

Федеральное государственное бюджетное образовательное учреждение высшего образования «Санкт-Петербургский национальный исследовательский Академический университет Российской академии наук»
Центр высшего образования

Кафедра физики и технологий наногетероструктур

Выпускная квалификационная
(бакалаврская)
работа

Тема:

Спонтанное параметрическое рассеяние света резонансной диэлектрической наночастицей

03.03.01 — Прикладные математика и физика

Допущена к защите.
Зав. кафедрой:

Выполнил студент:
Николаева А. А.

Научный руководитель:
к. ф.-м. н., доцент Петров М. И.

Рецензент:
к. ф.-м. н., доцент Иорш И. В.

Санкт-Петербург
2018

Оглавление

Введение	3
1. Постановка задачи	6
2. Теоретическая модель	7
2.1. Двухфотонная амплитуда	7
2.2. Теория Ми	8
2.3. Функция Грина для диэлектрического шара	12
2.4. Нелинейные материалы: BaTiO_3 , GaAs	14
3. Результаты	16
3.1. Упругое рассеяние	16
3.2. Двухфотонная амплитуда	17
3.3. Правила отбора	19
3.4. Корреляции между мультипольными компонентами при СПР	23
3.5. Диаграммы направленности	29
Заключение	33
Список литературы	34

Введение

Нелинейная оптика. Нелинейные оптические эффекты крайне слабы, однако их наблюдение стало возможным после появления мощных лазерных источников. Для описания нелинейных эффектов используют разложение поляризации вещества по степеням электрического поля, возбуждающего эту поляризацию:

$$P_i = \chi_{ij}^{(1)} E_j + \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k + \chi_{ijkl}^{(3)} E_j E_k E_l + \dots, \quad (1)$$

где P_i и E_i — компоненты вектора поляризации и электрического поля, а $\chi_{ij}^{(1)}$, $\chi_{ijk}^{(2)}$, $\chi_{ijkl}^{(3)}$ — тензоры диэлектрической восприимчивости (n)-го порядка, которым отвечают тензоры ($n + 1$)-го ранга. Первое слагаемое в этом разложении отвечает за линейные эффекты, связанные с поляризацией вещества. Второе слагаемое отвечает за нелинейные процессы второго порядка, в частности, сложение частот света (СЧС) и спонтанное параметрическое рассеяние света (СПР), частными случаями которых являются генерация второй гармоники (ГВГ) и вырожденное спонтанное параметрическое рассеяние (ВСПР). За эффективность таких процессов отвечает тензор $\chi^{(2)}$, который не равен нулю только в средах без центра инверсии. Для изучения этих процессов используются кристаллы перовскитного типа, например, титанат бария BaTiO_3 , а также многие полупроводниковые материалы, например, арсенид галлия GaAs . Используя подобные материалы, можно добиться эффективности ГВГ в макрокристаллических образцах вплоть до 80% [1].

Последние годы идет активная борьба за уменьшение размеров оптических систем, создание эффективных оптических элементов субволнового размера — одна из основных задач нанофотоники. Одним из возможных путей усиления эффективности нелинейных процессов является использование резонансных эффектов в субволновых наносистемах.

ГВГ в неметаллических нанорезонаторах. В последнее время особое внимание уделяется исследованию диэлектрических резонансных наноструктур, обладающих высоким коэффициентом преломления [2, 3]. Существует большое количество диэлектрических и полупроводниковых материалов, которые не обладают центром инверсии, что обеспечивает им высокую эффективность генерации второй гармоники. Недавние исследования показали усиление ГВГ за счет ми-резонансов в субволновых структурах, например, в наночастицах со структурой перовскита [4], нанодисках на основе *AlGaAs* [5] и *GaP* [6]. В работе [7] продемонстрировано, что эффективность генерации в подобных системах может достигать значений в $10^{-5} - 10^{-4}$, а недавние теоретические расчеты показывают, что возможно достижение эффективности генерации вплоть до величины 10^{-3} [8]. Полученные результаты позволяют предположить возможность наблюдения и обратного процесса в субволновых системах — спонтанного параметрического рассеяния.

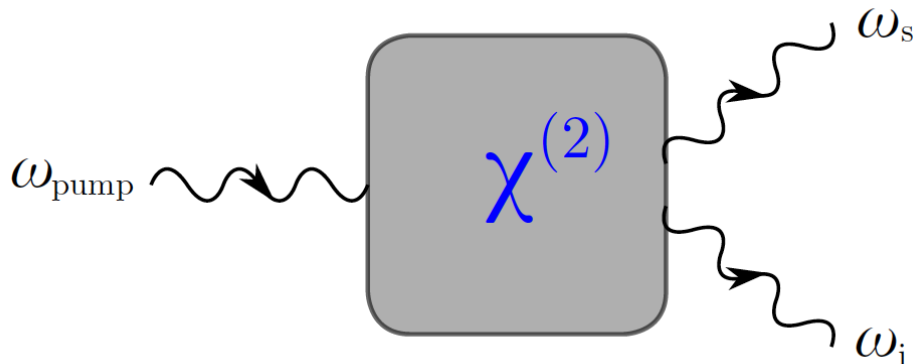


Рисунок 1 — Схема генерации фотонной пары материалом, обладающим нелинейностью второго порядка (спонтанное параметрическое рассеяние).

Спонтанное параметрическое рассеяние. Исследование генерации запутанных состояний в наноструктурах является одной из актуальных проблем квантовой оптики. Наиболее исследованной является генерация запутанных состояний в нелинейных диэлектрических волноводах [9], а также ансамблями квантовых точек [10]. СПР является процессом обратным к СЧС и приводит к распаду фотона накачки ω_p на

два фотона, условно называемых холостой (idler) и сигнальный (signal), так, что их энергии в сумме равны энергии фотона накачки $\omega_p = \omega_i + \omega_s$ (см. Рисунок 1). Процесс СПР в макрокристаллах является одним из основных процессов генерации запутанных фотонных пар. Совсем недавно в работе [11] было проведено численное моделирование спонтанного параметрического рассеяния света в *AlGaAs* микрорезонаторе. Однако на сегодняшний день отсутствует теоретическое исследование спонтанного параметрического рассеяния на диэлектрических наночастицах.

1 Постановка задачи

В работе исследуется вырожденное спонтанное параметрическое рассеяние света сферической наночастицей из диэлектрического материала, обладающего объемной нелинейностью второго порядка. Рассматриваются частицы из титаната бария BaTiO_3 (симметрия решетки C_{4v}) и арсенида галлия GaAs (симметрия решетки T_d), подобные материалы не обладают центром инверсии и демонстрируют нелинейные эффекты второго порядка, в частности, спонтанное параметрическое рассеяние света. При облучении плоской волной оптического диапазона подобные частицы с высоким показателем преломления обладают микрорезонансами, что позволяет значительно усиливать процесс спонтанного параметрического рассеяния.

Целью работы является исследование спонтанной параметрической генерации фотонов, усиленной резонансами диэлектрической нелинейной наночастицы.

Для достижения цели работы были решены следующие задачи:

- применение аппарата двухфотонной амплитуды для описания СПР из диэлектрических наночастиц;
- определение правил отбора для ми-мод при СПР;
- построение диаграмм направленности коллинеарной генерации фотонов.

2 Теоретическая модель

2.1 Двухфотонная амплитуда

Для решения сформулированных задач в работе применялся подход, развитый в работе [12], где была теоретически исследована генерация пар холостого (idler) и сигнального (signal) фотонов от волны накачки (pump), падающей на диэлектрическую структуру (см. Рисунок 1). Одним из ключевых результатов такого рассмотрения стала двухфотонная амплитуда, показывающая вероятность детектирования коррелированных фотонов (би-фотонов):

$$T_{is}(\mathbf{r}_i, \omega_i, \mathbf{d}_i; \mathbf{r}_s, \omega_s, \mathbf{d}_s) = \int_V \langle d_i^* | \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_i, \mathbf{r}_0, \omega_i) \hat{\Gamma}(\mathbf{r}_0) \hat{\mathbf{G}}(\mathbf{r}_0, \mathbf{r}_s, \omega_s) | d_s^* \rangle d^3 r_0, \quad (2)$$

где интегрирование ведется по области генерации, $\mathbf{d}_i, \mathbf{d}_s$ — дипольные моменты детекторов, $\hat{\mathbf{G}}$ — диадная функция Грина рассматриваемой системы, $\hat{\Gamma}$ — матрица генерации. В данной работе рассматривается процесс СПР наночастицей, связанный с наличием нелинейной восприимчивости второго порядка $\chi^{(2)}$. Для такого процесса матрица генерации имеет вид

$$\hat{\Gamma}_{\alpha\beta}(\mathbf{r}_0) = \chi_{\alpha\beta\gamma}^{(2)} \mathbf{E}_p^\gamma(\mathbf{r}_0), \quad (3)$$

где $\mathbf{E}_p^\gamma(\mathbf{r}_0)$ — классическое поле накачки внутри наночастицы.

Скорость счета фотонных пар (coincidence rate) определяется выражением

$$W_{is}(\mathbf{r}_i, \omega_i, \mathbf{d}_i; \mathbf{r}_s, \omega_s, \mathbf{d}_s) = \frac{2\pi}{\hbar} \delta(\hbar\omega_i + \hbar\omega_s - \hbar\omega_p) |T_{is}(\mathbf{r}_i, \omega_i, \mathbf{d}_i; \mathbf{r}_s, \omega_s, \mathbf{d}_s)|^2 \quad (4)$$

и имеет размерность $[\text{см}^{-4}\text{с}^{-1}]$.

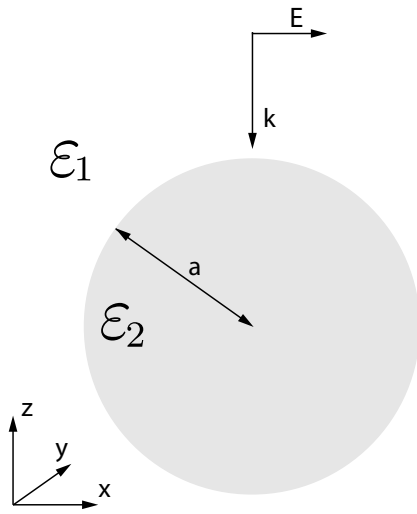
Вероятность детектирования двух фотонов в заданных точках пространства определяется интегралом от выражения W_{is} по площадям детекторов S_i, S_s и времени измерения τ :

$$P_{is} = \int W_{is} dS_i dS_s dt = W_{is} S_i S_s \tau \quad (5)$$

Таким образом, вероятность детектирования двух фотонов пропорциональна квадрату модуля двухфотонной амплитуды $|T_{is}|^2$. В дальнейшем будем считать площади детекторов и время измерения единичными, и, как следствие, величины W_{is} и P_{is} численно равными.

