

ДВУХФОТОННАЯ ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ ПРИ НАЛИЧИИ ПОГЛОЩЕНИЯ

С. П. Кулик^{a}, Г. А. Масленников^a, С. П. Меркулова^b,
А. Н. Пенин^a, Л. К. Радченко^a, В. Н. Крашенинников^b*

^a *Московский государственный университет им. М. В. Ломоносова
119992, Москва, Россия*

^b *Институт спектроскопии Российской академии наук
142190, Троицк, Московская обл., Россия*

Поступила в редакцию 17 июля 2003 г.

Обсуждаются эксперименты по двухфотонной интерференции при наличии поглощения во всех модах, участвующих в процессе спонтанного параметрического рассеяния света. Объектом исследования выступают сверхтонкие золотые пленки толщиной 10–80 Å, нанесенные на кварцевые подложки. Определены условия, при которых поглощение для сигнальной волны и накачки оказывает незначительное влияние на интерференционную картину. Показано, что при реализации этих условий видность интерференционной картины и вид частотно-углового спектра на сигнальной волне определяются оптическими параметрами среды на частоте холостой волны, принадлежащей ближнему ИК-диапазону.

PACS: 42.50.Ct

1. ВВЕДЕНИЕ

Эффект двухфотонной интерференции (ДИ) [1–3] на протяжении двух десятилетий привлекает внимание физиков. В основном это связано с интерпретацией ряда экспериментов, базирующихся на эффекте двухфотонной интерференции, а также с относительной простотой получения двухфотонных (неклассических) состояний света. Наиболее эффективным источником таких состояний служит процесс спонтанного параметрического рассеяния (СПР) света. В последнее время различные аспекты двухфотонной интерференции исследуются в контексте физики квантовой информации: такие ее разделы как генерация перепутанных состояний, квантовая криптография, квантовая телепортация и др. [4] активно используют накопленный опыт в приготовлении, преобразовании и измерении двухфотонного света. Возможно, этот опыт окажется полезным при создании квантовых коммуникационных устройств, использующих неклассические состояния света в качестве переносчиков информа-

ции. Вместе с тем несколько в стороне оказывается другое свойство двухфотонной интерференции, которое может оказаться полезным в спектроскопии. Дело в том, что сама интерференционная картина обязательно несет отпечаток свойств той среды (или нескольких сред), в которой происходит генерация и преобразование двухфотонного света. Следовательно, можно решать обратную задачу — по интерферограммам двухфотонной интерференции восстанавливать свойства рассеивающей и/или преобразующей среды, как это делается в спектроскопии комбинационного рассеяния или рассеяния света на поляритонах. Последний метод является предельным случаем СПР, когда частота одной из волн попадает в диапазон собственных колебаний кристаллической решетки нелинейного кристалла [5]. В этом смысле интерферометрия спонтанного параметрического рассеяния света является обобщением метода поляритонной спектроскопии на линейные среды, где $\chi^{(2)} = 0$.

Форма линии двухфотонного СПР света в отдельном слое при учете интерференционных эффектов, связанных с отражением и поглощением всех

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

участвующих в процессе волн, была рассмотрена в [6, 7]. Спектроскопические аспекты эффекта двухфотонной интерференции обсуждалась в литературе в контексте нелинейной дифракции [8, 9]. В работе [10] рассмотрен метод диагностики квазирегулярных доменных структур по частотно-угловым спектрам спонтанного параметрического рассеяния света. В работах [11–14] исследовались возможности двухфотонной интерферометрии как метода, позволяющего оценивать оптические параметры веществ, помещенных в нелинейный интерферометр.

В настоящей работе обсуждается применение метода двухфотонной интерферометрии для исследования тонких металлических пленок, нанесенных на кварцевые подложки.

2. ДВУХФОТОННАЯ ИНТЕРФЕРЕНЦИЯ В СХЕМЕ МАХА–ЦАНДЕРА

2.1. Нелинейный интерферометр Маха–Цандера при наличии нескольких слоев

Рассмотрим систему $(n + 2) = x$ плоских слоев, показанных на рис. 1. Первый и последний слои обладают квадратичной восприимчивостью $\chi^{(2)} \equiv \chi$, в промежуточных слоях эта величина равна нулю, они различаются только значениями диэлектрической проницаемости ϵ_q , где q — номер слоя. Такая система получила в литературе название нелинейного интерферометра Маха–Цандера (НИМЦ) [15]. Это связано с тем, что при распространении лазерного пучка поперек слоев в первом и последнем слое за счет χ возбуждается нелинейная по-

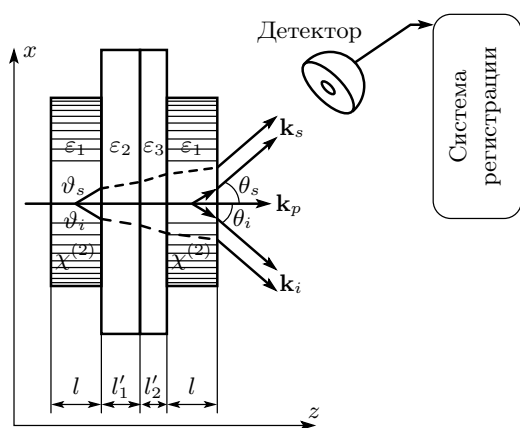


Рис. 1. Схема нелинейного интерферометра Маха–Цандера с двумя нелинейными кристаллами

