

UNIVERZA V LJUBLJANI  
FAKULTETA ZA MATEMATIKO IN FIZIKO  
ODDELEK ZA FIZIKO  
MAGISTRSKI ŠTUDIJSKI PROGRAM 2. STOPNJE FIZIKA,  
SMER TEHNIČNA FIZIKA IN FOTONIKA

Sara Klopčič

**Generiranje in karakterizacija prepletenih fotonov iz  
tekočega kristala**

Magistrsko delo

MENTOR: doc. dr. Matjaž Humar

Ljubljana, 2024



## Zahvale

Najlepše se zahvaljujem mentorju doc. dr. Matjažu Humarju, ki mi je omogočil delo v svoji uspešni raziskovalni skupini. Zahvaljujem se mu za vse strokovne nasvete, prijaznost in podporo. Hvaležna sem tudi vsem sodelavcem, ki so me tako lepo sprejeli medse. Posebno bi se želela zahvaliti Aljažu Kavčiču, ki me je med delom usmerjal, mi svetoval ter me hkrati veliko naučil. Hvaležna sem mu za vso prijaznost in spodbudne besede. Zahvaljujem se tudi vsem domačim, ki mi vedno stojijo ob strani. Z njihovo podporo so vsi izzivi mogoči.



# Generiranje in karakterizacija prepletenih fotonov iz tekočega kristala

## IZVLEČEK

Napredek v kvantni optiki je v zadnjih letih povečal potrebo po boljših virih prepletenih fotonov. Kot obetavni materiali za tvorbo prepletenih fotonskih parov preko spontane parametrične pretvorbe navzdol (SPDC) so se pred kratkim izkazali feroelektrični nematski tekoči kristali (FNLC). Zaradi polarne urejenosti lahko v njih potekajo nelinearni optični pojavi drugega reda, kamor spada tudi SPDC. Za opazovanje in zaznavanje fotonskih parov smo sestavili lastno eksperimentalno postavitve. Z njo je mogoče spreminjati polarizacijo črpalnega žarka, ki vpada na vzorec. Nastalo svetlobo skolimiramo ter do detektorjev prepustimo zgolj fotone z določeno polarizacijo. Iz časovnega zamika med posameznimi zaznanimi dogodki lahko izluščimo SPDC signal. Merjenje različnih polarizacijskih stanj nam omogoča izvedbo polarizacijske tomografije, s čimer dobimo informacijo o celotnem polarizacijskem stanju nastalih fotonskih parov. Poleg tega je postavitvi dodan še del za mikroskopijo ter merjenje signala optičnega frekvenčnega podvajanja (SHG).

Delovanje in ustreznost postavitve za merjenje SPDC signala smo preverili na vzorcu kristala litijevega niobata. Ker so se rezultati meritev ujemali z rezultati iz literature, smo nadaljevali z merjenjem na tekočih kristalih. Razmerje med tokom nastalih fotonskih parov in ozadjem je bilo v skladu s teoretično napovedjo obratno sorazmerno z močjo črpalnega žarka. Ugotovili smo, da je koherenčna razdalja približno trikrat manjša od pričakovane teoretične vrednosti.

Ker je namen SPDC običajno tvorba prepletenih parov fotonov, sem se v drugem delu magistrske naloge osredotočila na odvisnost prepletenosti fotonskih stanj od lastnosti tekočerkristalne celice in polarizacije črpalnega žarka. S teoretičnim modelom, ki sta ga razvila Kavčič in Sultanov [1], sem tako izračunala odvisnost prepletenosti od debeline tekočerkristalne celice ter polarizacije črpalnega žarka. Rezultati modela so napovedali, da je prepletenost blizu 1 mogoče dobiti le pri zelo tankih celicah. Posledično smo zato meritve izvedli pri najmanjših debelinah naše klinaste tekočerkristalne celice, ki so znašale približno 1.8  $\mu\text{m}$ . Prepletenost fotonskega para smo spreminjali s polarizacijo črpalnega žarka. Med drugim smo tako ustvarili pare fotonov z nizko prepletenostjo  $C = 0.12 \pm 0.2$  ter prepletene fotonske pare z zelo visoko stopnjo prepletenosti  $C = 0.98 \pm 0.07$ . Po nam znanih informacijah smo bili s tem prvi v Sloveniji, ki nam je uspelo ustvariti prepletene fotone.

## Ključne besede:

SPDC, polarizacijska tomografija, nelinearna optika, kvantna optika, feroelektrični nematski tekoči kristali, prepleteni fotoni



# Generation and characterization of entangled photons from a liquid crystal

## ABSTRACT

Developments in the field of quantum optics have led to an increased demand for better sources of entangled photons. Recently discovered ferroelectric nematic liquid crystals (FNLCs) have emerged as promising materials for generating entangled photon pairs via spontaneous parametric down-conversion (SPDC). Their polar ordering leads to second-order nonlinear optical phenomena, such as SPDC. To observe and detect photon pairs, we assembled a custom experimental setup. With it, we can adjust the polarization of the pump beam incident on the sample. The resulting photon pairs are collimated, and only those with a certain polarization are transmitted to the detectors. From the time delay between individual detected events, we can extract the SPDC signal. Measuring various polarization states enables us to perform polarization tomography, providing information on the overall polarization state of the generated photon pairs. Additionally, the setup includes a camera for microscopy and a part for measuring second harmonic generation (SHG).

The performance and suitability of the setup for measuring the SPDC signal was verified using a lithium niobate crystal. As the measurement results were consistent with the results from literature, we proceeded with measurements on liquid crystals. The ratio between the flux of generated photon pairs and the background was inversely proportional to the pump beam power, which is in accordance with theoretical predictions. We determined that the coherence length is approximately three times smaller than the expected theoretical value.

Since the purpose of SPDC is typically to generate entangled photon pairs, I focused in the second part of my thesis on how the photon entanglement depends on the properties of the liquid crystal cell and the polarization of the pump beam. With the simulation developed by Kavčič and Sultanov [1], I examined the theoretical dependence of entanglement on the thickness of the liquid crystal cell and the polarization of the pump beam. The model predicted that entanglement close to 1 could be achieved only with very thin cells. Consequently, measurements were conducted at the smallest thicknesses of our wedge-shaped liquid crystal cell, which was at approximately 1.8  $\mu\text{m}$ . The entanglement of the photon pair was controlled by the polarization of the pump beam. Among other results, we generated photon pairs with low entanglement  $C = 0.12 \pm 0.2$  and also photon pairs with very high entanglement  $C = 0.98 \pm 0.07$ . To the best of our knowledge, we were the first in Slovenia to have succeeded in creating entangled photons.

## Keywords:

SPDC, polarization tomography, non-linear optics, quantum optics, ferroelectric nematic liquid crystals, entangled photons





# Kazalo

Seznam kratic in simbolov . . . . .	11
1 Uvod . . . . .	13
2 Nelinearna optika . . . . .	17
3 Kvantna izpeljava SPDC . . . . .	23
4 Fazno ujemanje, optična dvolomnost in tenzor nelinearnosti . . .	27
5 Tekoči kristali . . . . .	33
5.1 Lastnosti preučevanega tekočega kristala . . . . .	34
6 Detekcija parov fotonov . . . . .	37
6.1 Meritev toka nastalih fotonskih parov in izračun gostotne matrike . .	39
6.2 Meritve na vzorcu litijevega niobata . . . . .	42
7 Meritve na vzorcu FNLC . . . . .	45
7.1 Odvisnost koincidenč od moči črpalnega žarka . . . . .	45
7.2 Odvisnost SPDC signala od debeline FNLC . . . . .	47
7.3 Simulacija spreminjanja prepletenosti fotonov z debelino in vhodno polarizacijo . . . . .	49
7.4 Tomografija na vzorcu FNLC . . . . .	51
8 Zaključek . . . . .	57
9 Literatura . . . . .	59



# Seznam kratic in simbolov

## Kratice

**DFG** generacija razlike frekvenc

**FNLC** feroelektrični nematski tekoči kristal

**SFG** generacija vsote frekvenc

**SHG** optično frekvenčno podvajanje

**SPDC** spontana parametrična pretvorba navzdol



# 1. Uvod

S kvantno optiko opisujemo interakcije posameznih fotonov z atomi in molekulami v snovi, pri čemer fotone obravnavamo kot delce in ne kot valovanje. Zaradi kvantne narave fotonov so ti lahko med sabo prepleteni. V tem primeru jih ne moremo opisati neodvisno drug od drugega, temveč zgolj kot celoto. Meritev enega fotona v paru povzroči, da se valovna funkcija sesede, s čimer postane določeno tudi stanje drugega fotona, ne glede na razdaljo med njima. Prepletenost je vezana na določeno lastnost fotonov, kot so pozicija, gibalna količina in polarizacija. Prepleteni fotoni se uporabljajo v mnogih kvantnih aplikacijah. Takšen primer je kvantna teleportacija, pri kateri kvantno stanje teleportiramo iz enega mesta na drugo. To je prvi uspelo Zeilingerjevi skupini leta 1997 [2]. Prepletene fotone potrebujemo tudi za kvantno kriptografijo [3], [4], saj je nepoznano kvantno stanje nemogoče podvojiti (*no-cloning quantum mechanical theorem*), ne da bi ga pri tem spremenili. Poleg tega so primerni za kvantno računalništvo [5] in metrologijo [6]. Slednja omogoča večjo natančnost meritev na primer razdalje, časa, frekvence in temperature v primerjavi s klasičnimi načini merjenja. Prepletene fotone je mogoče uporabiti tudi za merjenje debeline prozornih predmetov s Hong-Ou-Mandel interferenco (*HOM imaging*) [7].

Za tvorbo prepletenih fotonov se med drugim uporablja spontana parametrična pretvorba navzdol (*Spontaneous parametric down-conversion*, SPDC). To je nelinearen optični pojav, pri katerem iz začetnega fotona pri prehodu skozi nelinearni material nastaneta dva fotona. SPDC so teoretično napovedali že v šestdesetih letih dvajsetega stoletja [8]. Čeprav je bil prvič eksperimentalno izveden leta 1970 [9], so ga za praktične namene začeli uporabljati šele v poznih osemdesetih in zgodnjih devetdesetih letih prejšnjega stoletja. SPDC je kvanten proces, zato za njegov opis potrebujemo kvantno mehansko izpeljavo. Pod določenimi pogoji sta izhodna fotona kvantno prepletena v polarizaciji. Valovna funkcija, s katero opišemo fotona, je zato linearna kombinacija polarizacijskih stanj.

Kot že samo ime pove, je SPDC parametričen proces, kar pomeni, da se pri prehodu skozi snov energija ohranja. Poleg tega moramo zadostiti tudi ohranitvi gibalne količine, kar nam nekoliko omeji izbiro materiala in geometrijo postavitve eksperimenta. Pri izotropnih materialih z normalno disperzijo lomnih količnikov namreč ni mogoče doseči ohranitve gibalne količine [10]. Pogosto zato uporabljamo dvolomne materiale, pri katerih se lomni količnik spreminja tudi s polarizacijo in smerjo vpadne svetlobe, kar je podrobneje opisano v nadaljevanju magistrske naloge. Pri uporabi dvolomnih materialov dobimo ujemanje faz valovanj zgolj pod določenimi koti, kar moramo upoštevati pri postavitvi eksperimenta. Poslužimo se lahko tudi kvazi-ujemanja faz, pri katerem je dvolomen kristal sestavljen iz periodičnih plasti, kjer ima vsaka naslednja plast nasprotno orientacijo od prejšnje (*periodic polling*). Poleg možnosti faznega ujemanja mora imeti izbran material tudi veliko nelinearnost. Zaradi vsega omenjenega je izbira materiala močno omejena. Najpo-

gosteje se uporabljajo kristali barijevega borata [11], kalijevega titanil fosfata [12] in litijevega niobata [13]. Vse to velja za kristale večjih dimenzij (nekaj milimetrov do centimetrov, angleško *bulk crystals*).