2.2 Теория Ми

а)



б)

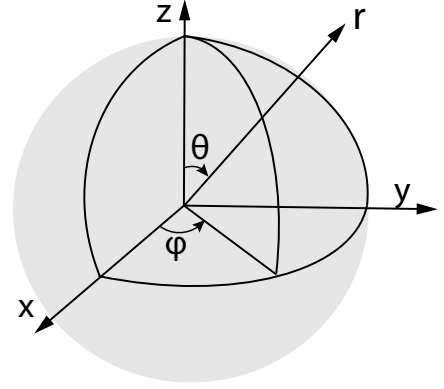


Рисунок 2 — а) Геометрия задачи: на сферическую частицу радиуса a падает плоская волна, направление падения вдоль оси z , поляризация направлена по оси x . б) Сферическая система координат.

Рассмотрим задачу упругого рассеяния света сферическими наночастицами. Подобная задача была решена в рамках теории Ми [13, 14]. Исходя из уравнений Максвелла, можно получить, что электромагнитное поле в линейной изотропной однородной среде должно удовлетворять векторному волновому уравнению

$$\nabla^2 \mathbf{E} + k^2 \mathbf{E} = 0, \quad \nabla^2 \mathbf{H} + k^2 \mathbf{H} = 0, \quad k^2 = \frac{\omega^2}{c^2} \varepsilon \mu, \quad (6)$$

и иметь нулевую дивергенцию:

$$\nabla \cdot \mathbf{E} = 0, \quad \nabla \cdot \mathbf{H} = 0. \quad (7)$$

Удобно ввести скалярную функцию ψ , удовлетворяющую скалярному волновому уравнению и являющуюся производящей функцией для векторных сферических гармоник \mathbf{M} и \mathbf{N} :

$$\mathbf{M} = \nabla \times (\mathbf{r}\psi), \quad \mathbf{N} = \frac{\nabla \times \mathbf{M}}{\mathbf{k}}. \quad (8)$$

Функции \mathbf{M} и \mathbf{N} обладают всеми необходимыми свойствами электромагнитного поля, а именно: они удовлетворяют векторному волновому уравнению, их дивергенции равны нулю, ротор \mathbf{M} пропорционален \mathbf{N} , а ротор \mathbf{N} пропорционален \mathbf{M} :

$$\nabla \cdot \mathbf{M} = 0, \quad \nabla \cdot \mathbf{N} = 0, \quad \nabla \times \mathbf{M} = \mathbf{k}\mathbf{N}, \quad \nabla \times \mathbf{N} = \mathbf{k}\mathbf{M} \quad (9)$$

Таким образом, задача сводится к нахождению решений скалярного волнового уравнения, а векторные гармоники \mathbf{M} и \mathbf{N} в сферических координатах имеют следующий вид [13]:

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_{emn}(k, \mathbf{r}) = & -\frac{m}{\sin \theta} \sin m\varphi \cdot P_n^m(\cos \theta) z_n(\rho) \mathbf{e}_\theta - \\ & - \cos m\varphi \cdot \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} z_n(\rho) \mathbf{e}_\varphi \end{aligned} \quad (10)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{M}_{omn}(k, \mathbf{r}) = & \frac{m}{\sin \theta} \cos m\varphi \cdot P_n^m(\cos \theta) z_n(\rho) \mathbf{e}_\theta - \\ & - \sin m\varphi \cdot \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} z_n(\rho) \mathbf{e}_\varphi \end{aligned} \quad (11)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{N}_{emn}(k, \mathbf{r}) = & \frac{z_n(\rho)}{\rho} \cos m\varphi \cdot n(n+1) P_n^m(\cos \theta) \mathbf{e}_r + \\ & + \cos m\varphi \cdot \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \mathbf{e}_\theta - \\ & - m \sin m\varphi \cdot \frac{P_n^m(\cos \theta)}{\sin \theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \mathbf{e}_\varphi \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{N}_{omn}(k, \mathbf{r}) = & \frac{z_n(\rho)}{\rho} \sin m\varphi \cdot n(n+1) P_n^m(\cos \theta) \mathbf{e}_r + \\ & + \sin m\varphi \cdot \frac{dP_n^m(\cos \theta)}{d\theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \mathbf{e}_\theta + \\ & + m \cos m\varphi \cdot \frac{P_n^m(\cos \theta)}{\sin \theta} \frac{1}{\rho} \frac{d}{d\rho} [\rho z_n(\rho)] \mathbf{e}_\varphi, \end{aligned} \quad (13)$$

где $n = 0, 1, 2, 3 \dots, m = 0, \dots, n$, индексы e и o обозначают четные (even) и нечетные (odd) линейно-независимые решения для ψ по азимутальному углу φ , на месте $z_n(\rho)$ могут быть сферические функции Бесселя или Ханкеля, в зависимости от конкретной задачи; P_n^m – присоединенные полиномы Лежандра:

$$\begin{aligned} P_0^0 &= 1, \\ P_1^0 &= x = \cos \theta, \\ P_1^1 &= \sqrt{(1-x^2)} = \sin \theta, \\ P_2^0 &= \frac{1}{2}(3x^2 - 1) = \frac{1}{4}(1 + \cos 2\theta), \dots \end{aligned} \quad (14)$$

Предположим, что на однородный изотропный шар радиуса a падает x -поляризованная плоская волна, Рисунок 2а. Падающее, внутреннее и рассеянное поля представляются в виде разложения по векторным сферическим гармоникам, а соответствующие коэффициенты разложения находятся из граничных условий:

$$(\mathbf{E}_i + \mathbf{E}_s - \mathbf{E}_1) \times \mathbf{e}_r = (\mathbf{H}_i + \mathbf{H}_s - \mathbf{H}_1) \times \mathbf{e}_r = 0, \quad (15)$$

где $\mathbf{E}_i, \mathbf{E}_s, \mathbf{E}_1$ – падающее, рассеянное и внутреннее поля соответственно. Для падающего поля и поля внутри частицы используются векторные сферические гармоники, у которых радиальная зависимость производящих функций определяется сферическими функциями Бесселя $j_n(\rho)$. Для рассеянного поля – сферическими функциями Ханкеля $h_n^{(1)}(\rho)$ (далее – верхний индекс (1)), соответствующие расходящейся сферической волне.

Поле внутри частицы, в дальнейшем именуемое полем накачки в (2), имеет вид

$$\mathbf{E}_1(k, \mathbf{r}) = \sum_{n=1}^{\infty} E_n (c_n \mathbf{M}_{o1n}(k, \mathbf{r}) - i d_n \mathbf{N}_{e1n}(k, \mathbf{r})), \quad (16)$$

$$E_n = i^n E_0 \frac{2n+1}{n(n+1)},$$

где E_0 – модуль падающего поля, а коэффициенты c_n и d_n в разложении

по векторным сферическим гармоникам имеют резонансный характер зависимости от частоты и представляются в следующем виде:

$$c_n = \frac{j_n(\rho_1)[\rho_1 h_n^{(1)}(\rho_1)]' - h_n^{(1)}(\rho_1)[\rho_1 j_n(\rho_1)]'}{j_n(\rho_2)[\rho_1 h_n^{(1)}(\rho_1)]' - \frac{\mu_1}{\mu_2} h_n^{(1)}(\rho_1)[\rho_2 j_n(\rho_2)]'}, \quad (17)$$

$$d_n = \frac{j_n(\rho_1)[\rho_1 h_n^{(1)}(\rho_1)]' - h_n^{(1)}(\rho_1)[\rho_1 j_n(\rho_1)]'}{\frac{\mu_1}{\mu_2} \frac{k_2}{k_1} j_n(\rho_2)[\rho_1 h_n^{(1)}(\rho_1)]' - \frac{k_1}{k_2} h_n^{(1)}(\rho_1)[\rho_2 j_n(\rho_2)]'}, \quad (18)$$

$$\rho_1 = k_1 a = \frac{2\pi a}{\lambda}, \quad \rho_2 = k_2 a = \frac{2\pi a \sqrt{\varepsilon_2 \mu_2}}{\lambda},$$

где a — радиус сферы, а k_1 и k_2 — волновые вектора снаружи и внутри сферы, соответственно.

Рассеянное поле, разложенное по векторным сферическим гармоникам, может быть представлено в виде

$$\mathbf{E}_s(k, \mathbf{r}) = \sum_{n=1}^{\infty} E_n (i a_n \mathbf{N}_{e1n}^{(1)}(k, \mathbf{r}) - b_n \mathbf{M}_{o1n}^{(1)}(k, \mathbf{r})), \quad (19)$$

где коэффициенты a_n и b_n определяются выражениями

$$a_n = \frac{\frac{\mu_1}{\mu_2} \left(\frac{k_2}{k_1}\right)^2 j_n(\rho_2)[\rho_1 j_n(\rho_1)]' - j_n(\rho_1)[\rho_2 j_n(\rho_2)]'}{\frac{\mu_1}{\mu_2} \left(\frac{k_2}{k_1}\right)^2 j_n(\rho_2)[\rho_1 h_n^{(1)}(\rho_1)]' - h_n^{(1)}(\rho_1)[\rho_2 j_n(\rho_2)]'}, \quad (20)$$

$$b_n = \frac{j_n(\rho_2)[\rho_1 j_n(\rho_1)]' - \frac{\mu_1}{\mu_2} j_n(\rho_1)[\rho_2 j_n(\rho_2)]'}{j_n(\rho_2)[\rho_1 h_n^{(1)}(\rho_1)]' - \frac{\mu_1}{\mu_2} h_n^{(1)}(\rho_1)[\rho_2 j_n(\rho_2)]'}. \quad (21)$$

Коэффициенты a_n и b_n в разложении рассеянного поля имеют такой же знаменатель, что и коэффициенты c_n и d_n в разложении поля внутри частицы (16), то есть, они имеют резонансы на тех же значениях частот.

2.3 Функция Грина для диэлектрического шара

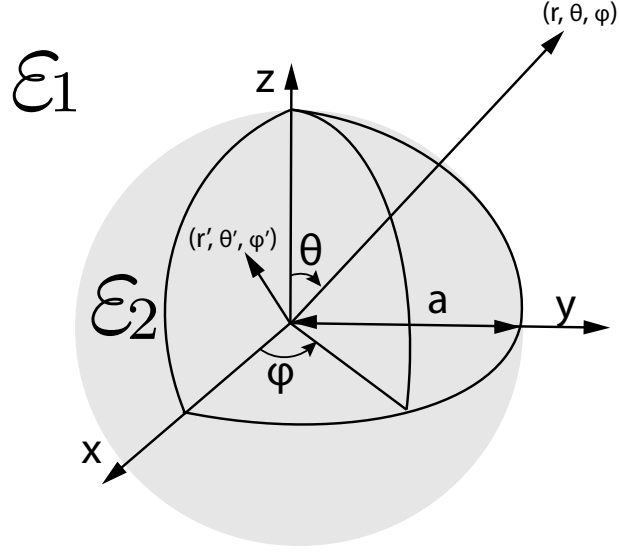


Рисунок 3 — Геометрия системы в сферической системе координат: точка наблюдения лежит вне сферы ($r > a$), а источник лежит внутри сферы ($r' < a$), где a — радиус сферической наночастицы, а ε_1 и ε_2 — диэлектрические проницаемости среды и сферы, соответственно.