ляризация; эти слои аналогичны светоделителям, выполняющим функции разделения/смешения пространственно-частотных мод. Возникающие в нелинейном процессе оптические поля с новыми частотами при распространении через промежуточные слои ($q = 1, \dots, n - 1$) приобретают различные фазовые задержки и, следовательно, могут интерферировать на выходе всей системы при обеспечении когерентности между ними¹). Фазовые задержки компонент поля определяются дисперсией диэлектрической проницаемости $\epsilon_l(\omega)$. Осциллирующие зависимости интенсивности рождающихся полей при изменении какого-нибудь параметра системы, например оптической толщины промежуточных (линейных) слоев, являются предметом исследования в методе нелинейной интерферометрии [12, 16]. В рассматриваемом случае бифотонное поле рождается в первом и втором нелинейных кристаллах в процессе СПР [17]. Напомним, что при СПР фотон лазерной накачки (p) спонтанно распадается на пару фотонов — так называемый сигнальный (s) и холостой (i). В стационарном случае частоты фотонов связаны законом сохранения энергии

$$\omega_p = \omega_s + \omega_i, \tag{1}$$

а направление родившегося излучения определяется законом дисперсии среды

$$k = \frac{\omega}{c} \sqrt{\epsilon(\omega)} \tag{2}$$

через условие пространственного синхронизма:

$$\mathbf{k}_p = \mathbf{k}_s + \mathbf{k}_i + \mathbf{\Delta}. \tag{3}$$

Здесь \mathbf{k}_j ($j = p, s, i$) — волновые векторы, а $\mathbf{\Delta}$ — волновая расстройка, связанная с размерами нелинейных кристаллов. Поскольку слои полагаются бесконечными в поперечном направлении, имеем $\Delta_{\perp} \rightarrow 0$, где $\Delta_{\perp} = k_p^x - k_s^x - k_i^x$. При распространении накачки вдоль оси z имеем $k_p = k_p^z$. В результате получаем жесткую связь между направлениями разлета сигнальных и холостых фотонов $k_s^x = -k_i^x$ или $k_s \sin \vartheta_s = -k_i \sin \vartheta_i$, где ϑ_s, ϑ_i — углы между осью z и направлениями разлета сигнальных и холостых фотонов внутри кристаллов. В приближении малого поглощения, справедливом в области прозрачности кристаллов, в дисперсионное соотношение (2) входят действительные части волнового вектора $k_j \equiv 2\pi n_j / \omega_j$ ($j = s, p, i$) и диэлектрической проницаемости.

¹) Когерентность компонент интерферирующих полей обеспечивается общей лазерной накачкой, которую мы полагаем классической и заданной.

Формально зависимость интенсивности СПР от частоты и угла рассеяния (форма линии) пропорциональна квадрату модуля суммы амплитуд бифотонных полей, испущенных из различных макроскопических областей [18]. В нашем случае таких областей две — это нелинейные кристаллы, входящие в НИМЦ. Таким образом,

$$I_s(\omega_s, \theta_s) \propto \left| \sum_{m=1}^2 f_m \right|^2 = |f_1|^2 + |f_2|^2 + 2 \operatorname{Re}(f_1 f_2^*). \quad (4)$$

Амплитуды f_m определяют волновую функцию бифотонного поля. Они зависят от напряженности поля лазерной накачки, квадратичной восприимчивости кристалла, частот взаимодействующих полей и т. д. Третье слагаемое в (4) описывает периодическую модуляцию интенсивности рассеяния при изменении относительной фазы между двумя амплитудами. В стационарных условиях эксперимента двухфотонная интерференция или интерференция бифотонов во втором порядке по полю наблюдается в виде чередующихся максимумов и минимумов интенсивности частотно-угловых спектров СПР; при этом относительная фаза в (4) набегают при изменении направления и/или частоты наблюдения [11].

Если кристаллы прозрачны на всех трех частотах ω_p , ω_s , ω_i , то зависимость интенсивности наблюдаемого (сигнального) излучения от частоты и угла рассеяния дается соотношением

$$I_s(\theta_s, \omega_s) \propto \left[\frac{\sin(\Delta l/2)}{\Delta l/2} \cos \left\{ \frac{1}{2} \left(\Delta L + \sum_{q=1}^n \Delta'_q l'_q \right) \right\} \right]^2, \quad (5)$$

где $\Delta' = k'_p - k'_s - k'_i$ — z -компонента волновой расстройки в промежуточных средах. В выражении (5) первый множитель описывает частотно-угловую форму линии спонтанного параметрического рассеяния света в плоском нелинейном слое [17]. Второй множитель возникает из-за интерференции сигнальных полей, рожденных в крайних слоях; этот множитель дает модуляцию формы линии за счет вкладов фазовых расстройек $\delta' = \Delta' l'$ в промежуточных материалах. Явный вид зависимости волновых расстройек δ и δ' от наблюдаемых в эксперименте параметров (длины волны λ_s и наружного угла θ_s) приводится в [12].

Формула (5) является частным случаем выражения, полученного в [19] для НИМЦ, содержащего несколько прозрачных линейных сред. Она получается при учете вклада в пропагаторы сигнальных и

холостых мод, а также моды накачки дисперсии всех промежуточных слоев (без учета отражений). Заметим, что в реальных интерферометрических схемах, использовавшихся в экспериментах [12–14], наблюдаемая форма линии рассеяния описывается именно формулой (5), поскольку всегда между нелинейными кристаллами и «диспергирующим» веществом присутствуют воздушные зазоры, так что вся схема является не трехслойной, а пятислойной.