V zadnjih letih so se za preučevanje SPDC začeli uporabljati tudi zelo tanki vzorci, pri katerih je fazno ujemanje zaradi majhne debeline samo po sebi izpolnjeno. Prepletene fotone so na vzorcih, tanjših od valovne dolžine, dobili pri nanofilmih litijevega niobata in galijevega fosfida [14], [15], mikrokockah litijevega niobata [16] in nanožicah iz galijevega arzenata [17]. Ker pri tankih vzorcih ne potrebujemo točnega faznega ujemanja, je širina frekvenčnega spektra nastalih fotonov večja kot pri vzorcih s faznim ujemanjem. Slaba stran tankih plasti je kratka interakcijska dolžina, zaradi česar se zmanjša učinkovitost SPDC.

Napredka na področju materialov, primernih za SPDC, v zadnjih nekaj desetletjih ni bilo veliko. Za prvi prikaz SPDC so uporabili litijev niobat, ki je še zdaj med najbolj razširjenimi na tem področju. V nasprotju s tem smo priča velikemu razvoju kvantne optike, zato potreba po boljših virih prepletenih fotonov narašča. V zadnjem času se je tako pojavila zamisel o SPDC v organskih vzorcih, natančneje v tekočih kristalih, v katerih do pred kratkim še ni bilo raziskav o SPDC.

V splošnem so tekoči kristali kapljevine, ki imajo podobne anizotropne lastnosti kot trdni kristali. Sestavljeni so iz podolgovatih ali ploščatih gradnikov, ki lahko ustvarijo določeno stopnjo urejenosti snovi [18]. V vsakdanjem življenju jih srečamo predvsem v tekočokristalnih zaslonih (LCD), ki so del telefonov, računalnikov, ur in podobnih elektronskih naprav. Pri tem izkoriščamo vpliv električnega polja na orientacijo molekul tekočega kristala. S prisotnostjo električnega polja lahko namreč spreminjamo povprečno smer molekul v tekočem kristalu. S tem se spremenijo tudi optične lastnosti tekočega kristala, kot je na primer smer optične osi, česar pri trdnih kristalih ne moremo storiti. Če želimo ustvariti vzorec določene debeline, moramo zgolj izdelati celico pravih dimenzij ter vanjo vnesti tekoči kristal, pri čemer nam je v pomoč kapilarni tlak. V nasprotju s tem je trdni kristal potrebno rezati oziroma drugače fizično obdelati, da dobimo vzorec želene velikosti. Postopni zasuk molekul za določen kot v tekoče kristalni celici je mogoče ustvariti tudi z dodatkom kiralnih dopantov.

Leta 2017 je prišlo do odkritja feroelektričnih nematskih tekočih kristalov (FNLC) [19], [20], [21]. V nasprotju z običajno nematsko fazo ima feroelektrična nematska faza polarni red, ki povzroči veliko dielektrično konstanto, močan odziv na električno polje in nelinearne optične lastnosti. To je prvič omogočilo opazovanje SPDC v tekočem kristalu. Kot prvi so feroelektrične nematske tekoče kristale za tvorbo ftonskega para preko SPDC uporabili Kavčič, Sultanov in drugi [1]. Združili so prednosti tako majhne debeline vzorca kot tudi enostavnega spreminjanja orientacije molekul z električnim poljem. Z nekaj mikrometrov debelim vzorcem so ustvarili sorazmerno velik tok fotonov. Njihovo polarizacijsko stanje so uravnavali s spreminjanjem električnega polja v vzorcu.

Za preučevanje SPDC v feroelektričnem nematskem tekočem kristalu smo tudi na Inštitutu Jožef Stefan naredili eksperimentalno postavitev za zaznavanje ustvarjenih ftonskega parov in meritev polarizacijskega stanja. Namen magistrske naloge je preveriti delovanje naprave z meritvami na vzorcu litijevega niobata ter nadaljevati z meritvami na FNLC. Zanimalo nas je ujemanje odvisnosti toka nastalih fotonov od intenzitete črpalnega žarka in debeline vzorca s teorijo. Ker želimo preko SPDC običajno ustvariti prepletena fotone, ki jih nato lahko uporabimo v kvantnih apli-

---

kacijah, smo na podlagi teoretičnih simulacij tudi v praksi poskusili optimizirati vzorec in polarizacijo črpalnega žarka za nastanek zelenih stanj. Po nam znanih informacijah smo bili prvi v Sloveniji, ki nam je uspelo ustvariti prepletene fotone.

Začetno poglavje magistrskega dela je namenjeno opisu nelinearnih optičnih pojavov drugega reda. V tretjem poglavju sledi kvantni opis SPDC in njegova izpeljava iz energije elektromagnetnega polja. Ker za SPDC pogosto uporabljamo enoosne dvolumne materiale, so njihove lastnosti opisane v četrtem poglavju skupaj z nelinearno susceptibilnostjo in susceptibilnostnim tenzorjem  $d$ . Naslednje poglavje je namenjeno lastnostim tekočih kristalov. Posebej so izpostavljene lastnosti FNLC, ki smo ga uporabili v naših eksperimentih. Postavitev eksperimenta je opisana v šestem poglavju. Prav tako je tukaj predstavljen postopek za izračun gostotne matrike stanja neposredno iz meritev ter preverjanje pravilnosti rezultatov na že znanih lastnostih litijevega niobata. Sedmo poglavje je namenjeno meritvam na FNLC, kjer smo se osredotočili na opazovanje toka nastalih fotonskih parov v odvisnosti od intenzitete črpalnega žarka in debeline vzorca. S tomografijo polarizacijskih stanj nastalih fotonov smo ugotavljali kvantno prepletenost fotonskega para.





## 2. Nelinearna optika

To poglavje se opira na knjigo Fotonika avtorjev M. Čopič in M. Vilfan [18] ter na pregledni članek C. Couteauja [22]. Svetlobo, torej elektromagnetno valovanje, v vakuumu opišemo z vektorjema jakosti električnega polja  $\mathbf{E}$  in gostoto magnetnega polja  $\mathbf{B}$ . Če svetloba preči snov, moramo upoštevati tudi interakcijo svetlobe z gradniki snovi. Za ta opis potrebujemo poleg omenjenih vektorjev še gostoto električnega polja  $\mathbf{D}$  in jakost magnetnega polja  $\mathbf{H}$ . V splošnem veljata zvezi

$$\mathbf{D} = \varepsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (2.1)$$

in

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H} + \mu_0 \mathbf{M}, \quad (2.2)$$

kjer sta  $\varepsilon_0$  in  $\mu_0$  induksijska in influenčna konstanta. S  $\mathbf{P}$  opišemo električno polarizacijo in z  $\mathbf{M}$  magnetizacijo. V našem primeru bomo predpostavili, da je snov nemagnetna, zato postane gostota magnetnega polja  $\mathbf{B}$  sorazmerna z jakostjo magnetnega polja  $\mathbf{H}$ , torej  $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ . Sedaj si pogledjmo še enačbo (2.1). V linearni optiki smo vajeni, da je polarizacija linearno sorazmerna z električnim poljem. Če ima snov nelinearne lastnosti, je potrebno upoštevati tudi prispevke višjih redov v električnem polju  $\mathbf{E}$ . Polarizacijo tako zapišemo v razvoju po  $\mathbf{E}$  kot

$$\mathbf{P} = \varepsilon_0 \left[ \chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E} + \chi^{(3)} : \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \dots \right], \quad (2.3)$$

kjer je  $\chi^{(1)}$  tenzor linearne susceptibilnosti (tenzor drugega ranga). Tenzorjema  $\chi^{(2)}$  in  $\chi^{(3)}$  pravimo tenzorja nelinearne susceptibilnosti drugega in tretjega reda. Redi velikosti susceptibilnosti v trdnih snoveh so približno  $\chi^{(1)} \sim 1$ ,  $\chi^{(2)} \sim 10^{-11} \frac{\text{V}}{\text{m}}$  in  $\chi^{(3)} \sim 10^{-22} \frac{\text{V}^2}{\text{m}^2}$  [18]. Iz majhnih vrednosti nelinearnih susceptibilnosti sledi, da moramo za opazovanje višjih redov nelinearnih pojavov imeti dovolj veliko gostoto svetlobnega toka. To je postalo mogoče šele z odkritjem laserjev [18]. V našem primeru se bomo posvetili nelinearnim optičnim pojavom drugega reda, zato bomo v izrazu za polarizacijo obdržali le člene prvega in drugega reda ter zanemarili vse višje prispevke. Predpostavimo, da na snov vpadata dve valovanji s frekvencama  $\omega_1$  in  $\omega_2$ , ki se širita v smeri osi  $z$ . Ob času  $t$  ju zapišemo kot

$$\mathbf{E}_1(z, t) = \frac{1}{2} \mathbf{e}_1 \left( A_1(z) e^{ik_1 z} e^{-i\omega_1 t} + \text{c.c.} \right), \quad (2.4)$$

$$\mathbf{E}_2(z, t) = \frac{1}{2} \mathbf{e}_2 \left( A_2(z) e^{ik_2 z} e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.} \right), \quad (2.5)$$

kjer sta  $\mathbf{e}_1$  in  $\mathbf{e}_2$  enotska vektorja v smeri električnega polja,  $A_1$  in  $A_2$  amplitudi valovanja,  $k_1$  in  $k_2$  pa valovna vektorja. Zanju velja  $k_i^2 = \frac{\varepsilon_n \omega_i^2}{c_0^2}$ , kjer je  $i = 1, 2$  ter  $\varepsilon_i$

dielektrična konstanta pri frekvenci  $\omega_i$  in polarizaciji  $\mathbf{e}_i$ . Oznaka c.c. označuje kompleksno konjugiran del. Skupno električno polje je vsota obeh valovanj. Vstavimo ga v izraz za nelinearno polarizacijo drugega reda  $\mathbf{P}^{(2)} = \varepsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E}$

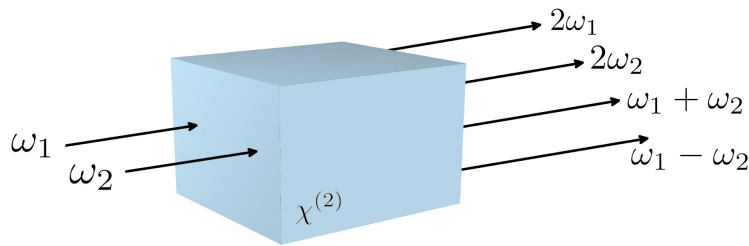
$$\mathbf{P}^{(2)} = \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi^{(2)} : [\mathbf{e}_1 A_1(z) e^{ik_1 z} e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{e}_2 A_2(z) e^{ik_2 z} e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.}] \cdot \quad (2.6)$$

$$[\mathbf{e}_1 A_1(z) e^{ik_1 z} e^{-i\omega_1 t} + \mathbf{e}_2 A_2(z) e^{ik_2 z} e^{-i\omega_2 t} + \text{c.c.}] \cdot \quad (2.7)$$