Диадная функция Грина, так же, как и поле внутри, может быть разложена по векторным сферическим гармоникам. Такое разложение приведено в [15], где для нахождения функции Грина решена следующая система уравнений:

$$\begin{cases} \nabla \times \nabla \times \hat{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) - k_1^2 \hat{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \hat{1} \delta(\mathbf{r} - \mathbf{r}'), & r \geq a \\ \nabla \times \nabla \times \hat{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) - k_2^2 \hat{G}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = 0, & r \leq a \end{cases} \quad (22)$$

$$k_1 = \frac{\omega}{c} n_1 - \text{волновой вектор снаружи,}$$

$$k_2 = \frac{\omega}{c} n_2 - \text{волновой вектор внутри.}$$

В соответствии с (2), нам необходима та часть функции Грина, для которой источник \mathbf{r}' находится внутри, а точка наблюдения \mathbf{r} – снаружи, Рисунок 3:

$$\hat{\mathbf{G}}^{(12)}(\mathbf{r}, \mathbf{r}', \omega) = \frac{ik_2}{4\pi} \sum_{n=1}^{\infty} \sum_{m=0}^n (2 - \delta_0) \frac{2n+1}{n(n+1)} \frac{(n-m)!}{(n+m)!} \cdot [a_n^{(2)} \mathbf{M}_{\epsilon_{mn}}^{(1)}(k_1, \mathbf{r}) \otimes \mathbf{M}_{\epsilon_{mn}}(k_2, \mathbf{r}') + b_n^{(2)} \mathbf{N}_{\epsilon_{mn}}^{(1)}(k_1, \mathbf{r}) \otimes \mathbf{N}_{\epsilon_{mn}}(k_2, \mathbf{r}')], \quad r > a > r' \quad (23)$$

$$\delta_0 = \begin{cases} 1, & m = 0 \\ 0, & m \neq 0 \end{cases},$$

где коэффициенты $a_n^{(2)}$ и $b_n^{(2)}$ имеют следующий вид

$$a_n^{(2)} = \frac{h_n^{(1)}(\rho_2)[\rho_2 j_n(\rho_2)]' - j_n(\rho_2)[\rho_2 h_n^{(1)}(\rho_2)]'}{h_n^{(1)}(\rho_1)[\rho_2 j_n(\rho_2)]' - \frac{\mu_2}{\mu_1} j_n(\rho_2)[\rho_1 h_n^{(1)}(\rho_1)]'} \quad (24)$$

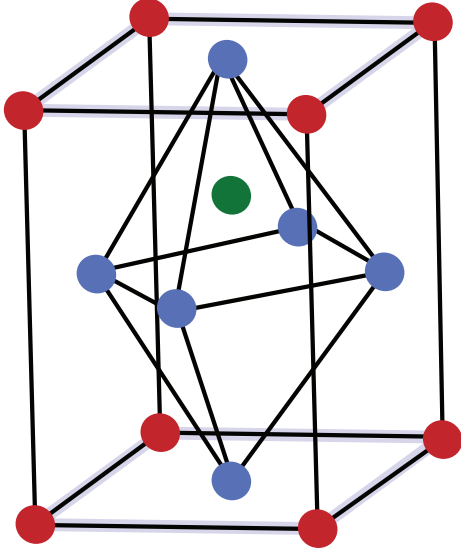
$$b_n^{(2)} = \frac{h_n^{(1)}(\rho_2)[\rho_2 j_n(\rho_2)]' - j_n(\rho_2)[\rho_2 h_n^{(1)}(\rho_2)]'}{\frac{\mu_2 k_1}{\mu_1 k_2} h_n^{(1)}(\rho_1)[\rho_2 j_n(\rho_2)]' - \frac{k_2}{k_1} j_n(\rho_2)[\rho_1 h_n^{(1)}(\rho_1)]'} \quad (25)$$

Коэффициенты $a_n^{(2)}$ и $b_n^{(2)}$ в разложении функции Грина по векторным сферическим гармоникам имеют такой же знаменатель, что и коэффициенты c_n и d_n в разложении поля внутри (16), то есть они имеют резонансы на тех же значениях частот.

2.4 Нелинейные материалы: BaTiO₃, GaAs

Наночастицы, исследуемые в работе, будут предполагаться монокристаллическими, а систему координат, привязанную к осям координат будем обозначать x_c, y_c, z_c .

а)



б)

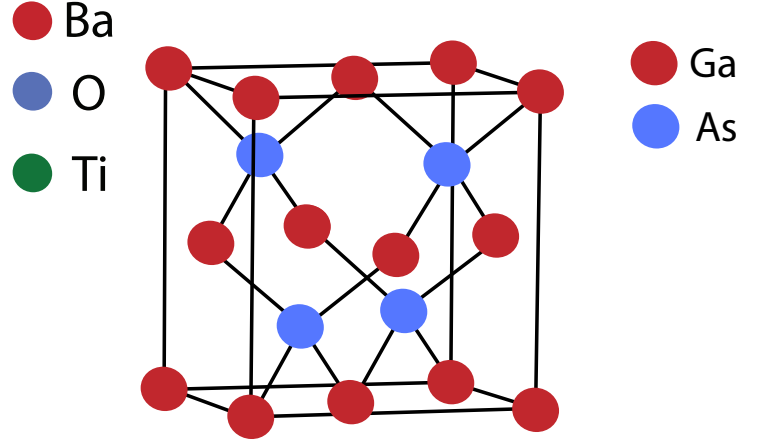


Рисунок 4 — а) Кристаллическая решетка титаната бария BaTiO₃ при комнатной температуре с симметрией C_{4v} . б) Кристаллическая решетка арсенида галлия GaAs типа цинковой обманки с симметрией T_d .

За процесс спонтанного параметрического рассеяния отвечает тензор нелинейной восприимчивости $\chi_{ijk}^{(2)}$. Для частицы из титаната бария BaTiO₃, Рисунок 4а, показатель преломления в оптическом диапазоне $n \sim 2.4$, а $\chi_{ijk}^{(2)}$ выглядит следующим образом [16]:

$$\chi_{ijx}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & d_{15} \\ 0 & 0 & 0 \\ d_{31} & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \chi_{ijy}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & d_{15} \\ 0 & d_{31} & 0 \end{pmatrix}, \quad \chi_{ijz}^{(2)} = \begin{pmatrix} d_{15} & 0 & 0 \\ 0 & d_{15} & 0 \\ 0 & 0 & d_{33} \end{pmatrix}, \quad (26)$$

где $d_{15} = 17$ пм/В, $d_{31} = 15.7$ пм/В, $d_{33} = 6.8$ пм/В.

Это наиболее удобная запись для последующей свертки с полем накачки, производимой следующим образом в СИ:

$$\hat{\Gamma}_{ij} = \varepsilon_0 \chi_{ijk} C_\alpha^k E^\alpha,$$

где C — матрица перевода в декартову систему координат.

Для частицы из арсенид галлия GaAs, Рисунок 4б, показатель преломления в оптическом диапазоне $n \sim 3.6$, а $\chi_{ijk}^{(2)}$ выглядит следующим образом [17]:

$$\chi_{ijx}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & d_{14} \\ 0 & d_{14} & 0 \end{pmatrix}, \quad \chi_{ijy}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & d_{14} \\ 0 & 0 & 0 \\ d_{14} & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad \chi_{ijz}^{(2)} = \begin{pmatrix} 0 & d_{14} & 0 \\ d_{14} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad (27)$$

где $d_{14} = 100$ пм/В

3 Результаты

В этом разделе будут приведены основные результаты исследований, а именно: будет определен состав мод, возбуждаемых накачивающим полем; построена двухфотонная амплитуда в нелинейной сфере, полученная путем разложения функции Грина по собственным модам шара; определены правила отбора и, наконец, построены диаграммы коллинеарного детектирования би-фотонов. Начнем с рассмотрения упругого рассеяния света на наночастице, т.е. с рассеяния накачивающего поля.

3.1 Упругое рассеяние

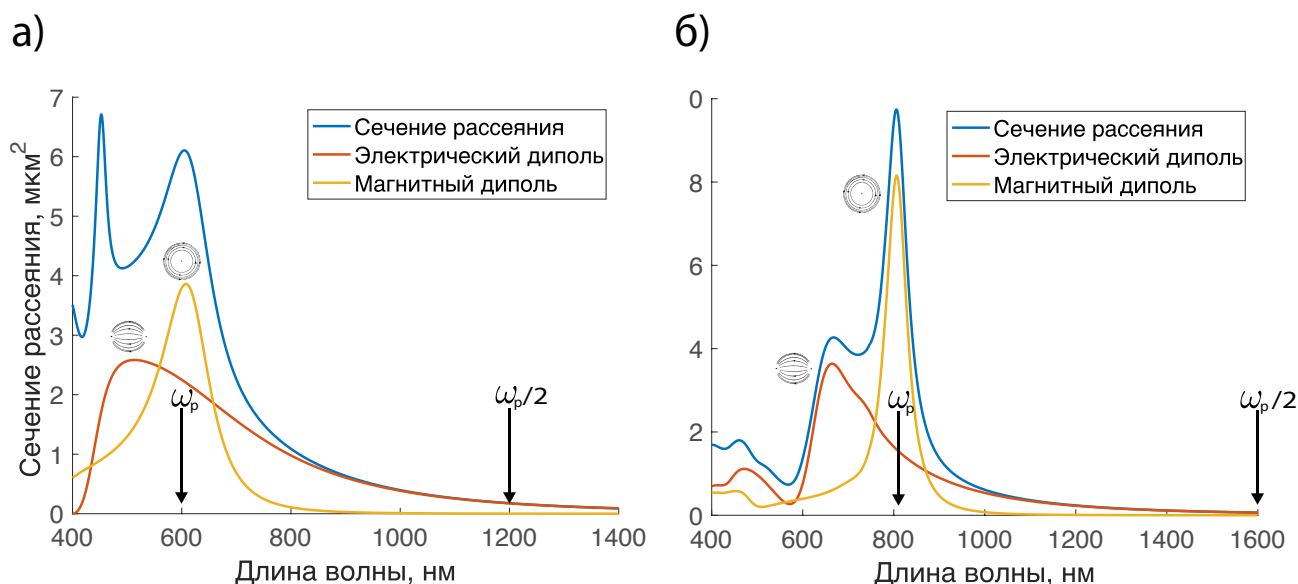


Рисунок 5 — а) Зависимость сечения рассеяния сферической наночастицы из титаната бария BaTiO_3 радиуса $a = 120 \text{ nm}$ от длины волны падающего поля. б) Зависимость сечения рассеяния сферической наночастицы из арсенида галлия GaAs радиуса $a = 110 \text{ nm}$ от длины волны падающего поля. Синяя линия — полное сечение рассеяния, красная — вклад электрической дипольной моды, желтая — вклад магнитной дипольной моды.