2.2. Учет потерь на холостой частоте

С точки зрения интерпретации результатов эксперимента интересным является случай, когда в схеме, показанной на рис. 1, регистрируется сигнальное излучение, а в холостых (ненаблюдаемых) модах имеются потери, например, вызванные поглощением или отражением. Этот случай был впервые рассмотрен Манделем с соавторами [20]. В предложенной ими схеме удалось пространственно разделить сигнальные и холостые моды, рожденные в разных нелинейных кристаллах. В такой геометрии удобно контролировать пропускание в холостой моде помещением в нее фильтров с разной оптической плотностью. Наблюдаемый при этом эффект был назван «индуцированной когерентностью», поскольку видимость интерференционной картины, наблюдаемой в сигнальной моде, определяется коэффициентом пропускания фильтра, вводимого в холостую моду. В работах [11–14] было отмечено, что эффект «индуцированной когерентности» может найти применение в спектроскопии, когда холостые частоты попадают в ИК-диапазон спектра, а регистрация сигнального излучения ведется в видимом диапазоне.

Физически схема, рассматриваемая в настоящей работе (рис. 1), принципиально не отличается от схемы, предложенной в [20]. Однако с экспериментальной точки зрения рассматриваемая схема НИМЦ удобнее, поскольку в ней автоматически выполняется условие поддержания постоянной разницы оптических путей в сигнальных и холостых модах [11]. В этой схеме форма линии сигнального излучения при конечном амплитудном коэффициенте пропускания одной из промежуточных сред на холостых частотах τ_i определяется следующим выражением, учитывающим наличие потерь:

$$I_s(\omega_s, \theta_s) \propto \frac{1}{2} \left[\frac{\sin(\Delta l/2)}{\Delta l/2} \right]^2 \times \left\{ 1 + |\tau_i| \cos \left(\Delta l + \sum_{q=1}^p \Delta'_q l'_q \right) \right\}. \quad (6)$$

Коэффициент пропускания τ_i связывает операторы уничтожения фотонов в холостых модах после первого и второго нелинейных кристаллов [21]. Заметим, что родившееся в первом кристалле холостое поле имеет характерную спектральную яркость порядка $10^{-8} \ll 1$ фотонов на моду и не оказывает влияния на процесс СПР во втором кристалле (спонтанный режим), откуда следует связь

$$\hat{a}_{i2}(\omega_i) = \tau_i \hat{a}_{i1}(\omega_i) + r_i^{eff} \hat{a}_{vac}(\omega_i). \quad (7)$$

Появление второго слагаемого в (7) диктуется унитарностью преобразования: оператор \hat{a}_{vac} описывает вакуумное поле, подмешиваемое в холостую моду с весом r_i^{eff} при $|\tau_i|^2 < 1$; при этом

$$|\tau_i|^2 + |r_i^{eff}|^2 = 1.$$

Коэффициент r_i^{eff} учитывает потери, связанные с отражением и поглощением.

Для одинаковых нелинейных кристаллов ($\varepsilon_1 \equiv \varepsilon_4$, $\chi_1 \equiv \chi_4$) согласно схеме, изображенной на рис. 1, холостые моды \mathbf{k}_{i1} и \mathbf{k}_{i2} вырождены, поэтому соотношение (7) формально позволяет учесть потери. Детальный расчет выражения (6) в многомодовом случае приводится в работе [21].

Из выражения (6) следует, что видность интерференционной картины, определяемая стандартным образом [22]:

$$V = \frac{I_{max} - I_{min}}{I_{max} + I_{min}}, \quad (8)$$

падает до нуля при $\tau_i \rightarrow 0$, на что и обращалось внимание в работе [20]. Так, если

$$|\tau_i|^2 \propto \exp\{-\alpha_i l'\},$$

где α_i — бугеровский коэффициент поглощения на холостой частоте, затухание в холостой моде, вызванное поглощением в промежуточной среде, приводит к уменьшению видности интерференционной картины. Формула (6) показывает существенное свойство двухфотонной интерференции: потери в холостой моде не изменяют интегральную интенсивность СПР, а лишь влияют на ее форму. Это свойство лежит в основе двухфотонного интерферометрического метода оценки коэффициента поглощения нелинейных кристаллов в ближнем ИК-диапазоне [14, 23].

2.3. Учет потерь на частотах накачки и сигнала

Если линейные слои, размещенные между двумя нелинейными кристаллами, вносят потери в модах

p и s , то, с одной стороны, уменьшится амплитуда накачки во втором кристалле:

$$E_p^{(2)} = \tau_p E_p^{(1)},$$

поэтому амплитуда рождающегося во втором кристалле сигнального излучения будет

$$f_2 \propto \chi E_p^{(2)} = \chi \tau_p E_p^{(1)}.$$

С другой стороны, из-за потерь сигнального излучения, рождающегося в первом кристалле при прохождении через промежуточные слои, эта амплитуда на входе во второй кристалл уменьшается:

$$f_1 \Big|_{right} \xrightarrow{\text{потери}} f_1 \Big|_{left} = \tau_s f_1 \propto \tau_s \chi E_p^{(1)},$$