Razpišemo oklepaja in dobimo

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(2)} = \frac{1}{4} \varepsilon_0 \chi^{(2)} : & [\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_1 A_1(z) A_1(z) e^{i2k_1 z} e^{-i2\omega_1 t} + \mathbf{e}_2 \mathbf{e}_2 A_2(z) A_2(z) e^{i2k_2 z} e^{-i2\omega_2 t} + \\ & + 2\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2 A_1(z) A_2(z) e^{i(k_1+k_2)z} e^{-i(\omega_1+\omega_2)t} + 2\mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2^* A_1(z) A_2^*(z) e^{i(k_1-k_2)z} e^{-i(\omega_1-\omega_2)t} + \\ & + A_1(z) A_1^*(z) + A_2(z) A_2^*(z) + \text{c.c.}] \cdot \end{aligned} \quad (2.8)$$

Vidimo, da imajo nastale komponente valovanja dvojno frekvenco ( $2\omega_1$  in  $2\omega_2$ ), vsoto frekvenc ( $\omega_1 + \omega_2$ ), razliko frekvenc ( $\omega_1 - \omega_2$ ) in ničelno frekvenco. Tvorbi valovanja z dvojno frekvenco pravimo optično frekvenčno podvajanje ali SHG (*Second harmonic generation*), valovanje pri vsoti frekvenc označujemo s kratico SFG (*Sum Frequency Generation*), pri razliki frekvenc DFG (*Difference Frequency Generation*), statičnemu polju pa pravimo optično usmerjanje (*Optical Rectification*). Shematsko je to prikazano na sliki 2.1. V nasprotju z linearnimi optičnimi procesi, kjer se frekvenca valovanja po prehodu skozi snov ne spremeni, je pri nelinearnih procesih prisotna izmenjava energije med valovanji. Posledica so nova valovanja pri omenjenih frekvencah. Pri tem ne smemo pozabiti, da zaradi majhnih vrednosti komponent  $\chi^{(2)}$  običajno večina valovanja vseeno nemoteno preide skozi snov.



Slika 2.1: Nastanek valovanj z  $2\omega_1$ ,  $2\omega_2$ ,  $\omega_1 + \omega_2$  in  $\omega_1 - \omega_2$  pri nelinearnih optičnih pojavih drugega reda.

Sedaj si pogledajmo, kako se amplitude valovanj spreminjajo zaradi nelinearnega prispevka. Začnimo z nelinearno valovno enačbo

$$\nabla^2 \mathbf{E} - \frac{\varepsilon}{c_0^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{(2)}}{\partial t^2}, \quad (2.9)$$

kjer je  $c_0$  svetlobna hitrost in  $\varepsilon$  dielektrična konstanta. Da jo lahko rešimo, uporabimo sledeče približke. Tako kot prej bomo privzeli, da se vpadni valovanji širita v smeri osi  $z$ . Nastalo valovanje bomo zapisali kot

$$\mathbf{E}_3(\mathbf{z}, t) = \frac{1}{2} \mathbf{e}_3 \left( A_3(z) e^{ik_3 z} e^{-i\omega_3 t} + \text{c.c.} \right). \quad (2.10)$$

Linearni del valovne enačbe reši vsako od zapisanih polj  $\mathbf{E}_1$ ,  $\mathbf{E}_2$  in  $\mathbf{E}_3$  s konstantnimi amplitudami  $A_1$ ,  $A_2$  in  $A_3$ . V primeru nelinearnega prispevka polarizacije se to nekoliko spremeni. Zapišimo celotno električno polje  $\mathbf{E}$ , ki je sedaj vsota vseh treh valovanj:

$$\mathbf{E}(\mathbf{z}, t) = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^3 \mathbf{e}_n \left( A_n(z) e^{ik_n z} e^{-i\omega_n t} + \text{c.c.} \right). \quad (2.11)$$

Izračunajmo krajevni in časovni odvod električnega polja. Pri tem bomo upoštevali, da se amplitude  $A_n(z)$  s krajem spreminjajo počasi, zaradi česar bomo njihove druge krajevne odvode zanemarili. Dobimo enačbi

$$\nabla^2 \mathbf{E} = \frac{1}{2} \sum_{n=1}^3 \mathbf{e}_n \left( 2ik_n \frac{dA_n}{dz} - A_n(z) k_n^2 \right) e^{ik_n z} e^{-i\omega_n t} + \text{c.c.}, \quad (2.12)$$

$$\frac{\varepsilon}{c_0^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{2} \sum_{n=1}^3 \mathbf{e}_n k_n^2 A_n(z) e^{ik_n z} e^{-i\omega_n t} + \text{c.c.} \quad (2.13)$$

ter ju vstavimo v enačbo (2.9). Pri polarizaciji  $\mathbf{P}^{(2)}$  prav tako upošteevamo celotno električno polje iz enačbe (2.11). Enačba bo veljala ob vsakem času  $t$ , če se bodo ujemali členi z enako frekvenčno odvisnostjo v eksponentu. Če izberemo  $\omega_1 + \omega_2 = \omega_3$ , dobimo enačbo

$$\mathbf{e}_3 ik_3 \frac{dA_3}{dz} e^{ik_3 z} e^{-i\omega_3 t} = \frac{1}{4} \mu_0 \varepsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2 A_1 A_2 e^{i(k_1+k_2)z} e^{i(\omega_1+\omega_2)t}. \quad (2.14)$$

Obe strani enačbe pomnožimo z  $\mathbf{e}_3$  in uvedemo oznaki  $\chi_{ef} = \mathbf{e}_3 \cdot \chi^{(2)} : \mathbf{e}_1 \mathbf{e}_2$  in  $\Delta k = k_3 - k_1 - k_2$ . Izrazimo odvod amplitude po  $z$  kot

$$\frac{dA_3}{dz} = \frac{i\omega_3 \chi_{ef}}{4c_0 n_3} A_1 A_2 e^{-i\Delta k z}, \quad (2.15)$$

kjer z  $n_3$  označujemo lomni količnik, ki ga občuti valovanje. Zaradi disperzije lomnih količnikov  $\Delta k$  v splošnem ni 0, če se za to posebej ne potrudimo z na primer pravilno izbiro materiala in postavitvijo eksperimenta. To bomo podrobneje obravnavali v 4. poglavju. Na podoben način kot za  $A_3(z)$  dobimo tudi enačbi za  $A_1(z)$  in  $A_2(z)$

$$\frac{dA_1}{dz} = \frac{i\omega_1 \chi_{ef}}{4c_0 n_1} A_2^* A_3 e^{-i\Delta k z}, \quad (2.16)$$

$$\frac{dA_2}{dz} = \frac{i\omega_2 \chi_{ef}}{4c_0 n_2} A_1^* A_3 e^{-i\Delta k z}. \quad (2.17)$$

Glede na začetne pogoje in relativne intenzitete enačbe (2.15) - (2.17) opisujejo različne pojave, kot so že omenjeni SHG, SFG in DFG. Najpreprostejši primer je optično frekvenčno podvajanje (SHG), pri katerem imata obe vhodni polji frekvenco

$\omega$ . Vseeno ju obravnavamo kot ločeni valovanji, saj imata lahko različni polarizaciji. Nastalo valovanje ima frekvenco  $2\omega$ . Zanima nas njegova intenziteta  $A_3$  vzdolž kristala. Ker se pretvori le majhen delež vhodnega valovanja, privzamemo, da amplitudi vhodnih žarkov  $A_1$  in  $A_2$  ostaneta konstantni  $A_1 = A_2 = A_0$ . V tem primeru enačbo (2.15) enostavno integriramo po  $z$  ter dobimo odvisnost

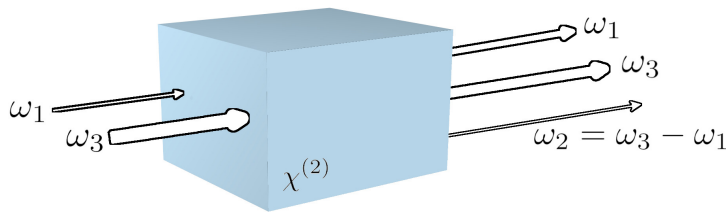
$$A_{3,2\omega}(L) = \frac{i\omega_1\chi_{ef}A_0^2}{2c_0n_{2\omega}}e^{\frac{-i\Delta kL}{2}}\frac{\sin(\frac{\Delta kL}{2})}{\frac{\Delta kL}{2}}L, \quad (2.18)$$

kjer je  $L$  dolžina kristala. Gostota svetlobnega toka  $j_{2\omega}(L)$  je sorazmerna s kvadratom amplitude, zato velja

$$j_{2\omega}(L) \propto \left( \frac{\sin(\frac{\Delta kL}{2})}{\frac{\Delta kL}{2}}L \right)^2. \quad (2.19)$$

Hitro opazimo, da intenziteta narašča s kvadratom dolžine kristala, če poskrbimo za fazno ujemanje  $\Delta k = 0$ .

Poglejmo si še primer tako imenovanega optičnega parametričnega ojačevanja, ki je sorodno SPDC. Optično parametrično ojačevanje uporabljamo za ojačevanje šibkega vhodnega signala, ki vpada na nelinearen material skupaj s črpalnim signalom z večjo intenziteto. Šibko valovanje naj ima frekvenco  $\omega_1$  in valovanje z večjo intenziteto frekvenco  $\omega_3 > \omega_1$ . Zaradi nelinearnih lastnosti snovi se intenziteta valovanja s frekvenco  $\omega_3$  manjša, medtem ko se intenziteta valovanja s frekvenco  $\omega_1$  večja. Da se pri tem ohrani energija, nastane še valovanje s frekvenco  $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ . To si lahko predstavljamo kot nastanek fotonov s frekvencama  $\omega_1$  in  $\omega_2$  iz fotona s frekvenco  $\omega_3$ . Shematsko je to prikazano na sliki 2.2.



Slika 2.2: Optično parametrično ojačevanje. Na račun oslavljenja valovanja pri frekvenci  $\omega_3$  se ojači šibko valovanje s frekvenco  $\omega_1$  in nastane dodatno valovanje s frekvenco  $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ .

Sedaj opišimo to še z enačbami. Predpostavili bomo, da je amplituda močnega valovanja bistveno večja od amplitud ostalih dveh valovanj, torej  $A_3 \gg A_1, A_2$ . Prav tako bomo privzeli, da se amplituda močnega valovanja ne zmanjša znatno, zato naj bo  $A_3 = A_{30}$  konstanta. Da bo proces potekel, se mora ohranjati tudi

gibalna količina, zato z izbiro ustreznih lomnih količnikov poskrbimo, da je  $\Delta k = 0$ . Ko to upoštevamo, dobimo enačbe

$$\frac{dA_1}{dz} = \frac{i\omega_1\chi_{ef}}{4c_0n_1}A_{30}A_2^*, \quad (2.20)$$

$$\frac{dA_2}{dz} = \frac{i\omega_2\chi_{ef}}{4c_0n_2}A_{30}A_1^*, \quad (2.21)$$

$$A_3 = A_{30}. \quad (2.22)$$

Enačbo (2.20) odvajamo po  $z$  in vstavimo vanjo kompleksno konjugiran izraz iz 2.21. Dobimo

$$\frac{d^2A_1}{dz^2} = \kappa^2 A_1, \quad (2.23)$$

$$\frac{d^2A_2}{dz^2} = \kappa^2 A_2, \quad (2.24)$$

kjer je  $\kappa^2 = \frac{\omega_1\omega_2\chi_{ef}^2|A_{30}|^2}{16c_0^2n_1n_2}$ . Pred vstopom v snov imamo valovanje pri frekvenci  $\omega_1$ , medtem ko valovanja s frekvenco  $\omega_2$  nimamo. Začetni pogoj se torej glasi  $A_1(0) = A_{10}$  in  $A_2(0) = 0$ . Iz tega sledita izraza za amplitudi obeh valovanj

$$A_1(L) = A_{10} \cosh(\kappa L) \quad \text{in} \quad (2.25)$$

$$A_2(L) = A_{20} \sinh(\kappa L). \quad (2.26)$$

Ko to vstavimo nazaj v enačbi (2.20) in (2.21), dobimo povezavo med  $A_{10}$  in  $A_{20}$ , ki se glasi

$$A_{20} = i\sqrt{\frac{\omega_2n_1}{\omega_1n_2}}A_{10}. \quad (2.27)$$

Lahko se zgodi, da vhodno valovanja s frekvenco  $\omega_3$  razpade na valovanji z nižjima frekvencama  $\omega_1$  in  $\omega_2$  tudi brez dodatnega vhodnega valovanja pri frekvenci  $\omega_1$ . Temu pravimo spontana parametrična pretvorba navzdol (SPDC). Za razliko od optičnega parametričnega ojačevanja SPDC ne moremo opisati klasično. Če bi bil  $A_{10} = 0$ , valovanji pri frekvencah  $\omega_1$  in  $\omega_2$  glede na enačbe (2.25) - (2.27) namreč nista mogoči. Za opis SPDC torej potrebujemo kvantno izpeljavo, kjer stanja lahko nastanejo iz kvantnih fluktuacij vakuuma.



### 3. Kvantna izpeljava SPDC

Kot je bilo pokazano v prejšnjem poglavju, SPDC ne moremo opisati na klasičen način. V tem poglavju se bomo zato za opis nelinearnih pojavov poslužili kvantne mehanike. Pri tem so glavne točke izpeljave povzete iz članka J. Schneelocha and J. C. Howella [23], v katerem sta podrobno razložila kvantni izvor SPDC in v drugem delu članka nadaljevala s prečnimi prostorskimi korelacijami. Začeli bomo z zapisom energije elektromagnetnega polja  $H_{EM}$

$$H_{EM} = \frac{1}{2} \int d^3r (\mathbf{D} \cdot \mathbf{E} + \mathbf{B} \cdot \mathbf{H}). \quad (3.1)$$

Za opis polarizacije bomo tako kot v prejšnjem poglavju uporabili razvoj polarizacije po električnem polju  $\mathbf{E}$ . V izraz za  $\mathbf{D}$  (2.1) vstavimo polarizacijo iz izraza (2.3). Če se omejimo na razvoj do drugega reda, dobimo

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \epsilon_0 (\chi^{(1)} \cdot \mathbf{E} + \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E}), \quad (3.2)$$

oziroma

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 (\mathbf{I} + \chi^{(1)}) \cdot \mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E}, \quad (3.3)$$

kjer je  $\mathbf{I}$  matrika identitete. Privzeli bomo nemagnetnost materiala, zato je  $\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}$ . Sedaj vstavimo zapisane količine v izraz za elektromagnetno polje (3.1)

$$H_{EM} = \frac{1}{2} \int d^3r \left( \epsilon_0 (\mathbf{I} + \chi^{(1)}) : \mathbf{E}\mathbf{E} + \epsilon_0 \chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E} + \mu_0 \mathbf{H}\mathbf{H} \right). \quad (3.4)$$

Ker se bomo osredotočili na nelinearne pojave, razdelimo tudi energijo elektromagnetnega polja na linearni  $H_L$  in nelinearni  $H_{NL}$  del

$$H = H_L + H_{NL}, \quad (3.5)$$

kjer je

$$H_L = \frac{1}{2} \int d^3r (\epsilon_0 (\mathbf{I} + \chi^{(1)}) : \mathbf{E}\mathbf{E} + \mu_0 \mathbf{H}\mathbf{H}), \quad (3.6)$$

$$\text{in} \quad H_{NL} = \frac{1}{2} \epsilon_0 \int d^3r (\chi^{(2)} : \mathbf{E}\mathbf{E}\mathbf{E}). \quad (3.7)$$

V nasprotju s klasičnim opisom iz 2. poglavja bomo sedaj za opis električnega polja uporabila kvantizirano električno polje oblike [23]

$$\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) = \frac{1}{\sqrt{V}} \sum_{\mathbf{k}, s} \sqrt{\frac{\hbar \omega(\mathbf{k})}{2\epsilon_0}} \left( i \mathbf{e}_{\mathbf{k}, s} \hat{a}_{\mathbf{k}, s} e^{-i\omega t} e^{i\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} + \text{h.c.} \right), \quad (3.8)$$

kjer je  $V$  kvantizacijska prostornina,  $\mathbf{e}_{\mathbf{k},s}$  enotski vektor polarizacije,  $\omega$  frekvenca nihanja električnega polja,  $\hat{a}_{\mathbf{k},s}$  anihilacijski operator, ki poskrbi za anihilacijo fotonov z valovnim vektorjem  $\mathbf{k}$  in polarizacijo  $\mathbf{e}_{\mathbf{k},s}$ . Njegov konjugiran par, ki mu pravimo kreacijski operator, je  $\hat{a}_{\mathbf{k},s}^\dagger$ . Hermitsko konjugiran del izraza označimo s kratico h.c. Privzeli bomo, da je črpalno polje dovolj močno, da se zaradi nelinearnih procesov ne zmanjša znatno. Posledično ga lahko obravnavamo klasično. Za potrebe te izpeljave ga bomo opisali kot monokromatski val s frekvenco  $\omega_0$ , polarizacijo v smeri  $\mathbf{e}_p$ , amplitudo  $E_0$  in prostorsko odvisnostjo  $G(\mathbf{r})e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}}$  [24]

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r}, t) = E_0 G(\mathbf{r}) e^{-i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}} e^{i\omega_0 t} \mathbf{e}_p. \quad (3.9)$$

Sedaj lahko vstavimo kvantizirani polji za fotona in klasično polje za črpalni žarek v izraz za nelinearni del energije. Ker vsebuje operatorje, bomo od zdaj naprej namesto energije zanj uporabljali izraz hamiltonian

$$\begin{aligned} \hat{H}_{NL} = & \frac{1}{2} \epsilon_0 \frac{1}{V} \frac{\hbar}{2\epsilon_0} \int d^3r \chi^{(2)} : \left( E_0 G^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}} e^{-i\omega_0 t} \mathbf{e}_p^* + \text{h.c.} \right) \times \\ & \times \sum_{\mathbf{k}_1, s_1, \mathbf{k}_2, s_2} \sqrt{\omega_1 \omega_2} \left( i \hat{a}_{\mathbf{k}_1, s_1}(t) \mathbf{e}_{\mathbf{k}_1, s_1} e^{-i\omega_1 t} e^{i\mathbf{k}_1 \cdot \mathbf{r}} + \text{h.c.} \right) \times \\ & \times \left( i \hat{a}_{\mathbf{k}_2, s_2}(t) \mathbf{e}_{\mathbf{k}_2, s_2} e^{-i\omega_2 t} e^{i\mathbf{k}_2 \cdot \mathbf{r}} + \text{h.c.} \right). \end{aligned} \quad (3.10)$$

Simbol  $\times$  označuje zgolj nadaljevanje enačbe v novo vrstico. Ko med sabo zmnožimo oklepaje, dobimo skupaj osem členov različnih kombinacij anihilacijskih operatorjev, kreacijskih operatorjev in klasičnega dela. Ker želimo opisati SPDC, nas bo zanimal člen, ki je odgovoren za anihilacijo enega črpalnega fotona in nastanek dveh novih fotonov. Takšen člen mora zato imeti obliko  $G^*(\mathbf{r}) \hat{a}_{\mathbf{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2, s_2}^\dagger$ . Njemu hermitsko konjugiran člen opisuje obraten proces, torej anihilacijo dveh fotonov in nastanek fotona s frekvenco  $\omega_p$ , čemur pravimo SHG, če sta frekvenci anihiliranih fotonov enaki, oziroma SFG v primeru različnih frekvenc. Ker nas ostali procesi trenutno ne zanimajo, bomo v hamiltonianu obdržali samo omenjena člena. Novi hamiltonian ima tako obliko

$$\begin{aligned} \hat{H}_{NL} = & -\frac{\hbar E_0}{4V} \int d^3r \sqrt{\omega_1 \omega_2} \sum_{\mathbf{k}_1, s_1, \mathbf{k}_2, s_2} \chi^{(2)} : \left( G^*(\mathbf{r}) e^{i\mathbf{k}_0 \cdot \mathbf{r}} \hat{a}_{\mathbf{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2, s_2}^\dagger \mathbf{e}_p^* \mathbf{e}_{\mathbf{k}_1, s_1}^* \mathbf{e}_{\mathbf{k}_2, s_2}^* \times \right. \\ & \left. \times e^{-i(\mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2) \cdot \mathbf{r}} \cdot e^{i(\omega_1 + \omega_2)t} e^{-i\omega_0 t} + \text{h.c.} \right). \end{aligned} \quad (3.11)$$

Za preglednejši zapis uvedimo nekaj novih oznak, in sicer efektivni nelinearni koeficient oblike  $\chi_{ef} = \chi^{(2)} \mathbf{e}_0^* \mathbf{e}_{\mathbf{k}_1, s_1}^* \mathbf{e}_{\mathbf{k}_2, s_2}^*$ , razliko frekvenc  $\Delta\omega = \omega_0 - \omega_1 - \omega_2$  in razliko valovnih vektorjev  $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_0 - \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_2$ . Z novimi oznakami ima hamiltonian obliko

$$\hat{H}_{NL} = -\frac{\hbar E_0}{4V} \int d^3r \sqrt{\omega_1 \omega_2} \sum_{\mathbf{k}_1, s_1, \mathbf{k}_2, s_2} \chi_{ef} \left( G^*(\mathbf{r}) \hat{a}_{\mathbf{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2, s_2}^\dagger e^{i\Delta\mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} e^{-i\Delta\omega t} + \text{h.c.} \right). \quad (3.12)$$

Če predpostavimo, da je dolžina vzorca dosti večja od optične valovne dolžine, lahko vsoto po valovnih vektorjih  $\mathbf{k}_1$  in  $\mathbf{k}_2$  prepišemo na integral po prostoru valovnih vektorjev. Iz ohranitve energije sledi  $\Delta\omega = 0$ . Če bi imeli popolno ujemanje faz, bi



veljalo tudi  $\Delta \mathbf{k} = 0$ . Ker to v splošnem ne drži, obdržimo razliko valovnih vektorjev v hamiltonianu, ki se sedaj glasi

$$\hat{H}_{NL} = -\frac{\hbar E_0}{32\pi^3} \int d^3r \iint d^3\mathbf{k}_1 d^3\mathbf{k}_2 \sqrt{\omega_1 \omega_2} \sum_{s_1, s_2} \chi_{ef} \left( G^*(\mathbf{r}) \hat{a}_{\mathbf{k}_1, s_1}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2, s_2}^\dagger e^{i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} + \right. \\ \left. + G(\mathbf{r}) \hat{a}_{\mathbf{k}_1, s_1} \hat{a}_{\mathbf{k}_2, s_2} e^{-i\Delta \mathbf{k} \cdot \mathbf{r}} \right). \quad (3.13)$$