С помощью средств пакета MATLAB было построено сечение рассеяния, которое согласно [13], имеет вид

$$C_{sca} = \frac{2\pi}{k^2} \sum_{n=1}^{\infty} (2n+1)(|a_n|^2 + |b_n|^2), \quad (28)$$

где a_n и b_n — коэффициенты в разложении рассеянного поля по векторным сферическим гармоникам в теории Ми (19). Также продемонстрированы вклады дипольных магнитной и электрической мод для сферической наночастицы радиуса $a = 120$ нм из титаната бария BaTiO_3 (см. Рисунок 5а), и сферической наночастицы радиуса $a = 110$ нм из арсенида галлия GaAs (см. Рисунок 5б). Стрелкой указана рассматриваемая в дальнейшем частота поля накачки ω_p (отвечающая частоте магнитного дипольного резонанса), а также частота $\omega_p/2$ сгенерированных фотонов для вырожденного спонтанного параметрического рассеяния.

Спонтанное параметрическое рассеяние называется вырожденным, если частоты сигнального ω_s и холостого ω_i фотонов равны между собой:

$$\omega_i = \omega_s = \frac{\omega_p}{2}.$$

Длина волны поля накачки $\omega_p = 2\pi c/\lambda_p$ для титаната бария BaTiO_3 равна $\lambda_p = 600$ нм, а для арсенида галлия — $\lambda_p = 800$ нм.

3.2 Двухфотонная амплитуда

В связи с громоздкостью последующих выражений, введем единое обозначение W_{nmpt} для векторных сферических гармоник M и N , где индекс p отвечает за четность (е)/нечетность (о) гармоники, а индекс t определяет, является ли гармоника магнитной (М) или электрической (N).

Подставим в выражение для двухфотонной амплитуды (2) приведенные ранее выражения для диадной функции Грина (23) и поля внутри сферы (16). В новых обозначениях амплитуда выглядит следующим образом:

$$T_{is}(\mathbf{r}_i, \omega_i, \mathbf{d}_i; \mathbf{r}_s, \omega_s, \mathbf{d}_s) = \left(\frac{\omega_i}{c}\right)^2 \left(\frac{\omega_s}{c}\right)^2 ik_{i2} ik_{s2} \sum_{\mathbf{q}} \sum_{\mathbf{q}'} \sum_{\mathbf{q}''} A_{nmt} A_{n'm't'} \times \quad (29)$$

$$\times B_{n''t''} D_{\mathbf{q} \mathbf{q}' \mathbf{q}''} \left\langle d_i \left| W_{\mathbf{q}}^{(1)}(k_{i1}, \mathbf{r}_i) \right. \right\rangle \left\langle W_{\mathbf{q}'}^{(1)}(k_{s1}, \mathbf{r}_s) \left| d_s \right. \right\rangle,$$

где суммирование ведется по всем возможным наборам $\mathbf{q} = (n, m, p, t)$ и $\mathbf{q}' = (n', m', p', t')$ для гармоник из функций Грина. Для гармоник из накачивающего поля $m'' = 1$, а суммирование идет по двум возможным вариантам ($p'' = e, t'' = N$) и ($p'' = o, t'' = M$), поскольку, как видно из выражения (16), в падающее поле входят только гармоники с определенными номерами, а другие запрещены по симметрии задачи. Также для компактности записи были объединены некоторые коэффициенты:

$$A_{nmt} = (2 - \delta_0) \frac{2n + 1}{n(n + 1)} \frac{(n - m)!}{(n + m)!} \cdot \begin{cases} a_n^{(2)}, & \text{если } t = M \\ b_n^{(2)}, & \text{если } t = N \end{cases} \quad (30)$$

$$B_{nt} = E_n \cdot \begin{cases} c_n, & \text{если } t = M \\ -id_n, & \text{если } t = N \end{cases} \quad (31)$$

В выражении для двухфотонной амплитуды в каждом слагаемом содержится часть, зависящая от радиус-вектора генерации, которую можно проинтегрировать по области, где происходит генерация (объему сферы), в формуле (29) этот коэффициент обозначен как $D_{\mathbf{q}, \mathbf{q}', \mathbf{q}''}$ и имеет вид

$$D_{\mathbf{q}, \mathbf{q}', \mathbf{q}''} = \int_V \chi_{\alpha\beta\gamma} \mathbf{W}_{\mathbf{q}}^{\alpha}(k_{i2}, \mathbf{r}_0) \mathbf{W}_{\mathbf{q}'}^{\beta}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \mathbf{W}_{\mathbf{q}''}^{\gamma}(k_2, \mathbf{r}_0) d^3 r_0 \quad (32)$$

Заметим, что коэффициент $D_{\mathbf{q}, \mathbf{q}', \mathbf{q}''}$ является интегралом перекрытия декартовых компонент векторных сферических функций, две из которых относятся к мультиполям, генерируемым при СПР, а третья — к полю накачки. Так как $D_{\mathbf{q}, \mathbf{q}', \mathbf{q}''}$ является скаляром, а значения тензора нелинейной восприимчивости $\chi^{(2)}$ в литературе приводятся в декартовых координатах, необходимо перевести гармоники в декартовы координаты:

$$W^k(x, y, z) = \mathbf{e}_k \cdot \mathbf{W}(r, \theta, \varphi),$$

где декартовы орты можно выразить через векторные сферические гармоники (12-13) при $\rho \rightarrow 0$:

$$\begin{aligned} \mathbf{e}_x &= \sin \theta \cos \varphi \mathbf{e}_r + \cos \theta \cos \varphi \mathbf{e}_\theta - \sin \varphi \mathbf{e}_\phi = \frac{3}{2} \mathbf{N}_{e11}(0) = \frac{3}{2} \mathbf{N}_x, \\ \mathbf{e}_y &= \sin \theta \sin \varphi \mathbf{e}_r + \cos \theta \sin \varphi \mathbf{e}_\theta + \cos \varphi \mathbf{e}_\phi = \frac{3}{2} \mathbf{N}_{o11}(0) = \frac{3}{2} \mathbf{N}_y, \\ \mathbf{e}_z &= \cos \theta \mathbf{e}_r - \sin \theta \mathbf{e}_\theta = \frac{3}{2} \mathbf{N}_{e01}(0) = \frac{3}{2} \mathbf{N}_z. \end{aligned}$$

Таким образом, можно вынести $\chi_{ijk}^{(2)}$ за пределы интегрирования и переписать выражение (32):

$$D''_{q,q',q} = \left(\frac{3}{2}\right)^3 \chi_{ijk}^{(2)} \int_V (\mathbf{N}_i \cdot \mathbf{W}_q(k_{i2}, \mathbf{r}_0)) (\mathbf{N}_j \cdot \mathbf{W}_{q'}(k_{s2}, \mathbf{r}_0)) (\mathbf{N}_k \cdot \mathbf{W}_{q''}(k_2, \mathbf{r}_0)) d^3 r_0. \quad (33)$$

Для нахождения вероятности детектирования двух фотонов (5) для всех возможных поляризаций детекторов, необходимо выполнить суммирование следующим образом:

$$W_{is}(\mathbf{r}_i, \omega_i; \mathbf{r}_s, \omega_s) = \frac{2\pi}{\hbar} \delta(\hbar\omega_i + \hbar\omega_s - \hbar\omega_p) \sum_{\mathbf{d}_i, \mathbf{d}_s} |T_{is}(\mathbf{r}_i, \omega_i, \mathbf{d}_i; \mathbf{r}_s, \omega_s, \mathbf{d}_s)|^2. \quad (34)$$

3.3 Правила отбора

Исходя из вида выражения для двухфотонной амплитуды (29), можно заметить, что конкретные моды функций Грина совместно с модой накачивающего поля дают ненулевой вклад, только если соответствующий коэффициент $D_{q,q',q''}$ не равен нулю. Для того, чтобы интеграл по сфере не был нулевым, необходимо, чтобы подынтегральное выражение содержало инвариант относительно всех преобразований симметрии шара [18]. Следовательно, для получения правил отбора необходимо изучить поведение всех шести гармоник, входящих в выражение (33), при инверсии, отражениях и поворотах.

Инверсия. Присвоим каждой гармонике индекс четности при инверсии p_i . Электрические и магнитные гармоники при преобразовании

инверсии ведут себя следующим образом [19]:

$$N_{e_{mn}} \sim (-1)^n, \quad M_{e_{mn}} \sim (-1)^{(n+1)}. \quad (35)$$

Подынтегральное выражение должно быть четным относительно инверсии:

$$\underbrace{p_{i1} \cdot p_{i2}}_{\text{ф-и Грина}} \cdot \underbrace{p_{i3}}_{\text{поле накачки}} \cdot \underbrace{p_{i4} \cdot p_{i5} \cdot p_{i6}}_{\text{проекция}} = 1. \quad (36)$$

Отражения. Присвоим каждой гармонике индекс четности при отражении p_r . Сферические гармоники при отражения относительно плоскости $y = 0$ (симметрия $\varphi \rightarrow -\varphi$) ведут себя следующим образом:

$$M_{emn}, N_{omn} \sim -1 \quad M_{omn}, N_{emn} \sim 1. \quad (37)$$

Подынтегральное выражение должно быть четным относительно отражения:

$$\underbrace{p_{r1} \cdot p_{r2}}_{\text{ф-и Грина}} \cdot \underbrace{p_{r3}}_{\text{поле накачки}} \cdot \underbrace{p_{r4} \cdot p_{r5} \cdot p_{r6}}_{\text{проекция}} = 1. \quad (38)$$

Повороты. При поворотах векторные сферические гармоники изменяются как скалярные производящие функции ψ . Исходя из этого, можно получить следующие правила:

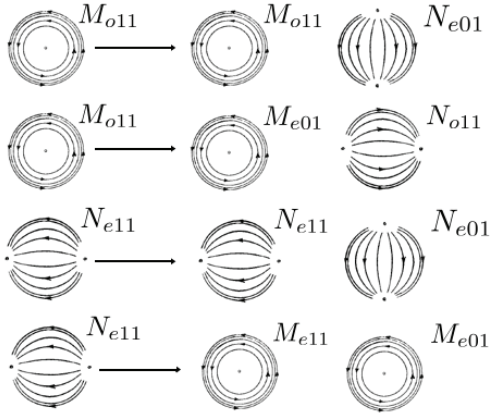
$$\pm m \pm m' \pm m'' \pm m_4 \pm m_5 \pm m_6 = 0, \quad (39)$$

если хотя бы одна комбинация 0, то возможно, что $D \neq 0$.

$$-k + |n_1 - n_2| \leq n_3 \leq |n_1 + n_2| + k, \quad (40)$$

где k – число электрических гармоник в выражении (32), где две гармоники пришли из функций Грина и еще одна из поля накачки.

