятором tSTAT310t в районе 5К. Наблюдение производилось в двух различных геометриях: 1 - плоскость рассеяния перпендикулярна оптической оси, 2 - оптическая ось лежит в плоскости рассеяния. При этом в обеих геометриях поляризация накачки была выставлена перпендикулярно оптической оси кристалла. В соответствии с правилами отбора, это обеспечивало максимальную вероятность процессов гиперкомбинационного рассеяния и генерации бифотонов. Переход от одной геометрии к другой осуществлялся поворотом образца в криостате вокруг оси наблюдения и поворотом плоскости поляризации накачки пластиной $\frac{\lambda}{2}$.

Выходное излучение регистрировалось вдоль нормали к плоскости кристалла. Схема наблюдения состояла из линзы Л3, строящей изображение кристалла в плоскости щели Д1, позволяющей выделить наиболее эффективную область пятна люминесценции и тем самым снизить фоновый сигнал, и системы объективов Л4 и Л5, первый из которых давал на выходе параллельный пучок, а второй фокусировал излучение на входную щель Д2 двойного спектрографа ДФС-24. Предельное спектральное разрешение данной системы составило 0,3 Å.

4 Экспериментальные результаты.

В данной работе произведено наблюдение прямого и обратного процесса гиперкомбинационного рассеяния с генерацией бифотонов. Исследован характер зависимости процесса от ориентации оси С кристалла, исследовано влияние интенсивности накачки и температуры в обоих случаях.

Характерный вид спектра гиперкомбинационного рассеяния приведен на рисунке 5А. Подобные спектры ранее были получены и исследованы в работе [9]. Помимо биэкситонной M - полосы и линии экситонно-примесного комплекса I_2 по разные стороны от линии накачки наблюдаются пики RT^+ и RT^- , соответствующие поляритонам \vec{k}_R^+ и \vec{k}_R^- (схема на рис. 2С) [9]. Действительно, из интерпретации процесса гиперкомбинационного рассеяния (рис. 2С) видно, что энергии поляритонов \vec{k}_R^+ и \vec{k}_R^- , соответственно, больше и меньше энергии падающего излучения. Резонансный характер зависимости энергий рассеянных поляритонов от энергии накачки был подтвержден в работе [9]. Методом гиперкомбинационного рассеяния там было изучено поведение диэлектрической проницаемости вблизи биэкситонного резонанса. При этом остался открытым вопрос о зависимости интенсивности линий рассеяния от интенсивности накачки.

Из модели четырехволнового смешения следует, что вероятность процесса (8) во втором порядке теории возмущений может быть записана в виде [10]

$$w = \frac{2\pi}{\hbar} \left| \sum_m \frac{\langle fin | \hat{H} | m \rangle \langle m | \hat{H} | init \rangle}{2\hbar\omega_i - E_R - E_f} \right|^2 \delta(2\hbar\omega_i - E_R - E_f) \quad (9)$$

где $|init\rangle$, $|fin\rangle$ - соответственно, начальное и конечное состояния поляритонной системы, \hat{H} - гамильтониан взаимодействия электронной системы с полем, а суммирование производится по всем промежуточным состояниям $|m\rangle$. В дипольном приближении гамильтониан взаимодействия пропорционален амплитуде поля и импульсу электрона $\hat{H} \sim (\vec{A}, \hat{p})$ [10]. Поэтому из (9) следует, что вероятность процесса пропорциональна четвертой степени амплитуды поля, или, что то же самое, квадратично зависит от интенсивности накачки. Заметим, что приведенное выражение для вероятности перехода не вполне корректно при рассмотрении процесса гиперкомбинационного рассеяния, поскольку оно не отражает тот факт, что рассеяние идет через промежуточное биэкситонное состояние, причем действуют вышеуказанные правила отбора. Тем не менее, на зависимости вероятности процесса от интенсивности поля это не сказывается.

Измеренные зависимости интенсивности линий рассеяния от интенсивности накачки приведены на рисунке 5В. Зависимости приведены в логарифмических масштабах по обеим осям, причем по оси X отложен квадрат плосности мощности накачки. В таком масштабе квадратичная зависимость должна иметь вид прямой с единичным наклоном. Видно, что квадратичная зависимость имеет место лишь при сравнительно слабых (менее $5 \frac{kW}{cm^2}$) интенсивностях падающего излучения. А при интенсивности накачки, превышающей значение $P_{max} = 5 \frac{kW}{cm^2}$, для обеих линий рассеяния наступает насыщение. Величина P_{max} зависит от геометрии эксперимента: насыщение наступает значительно раньше (при $2 \frac{kW}{cm^2}$), если ось С перпендикулярна плоскости рассеяния (рис. 5В).