Naše začetno kvantno stanje naj bo  $|0_1, 0_2\rangle$  [22], kar pomeni, da v stanju 1 in 2 nimamo fotonov. Zapišimo Schrödingerjevo enačbo

$$i\hbar \frac{d}{dt} |\Psi\rangle = \hat{H}_{NL} |\Psi\rangle. \quad (3.14)$$

Nato definirajmo še operator  $\hat{U}$  kot

$$\hat{U} = e^{-\frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^{t_1} dt \hat{H}_{NL}}. \quad (3.15)$$

Uporabimo ga pri zapisu naše valovne funkcije

$$|\Psi(t)\rangle = \hat{U} |0_1, 0_2\rangle. \quad (3.16)$$

Verjetnost za SPDC je zelo majhna, kar pomeni, da večino fotonov v črpalnem žarku ni vključenih v SPDC. Operator  $\hat{U}$  lahko zato razvijemo v Taylorjevo vrsto, pri čemer bomo obdržali le najnižja dva člena [22]

$$\hat{U} = 1 - \frac{i}{\hbar} \int_{t_0}^{t_1} dt \hat{H}_{NL}(t). \quad (3.17)$$

Iz tega sledi razvoj valovne funkcije

$$|\Psi(t)\rangle \approx \left( C_0 - C_1 \frac{i}{\hbar} \int_0^t dt' \hat{H}_{NL}(t') \right) |0_1, 0_2\rangle, \quad (3.18)$$

kjer konstanti  $C_0$  in  $C_1 = 1 - C_0$  poskrbita za normalizacijo [22]. Ker je naš hamiltonian neodvisen od časa, je integracija po času kar množenje s trajanjem delovanja hamiltoniana na začetno stanje. Valovna funkcija se zato glasi

$$|\Psi(t)\rangle \approx \left( C_0 - C_1 \frac{i}{\hbar} \hat{H}_{NL} t \right) |0_1, 0_2\rangle. \quad (3.19)$$

Predpostavimo, da nas zanimajo različna polarizacijska stanja, ki jih lahko dobimo pri SPDC. Za ta namen si izberimo bazo, v kateri bomo opisovali fotonska stanja. S  $H$  označimo horizontalno polarizacijo in z  $V$  vertikalno. Baza za fotonski par naj bo zato  $|HH\rangle$ ,  $|HV\rangle$  in  $|VV\rangle$ . Ker fotona med sabo ne ločimo, sta stanji  $|HV\rangle$  in  $|VH\rangle$  enakovredni. Sedaj lahko razpišemo vsoto po  $s_1$  in  $s_2$  kot

$$\hat{H}_{NL} = -\frac{\hbar E_0}{32\pi^3} \iint d^3\mathbf{k}_1 d^3\mathbf{k}_2 \sqrt{\omega_1 \omega_2} \left( F^{HH}(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2) \hat{a}_{\mathbf{k}_1, H}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2, H}^\dagger + \right. \quad (3.20)$$

$$+ F^{HV}(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2) \hat{a}_{\mathbf{k}_1, H}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2, V}^\dagger + F^{VH}(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2) \hat{a}_{\mathbf{k}_1, V}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2, H}^\dagger + \quad (3.21)$$

$$+ F^{VV}(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2) \hat{a}_{\mathbf{k}_1, V}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_2, V}^\dagger + \text{h.c.} \Big), \quad (3.22)$$

kjer so

$$F^{HH} = \int d^3r \chi^{(2)} \colon e_p^* e_{\mathbf{k}_{1,H}}^* e_{\mathbf{k}_{2,H}}^* G^*(\mathbf{r}) e^{i\Delta \mathbf{k} \mathbf{r}}, \quad (3.23)$$

$$F^{VV} = \int d^3r \chi^{(2)} \colon e_p^* e_{\mathbf{k}_{1,V}}^* e_{\mathbf{k}_{2,V}}^* G^*(\mathbf{r}) e^{i\Delta \mathbf{k} \mathbf{r}}, \quad (3.24)$$

$$F^{HV} = \int d^3r \chi^{(2)} \colon e_p^* e_{\mathbf{k}_{1,H}}^* e_{\mathbf{k}_{2,V}}^* G^*(\mathbf{r}) e^{i\Delta \mathbf{k} \mathbf{r}}, \quad (3.25)$$

$$F^{VH} = \int d^3r \chi^{(2)} \colon e_p^* e_{\mathbf{k}_{1,V}}^* e_{\mathbf{k}_{2,H}}^* G^*(\mathbf{r}) e^{i\Delta \mathbf{k} \mathbf{r}}. \quad (3.26)$$

Člen, ki vsebuje  $F^{HH}(\mathbf{k}_1, \mathbf{k}_2) \hat{a}_{\mathbf{k}_{1,H}}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}_{2,H}}^\dagger$  bo tako na primer ustvaril stanje  $|HH\rangle$ . Ko delujemo s hamiltonianom na naše začetno stanje, dobimo valovno funkcijo oblike

$$|\Psi(t)\rangle = C_0|0_1, 0_2\rangle + c_1|HH\rangle + c_2|HV\rangle + c_3|VV\rangle. \quad (3.27)$$

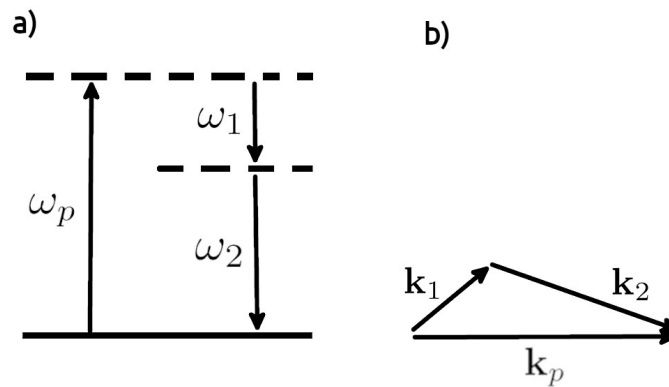
Koeficiente  $c_1$ ,  $c_2$  in  $c_3$  dobimo z integracijo po volumnu in prostoru valovnih vektorjev znotraj hamiltoniana. Verjetnost za detekcijo posameznega stanja nam podajo kvadrati absolutnih vrednosti koeficientov. Posledično je SPDC signal sorazmeren s kvadratom amplitude električnega polja  $E_0$  oziroma linearno sorazmeren z intenziteto črpalnega žarka, ki vpada na vzorec z nelinearnimi lastnostmi. Če želimo, da bo signal čim večji, mora biti zadoščeno ohranitvi energije in pogoju za ujemanje faz  $\Delta k = 0$  [18]. Medtem ko smo ohranitev energije že upoštevali v izpeljavi, si bomo ujemanje faz podrobneje ogledali v naslednjem poglavju.

## 4. Fazno ujemanje, optična dvolomnost in tenzor nelinearnosti

Kot že omenjeno, morata za pojav nelinearnih procesov veljati ohranitev energije in ohranitev gibalne količine. Iz ohranitve energije za SPDC sledi zveza med frekvencami črpalnega fotona  $\omega_p$  in nastalega fotonskega para  $\omega_1$  in  $\omega_2$ :

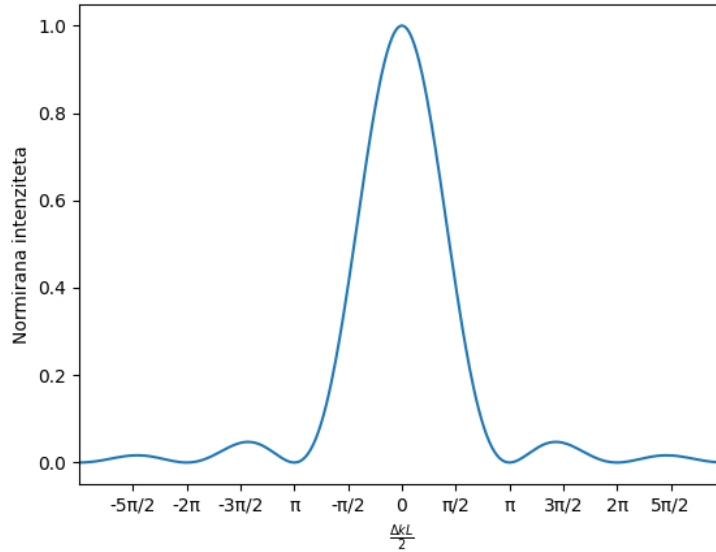
$$\Delta\omega = \omega_p - \omega_1 - \omega_2 = 0. \quad (4.1)$$

To je shematsko prikazano na sliki 4.1.a .



Slika 4.1: a) Ohranitev energije pri SPDC. Vhodni črpalni foton s frekvenco  $\omega_p$  razpade na fotona s frekvencama  $\omega_1$  in  $\omega_2$ . b) Ohranitev gibalne količine. Za črpalni foton z valovnim vektorjem  $\mathbf{k}_p$  in za nastala fotona s  $\mathbf{k}_1$  in  $\mathbf{k}_2$  mora veljati  $\Delta\mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_p = \mathbf{0}$

Kako pomembna je ohranitev gibalne količine, si najlažje predstavljamo na primeru optičnega frekvenčnega podvajanja, ki je obratno procesu SPDC. Iz enačbe (2.19) je očitno, da intenziteta narašča s kvadratom dolžine vzorca le, če je razlika valovnih vektorjev  $\Delta\mathbf{k} = 0$ . V nasprotnem primeru se pri določeni debelini vzorca intenziteta z večanjem  $\Delta\mathbf{k}$  hitro zmanjšuje, kar je prikazano na sliki 4.2.



Slika 4.2: Spreminjanje intenzitete pri optičnem frekvenčnem podvajanju v odvisnosti od  $\Delta k$ .

V odvisnosti od dolžine vzorca bi se pri določenem  $\Delta k > 0$  intenziteta spreminjala s kvadratom sinusa

$$j_{2\omega}(L) \propto \sin^2\left(\frac{\Delta k L}{2}\right). \quad (4.2)$$

Pri SPDC je pogoj za ohranitev gibalne količine vektorske narave, saj so črpalni foton in nastala fotona lahko nekolinearni, kot je prikazano na sliki 4.1.b. Velja

$$\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_1 + \mathbf{k}_2 - \mathbf{k}_p = \mathbf{0}. \quad (4.3)$$

Za primer kolinearnih žarkov bi lahko enačbo prepisali v obliko

$$\Delta k = \frac{n_1 \omega_1}{c} + \frac{n_2 \omega_2}{c} - \frac{n_p \omega_p}{c} = 0. \quad (4.4)$$

Za materiale z normalno disperzijo velja, da lomni količnik, ki ga občuti svetloba, narašča z njeno frekvenco. V našem primeru zaradi ohranitve energije lahko zapišemo  $\omega_p > \omega_1 \geq \omega_2$ , torej velja tudi  $n_p > n_1 \geq n_2$ . Enačbo (4.4) zapišemo kot

$$n_p(\omega_1 + \omega_2) = n_1 \omega_1 + n_2 \omega_2 \quad (4.5)$$

in združimo člene z enakimi frekvencami

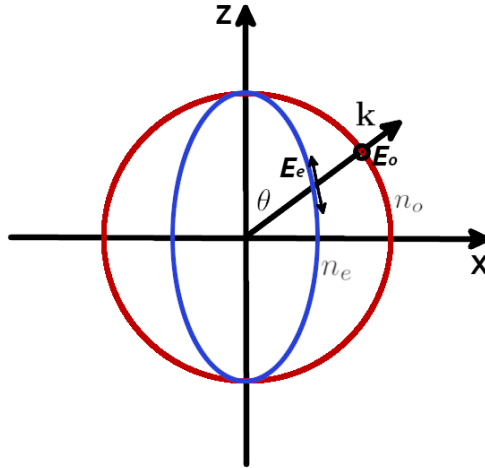
$$\omega_1(n_p - n_1) = \omega_2(n_2 - n_p). \quad (4.6)$$

Zaradi normalne disperzije je leva stran enačbe pozitivna, medtem ko je desna stran negativna. Prišli smo do zaključka, da v takšnem materialu ni mogoče doseči faznega ujemanja. Ena izmed rešitev so dvolomni materiali. Njihova lastnost je, da je lomni količnik odvisen od smeri potovanja svetlobe in od polarizacije električnega polja.