а)



б)

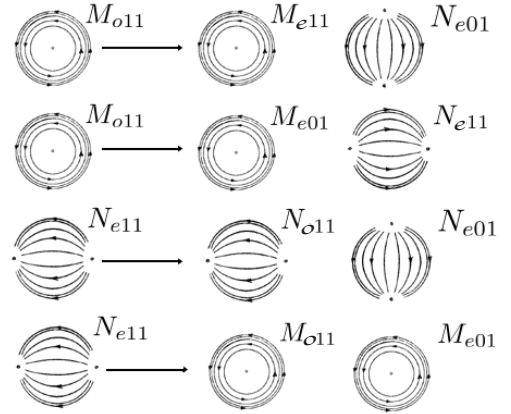


Рисунок 6 — Возможные варианты распада для титаната бария BaTiO_3 (а) и арсенида галлия GaAs (б) с кристаллической решеткой, ориентированной вдоль оси z , слева — гармоника из поля накачки на частоте ω_p , справа — гармоники из функций Грина на частоте $\omega_p/2$.

Титанат бария. Рассмотрим титанат бария с кристаллической осью z_c , направленной вдоль z , и применим правила отбора для нахождения всех возможных распадов для дипольных мод (см. Рисунок 6а). Для дипольных мод $n = n' = n'' = 1$, а в падающем поле возможны две гармоники M_{o11} и N_{e11} , следовательно $p_{r3} = 1$. Все гармоники проекций — электрические (N), поэтому $p_{i1} \cdot p_{i2} \cdot p_{i3} = -1$, следовательно, по правилу инверсии, в распаде все три гармоники электрические (N, N, N) или одна электрическая и две магнитные (N, M, M). Ненулевые компоненты тензора нелинейной восприимчивости титаната бария: $\chi_{xxz}, \chi_{xzx}, \chi_{zxx}, \chi_{yuz}, \chi_{yzy}, \chi_{zyy}, \chi_{zzz}$.

Рассмотрим один вариант проекций, для остальных можно проделать аналогичные операции. Каждой из компонент тензора $\chi_{xxz}, \chi_{xzx}, \chi_{zxx}$ соответствуют три векторные сферические гармоники $N_{e11}, N_{e11}, N_{e01}$. Отсюда мы знаем три квантовых числа $m_4 = 1, m_5 = 1, m_6 = 0$, а также $m_1 = 1$ для гармоники из поля накачки. По правилу, связанному с вращательной симметрией, $\pm 1 \pm 1 \pm 0 \pm 1 \pm m_2 \pm m_3 = 0$, количество единиц в равенстве должно быть четным $\Rightarrow (m_2 = 0, m_3 = 1)$ или $(m_2 = 1, m_3 = 0)$.

По правилу инверсии, $1 \cdot 1 \cdot 1 \cdot 1 \cdot p_{r2} \cdot p_{r3} = 1 \Rightarrow$ гармоники обе четные или обе нечетные по инверсии.

Получившиеся варианты распада, слева — гармоника поля накачки, справа — гармоники сигнального и холостого фотонов:

$$\begin{aligned}
M_{o11}(k_2, \mathbf{r}_0) &\longrightarrow M_{o11}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)N_{e01}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \text{ и } N_{e01}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)M_{o11}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \\
M_{o11}(k_2, \mathbf{r}_0) &\longrightarrow M_{e01}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)N_{o11}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \text{ и } N_{o11}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)M_{e01}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \\
N_{e11}(k_2, \mathbf{r}_0) &\longrightarrow N_{e11}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)N_{e01}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \text{ и } N_{e01}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)N_{e11}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \\
N_{e11}(k_2, \mathbf{r}_0) &\longrightarrow M_{e01}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)M_{e11}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \text{ и } M_{e11}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)M_{e01}(k_{s2}, \mathbf{r}_0)
\end{aligned} \tag{41}$$

Арсенид галлия. Рассмотрим арсенид галлия с кристаллической осью z_c направленной вдоль z и применим правила отбора для нахождения всех возможных распадов для дипольных мод, Рисунок 6б. Ненулевые компоненты тензора нелинейной восприимчивости арсенида галлия χ_{ijk} , где все индексы различны. Аналогично титанату бария, легко получить возможные варианты распада; слева — гармоника поля накачки, справа — гармоники сигнального и холостого фотонов:

$$\begin{aligned}
M_{o11}(k_2, \mathbf{r}_0) &\longrightarrow M_{e11}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)N_{e01}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \text{ и } N_{e01}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)M_{e11}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \\
M_{o11}(k_2, \mathbf{r}_0) &\longrightarrow M_{e01}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)N_{e11}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \text{ и } N_{e11}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)M_{e01}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \\
N_{e11}(k_2, \mathbf{r}_0) &\longrightarrow N_{o11}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)N_{e01}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \text{ и } N_{e01}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)N_{o11}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \\
N_{e11}(k_2, \mathbf{r}_0) &\longrightarrow M_{e01}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)M_{o11}(k_{s2}, \mathbf{r}_0) \text{ и } M_{o11}(k_{i2}, \mathbf{r}_0)M_{e01}(k_{s2}, \mathbf{r}_0)
\end{aligned} \tag{42}$$

Заметим, что в соответствии с правилами отбора, при дипольной генерации в спонтанном параметрическом рассеянии могут также получаться и старшие мультиполи, но в силу того, что при накачке на магнитном диполе длины волн сигнального и холостого фотонов далеки от квадрупольного и более старших резонансов, предполагается, что вклад следующих мультиполей будет мал по сравнению с дипольным.

3.4 Корреляции между мультипольными компонентами при СПР

Для иллюстрации правил отбора, а также сравнения дипольных и квадрупольных вкладов, учтем старшие мультипольные порядки в накачивающем поле. Для этого введем коэффициент $\tilde{D}_{\mathbf{q},\mathbf{q}'}$, который будет уже зависеть лишь от параметров мультипольности генерируемых гармоник на частоте $\omega_p/2$, и будет, соответственно, показывать степень их скоррелированности. Выражение для него следует из выражения для двухфотонной амплитуды:

$$T_{is}(\mathbf{r}_i, \omega_i, \mathbf{d}_i; \mathbf{r}_s, \omega_s, \mathbf{d}_s) = \sum_{\bar{\mathbf{q}}, \bar{\mathbf{q}'}} \langle d_i | \underbrace{\sum_{\bar{\mathbf{q}''} \left(\frac{\omega_i}{c} \right)^2 \left(\frac{\omega_s}{c} \right)^2 ik_{i2} ik_{s2} A_{\mathbf{q}} A_{\mathbf{q}'} B_{\mathbf{q}''} \mathbf{D}_{\mathbf{q}, \mathbf{q}', \mathbf{q}''}}_{\tilde{D}_{\mathbf{q}, \mathbf{q}'}} \times \left| W_{\mathbf{q}}^{(1)}(k_{i1}, \mathbf{r}_i) \right\rangle \left\langle W_{\mathbf{q}'}^{(1)}(k_{s1}, \mathbf{r}_s) \middle| d_s \right\rangle. \quad (43)$$

В программе MATLAB были построены матрицы коэффициентов $\tilde{D}_{\mathbf{q},\mathbf{q}'}$ в разложении двухфотонной амплитуды по векторным сферическим гармоникам (43) для сферической наночастицы из титаната бария радиуса $a = 120$ нм, Рисунок 7, и арсенида галлия, радиуса $a = 110$ нм, Рисунок 8, у которых кристаллическая ось z_c направлена по оси z , а накачка производится на длине волны магнитного дипольного резонанса. В поле накачки входят гармоники до порядка $n = 7$, а в функциях Грина рассматриваются дипольные ($n = 1$) и квадрупольные ($n = 2$) моды.

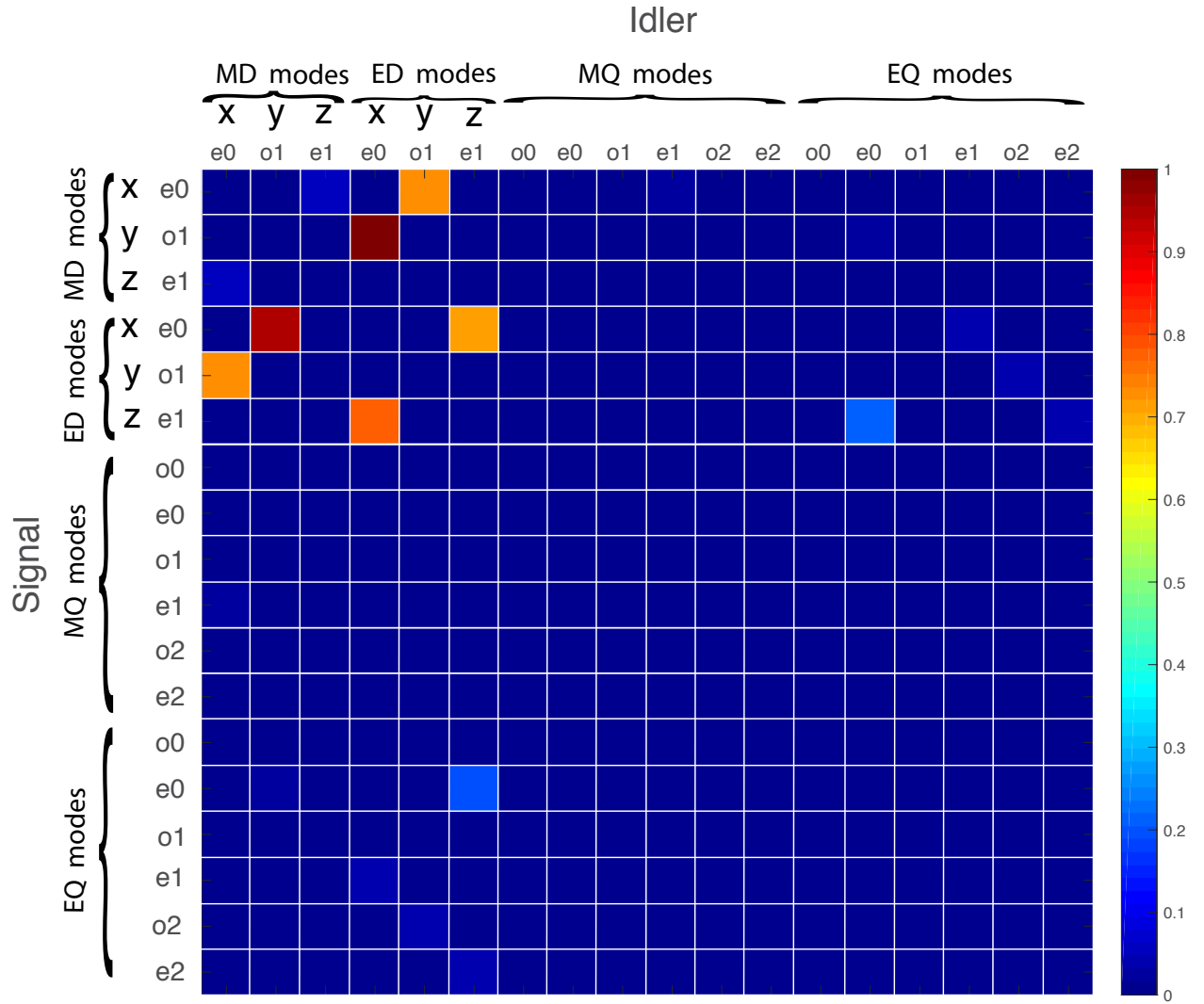


Рисунок 7 — Матрица коэффициентов $|\tilde{D}_{\mathbf{q},\mathbf{q}'}|$ в разложении двухфотонной амплитуды по векторным сферическим гармоникам (43) для сферической наночастицы из титаната бария BaTiO_3 радиуса $a = 120\text{нм}$, у которой кристаллическая ось z_c направлена по оси z , а накачка производится на длине волны магнитного дипольного резонанса — $\lambda_p = 600\text{нм}$. Направление падающей волны и ее поляризации зафиксированы (см. Рисунок 2а). По осям расположены дипольные и квадрупольные моды сигнального (signal) и холостого (idler) фотонов.