По-видимому, насыщение происходит вследствие того, что при увеличении мощности накачки в некоторый момент становится существенным затухание экситонных состояний вследствие релак-

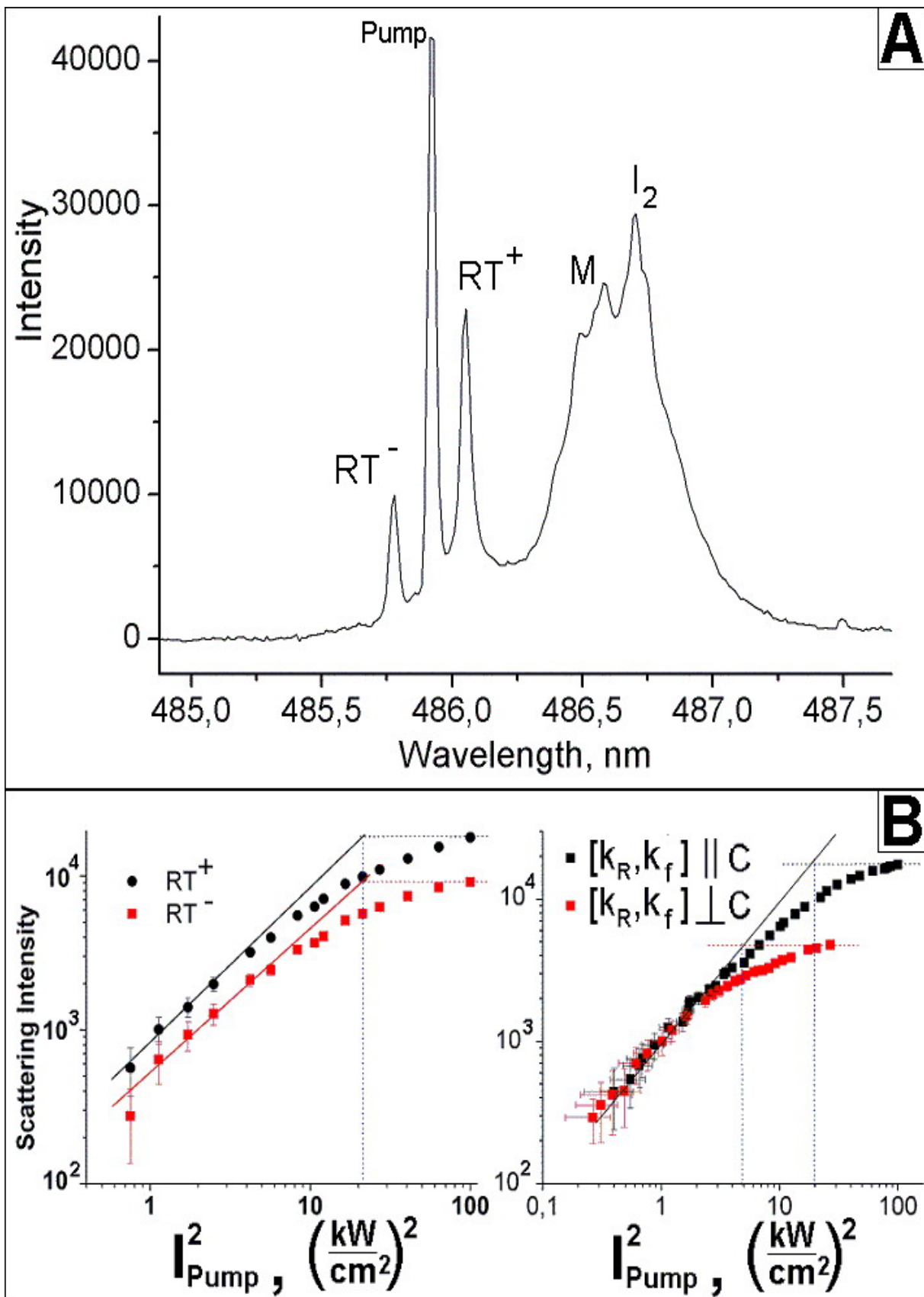


Рис. 5: **A**: Характерный вид спектра гиперкомбинационного рассеяния. **B**: Зависимости логарифма интенсивности линий рассеяния RT^+ и RT^- от логарифма квадрата интенсивности накачки, зависимости логарифма интенсивности RT^+ при различных ориентациях плоскости рассеяния. Сплошные прямые соответствуют строго квадратичным зависимостям.