где $f_1 \Big|_{right}$ — амплитуда на правой границе первого кристалла, а $f_1 \Big|_{left}$ — амплитуда на левой границе второго кристалла. Таким образом, в интерференцию бифотонных полей дают вклад амплитуды, различающиеся не только по фазе, но и по абсолютной величине, что может привести к уменьшению видности двухфотонной интерференции. Разница в амплитудах тем заметнее, чем больше частотная дисперсия коэффициента пропускания $\tau_{s,p}(\omega)$ или чем больше отличие от единицы параметра τ_s/τ_p . Из (4) можно оценить видность интерференционной картины при двухфотонной интерференции для различных амплитуд:

$$V \sim \frac{2|\tau_s/\tau_p|}{|\tau_s/\tau_p|^2 + 1}. \quad (9)$$

Из (9) следует, что даже при $|\tau_s/\tau_p| = 2$ видность интерференции остается достаточно высокой: $V \approx 80\%$. Таким образом, можно утверждать, что потери в модах накачки и сигнальной (наблюдаемой) волны не влияют на видность двухфотонной интерференции, пока параметр $|\tau_s/\tau_p|$ не слишком сильно отличается от единицы. Так, $V \geq 90\%$, если

$$0.6 \leq |\tau_s/\tau_p| \leq 1.6. \quad (10)$$

Следовательно, при выполнении условия (10) наблюдаемое уменьшение видности двухфотонной интерференции в основном определяется потерями, имеющимися в холостой (ненаблюдаемой) моде. Этот вывод служит основой при анализе экспериментальных данных настоящей работы. Из (6) при выполнении условия (10) следует связь между видностью двухфотонной интерференции, которую можно измерить в эксперименте, и потерями на холостой частоте:

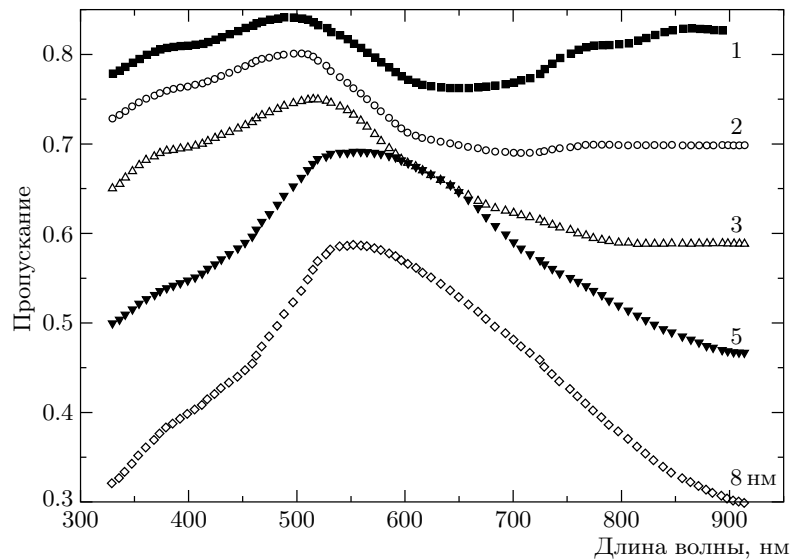


Рис. 2. Зависимости коэффициента пропускания исследуемых образцов от длины волны

$$V = |\tau_i|. \quad (11a)$$

Если учесть, что $|\tau_i|^2 \propto \exp\{-\alpha_i l'_2\}$, то оказывается, что коэффициент поглощения на холостой частоте логарифмически связан с V :

$$\alpha_i = -\frac{2 \ln V}{l'_2}. \quad (11b)$$

Таким образом, измеряя видность двухфотонной интерференции, можно непосредственно оценить коэффициент поглощения вещества (в ИК-диапазоне), размещенного между нелинейными кристаллами.

Заметим, что наличие потерь в модах s и p приводит к уменьшению интегральной интенсивности сигнала параметрического рассеяния. Поэтому интересно было бы экспериментально проверить, какой из двух факторов окажется доминирующим при увеличении потерь во всех модах s , p , i — исчезновение интерференции при еще заметной общей интенсивности сигнала параметрического рассеяния или полное исчезновение сигнала.

3. ЭКСПЕРИМЕНТ

3.1. Описание образцов

В качестве подложек использовались полированные кварцевые пластинки толщиной 0.2 мм и площадью 15×15 мм². На них методом катодного напыления наносился слой золота. В работе исследовались образцы с интегральной толщиной пленок в

рабочей области 10, 20, 30, 50 и 80 Å. При такой толщине пленки не образовывали сплошного покрытия и характеризовались наличием кластерной структуры при толщине меньше 30 Å и «дырчатой» структурой при большей толщине.

Измерение коэффициента пропускания образцов в зависимости от длины волны проводилось на спектрофотометре М400. Соответствующие зависимости показаны на рис. 2.

3.2. Экспериментальная установка и методика измерений

В эксперименте регистрировались двумерные частотно-угловые спектры спонтанного параметрического рассеяния света, излученного из НИМЦ. В качестве нелинейных сред использовались кристаллы ниобата лития, легированного окисью магния $\text{LiNbO}_3:\text{MgO}(5\%)$. Между ними помещались золотые пленки разной толщины, нанесенные на подложки из плавленого кварца. Толщина кристаллов составляла 440 мкм, толщина кварцевых подложек — 200 мкм. Накачкой служило излучение аргонового лазера с длиной волны 488 нм, мощностью 1 Вт и диаметром пучка около 2 мм²; рассеянное излучение собиралось объективом, в фокусе которого находилась входная щель спектрографа ИСП-51.

Для получения обзорных спектров использовалась стандартная для спектроскопии СПР фотографическая методика [24]. Количественная информация о форме линии рассеяния извлекалась двумя

способами. В первом после учета нелинейной зависимости почернения фотопленки от интенсивности света восстанавливалось угловое распределение интенсивности на нескольких длинах волн сигнального излучения. Во втором форма линии регистрировалась непосредственно путем сканирования двумерных спектров по углу при фиксированной длине волны. При этом в фокальной плоскости камеры спектрографа помещался фотоэлектронный умножитель (Hamamatsu R5600U), который передвигался вдоль двух координат (угол θ_s ; длина волны λ_s). Импульсы с умножителя усиливались, дискриминировались по амплитуде и поступали на счетчик. Вся электронная часть приемной системы была собрана в стандарте КАМАК.