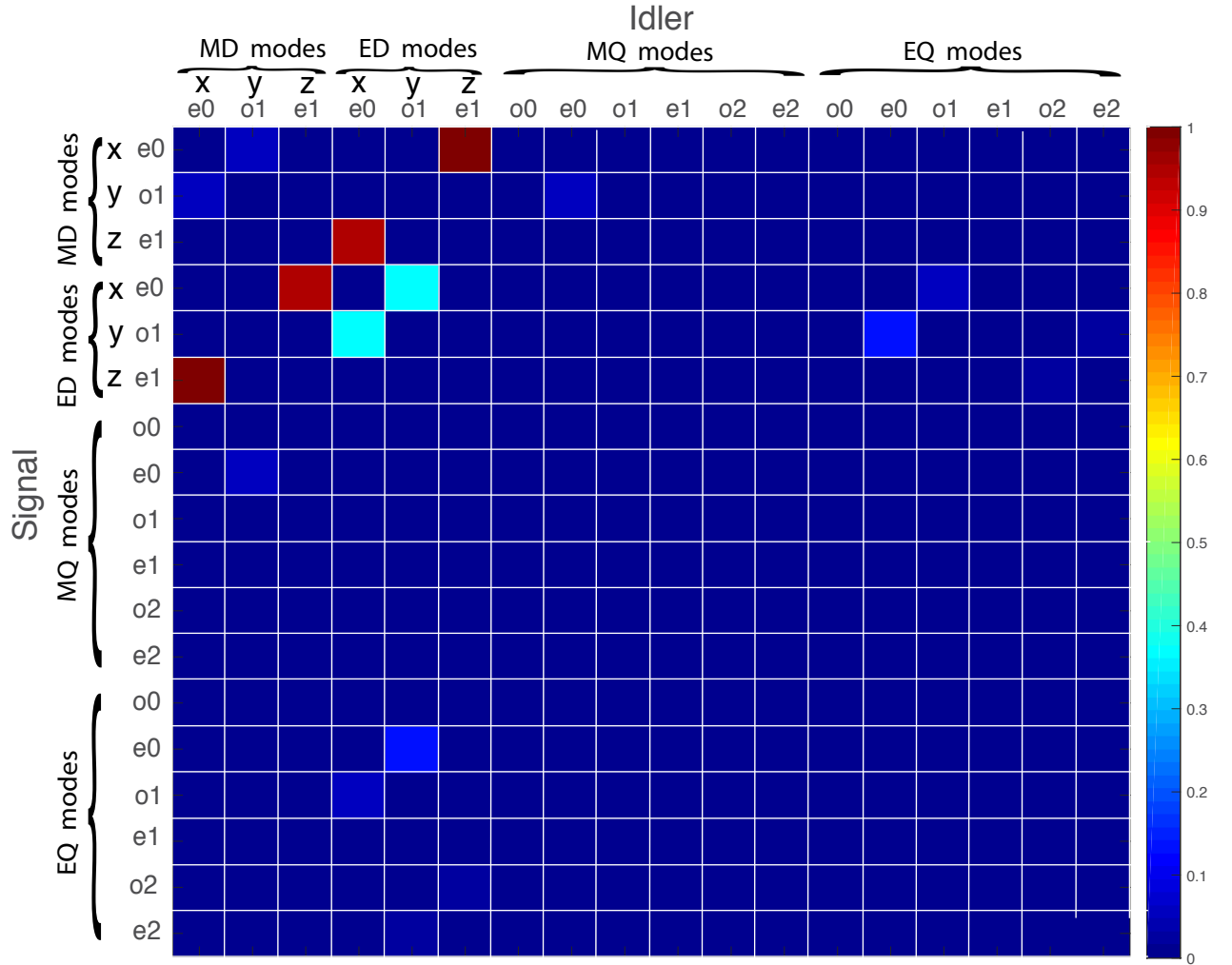


Рисунок 8 — Матрица коэффициентов $|\tilde{D}_{q,q'}|$ в разложении двухфотонной амплитуды по векторным сферическим гармоникам (43) для сферической наночастиц из арсенида галлия GaAs радиуса $a = 110\text{нм}$, у которой кристаллическая ось z_c направлена по оси z , а накачка производится на длине волны магнитного дипольного резонанса — $\lambda_p = 800\text{нм}$. Направление падающей волны и ее поляризации зафиксированы (см. Рисунок 2а). По осям расположены дипольные и квадрупольные моды сигнального (signal) и холостого (idler) фотонов.

Из Рисунка 7 и Рисунка 8 видно, что основной вклад в двухфотонную амплитуду при накачке на магнитном дипольном резонансе при такой ориентации решетки дает распад на диполи для сигнального и холостого фотонов. При этом все диагональные компоненты оказываются равны нулю в соответствии с правилами отбора. То есть невозможна генерация двух одинаковых мультиполей. Кроме того, вклад распада на диполь и квадруполь уже существенно меньше, а распад на два квад-

руполя для возбуждения на магнитном диполе пренебрежимо мал. Получившиеся дипольные взаимодействия полностью удовлетворяют правилам отбора, то есть вклад дают распады (41) для титаната бария и распады (42) для арсенида галлия.

Корреляции между мультипольными компонентами в процессе СПР при повороте наночастиц

а)

б)

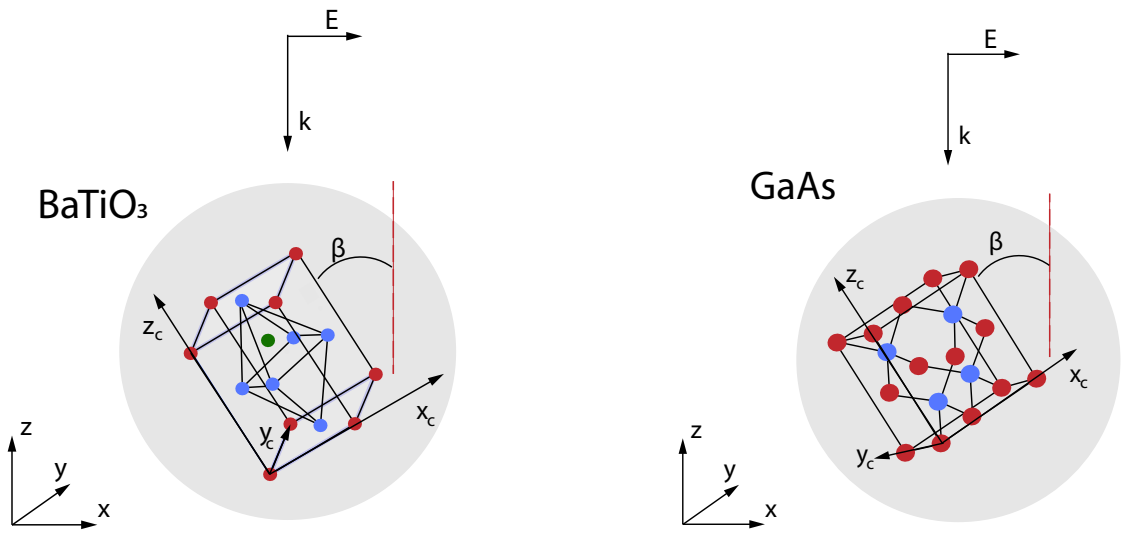


Рисунок 9 — Геометрия системы: на сферическую наночастицу из титаната бария BaTiO_3 (а) и арсенида галлия GaAs (б) падает плоская волна вдоль z . Поляризация направлена вдоль x . Кристаллическая решетка повернута на угол β вокруг оси y .

Исходя из правил отбора, для различных ориентаций кристалла вклад в двухфотонную амплитуду будут давать различные распады. Повернем рассматриваемые ранее сферические наночастицы на угол $\beta = \pi/4, \pi/2$ вокруг оси y (см. Рисунок 9). Для определения выражения для тензора в повернутой системе координат, необходимо преобразовать его по следующему правилу:

$$\chi_{\alpha\beta\gamma} = R_{\alpha}^i R_{\beta}^j R_{\gamma}^k \chi_{ijk}, \quad (44)$$

где R — матрица вращения вокруг оси y на угол β :

$$R = \begin{pmatrix} \cos \beta & 0 & \sin \beta \\ 0 & 1 & 0 \\ -\sin \beta & 0 & \cos \beta \end{pmatrix} \quad (45)$$

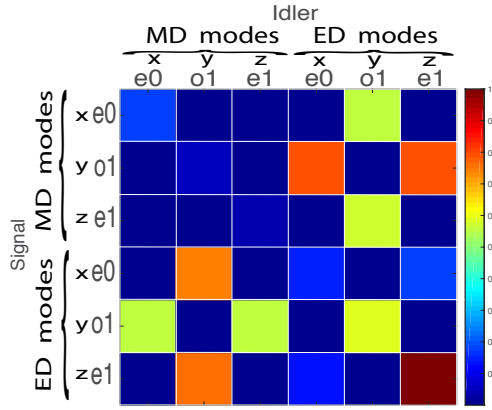
Значительную корреляцию в случае повернутой наночастицы также будут проявлять лишь дипольные мультиполя, так как накачка все еще происходит на магнитном дипольном резонансе, поэтому будем строить лишь верхний левый угол матрицы корреляций, соответствующий диполь-дипольным распадам.