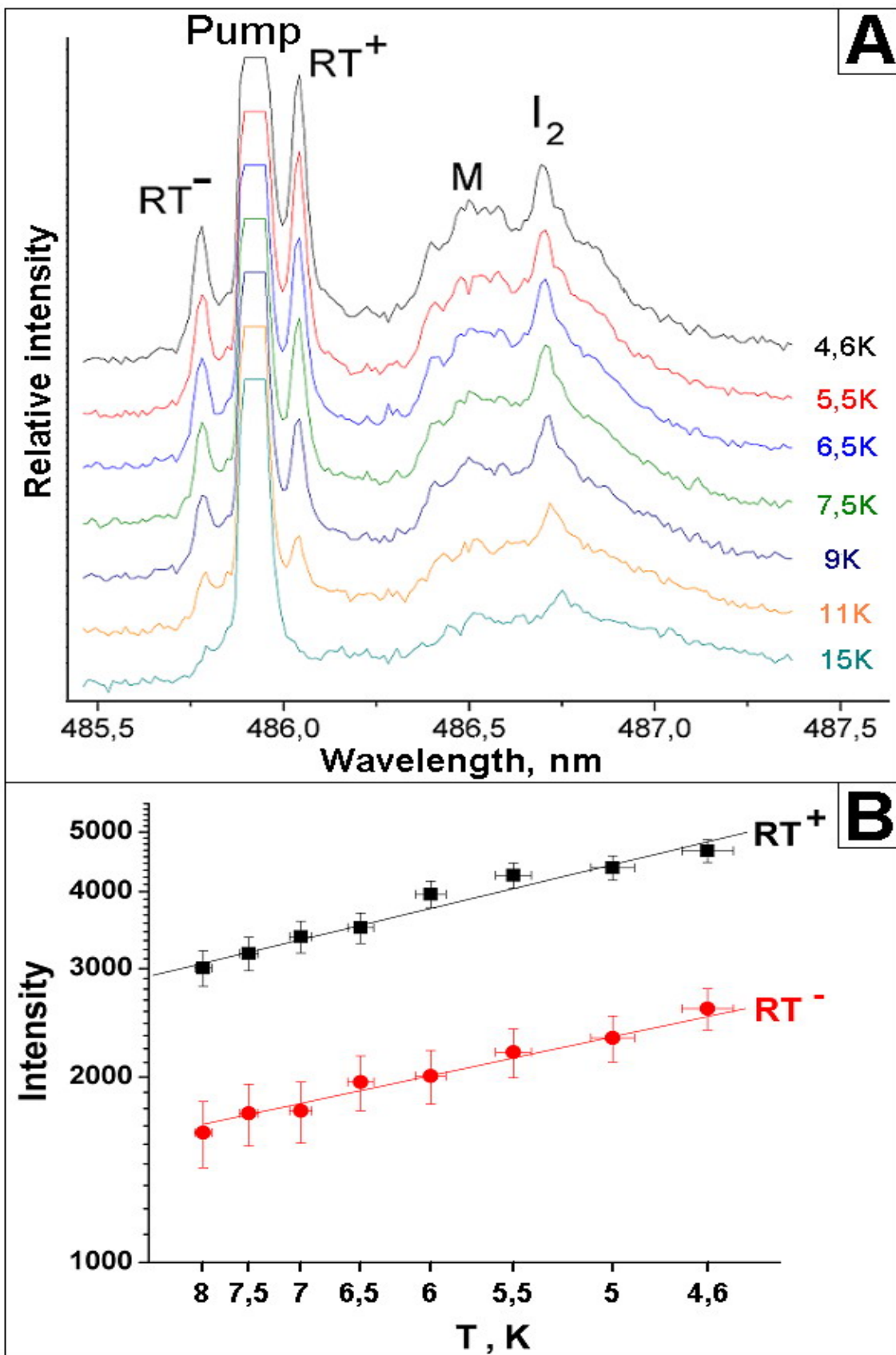


Рис. 6: **A:** Спектры гиперкомбинационного рассеяния, снятые при различных температурах в диапазоне 4,5 - 15 К. **В:** Зависимость логарифма интенсивности линий RT^+ и RT^- от обратной температуры.

сации экситонов на рождающихся под действием лазерного излучения неравновесных экситонах и фононах, число которых растет с ростом мощности накачки. Зависимость порога насыщения от геометрии эксперимента может быть объяснена различной вероятностью рассеяния "тяжелых" и "легких" экситонов (соответствующих направлению вдоль и поперек оси С) на фононах. На рисунке **2В** помимо законов дисперсии поляритонов приведены наклоны дисперсии акустических фононов в CdS в том же масштабе. Из геометрических соображений следует, что количество состояний, в которые происходит рассеяние поляритонов на акустических фононах больше для "легких" поляритонов, то есть в геометрии когда ось С перпендикулярна плоскости рассеяния, значит, и вероятность рассеяния в данном случае больше. Это может привести к насыщению при более слабой интенсивности накачки.

Очевидно, что помимо неравновесных фононов, на процесс рассеяния также влияют равновесные фононы. Исследование температурной зависимости линий рассеяния показало, что с ростом температуры, то есть с увеличением числа фононов в системе, интегральная интенсивность линий рассеяния также падает. На рисунке **6** представлены спектры гиперкомбинационного рассеяния, снятые при различных температурах образца в диапазоне от 4,6 до 15 К, а также построена зависимость логарифма интенсивности линий RT^+ и RT^- от обратной температуры. Видно, что уже при 15 К рассеяние поляритонов на равновесных фононах приводит к существенному уменьшению интенсивности линий гиперкомбинационного рассеяния.

Таким образом понятно, что увеличение интенсивности и снижение температуры позволяют увеличить полезный сигнал на выходе лишь до определенного предела. Аналогичное поведение процесса следует ожидать в обратном процессе рассеяния при генерации бифотонов.