Kombinacijo lomnih količnikov za vse tri frekvence, s katero dobimo  $\Delta k = 0$ , običajno dosežemo z ustrezno izbiro kotov vhodne svetlobe na vzorec. Ob upoštevanju zgolj linearnih pojavov velja za dvolomne materiale zveza

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \underline{\epsilon} \cdot \mathbf{E}, \quad (4.7)$$

kjer je  $\underline{\epsilon}$  tenzor dielektričnosti. Če je snov optično neaktivna in neabsorbirajoča, zanjo velja  $\epsilon_{ij} = \epsilon_{ji}^*$ . V tem primeru tenzor lahko diagonaliziramo. Osi v novem koordinatnem sistemu določajo smeri, v katerih sta jakost in gostota električnega polja vzporedni. Lastne vrednosti  $\epsilon_1$ ,  $\epsilon_2$  in  $\epsilon_3$  določajo tri lomne količnike  $n_i = \sqrt{\epsilon_i}$ . Materialu, ki ima vse tri vrednosti lomnih količnikov različne, pravimo optično dvoosno. V primeru dveh enakih vrednosti lastnih vrednosti je material optično enoosno. Izotropen material ima vse tri lastne vrednosti enake. Za naše potrebe se bomo omejili na enoosne materiale, za katere naj velja  $n_1 = n_2 \neq n_3$ . Lomnemu količniku  $n_1 = n_2$  pravimo redni lomni količnik (*ordinary*) in ga označujemo z  $n_o$ , lomnemu količniku  $n_3$  pa pravimo izredni (*extraordinary*) z oznako  $n_e$ . Smeri, v kateri sta  $n_o$  in  $n_e$  enaka, pravimo optična os, kamor po dogovoru postavimo os  $z$ . V tej smeri je hitrost valovanja neodvisna od polarizacije, saj obe polarizaciji občutita enak lomni količnik. V dvoosnih materialih sta takšni optični osi dve. Za posamezno polarizacijo v enoosnih materialih lahko lomne količnike izračunamo s pomočjo valovne enačbe (2.9), v katero vstavimo električno polje in polarizacijo, razvito do tenzorja susceptibilnosti prvega reda. Dobimo sistem enačb, v katerih nastopajo komponente valovnega vektorja in jakosti električnega polja [25]. Rešitve tega sistema lahko nazorno prikažemo na ravnini, določenimi z valovnim vektorjem in optično osjo. To ponazarja slika 4.3.



Slika 4.3: Lomni količnik je v optično enoosnih materialih odvisen od smeri valovnega vektorja in polarizacije svetlobe. Rdeča krožnica prikazuje velikost rednega lomnega količnika  $n_o$ , modra elipsa pa odvisnost izrednega lomnega količnika od kota  $\theta$  med valovnim vektorjem  $\mathbf{k}$  in optično osjo, ki je v smeri osi  $z$ . Redni lomni količnik čuti svetloba s polarizacijo v smeri  $\mathbf{E}_o$ , izredni lomni količnik pa svetloba z električnim poljem v smeri  $\mathbf{E}_e$ .

Vidimo, da dobimo krožnico s polmerom  $n_o$  in elipso z glavnima polosema dolžine  $n_o$  in  $n_e$ . Iz presečišča smeri valovnega vektorja in krožnice oziroma elipse dobimo

vrednost lomnih količnikov za lastni polarizaciji. Polarizacija, pravokotna na vpadno ravnino, bo ne glede na smer širjenja valovanja čutila redni lomni količnik, čemur ustreza narisana krožnica. Takšnemu žarku pravimo redni žarek. V nasprotju z njim se bo lomni količnik za žarek s polarizacijo v vpadni ravnini spreminjal glede na smer valovnega vektorja, kar ponazarja elipsa. Pravimo mu izredni žarek, saj vektorja  $\mathbf{E}$  in  $\mathbf{D}$  v tem primeru nista vzporedna kot pri optično izotropnih snoveh in rednemu žarku [25]. Lomni količnik  $n_{e,\theta}$  za izredno polarizacijo pri določenem kotu  $\theta$  med smerjo valovnega vektorja in optične osi izračunamo iz enačbe elipse

$$\frac{1}{n_{e,\theta}^2(\theta)} = \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2} + \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2}. \quad (4.8)$$

Pri SPDC poznamo tri vrste faznega ujemanja: tip I, tip II in tip 0. Pri tipu I sta polarizaciji nastalih dveh fotonov enaki, medtem ko je polarizacija črpalnega fotona pravokotna nanju. V nasprotju s tem sta pri tipu II polarizaciji nastalih fotonov pravokotni druga na drugo, pri čemer se ena od njiju ujema s polarizacijo črpalnega fotona. Pri tipu 0 imajo vsi fotoni enako polarizacijo. Za ilustracijo si oglejmo primer faznega ujemanja tipa I, pri katerem sta nastala fotona polarizirana v redni smeri in črpalni foton v izredni smeri. Iz enačbe (4.4) sledi

$$n_o(\omega_1) \omega_1 + n_o(\omega_2) \omega_2 = n_{e,\theta}(\omega_p) \omega_p \quad (4.9)$$

Če je  $\omega_1 = \omega_2 = \frac{\omega_p}{2}$ , se enačba poenostavi v

$$n_o(\omega_1) = n_{e,\theta}(2\omega_1). \quad (4.10)$$

Za izredni lomni količnik upoštevamo enačbo elipse (4.8) in dobimo

$$\frac{1}{n_o^2(\omega_1)} = \frac{\sin^2(\theta)}{n_e^2(2\omega_1)} + \frac{\cos^2(\theta)}{n_o^2(2\omega_1)}. \quad (4.11)$$

Zapišemo  $\cos^2(\theta)$  kot  $1 - \sin^2(\theta)$  ter preoblikujemo v obliko

$$\sin^2(\theta) = \frac{\frac{1}{n_o^2(\omega_1)} - \frac{1}{n_o^2(2\omega_1)}}{n_e^2(2\omega_1) - n_o^2(2\omega_1)}. \quad (4.12)$$

S tem dobimo kot  $\theta$ , pod katerim mora vpadati črpalni žarek glede na optično os vzorca, da zadostimo faznemu ujemanju. Opazimo, da mora imeti material dovolj majhno disperzijo oziroma dovolj veliko dvolomnost, da je desna stran enačbe manjša ali enaka ena, sicer rešitve ne obstajajo. To zahteva izbiro pravega materiala in nato natančno postavitev eksperimenta, da črpalni žarek vstopi v vzorec pod ustreznim kotom glede na optično os.

Poleg tega nam tudi zadostna dvolomnost in majhna disperzija še ne zagotavljata možnosti opazovanja nelinearnih pojavov. Če ima nelinearnostni tenzor neničelne (oziroma zadovoljivo velike) zgolj nekatere komponente, je z njimi določena tudi polarizacija, ki jo mora imeti črpalni foton in nastala fotona, da pride do nelinearnih pojavov. V primeru, da te polarizacije ne sovpadajo s polarizacijami, ki jih zahteva pogoj za fazno ujemanje, prav tako ne moremo opazovati nelinearnih pojavov. Poglejmo si sedaj nekaj značilnosti tenzorja nelinearne susceptibilnosti  $\chi^{(2)}$ .

Nelinearne pojave drugega reda lahko opazujemo samo v materialih brez centra inverzije, saj je v centrosimetričnih materialih nelinearni tenzor susceptibilnosti  $\chi^{(2)}$

ničeln [10]. Posledično nelinearnih pojavov drugega reda ni v tekočinah, amorfni trdnih snoveh, kot je steklo, in v kristalih s centrom inverzije. Nelinearne pojave tretjega reda po drugi strani opazimo tako v centrosimetričnih kot v necentrosimetričnih materialih [10].

Ponovno zapišimo izraz za polarizacijo, vendar tokrat uporabimo Einsteinov zapis seštevanja po indeksih

$$P_i^{(2)} = \varepsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k. \quad (4.13)$$

Privzemimo, da so vse obravnavane frekvence dosti manjše od najmanjše resonančne frekvence medija. V tem primeru je nelinearna susceptibilnost praktično neodvisna od frekvence [10]. Indeksa  $j$  in  $k$  sta pomožna indeksa, zato ju lahko med seboj zamenjamo, izraz pa se pri tem ne sme spremeniti. Veljati mora

$$\chi_{ijk}^{(2)} E_j E_k = \chi_{ikj}^{(2)} E_k E_j, \quad (4.14)$$

pri čemer vrstni red  $E_j$  in  $E_k$  ni pomemben. Sledi

$$\chi_{ijk}^{(2)} = \chi_{ikj}^{(2)}. \quad (4.15)$$

Vidimo, da ostane nelinearna susceptibilnost ob zamenjavi zadnjih dveh kartezičnih indeksov nespremenjena. Sedaj uvedimo novo oznako

$$d_{ijk} = \frac{1}{2} \chi_{ijk}^{(2)}, \quad (4.16)$$

kjer faktor  $\frac{1}{2}$  izhaja iz zgodovinskih razlogov. Nelinearno polarizacijo z uporabo tenzorja  $d_{ijk}$  zapišemo kot

$$P_i^{(2)}(\omega_n + \omega_m) = \varepsilon_0 \sum_{jk} \sum_{(nm)} 2d_{ijk}^{(2)} E_j(\omega_n) E_k(\omega_m), \quad (4.17)$$

kjer je seštevanje po  $(nm)$  takšno, da je vsota  $\omega_n + \omega_m$  fiksna. Ker je  $d_{ijk}$  simetričen na zamenjavo zadnjih dveh indeksov, ju združimo, s čimer dobimo matriko  $d_{il}$ . Indeks  $i$  tako kot prej predstavlja kartezično koordinato, ki jo sedaj nadomestimo s številkami  $x = 1$ ,  $y = 2$  in  $z = 3$ , medtem ko indeksa  $jk$  združimo v indeks  $l$ . Pri tem upoštevamo oznake:

$jk :$	xx	yy	zz	yz, zy	zx, xz	xy, yx
$l :$	1	2	3	4	5	6.