Важно заметить, что при повороте тензора титаната бария появляются диагональные члены, соответствующие распаду на два одинаковых мультиполя (см. Рисунок 10). Кроме того, при повороте на $\beta = \pi/2$, все компоненты матрицы корреляций переходят в другие, и можно видеть, что на Рисунке 10б никакие генерируемые гармоники не совпадают с теми, что были для неповернутого тензора, Рисунок 7. При повороте на $\beta = \pi/4$, ненулевыми являются и компоненты исходного тензора при $\beta = 0$, и компоненты тензора при $\beta = \pi/2$, и мы видим, что при такой ориентации при распаде появляются и те, и другие гармоники.

Для арсенида галлия ситуация несколько иная, тензор такой симметрии при повороте на $\beta = \pi/2$ градусов переходит сам в себя, а при повороте на $\beta = \pi/4$ все его компоненты меняются. В связи с этим, меняя ориентацию кристаллической решетки, можно управлять мультипольным составом полей, получающихся при СПР. Наиболее существенный вклад для неповернутого арсенида галлия дает распад на N_{e11} и M_{e01} , а также M_{e11} и N_{e01} (см. Рисунок 8). Это соответствует скрещенным магнитному и электрическому диполям, один из которых направлен вдоль оси z , а второй — вдоль x , при этом генерируется такая пара магнитным диполем, направленным вдоль y .

Основной вклад в генерацию для арсенида галлия, повернутого на $\beta = \pi/4$, следующий: распад на M_{e11} и N_{e11} а также на M_{e01} и N_{e01} (см. Рисунок 11а). Это соответствует сонаправленным магнитному и электрическому диполям.

а)



б)

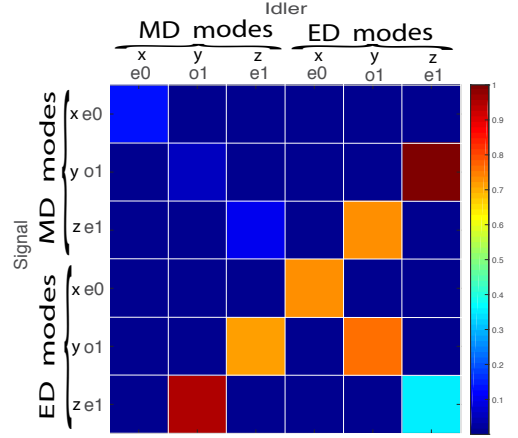
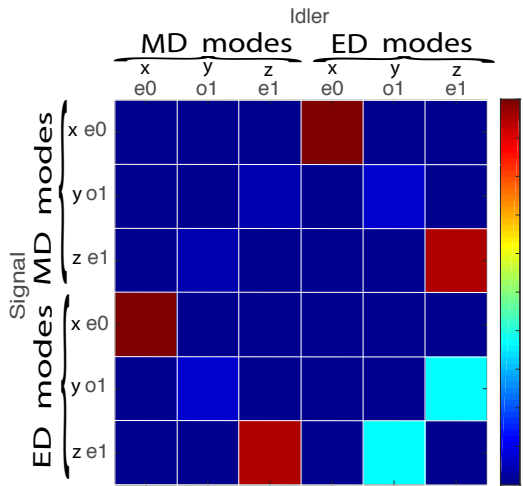


Рисунок 10 — Матрица коэффициентов $|\tilde{D}_{q,q'}|$ в разложении двухфотонной амплитуды по векторным сферическим гармоникам (43) для сферической наночастиц из титаната бария BaTiO_3 радиуса $a = 120\text{нм}$, накачка производится на длине волны магнитного дипольного резонанса — $\lambda_p = 600\text{нм}$. Конфигурация системы — Рисунок 9а. По осям расположены дипольные моды сигнального и холостого фотонов. а) Угол $\beta = \pi/4$ б) Угол $\beta = \pi/2$.

а)



б)

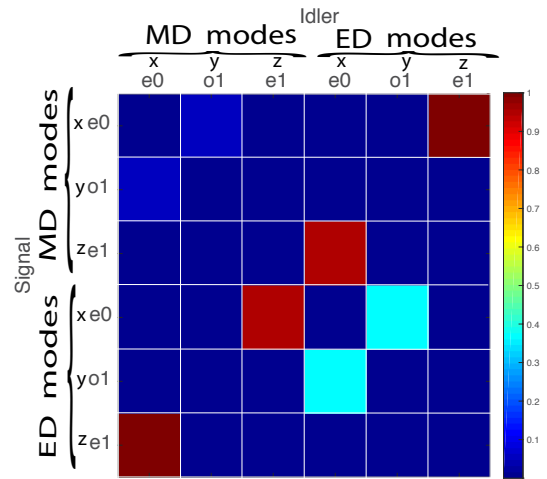


Рисунок 11 — Матрица коэффициентов $|\tilde{D}_{q,q'}|$ в разложении двухфотонной амплитуды по векторным сферическим гармоникам (43) для сферической наночастиц из арсенида галлия GaAs радиуса $a = 110\text{нм}$, накачка производится на длине волны магнитного дипольного резонанса — $\lambda_p = 800\text{нм}$. Конфигурация системы — Рисунок 9б. По осям расположены дипольные моды сигнального и холостого фотонов. а) Угол $\beta = \pi/4$ б) Угол $\beta = \pi/2$.

3.5 Диаграммы направленности

В данном разделе будут представлены диаграммы направленности одновременного детектирования сигнального и холостого фотонов, летящих в одном направлении (коллинеарный распад), что соответствует двухфотонной амплитуде, рассчитываемой в одной и той же точке $T_{is}(\mathbf{r}, \mathbf{r})$. При этом рассмотрение будет вестись в дальнем поле $k_{i1}r_i = k_{s1}r_s \gg 1$, учитываться все возможные поляризации в дипольном приближении, а все диаграммы будут нормированы на максимальное значение.

Одномодовый распад

Рассмотрим одномодовый распад, который, согласно Рисунку 7, дает наибольший вклад в двухфотонную амплитуду для титаната бария BaTiO_3 , у которого кристаллическая ось z_c направлена вдоль оси z : $M_{o11}(k_2, \mathbf{r}_0) \rightarrow M_{o11}(k_{i2}, \mathbf{r}_0) N_{e01}(k_{s2}, \mathbf{r}_0)$. Построим диаграммы направленности для каждого из фотонов по отдельности (см. Рисунок 12).

Для холостого фотона строим следующую величину, зависящую от (θ_i, φ_i) : $\sum_{d_i} |\langle d_i | M_{o11}(k_{i1}, \mathbf{r}_i) \rangle|^2$, где $k_{i1}r_i \gg 1$. Получили вполне ожидаемую диаграмму направленности, Рисунок 12а, аналогичную диаграмме направленности магнитного диполя, направленного вдоль оси y . Для сигнального фотона строим величину, зависящую от (θ_s, φ_s) :

$\sum_{d_s} |\langle N_{e01}(k_{s1}, \mathbf{r}_s) | d_s \rangle|^2$, где $k_{s1}r_s \gg 1$. Получили тоже вполне ожидаемую диаграмму, Рисунок 12б, аналогичную диаграмме направленности электрического диполя, направленного вдоль оси z .

Из выражения (29) следует, что вероятность совместного детектирования двух фотонов задается произведением двух построенных величин: $|T_{is}|^2 \sim \sum_{d_i, d_s} |\langle d_i | M_{o11}(k_{i1}, \mathbf{r}) \rangle|^2 |\langle N_{e01}(k_{s1}, \mathbf{r}) | d_s \rangle|^2$ — вероятность одновременного детектирования для сигнального и холостого фотонов, летящих в одном направлении, что отражено на Рисунке 13.

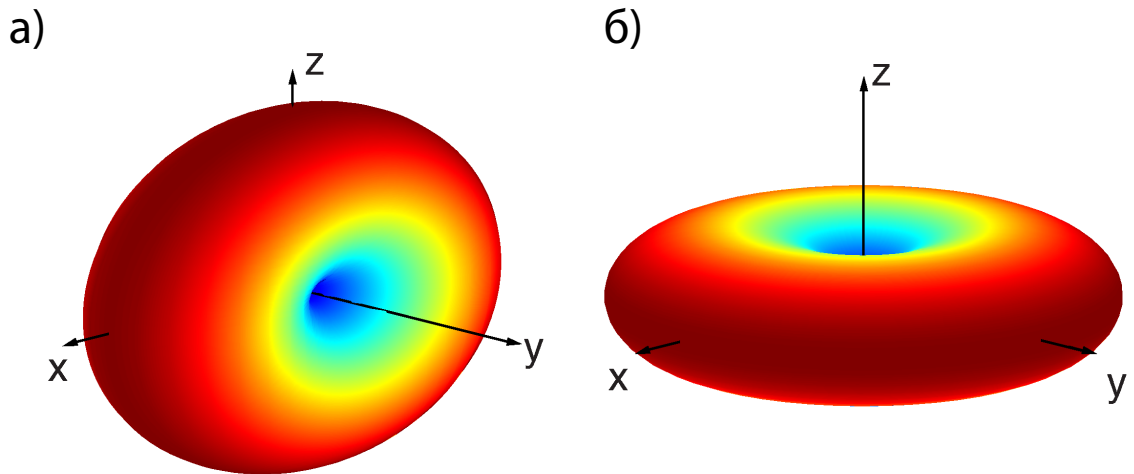


Рисунок 12 — Диаграммы направленности холостого (а) и сигнального (б) фотонов в одномодовом распаде.

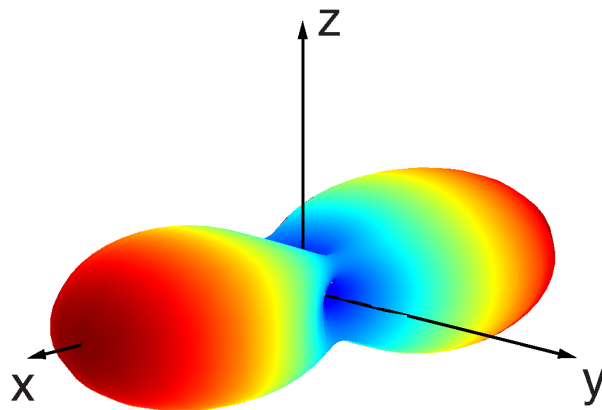


Рисунок 13 — Диаграмму направленности одновременного коллинеарного детектирования сигнального и холостого фотонов в одномодовом распаде.

Многомодовый распад

Рассмотрим диаграмму направленности коллинеарного распада для наночастиц из BaTiO_3 и GaAs с учетом всех генерируемых гармоник. В диаграммах направленности учитывались все возможные каналы, однако в ряде случаев преобладает лишь один из них.

Для **титаната бария** на Рисунке 14а показан случай когда угол $\beta = 0$. Видно что диаграмма направленности симметрична относительно преобразований координат $x \rightarrow -x$ и $y \rightarrow -y$, однако отсутствует симметрия $z \rightarrow -z$. Это связано с направлением падения падающей волны и фазовыми соотношениями между генерируемыми мультиполями. Для случая, когда $\beta = \pi/4$, симметрия относительно преобразования координат $x \rightarrow -x$ исчезает для титаната бария, Рисунок 14б, но сохраняется для арсенида галлия, так как при повороте на угол $\beta = \pi/4$ система остается симметричной относительно такого преобразования, Рисунок 15б.