Обратимся к результатам исследования свойств бифотонов, полученных в процессе четырехволнового смешения. Поскольку исследования гиперкомбинационного рассеяния показали, что оптимальной с точки зрения соотношения интенсивности полезного сигнала на выходе и интенсивности диффузного рассеяния падающего излучения на поверхности кристалла является геометрия, в которой ось С лежит в плоскости рассеяния, то все последующие исследования обратного процесса рассеяния с генерацией бифотонов проводились именно в такой геометрии. На рисунке **7** показан спектр, записанный в этих условиях. Линии P1 и P2 соответствуют накачке, а линия В между ними соответствует генерации бифотонов.

На рисунке **8** показано поведение спектров, записанных при различных частотах накачки P1. При этом оставались неизменными частота второго луча и направления лучей накачки. На рисунке видно, что интенсивность линии В очень чувствительна к изменению энергии накачки, а при достаточно сильной расстройке разрешающая способность оптической системы позволяет наблюдать двойную линию В, соответствующую невырожденным по энергии бифотонам.

В случае двухчастотных накачек процесс образования неравновесных фононов, по-видимому, имеет более сложный характер, однако качественно понятно, что, как и в случае гиперкомбинационного рассеяния, ожидаемая линейная зависимость интенсивности бифотонной линии от интенсивности одного из лазерных пучков [10] имеет место при слабых мощностях последнего, а при увеличении мощности насыщается. Это и наблюдалось в эксперименте. На рисунке **9** показано, как ведут себя интенсивности бифотонной линии и линии рассеяния RT^+ в одном диапазоне интенсивности накачки. Зависимости приведены в логарифмическом масштабе, по оси X при построении зависимости интенсивности линии RT^+ отложен квадрат интенсивности накачки, при построении зависимости интенсивности линии В - произведение интенсивностей двух накачек. В данных координатах обе зависимости при слабом уровне накачки представляют собой прямые с единичным наклоном, при больших плотностях мощности наступает насыщение. Отметим, что варьирование мощности в обоих измерениях производилось для одного и того же пучка. Это исключает возможные эффекты, связанные с возбуждением различных областей кристалла. Интенсивность второго луча при генерации бифотонов поддерживалась постоянной (около $8 \frac{kW}{cm^2}$).

Произведено исследование температурной зависимости интенсивности линии В. На рисунке **10А** приведены спектры генерации бифотонов, снятые в диапазоне температур (4,6 - 14К). На рисунке **10В** показана зависимость интенсивности бифотонной линии от температуры. Как и в случае гиперкомбинационного рассеяния, интенсивность линии В уменьшается с ростом температуры и при 14-15 К практически равна нулю.

Выполненные исследования показали, что эффективное увеличение потока генерируемых бифотонов происходит лишь до определенного порога мощности накачки. Варьирование температуры также не может кардинально повлиять на ход процесса. Максимальная интегральная интенсивность линии В, полученная в режиме насыщения по мощности накачки составила 2000 счетов в