Типичные фотографии спектров и соответствующие угловые распределения интенсивности, полученные при сканировании, показаны на рис. 3 и 4.

4. ОБСУЖДЕНИЕ РЕЗУЛЬТАТОВ

Из зависимостей, изображенных на рис. 2, можно оценить параметр $|\tau_s/\tau_p|$, введенный в предыдущем разделе. Для выбранных длин волн сигнального излучения 5685, 5707 и 5731 Å (сопряженные холостые частоты, определяемые из (1), равны 2902, 2970 и 3043 см^{-1}), для которых проводилась обработка спектров, значения параметра $|\tau_s/\tau_p|$ представлены в таблице. Как видно, этот параметр удовлетворяет условию (10). Таким образом, для этих длин волн видимость двухфотонной интерференции в основном определяется потерями на холостых частотах в ИК-диапазоне.

В эксперименте зависимость видимости двухфотонной интерференции от величины потерь исследовалась при помещении в НИМЦ золотых пленок разной толщины. Из рис. 3 и 4 видно, что интерференционные эффекты в двухфотонном свете практически пропадают при толщине пленки 50 Å. Контрольный снимок образца толщиной 80 Å показал полное отсутствие частотно-угловой модуляции. Вместе с тем мы уверенно наблюдали наличие сигнала СПР даже при толщине пленки 100 Å. Отсюда можно сделать вывод о том, что метод двухфотонной интерференции более чувствителен к потерям τ_i на холостых частотах, чем к потерям τ_p и τ_s на частотах накачки и сигнала, приводящим к уменьшению интегральной интенсивности спектров.

Зависимость коэффициента пропускания на частоте 2970 см^{-1} от толщины пленки, определенная из угловых сканов интерферограмм по формулам (6), (11а), показана на рис. 5. Мы не обнаружили

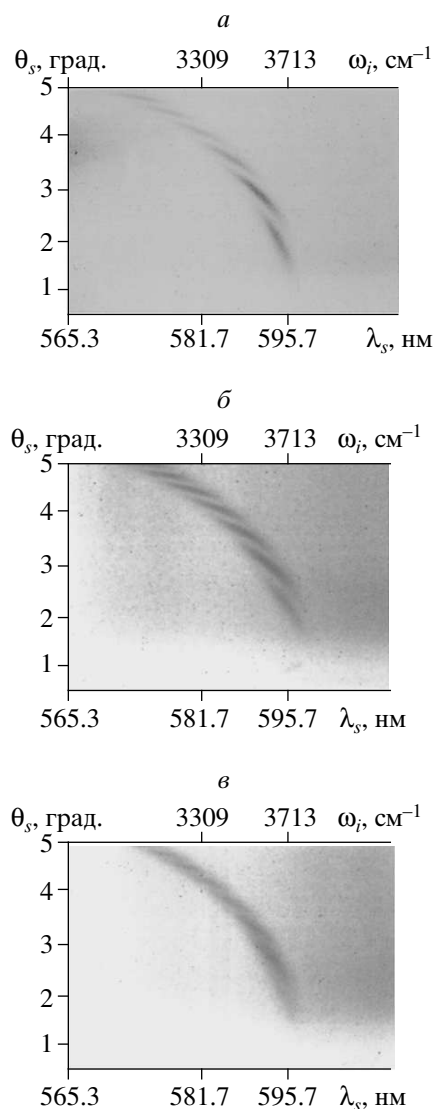


Рис. 3. Фотографии частотно-угловых спектров СПР, полученных в системе нелинейный кристалл–подложка из плавленого кварца–золотая пленка–нелинейный кристалл для различных толщин пленок: пленка отсутствует (а), толщина пленки 10 (б) и 50 (в) Å

заметной разницы в поведении таких зависимостей в диапазоне холостых частот 2900–3040 см^{-1} , что свидетельствует о слабой дисперсии коэффициента поглощения пленок в этой спектральной области. Аналогичный вывод можно сделать и из визуального анализа частотно-угловых спектров (рис. 3), которые были получены в более широком диапазоне (2400–3700 см^{-1}): на спектрограммах нельзя выделить области, в которых видимость заметно бы менялась.