Для случая, когда $\beta = \pi/2$, для титаната бария наблюдается эффект Керкера (см. Рисунок 14в), сгенерированные фотоны с наибольшей вероятностью рассеиваются назад, а рассеяние вперед подавляется практически полностью. Это представляется возможным, поскольку генерируемые мультиполи соответствуют скрещенному магнитному и электрическому диполям, один из которых направлен вдоль оси x , а второй — вдоль y , а в связи с направлением падающей волны, возможны фазовые соотношения между коэффициентами, которые могут давать рассеяние назад и вперед, аналогично эффекту Керкера для упругого рассеяния плоской волны.

Для **арсенида галлия** основные генерируемые диполи направлены вдоль осей x и z , что могло бы соответствовать рассеянию вправо или влево вдоль оси y , но симметрия задачи не позволяет направленного рассеяния вдоль этой оси, поэтому диаграмма является относительно симметричной и видно сильное рассеяние вбок, Рисунок 15а,в.

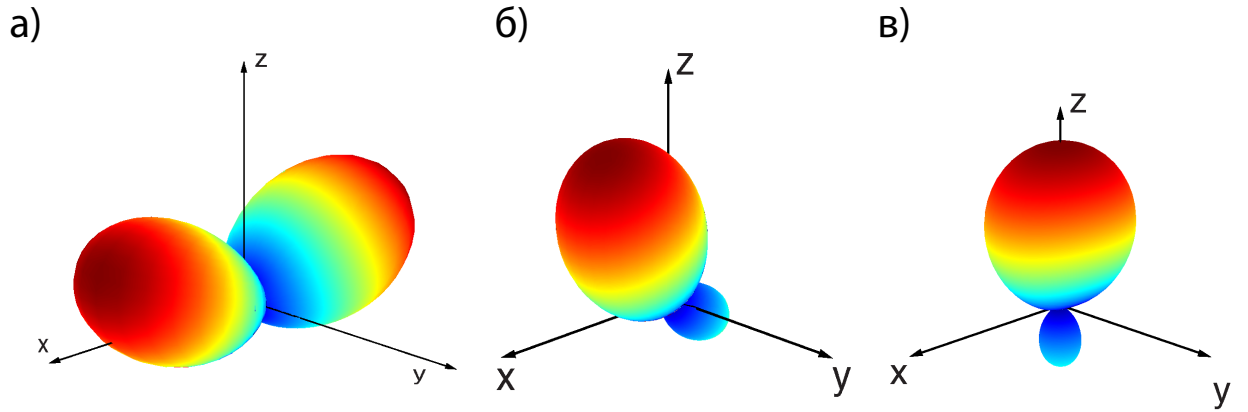


Рисунок 14 — Диаграммы направленности для вероятности одновременного детектирования сигнального и холостого фотонов, летящих в одном направлении для всех возможных поляризаций детекторов для частицы из титаната бария BaTiO_3 радиуса $a = 110\text{нм}$; кристаллическая решетка которого повернута на угол $\beta = 0$ (а), $\beta = \pi/4$ (б), $\beta = \pi/2$ (в) вокруг оси y ; накачка происходит на длине волны магнитного дипольного резонанса — $\lambda_p = 600\text{нм}$.

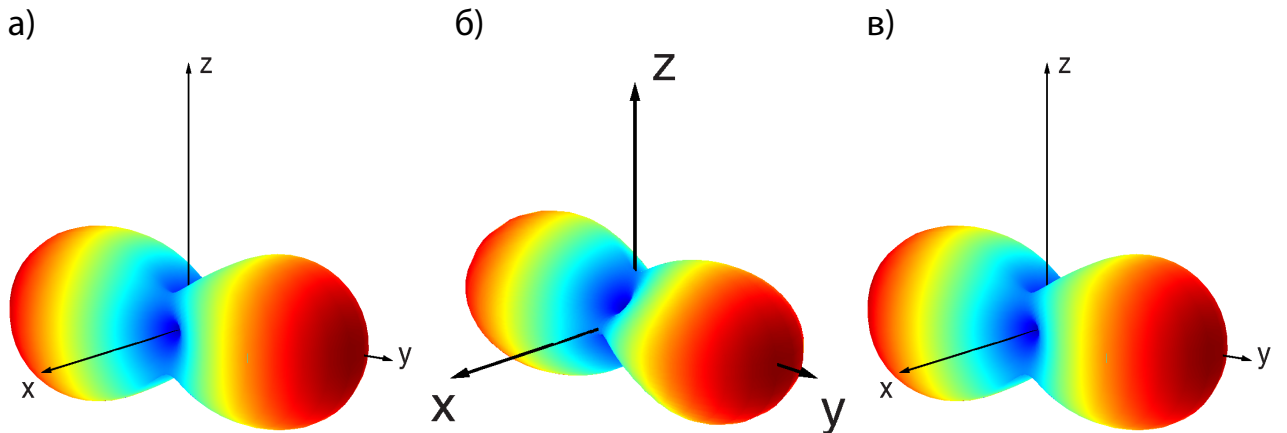


Рисунок 15 — Диаграммы направленности для вероятности одновременного детектирования сигнального и холостого фотонов, летящих в одном направлении для всех возможных поляризаций детекторов для частицы из арсенида галлия GaAs радиуса $a = 110\text{нм}$; кристаллическая решетка которого повернута на угол $\beta = 0$ (а), $\beta = \pi/4$ (б), $\beta = \pi/2$ (в) вокруг оси y ; накачка происходит на длине волны магнитного дипольного резонанса — $\lambda_p = 800\text{нм}$.

Заключение

В работе исследовано вырожденное спонтанное параметрическое рассеяние света диэлектрической частицей субволнового размера на основе кристаллов, обладающих ненулевым тензором объемной нелинейности второго порядка $\chi^{(2)}$. Были получены следующие результаты:

1. аналитическое выражение для двухфотонной амплитуды би-фотонов, генерируемых сферической наночастицей при СПР в рамках теории Ми;
2. построены матрицы коэффициентов в разложении двухфотонной амплитуды, наглядно показывающие, что для накачивающего поля на частоте магнитного дипольного резонанса, основной вклад в разложение дают дипольные моды сигнального и холостого фотонов;
3. построены диаграммы направленности для вероятности одновременного детектирования сигнального и холостого фотонов, летящих в одном направлении, а так же рассмотрена зависимость этих диаграмм направленности от ориентации кристаллической решетки наночастицы.

Список литературы

- [1] R. Paschotta, P. Kurz, R. Henking, S. Schiller, and J. Mlynek, Efficient continuous-wave frequency doubling of 1.06 microm with a monolithic MgO:LiNbO₃ resonator, *Optics letters*, **19**(17):1325–132, (1994)
- [2] Arseniy I. Kuznetsov, Andrey E. Miroshnichenko, Mark L. Brongersma, Yuri S. Kivshar, and B. Lukyanchuk, Optically resonant dielectric nanostructures, *Science*, **354** (2016)
- [3] V. Kuzmiak, A. Krasnok, S. Makarov, M. Petrov, R. Savelev, P. Belov, and Y. Kivshar. Towards alldielectric metamaterials and nanophotonics, *In Proceedings of SPIE - The International Society for Optical Engineering*, volume 9502 (2015)
- [4] F Timpu, Anton Sergeyev, Nicholas Hendricks, and Rachel Grange, Second-Harmonic Enhancement with Mie Resonances in Perovskite Nanoparticles, *ACS Photonics*, **4** (2017)
- [5] Carletti L., Locatelli A., Stepanenko O., Leo G. and C De Angelis, Enhanced second-harmonic generation from magnetic resonance in AlGaAs nanoantennas, *Optics express*, **23**(20), 26544–50 (2015)
- [6] Javier Cambiasso, Gustavo Grinblat, Yi Li, Aliaksandra Rakovich, Emiliano Cortes, and Stefan A. Maier, Bridging the gap between dielectric nanophotonics and the visible regime with effectively lossless GaP antennas, *Nano Letters*, **17** (2017)
- [7] Rocio Camacho-Morales, Mohsen Rahmani, Sergey Kruk, Lei Wang, Lei Xu, Daria A. Smirnova, Alexander S. Solntsev, Andrey Miroshnichenko, Hark Hoe Tan, Fouad Karouta, Shagufta Naureen, Kaushal Vora, Luca Carletti, Costantino De Angelis, Chennupati Jagadish, Yuri S. Kivshar, and Dragomir N. Neshev, Nonlinear Generation of Vector Beams from AlGaAs Nanoantennas, *Nano Letters*, **16** (2016)

- [8] Luca Carletti, Kirill Koshelev, Costantino De Angelis, and Yuri Kivshar, Giant nonlinear response at the nanoscale driven by bound states in the continuum, **2** (2018)
- [9] A.S. Solntsev, A.A. Sukhorukov, Path-entangled photon sources on nonlinear chips, *Reviews in Physics* **2**, 19-31 (2017).
- [10] A. Orioux, M.A.M. Versteegh, K.D. Jons and S. Ducci, Semiconductor devices for entangled photon pair generation: a review, *Rep. Prog. Phys.* **80**, 076001 (2017).
- [11] A.S. Solntsev et al, Quantum-classical correspondence for photon-pair generation in nonlinear dielectric nano-resonators, 2016 Photonics and Fiber Technology Congress, paper NT3A.4 (2016).
- [12] Alexander N. Poddubny, Ivan V. Iorsh, and Andrey A. Sukhorukov, Generation of Photon-Plasmon Quantum States in Nonlinear Hyperbolic Metamaterials *Phys. Rev. Lett.*, **117**, 123901 (2016)
- [13] C. F. Bohren and D. R. Huffman, Absorption and scattering of light by small particles, volume 1 (1983)
- [14] G. Mie, Beitrage Zur Optik Trüber Medien, Speziell Kolloidaler Metallosungen *Annalen der Physik*, **330**, 377-445 (1908)
- [15] V. Bradford Mason, The electromagnetic radiation from simple sources in the presence of a homogeneous dielectric sphere, PhD thesis (1972)
- [16] Suleyman Cabuk, The nonlinear optical susceptibility and electro-optic tensor of ferroelectrics: Firstprinciple study, *Central European Journal of Physics*, **10** (2012)
- [17] Boyd R. W, *Nonlinear Optics 3*, San Diego: Academic Press (2008)
- [18] Ландау, Л. Д., Лифшиц, Е. М, Квантовая механика (нерелятивистская теория). — («Теоретическая физика», том III).

[19] Д. А. Варшалович, А. Н. Москалев, В. К. Херсонский, Квантовая теория углового момента (1975)