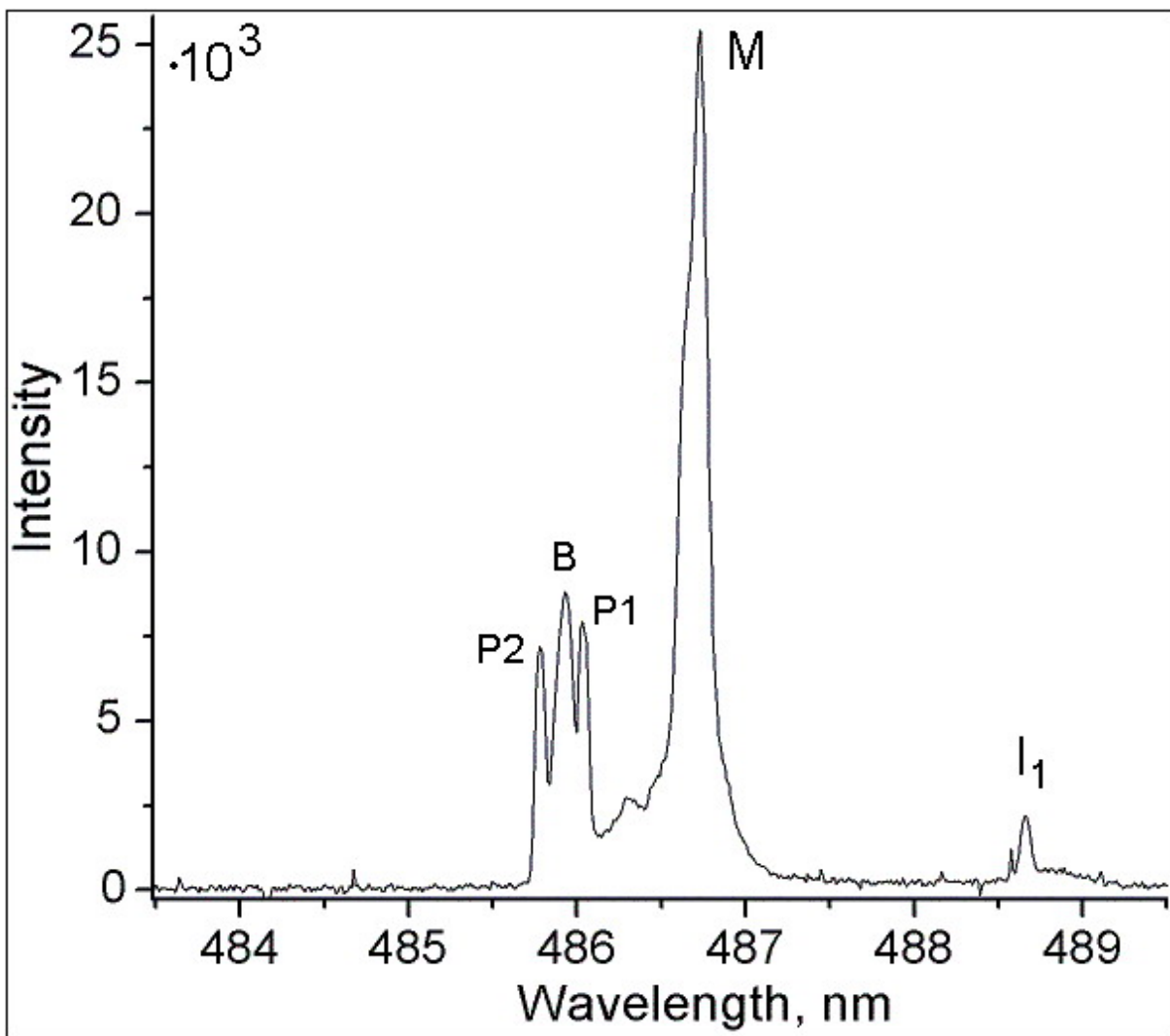


Рис. 7: Спектр обратного процесса гиперкомбинационного рассеяния с генерацией бифотонов.