Namesto s tenzorjem tretjega ranga  $\chi_{ijk}^{(2)}$  lahko sedaj računamo z matriko velikosti  $3 \times 6$ . Enačba (4.17) dobi obliko

$$\begin{bmatrix} P_x(\omega_3) \\ P_y(\omega_3) \\ P_z(\omega_3) \end{bmatrix} = 4\varepsilon_0 \begin{bmatrix} d_{11} & d_{12} & d_{13} & d_{14} & d_{15} & d_{16} \\ d_{21} & d_{22} & d_{23} & d_{24} & d_{25} & d_{26} \\ d_{31} & d_{32} & d_{33} & d_{34} & d_{35} & d_{36} \end{bmatrix} \cdot \begin{bmatrix} E_x(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_z(\omega_1)E_z(\omega_2) \\ E_y(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_y(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_z(\omega_2) + E_z(\omega_1)E_x(\omega_2) \\ E_x(\omega_1)E_y(\omega_2) + E_y(\omega_1)E_x(\omega_2) \end{bmatrix}. \quad (4.18)$$

Dodaten faktor 2 pride iz vsote po  $mn$  zaradi enakosti  $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2 = \omega_2 + \omega_1$ . Pri materialih, ki imajo vrh absorpcije daleč stran od obravnavanih frekvenc, velja v približku Kleimanova simetrija, pri kateri lahko vse tri indekse  $i$ ,  $j$  in  $k$  prosto permutiramo [10]. Posledično nam ostane le 10 neodvisnih komponent matrike  $d_{il}$ .

Če povzamemo, moramo za opazovanje SPDC imeti material z ustrezno disperzijo lomnih količnikov, ustrezno dvolomnostjo ter dovolj velikimi ustreznimi komponentami tenzorja  $d_{il}$ . Vse to nam zelo omeji število materialov, ki jih lahko uporabimo za SPDC. Rešitev, ki nam omogoča opazovanje nelinearnih pojavov brez faznega ujemanja, je uporaba zelo tankih vzorcev [14], [15], [16], [17]. Če je debelina vzorca tako majhna, da je  $\frac{\Delta k L}{2}$  iz enačbe (4.2) manj od  $\frac{\pi}{2}$ , potem intenziteta preko vzorca narašča, čeprav  $\Delta k$  ni enak 0. Definirajmo zato koherentno razdaljo na način

$$\Delta k L_{coh} = \pi. \quad (4.19)$$

Sledi, da intenziteta z debelino vzorca narašča toliko časa, dokler je dolžina prepotovane poti manjša od koherentne razdalje. To se ujema tudi s kvantnomehanskim Heisenbergovim načelom nedoločenosti gibalne količine in kraja. Nastanek para fotonov je namreč v zelo tankih vzorcih omejen na izjemno majhno področje, torej je nedoločenost gibalne količine lahko zelo velika. Do zdaj so to opazovali na tankih rezinah kristalov litijevega niobata [14], [16] in galijevega fosfida [14] ter v nanožičkah iz galijevega arzenata [17]. Pred kratkim je bilo ugotovljeno, da je za SPDC v tankih vzorcih poleg običajnih kristalov mogoče uporabiti tudi celice tekočih kristalov [1].



## 5. Tekoči kristali

Tekoči kristali po svojih lastnostih spominjajo tako na tekočine kot tudi na trdne kristale. Čeprav so tekoči kot kapljevine, imajo zaradi anizotropnih molekul nekatere anizotropne lastnosti enake trdnim kristalom. Nahajajo se lahko v različnih fazah, ki se med sabo ločijo po stopnji urejenosti in simetrijah. V grobem faze tekočih kristalov ločimo na nematsko fazo, holesterično, smektično in kolumnarno fazo.

Pogosto preučevana je nematska faza, za katero je značilen orientacijski red dolgega dosega, vendar brez translacijskega reda. Dolge osi molekul v povprečju kažejo v določeno smer, ki ji pravimo direktor, medtem ko so njihova težišča neurejena. Smer direktorja označimo z enotskim vektorjem  $\hat{n}$ . V nematski fazi sta smeri  $\hat{n}$  in  $-\hat{n}$  enakovredni. Če temperaturo dovolj povečamo, preide tekoči kristal v izotropno fazo [18]. V nematski fazi lahko optične lastnosti tekočega kristala primerjamo z enoosnim dvolomnim kristalom. Optična os pri tem kaže v smeri direktorja. Kot pri običajnih kristalih imamo zato tudi tukaj redni  $n_o$  in izredni  $n_e$  lomni količnik. Smer urejenosti molekul lahko spreminjamo z zunanjimi dejavniki, kot so vsiljenje orientacij molekul na površinah tekočerkristalne celice in z zunanjim električnim oziroma magnetnim poljem. Če želimo urediti molekule tekočega kristala vzporedno s površino tekočerkristalne celice, to lahko storimo s predhodnim drgnjenjem površine v želeni smeri. Temu pravimo planarna ureditev. Za pravokotno ureditev molekul na površino moramo steklo celice prevleči na primer z lecitinom ali silanom. Njuna polarna glava se adsorbira na površino stekla, medtem ko nepolarni rep stoji približno pravokotno nanj. Molekule tekočega kristala se uredijo vzporedno z njimi [18]. Takšno ureditev imenujemo homeotropna ureditev.

Tudi z zunanjim električnim in magnetnim poljem lahko spreminjamo smer urejenosti molekul. Lastni vrednosti električne susceptibilnosti sta v smeri vzporedno z direktorjem in pravokotno nanj. Za statično električno polje ima anizotropni del gostote energije obliko [18]

$$w_a = -\frac{1}{2}\varepsilon_o\varepsilon_a(\mathbf{E} \cdot \hat{n})^2. \quad (5.1)$$

Pri tem je  $\varepsilon_a$  anizotropna dielektrična konstanta, ki je enaka razliki med dielektrično konstanto za smer vzporedno z direktorjem in dielektrično konstanto za smer pravokotno na direktor. Če je  $\varepsilon_a > 0$ , je za molekule energijsko ugodno, da se uredijo v smeri električnega polja, medtem ko je v primeru  $\varepsilon_a < 0$  ugodno, če se uredijo pravokotno nanj.

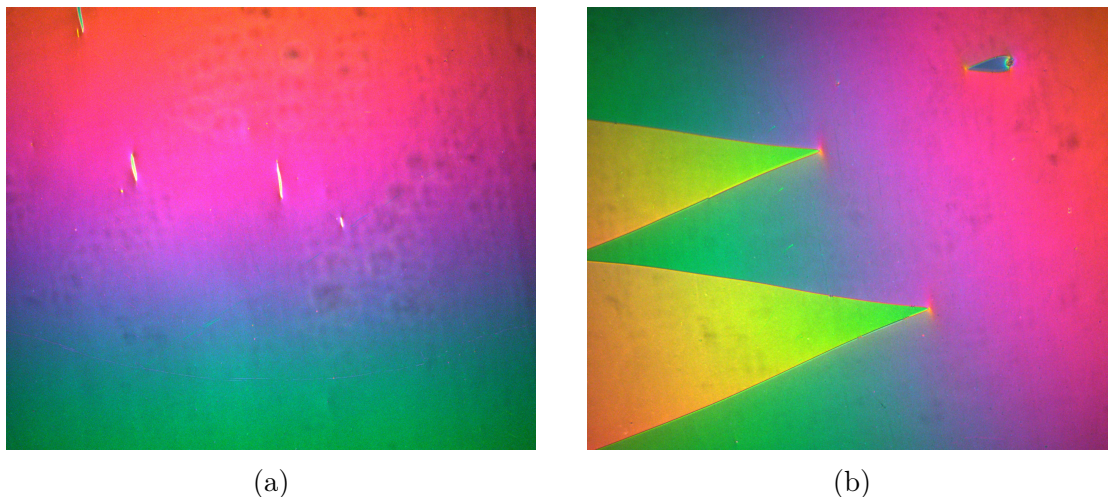
Nematska faza je homogena s centrom inverzije. Posledično v njej ni polarnosti. Leta 2017 je bila eksperimentalno potrjena nova tekočerkristalna faza, in sicer feorelektrična nematska faza [19], [20], [21]. Tako kot navadna nematska faza je tudi ta enoosna, vendar ima zlomljeno simetrijo. To povzroči polarnost s polarizacijo vzdolž smeri direktorja. Smeri  $\hat{n}$  in  $-\hat{n}$  tako nista več enakovredni. Posledično so v takšnih materialih prisotni tudi optični nelinearni pojavi drugega reda. Ti

tekoči kristali imajo veliko dielektrično konstanto in močan odziv na zunanje električno polje [26]. Ko je celica izdelana, lahko smer molekul spreminjamo z opazno manjšim zunanjim električnim poljem kot pri navadni nematski fazi, kar je še ena izmed dodanih vrednosti feroelektričnih nematskih tekočih kristalov [26]. Do zdaj se je večina eksperimentov s feroelektričnimi nematskimi tekočimi kristali nanašala na opazovanje optičnega frekvenčnega podvajanja [27], [26]. Pred kratkim so prvič uspeli ustvariti kvantna stanja preko SPDC v takšni tekočokristalni fazi [1]. Pri tem so preučevali, kako se spreminjajo polarizacijska stanja nastalih fotonov s povečevanjem zunanjega električnega polja v smeri pravokotno na začetno orientacijo molekul. Poleg tega so ugotovili, da so polarizacijska stanja odvisna tudi od kota zasuka molekul. Zasuk molekul je mogoče ustvariti z ustreznim sidranjem molekul na površinah tekočokristalne celice. Če želimo, da se molekule preko vzorca zasukajo na primer za  $90^\circ$ , morata površini druga na drugo vsiljevati pravokotno orientacijo.

### 5.1 Lastnosti preučevanega tekočega kristala

Pri našem delu smo preučevali enak feroelektrični nematski tekoči kristal kot v že omenjeni raziskavi [1]. Tekoči kristal z imenom FNLC-1751 proizvaja podjetje Merck Electronics KGaA. Faze pri določenih temperaturah so sledeče: Iso –  $87^\circ\text{C}$  N –  $57^\circ\text{C}$  - M2 -  $45^\circ\text{C}$  – NF, kjer s kratico Iso označujemo izotropno fazo, z N nopolarno nematsko fazo, z M2 pahljačno modulirano antiferoelektrično nematsko fazo [28] in z NF feroelektrično nematsko fazo. Vidimo, da je naš material pri sobni temperaturi v feroelektrični nematski fazi. Za izdelavo celice smo uporabili taljeno kremenovo steklo (*fused silica*), da bi se izognili večji lasersko inducirani fluorescenci v steklu. Velikost celic je bila  $2\text{ cm} \times 2\text{ cm}$ . Razdalja med stekloma je bila določena s plastičnimi distančniki. Na površino celic je bila nanešena tanka plast poliamida. Z drgnjenjem je bila obdelana tako, da sta površini vsiljevali nasprotno vzporedno orientacijo molekul, s čimer smo preko celice dosegli  $180^\circ$  zasuk molekul. Tekoči kristal je bil v celico vnešen pod vplivom kapilarnih sil pri temperaturi  $90^\circ\text{C}$ , torej v izotropni fazi. Sledilo je ohlajanje s hitrostjo  $0.5^\circ\text{C}/\text{min}$  do sobne temperature. Prazno celico je pripravila Janja Milivojević, nakar jo je napolnila Nerea Sebastián. Na sliki 5.1 je prikazan vzorec v klinasti celici, kot ga vidimo pod mikroskopom med prekrizanima polarizatorjema. Različne barve na sliki 5.1.a ustrezajo različnim debelinam celice. Na sliki 5.1.b sta vidni dve domeni tekočega kristala. Pri določeni debelini imata med sabo različne barve, ker je njuna sučnost zasuka molekul za  $180^\circ$  nasprotna.