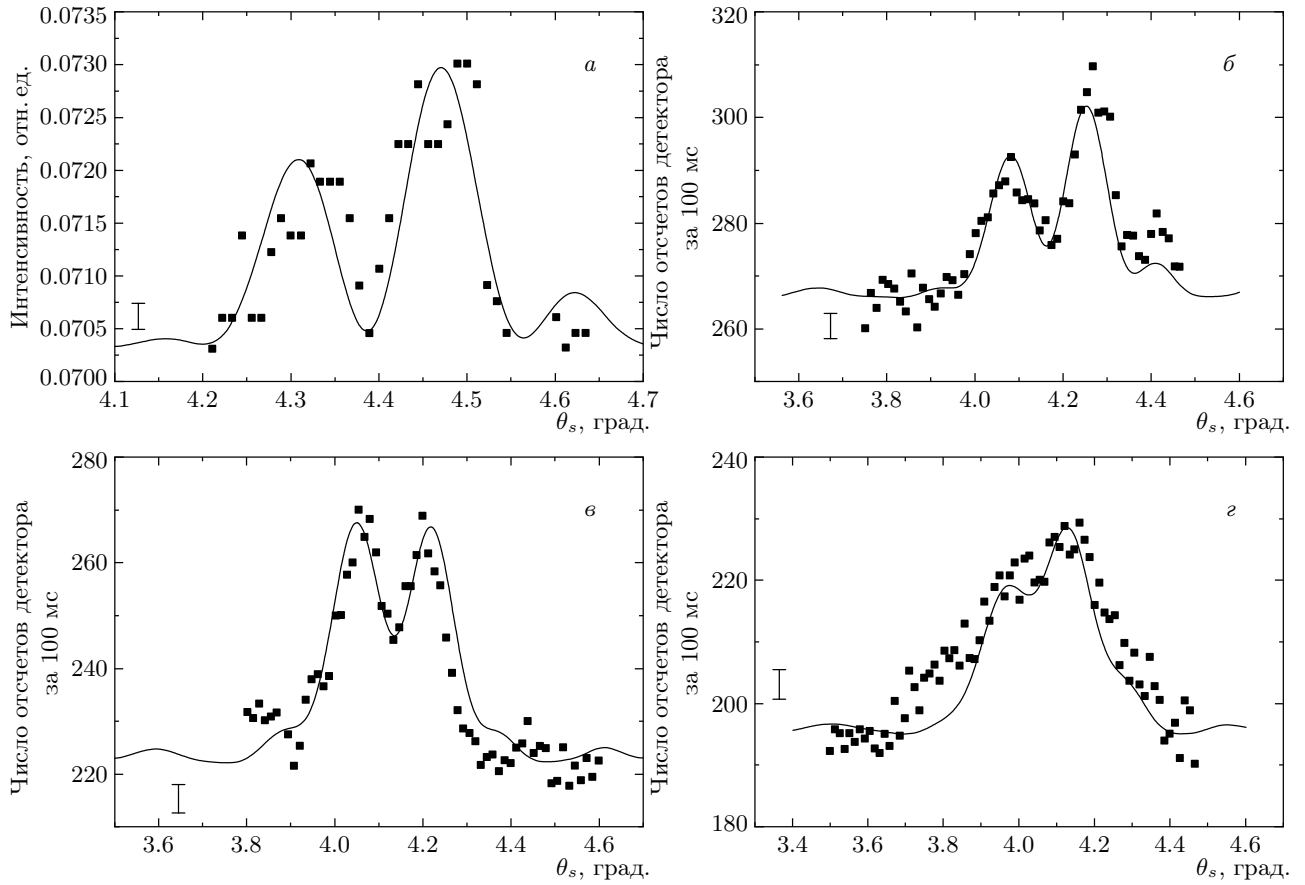


Рис. 4. Угловое распределение интенсивности СПР для различных толщин пленок: пленка отсутствует (а), толщина пленки 10 (б), 30 (в) и 50 (г) Å. Распределение а получено путем восстановления интенсивности из степени почернения пленки с помощью программы «Photoshop 6.0» для $\lambda_s = 5684 \text{ \AA}$. Зависимости б-г получены с помощью фотоэлектрической методики регистрации сигналов для $\lambda_s = 5707 \text{ \AA}$

№	Толщина образца, Å	$ \tau_s ^2$				$ \tau_p ^2$			$ \tau_s/\tau_p $		
		5685 Å	5707 Å	5731 Å	4880 Å	5685 Å	5707 Å	5731 Å	5685 Å	5707 Å	5731 Å
1	10	0.79	0.79	0.79	0.84	0.974	0.974	0.974	0.974	0.974	0.974
2	20	0.75	0.74	0.74	0.80	0.968	0.962	0.962	0.968	0.962	0.962
3	30	0.71	0.71	0.70	0.74	0.98	0.98	0.973	0.98	0.98	0.973
4	50	0.69	0.69	0.69	0.64	1.038	1.038	1.038	1.038	1.038	1.038
5	80	0.58	0.58	0.58	0.5	1.077	1.077	1.077	1.077	1.077	1.077

Видность интерференционной картины, как следует из (11), зависит от коэффициента пропускания на холостой частоте. В этом диапазоне оптические свойства металлов в основном определяются свободными электронами. Связь между диэлектрической проницаемостью и основными оптическими постоянными дается следующими соотношениями [22]:

$$\text{Re } \varepsilon = n^2(1 - \kappa^2), \tag{12}$$

$$\text{Im } \varepsilon = \frac{4\pi\sigma}{\omega} = 2n^2\kappa, \tag{13}$$

где n — действительная часть показателя преломле-

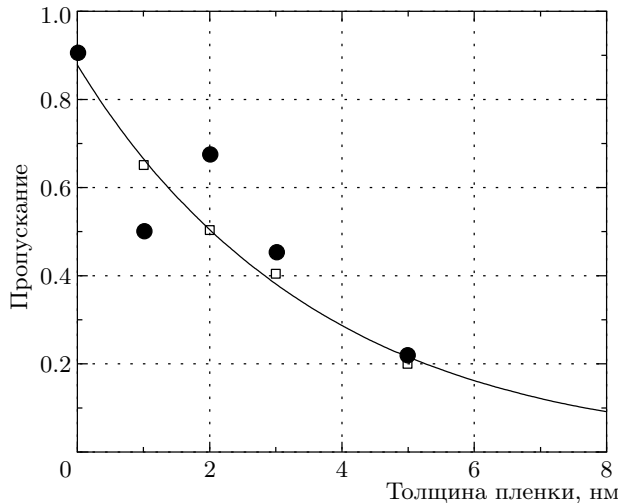


Рис. 5. Зависимость амплитудного коэффициента пропускания на частоте 2970 см^{-1} от толщины пленки, полученная из угловых сканов интерферограмм. Сплошная линия — экспоненциальная аппроксимация экспериментальных данных (• — фотоэлектрическая обработка, □ — фотоэлектрическая обработка)