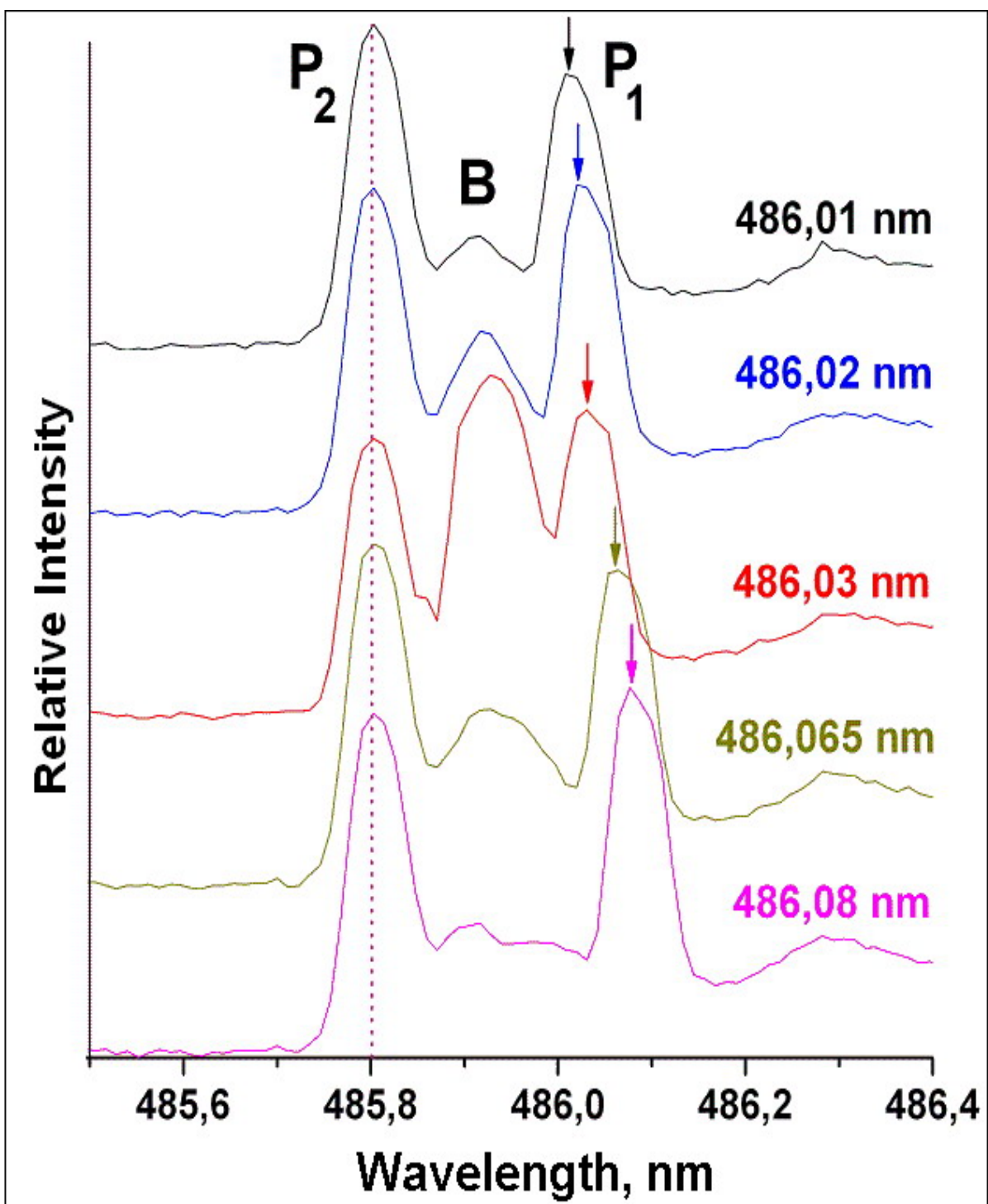


Рис. 8: Резонансная зависимость интенсивности бифотонной линии от длины волны одной из накачек.

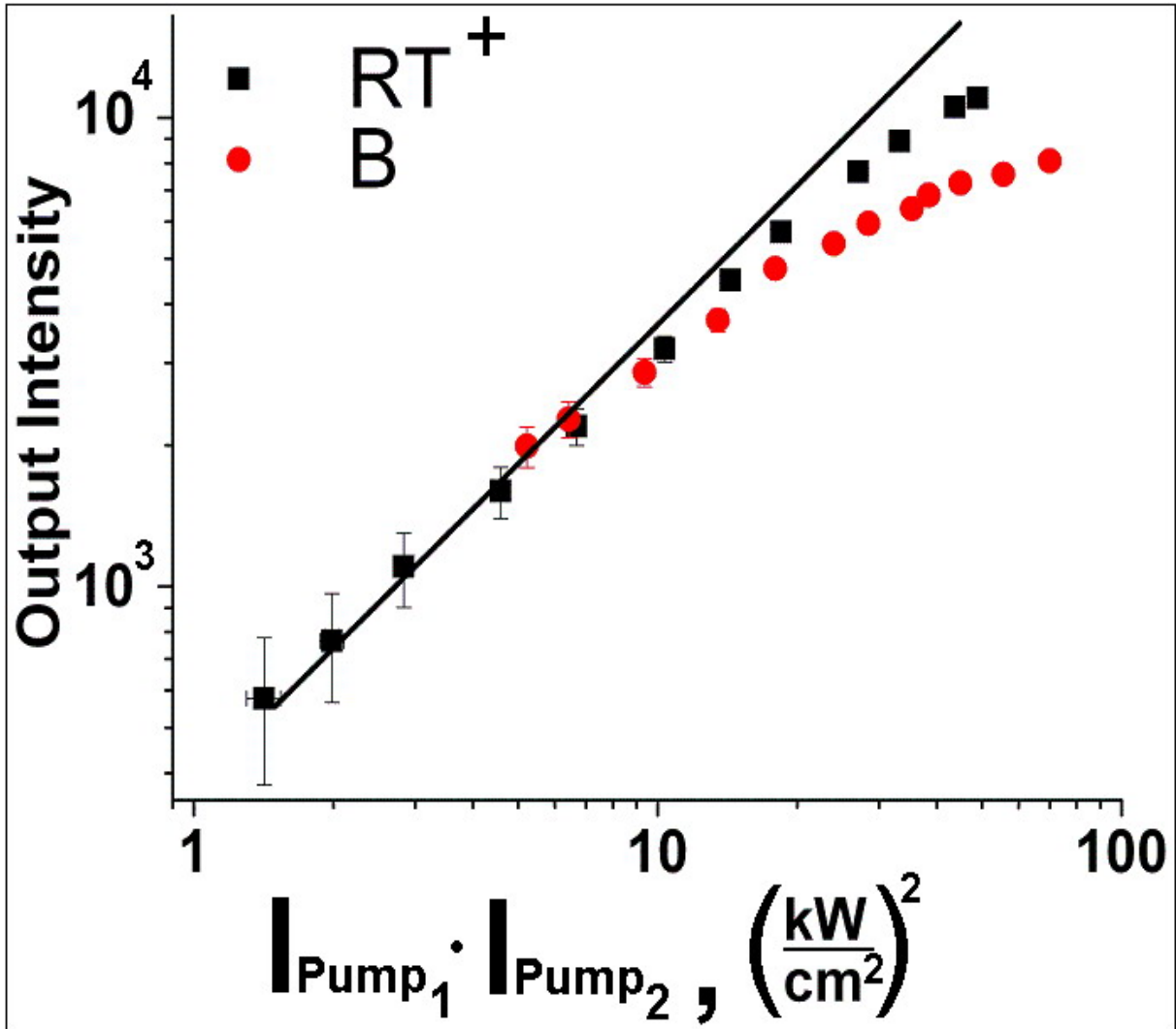


Рис. 9: Зависимость логарифма интенсивности бифотонной линии и линии гиперкомбинационного рассеяния RT^+ от накачки. В случае гиперкомбинационного рассеяния по оси X отложен логарифм квадрата интенсивности накачки, в случае генерации бифотонов - логарифм произведения накачек. Прямой линии на рисунке соответствует линейная зависимость от произведения интенсивностей накачек.

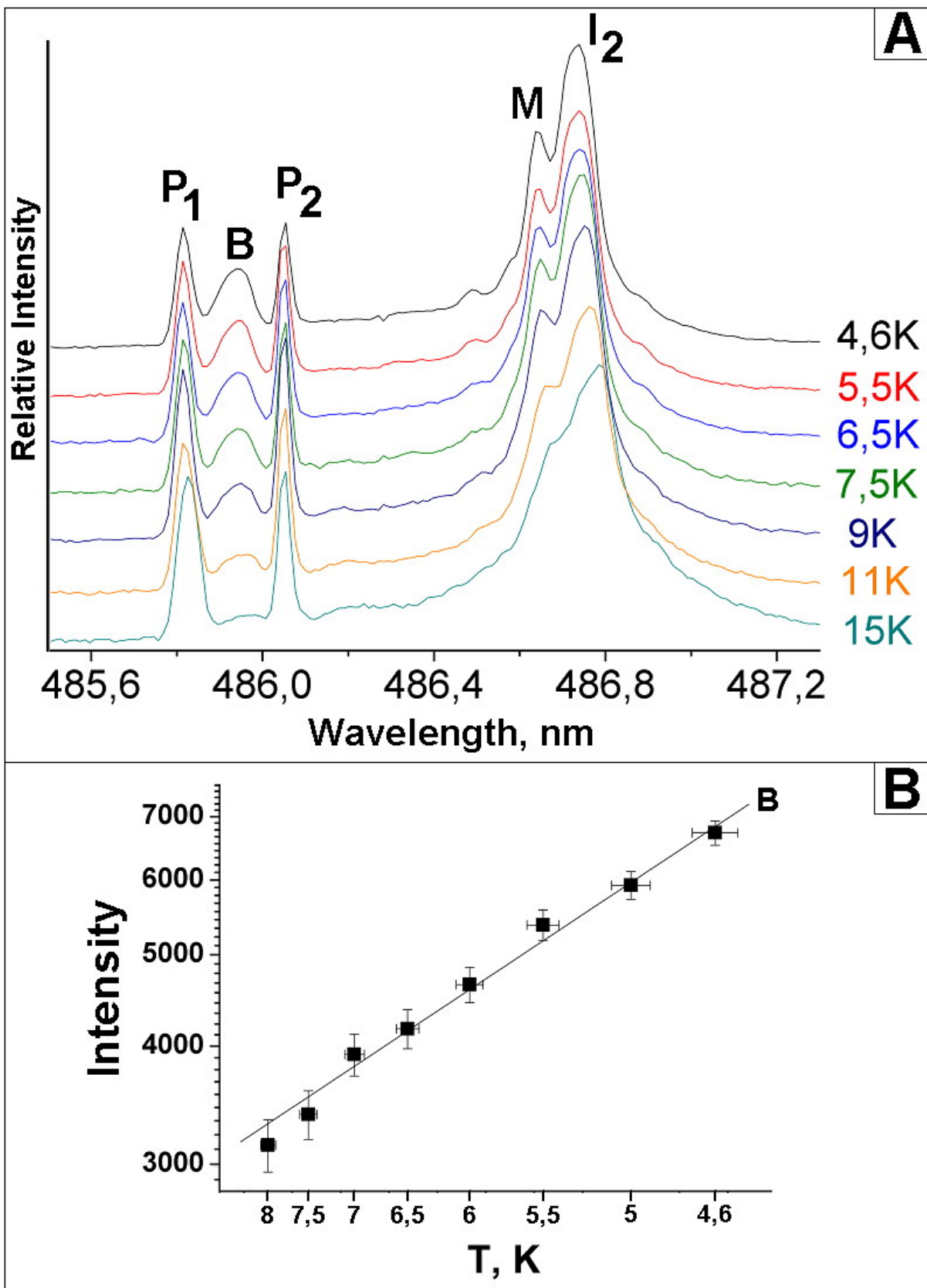


Рис. 10: **A**: Спектры генерации бифотонов, снятые при различных температурах образца. **B**: Зависимость логарифма интенсивности бифотонной линии от обратной температуры.

секунду, что соответствует потоку бифотонов около $4 \cdot 10^5$ бифотонов в секунду (считается, что коэффициент пропускания системы около 10^{-2} , квантовая эффективность CCD-камеры около 50%).

Дальнейшего увеличения выходного сигнала можно добиться путем увеличения частоты повторения импульсов. При этом в промежутке между отдельными импульсами должна произойти релаксация фононной системы к равновесному состоянию. В работе [11] было изучено влияние неравновесных фононов на затухание экситонного состояния в кристаллах CdS. Было показано, что время релаксации в тонких образцах порядка $5 \mu\text{s}$.