ния, $\hat{n} = n(1 + i\kappa)$, а κ — коэффициент экстинкции. Из (12), (13) находим коэффициент поглощения

$$\alpha_i = \frac{2\omega_i}{c} n\kappa = \frac{4\pi}{\lambda_{0i}} \kappa, \quad (14)$$

где λ_{0i} — длина холостой волны в вакууме. Аппроксимируя экспериментальную кривую (рис. 5) экспоненциальной зависимостью (сплошная линия), получаем на частоте $\omega_i \approx 3000 \text{ см}^{-1}$ (или $\lambda_{0i} \approx 3.3 \text{ мкм}$) значение $\alpha_i \approx 2.8 \cdot 10^6 \text{ см}^{-1}$. К сожалению, у нас не было информации об оптических константах имеющихся пленок в ИК-диапазоне. Поэтому мы воспользовались данными, приведенными в работе [25]. Подставляя в (14) значения показателя преломления ($n \approx 0.8$) и коэффициента экстинкции ($\kappa \approx 20$), получаем $\alpha_i \approx 6.1 \cdot 10^5 \text{ см}^{-1}$, что примерно в пять раз меньше полученного в наших экспериментах.

Различие экспериментального и расчетного значений коэффициента поглощения, существенно превышающее ошибку измерений, может быть связано с несколькими факторами.

Во-первых, данные об оптических константах золота, приводимые в [25], относятся к толстым пленкам. Хорошо известно, что для сверхтонких пленок толщиной менее 10 нм на оптические константы заметное влияние оказывает структура пленки: при сверхмалой толщине пленка рассматривается как набор отдельных островков. Так, в рабо-

те [26] отмечалось, что кластерная структура приводит к заметному увеличению поглощения. На гигантский рост поглощения металлических частиц в ИК-диапазоне указывается, например, в [27]. Оптические свойства фрактальных кластеров, в частности, аномальное поведение восприимчивости, рассматриваются в [28]. В последнее время в литературе активно обсуждаются оптические свойства металлических островковых пленок вблизи порога перколяции [29].

Во-вторых, методика измерения коэффициента поглощения, основанная на двухфотонной интерференции, принципиально может дать результаты, отличающиеся от полученных ранее. Дело в том, что в традиционных методах исследования металлических пленок измеряются коэффициенты отражения и прохождения «свободных» волн — волн с отличной от нуля средней заселенностью мод, подаваемых на образец извне. Именно так были получены дисперсионные зависимости коэффициента пропускания пленок в видимом диапазоне, показанные на рис. 2. Однако в методе двухфотонной интерференции, когда речь идет об оптических параметрах на ненаблюдаемой (холостой) частоте, фигурируют флуктуационные вакуумные поля с равной нулю средней заселенностью. В литературе приводятся примеры, когда сравнение этих двух методик приводит к существенному расхождению именно при измерении коэффициента поглощения: поглощение, измеренное методом спектроскопии СПР (флуктуации поля) [30], оказывается примерно на порядок выше, чем при четырехволновом когерентном рассеянии на поляритонах (возбуждение поляритонов методом бигармонической накачки) [31] или прямом измерении ИК-пропускания [32]. Физическая природа этих различий до сих пор не выяснена и представляется, что эксперименты по двухфотонной интерференции в схеме Маха–Цандера позволят найти ответ на этот вопрос²⁾.

Заметим, что рассматриваемый в работе подход не позволяет сделать никаких выводов о дисперсии действительной части показателя преломления пленок. Это связано с малой толщиной пленок. Как было показано в работах [11, 13], резкие особенности в дисперсии показателя преломления, возникающие вблизи резонансов, должны сопровождаться измене-

²⁾ Отметим, что появившиеся в последнее время работы (см., например, [33]), где обсуждаются спектроскопические приложения так называемых частотно-перепутанных фотонных пар, не дают ответа на поставленный вопрос, поскольку там речь идет о вкладе в распределение совпадений фотоотчетов прямого пропускания реальной холостой волны.

нием кривизны интерференционных порядков или появлением «крюков» в спектрах двухфотонной интерференции. Это связано с тем, что в волновую расстройку пленки $\delta' = \Delta'l'_2$ по определению входят действительные части волновых векторов

$$\operatorname{Re}(\hat{k}) = \frac{\omega}{c} \operatorname{Re}(\hat{n}) = \frac{\omega}{c} n.$$

Сильная дисперсия n приводит к росту волновой расстройки Δ' , что и дает изменение фазы интерференционной картины двухфотонной интерференции при изменении частоты/угла. Для золота величина n изменяется в пределах $0.2 \leq n \leq 1.2$ при изменении длины волны в пределах 0.3–1 мкм. В ближнем ИК-диапазоне при $\lambda_i \approx 3$ мкм величина n оказывается порядка единицы и слабо растет при увеличении длины волны [24, 34, 35]. Однако, поскольку толщина пленок составляла десятки ангстрем и $l'_2 \ll l, l'_1$, соответствующая расстройка δ'_2 оказывается малой, и ее вклад в форму линии (6) пренебрежимо мал по сравнению со вкладами расстроек в нелинейных кристаллах, $\delta = \Delta l$, и кварцевой подложке, $\delta'_1 = \Delta'l'_1$.

5. ЗАКЛЮЧЕНИЕ

В работе обсуждаются эксперименты по двухфотонной интерференции при наличии поглощения во всех модах, участвующих в процессе спонтанного параметрического рассеяния света. Объектом исследования выступают сверхтонкие золотые пленки толщиной 10, 20, 30, 50 и 80 Å, нанесенные на кварцевые подложки.