Таким образом, максимальная частота следования импульсов накачки, при которой неравновесные фононы, возникшие в первом импульсе, не будут влиять на последующие составляет 200 кГц. При данной интенсивности накачки (около $10 \frac{\text{kW}}{\text{cm}^2}$) максимальный поток бифотонов составляет $4 \cdot 10^5$ бифотонов в секунду, то есть на каждый импульс приходится в среднем $1,6 \cdot 10^4$ бифотонов. Максимально возможный выходной сигнал при такой же мощности накачки и частоте следования импульсов 200 кГц составит $3,2 \cdot 10^9$ бифотонов в секунду, и этого вполне достаточно для использования такого источника как инструмент для дальнейших исследований различных нелинейных процессов в физике твердого тела.

5 Заключение.

Произведено исследование зависимости интенсивности гиперкомбинационного рассеяния в кристаллах сульфида кадмия от плотности мощности накачки. Обнаружено, что при малых плотностях возбуждения интенсивность рассеяния пропорциональна квадрату плотности мощности и не зависит от ориентации оптической оси кристалла. С ростом плотности возбуждения происходит насыщение сигнала рассеяния из-за увеличения затухания поляритонных состояний вследствие рассеяния поляритонов на неравновесных экситонах и фононах. Оказалось, что плотность возбуждения, при которой происходит насыщение сильно зависит от геометрии эксперимента: насыщение наступает раньше, если ось С перпендикулярна плоскости рассеяния. Показано, что на процесс гиперкомбинационного рассеяния также влияют равновесные фононы и на основании проделанных исследований найдены оптимальные условия (угол падения, ориентация кристалла, мощность накачки) наблюдения процесса рассеяния.

В найденных оптимальных условиях осуществлен обратный процесс рассеяния с генерацией бифотонов, вырожденных по направлению и по энергии. Исследованы зависимости интенсивности бифотонной линии от мощности накачки и влияние температуры на ход обратного процесса. Показано, что интенсивность бифотонной линии при малой плотности возбуждения зависит от нее линейно, а при повышении мощности накачки также наблюдалось насыщение. Обсуждена возможность получения потоков бифотонов большей интенсивности для использования их в качестве инструмента для дальнейших исследований, в частности оценен максимально возможный сигнал, который можно получить в ходе такого процесса.

В заключение хочу выразить благодарность моему научному руководителю Владимиру Дмитриевичу Кулаковскому, Михаилу Витальевичу Лебедеву за помощь в проведении эксперимента и плодотворные обсуждения, а также всему коллективу ЛНЭП ИФТТ за приятную дружественную атмосферу.

Список литературы

- [1] E.Schrodinger, Die Gegeneartige Situation in der Quantenmechanik. *Naturwissenschaften* **23**, 807-812, 823-828, 844-849 (1935); E.Schrodinger (trans. John D.Trimmer), The present situation in quantum mechanics: a translation of Schrodinger's "Cat Paradox"paper. *Proceedings of the American Philosophical Society*, **124**, 323 (1980)
- [2] A.Einstein, B.Podolsky, and N.Rosen, Can Quantum Mechanical Description of Quantum Reality Be Considered Complete? *Phys. Rev.* **4**,77-84 (1935)
- [3] Д.Н. Клышко, Парадокс Эйнштейна-Подольского-Розена для наблюдаемых "энергия-время", *УФН*, том **158**, вып. 2, 327-341 (1989)
- [4] Д.Н. Клышко, А.Н. Пенин, Перспективы квантовой фотометрии, *УФН*, том **152**, вып. 4, 653-665 (1987)

- [5] Б.Я. Зельдович, Д.Н. Клышко, Статистика поля при параметрической люминесценции, Письма в ЖЭТФ, т.9, вып.1 69-72 (1969)
- [6] D.C.Burnham and D.L.Weinberg, Observation of simultaneousty in parametric production of optical photon pairs. Phys.Rev.Lett., 25, 84-87 (1970)
- [7] Physics and chemistry of II-VI Compounds, M. Aven, J.S. Prener, General Electric Research and Development Center Schenectady, New York, USA; Физика и химия соединений $A^{II}B^{VI}$, под ред. С.А. Медведева, издательство "Мир" (1970)
- [8] В.Д. Кулаковский, В.Г. Лысенко, В.Б. Тимофеев, Экситонные молекулы в полупроводниках, УФН, том 147, вып. 1, (1985)
- [9] М.В. Лебедев, В.Г. Лысенко, Исследование нелинейной диэлектрической проницаемости в области биэкситонного резонанса методом гиперкомбинационного рассеяния, ФТТ, том 27, вып. 9, 2624-2630 (1985)
- [10] The Quantum Theory of Light, Rodney Loudon, Clarendon Press, Oxford (1973); Квантовая теория света, Р. Лоудон, издательство "Мир" (1976)
- [11] М.В. Лебедев, Неравновесный фононный разогрев кристалла CdS в условиях мощного импульсного оптического возбуждения, ЖЭТФ, том 103, вып. 3, 986-993 (1993)