Определены условия, при которых поглощение для сигнальной волны и накачки оказывает незначительное влияние на интерференционную картину. Показано, что при реализации этих условий видность интерференционной картины и вид частотно-углового спектра на сигнальной волне определяются оптическими параметрами среды на частоте холостой волны, принадлежащей ближнему ИК-диапазону.

Полученные результаты позволили выяснить ряд особенностей влияния поглощения на спонтанное параметрическое рассеяние света. Методом двухфотонной интерферометрии измерен коэффициент поглощения пленок золота в окрестности $\lambda \approx 3.3$ мкм, значение которого $\alpha \approx 2.8 \cdot 10^6 \text{ см}^{-1}$ превышает соответствующую величину для толстых пленок в пять раз.

Авторы выражают благодарность А. А. Никулину и А. Н. Рубцову за плодотворное обсуждение результатов эксперимента. Работа выполнена при частичной финансовой поддержке РФФИ (гранты №№ 02-02-16843, 03-02-16444 и 01-02-17893), темы № 15 федеральной целевой научно-технической программы «Исследования и разработки по приоритетным направлениям развития науки и техники» и INTAS (грант № 2122-01).

ЛИТЕРАТУРА

1. Д. Н. Клышко, *Laser Phys.* **2**, 997 (1992).
2. L. Mandel, *Rev. Mod. Phys.* **71**, S274 (1999).
3. A. Zeilinger, *Rev. Mod. Phys.* **71**, S288 (1999).
4. *Физика квантовой информации*, под ред. Д. Боумейстера, А. Экерта, А. Цайлингера, Постмаркет, Москва (2002).
5. Ю. Н. Поливанов, *УФН* **126**, 185 (1978).
6. Г. Х. Китаева, Д. Н. Клышко, И. В. Таубин, *КЭ* **9**, 561 (1982).
7. А. А. Малыгин, А. В. Сергиенко, Депон. в ВИНТИ, № 5294-84, 21 (1984).
8. Г. Х. Китаева, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, *ЖЭТФ* **90**, 1051 (1986).
9. Г. Х. Китаева, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, *ФТТ* **34**, 3440 (1992).
10. Г. Х. Китаева, Дисс. ... докт. физ.-матем. наук, МГУ им. М. В. Ломоносова, Москва (2002).
11. А. В. Бурлаков, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, М. В. Чехова, *ЖЭТФ* **113**, 1991 (1998).
12. Д. Ю. Корыстов, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, *КЭ* **30**, 921 (2000).
13. Д. Ю. Корыстов, С. П. Кулик, А. Н. Пенин, Письма в *ЖЭТФ* **73**, 248 (2001).
14. A. V. Burlakov, M. V. Chekhova, O. A. Karabutova, D. Yu. Korystov, Yu. B. Mamaeva, and S. P. Kulik, *Laser Phys.* **12**, 825 (2001).
15. A. V. Burlakov, M. V. Chekhova, D. N. Klyshko, S. P. Kulik, A. N. Penin, D. V. Strelakov, and Y. H. Shih, *Phys. Rev. A* **56**, 3214 (1997).
16. R. Stolle, G. Marovsky, E. Schwartzberg, and G. Berkovic, *Appl. Phys. B* **63**, 491 (1996).

17. Д. Н. Клышко, *Фотоны и нелинейная оптика*, Наука, Москва (1980), с. 256.
18. A. V. Belinsky and D. N. Klyshko, *Laser Phys.* **4**, 663 (1994).
19. Д. Н. Клышко, *ЖЭТФ* **104**, 2676 (1993).
20. L. J. Wang, X. Y. Zou, and L. Mandel, *Phys. Rev. Lett.* **67**, 318 (1991).
21. L. J. Wang, X. Y. Zou, and L. Mandel, *Phys. Rev. A* **44**, 4614 (1991).
22. М. Борн, Э. Вольф, *Основы оптики*, Наука, Москва (1970), с. 854.
23. А. В. Бурлаков, Ю. Б. Мамаева, А. Н. Пенин, М. В. Чехова, *ЖЭТФ* **120**, 67 (2001).
24. Д. Н. Клышко, А. Н. Пенин, Б. Ф. Полковников, *Письма в ЖЭТФ* **11**, 11 (1970).
25. *Physikalisch-Chemische Tabellen*, Verlag Von Julius Springer, Berlin (1929), vol. 165B.
26. R. P. Devaty and A. J. Sievers, *Phys. Rev. Lett.* **52**, 1344 (1984).
27. A. V. Plyukin, A. K. Sarychev, and A. M. Dykne, *Phys. Rev. B* **59**, 1685 (1999).
28. В. М. Шалаев, М. И. Штокман, *ЖЭТФ* **92**, 509 (1987).
29. А. К. Сарычев, В. А. Шубин, and В. М. Шалаев, *Phys. Rev. E* **59**, 7239 (1999).
30. А. В. Burlakov, М. В. Chekhova, S. P. Kulik, and A. N. Penin, *Opt. Comm.* **165**, 39 (1999).
31. G. Kh. Kitaeva, K. A. Kuznetsov, A. A. Mikhailovsky, and A. N. Penin, *J. Raman Spectr.* **31**, 767 (2000).
32. К. А. Кузнецов, Дисс. ... канд. физ.-матем. наук, МГУ им. М. В. Ломоносова, Москва (2002).
33. A. Yabushta and T. Kobayashi, E-print archives quant-ph/0306154.
34. M.-L. Theye, *Phys. Rev. B* **2**, 3060 (1970).
35. P. B. Jonson and R. W. Christy, *Phys. Rev. B* **6**, 4370 (1972).