Nadaljne meritve smo opravili na celici debeline  $9\text{ }\mu\text{m}$  ter klinasti celici, pri kateri se je debelina povečevala približno linearno od  $1.8\text{ }\mu\text{m}$  do  $20\text{ }\mu\text{m}$ . Lomne količnike smo izračunali iz dvočlenske Cauchyjeve formule  $n(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2}$ , pri čemer smo za konstanti  $A$  in  $B$  vzeli vrednosti iz članka [1]:  $A = 1.663$ ,  $B = 10256\text{ nm}^2$  za izredni lomni količnik ter  $A = 1.474$ ,  $B = 874\text{ nm}^2$  za redni lomni količnik. Uporabili smo laserski izvor pri  $450\text{ nm}$ , ki je služil kot črpalni žarek za SPDC. Nastale fotonske pare smo opazovali v okolici osrednje valovne dolžine  $900\text{ nm}$ . Lomni količniki, izračunani iz Cauchyjeve formule za omenjeni valovni dolžini, so zapisani v tabeli 5.1. Tenzor nelinearnosti drugega reda  $d$  smo prav tako povzeli po istem članku. Razen vrednosti komponente  $d_{33} = 20\text{ pm/V}$  so vse ostale vrednosti približno 0 [1]. Definirajmo smer molekul našega vzorca ob površini kot horizontalno smer, medtem ko naj bo smer pravokotno na horizontalno smer in vpadni črpalni žarek vertikalna smer. Horizontalno polariziran črpalni žarek bo imel torej polarizacijo vzporedno z



Slika 5.1: Klinasta tekočokristalna celica pod mikroskopom med prekrizanimi polarizatorjema. a) Različne barve ustrezajo različni debelini celice. b) Različne barve domen pri enaki debelini celice ustrezajo različni sučnosti zasuka molekul za  $180^\circ$ .

Tabela 5.1: Redna in izredna lomna količnika pri valovnih dolžinah  $\lambda = 450$  nm in  $\lambda = 900$  nm.

$\lambda \backslash n$	$n_o$	$n_e$
450 nm	1.4752	1.6754
900 nm	1.4785	1.7134

optično osjo, zato bo občutil izredni lomni količnik. Tega bosta čutila tudi nastala fotona, če bo njuna polarizacija prav tako v horizontalni smeri. Iz formule 4.19 lahko izrazimo koherenčno razdaljo kot

$$L_{coh} = \frac{\pi}{\Delta k}. \quad (5.2)$$

Razpišimo razliko valovnih vektorjev

$$\Delta k = k(\lambda) - 2k(2\lambda), \quad (5.3)$$

kjer je v našem primeru  $\lambda = 450$  nm. Sledi

$$\Delta k = \frac{2\pi}{\lambda} n_{\lambda,e} - 2 \frac{2\pi}{2\lambda} n_{2\lambda,e}. \quad (5.4)$$

Dobimo

$$\Delta k = \frac{2\pi}{\lambda} (n_{\lambda,e} - n_{2\lambda,e}). \quad (5.5)$$

Koherenčna razdalja je posledično

$$L_{coh} = \frac{\lambda}{2(n_{\lambda,e} - n_{2\lambda,e})}. \quad (5.6)$$

Če vstavimo v ta izraz vrednosti iz tabele 5.1, dobimo za naš vzorec  $L_{coh} = 5.9 \mu\text{m}$ .

Kot smo že omenili, je bil celoten zasuk molekul v našem preučevanem vzorcu  $180^\circ$ . Ko žarek z določeno polarizacijo vstopi v vzorec, se mu polarizacija z debelino vzorca zaradi zasuka molekul spreminja. To velja tako za črpalni žarek kot tudi za nastali fotonski par. Če označimo debelino vzorca z  $L$  in prepotovano pot črpalnega fotona pred anihilacijo z  $z$ , se bo polarizacija črpalnega fotona na račun zasuka molekul spreminjala na razdalji  $z$ , medtem ko bosta nastala fotona čutila zasuk molekul na prepotovani poti  $L - z$ . Jonesova matrika za zasuk, ki jo uporabljamo v teoretičnem modelu za SPDC v tekočem kristalu, je povzeta po izpeljavi Yariva in Yeha [29]. Vsako plast obravnava kot ločeno dvolomno plast, pri čemer je vsaka naslednja zasukana za majhen kot glede na prejšnjo. Pri tem predpostavi, da se glavni osi prve plasti ujemajo z  $x$  in  $y$  smerjo koordinatnega sistema. Naj bo  $\varphi$  celoten zasuk in dvolomnost  $\beta = \frac{\pi l(n_e - n_o)}{\lambda}$ , kjer je  $l$  debelina vzorca. Fazo  $\phi$  definirajmo kot  $\phi = \frac{l(k^e + k^o)}{2}$ . Teda j Jonesovo matriko zapišemo kot

$$M_{TLC} = e^{-i\phi} R(-\varphi) M(\varphi, \beta), \quad (5.7)$$

kjer je  $R(\theta)$  rotacijska matrika

$$R(\theta) = \begin{bmatrix} \cos \theta & \sin \theta \\ -\sin \theta & \cos \theta \end{bmatrix} \quad (5.8)$$

in  $M(\varphi, \beta)$  matrika

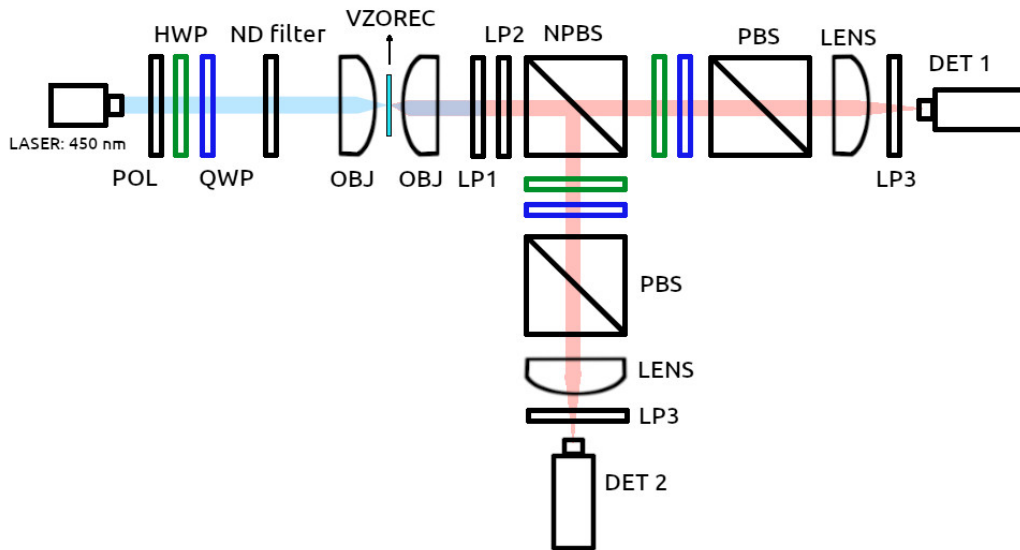
$$M(\varphi, \beta) = \begin{bmatrix} X - iY & Z \\ -Z & X + iY \end{bmatrix}. \quad (5.9)$$

Pri tem so  $X$ ,  $Y$  in  $Z$  definirani kot  $X = \cos \gamma$ ,  $Y = \frac{1}{\gamma} \beta \sin \gamma$  in  $\gamma^2 = \varphi^2 + \beta^2$ . Polarizacijska stanja črpalnega fotona in nastalega fotonskega para opišemo z Jonesovimi vektorji, na katere apliciramo zapisano matriko. Nastala polarizacijska stanja fotonov so tako odvisna tudi od mesta njihovega nastanka. Teoretični model, ki smo ga uporabljali in vsebuje opis z omenjenimi matrikami, sta razvila Kavčič in Sultanov [1].

## 6. Detekcija parov fotonov

Celotno postavitve za detekcijo parov fotonov je bilo potrebno postaviti od začetka. Aljaž Kavčič je naredil načrt postavitve ter naročil potrebne optične komponente. Z njegovo pomočjo sem nato sestavila trenutno postavitve za opazovanje SPDC. Potrebna je bila natančna poravnava vseh optičnih komponent, da je svetloba, generirana pri procesu SPDC, prišla do občutljivega dela detektorjev. Pomembno je bilo predvsem, da je žarek potoval skozi sredine vseh optičnih komponent, da je bil ustrezno skolimiran ter nato tudi zbran na vzorec. V drugem delu poti je bilo potrebno zagotoviti pravilno pot nastalih fotonskih parov. Poleg tega, da je te svetlobe zelo malo, je v bližnjem infrardečem delu spektra, zato je očem nevidna. Pri poravnavi optičnih elementov si je bilo zato potrebno pomagati neposredno z opazovanjem spreminjanja signala na detektorjih. Poleg možnosti merjenja SPDC je postavitvi dodan še del za zajemanje signala SHG in kamera, s katero je mogoče opazovati tekoči kristal pod 20x povečavo. S slednjo lahko pred začetkom merjenja SPDC poiščemo mesto, ki se nam zdi najbolj primerno za izvajanje meritev (na primer homogen del vzorca).

Eksperimentalna shema končne postavitve za SPDC je prikazana na sliki 6.1. Kot izvor smo uporabili neprekinjeni laser valovne dolžine 450 nm in moči 4.5 mW. Prvi trije optični elementi, skozi katere pošljemo lasersko svetlobo, so linearni polarizator (POL), lambda polovic (HWP) in lambda četrtin (QWP) valovna ploščica. Z njimi nastavimo poljubno začetno polarizacijo črpalnega žarka. Sledi zvezno nastavljen atenuacijski ND filter za uravnavanje intenzitete. Črpalni žarek zberemo na vzorec z objektivom (OBJ) z 10x povečavo ter numerično aperturo 0.3. Večina fotonov nemoteno preide skozenj, medtem ko se nekateri izmed njih v procesu SPDC anihilirajo. Izhodne fotone, med katerimi so tudi fotonski pari, nastali preko SPDC, skolimiramo z naslednjim objektivom. Ta ima 20x povečavo ter numerično aperturo 0.50. Da se znebimo črpalnih fotonov in dela fluorescentnega ozadja, uporabimo po dva dolgovalovno prepustna filtra (LP1 in LP2), ki prepuščata svetlobo valovne dolžine večje od 496 nm in 700 nm. Optična gostota za LP1 je glede na specifikacije pod mejo prepustnosti večja od 4, za LP2 pa večja od 5. Z nepolarizacijskim delilnikom svetlobe (*non-polarizing beam splitter* NPBS) razdelimo svetlobo na dva enakovredna kraka. Detektirati želimo zgolj svetlobo določene polarizacije. To storimo tako, da z lambda polovic in lambda četrtin ploščicama spremenimo zeleno polarizacijo v linearno horizontalno polarizacijo. Polarizacijski delilnik svetlobe (*beam splitter* BS), ki sledi lambda ploščicama, do detektorjev prepusti namreč zgolj svetlobo s horizontalno polarizacijo. Nastali fotonski pari so razporejeni okoli dvakratnika črpalne valovne dolžine. Da se pri detekciji omejimo na to območje, uporabimo dolgovalovno prepustni filter (LP3) z mejo prepustnosti 840 nm. Optična gostota zanj pod to mejo znaša približno 6. Prepuščeno svetlobo z lečama (LENS) zberemo na enaka detektorja (DET 1 in DET 2). Proizvaja ju podjetje Excelitas Technologies



Slika 6.1: Shema eksperimentalne postavitve za opazovanje SPDC. Polarizacijo laserske svetlobe valovne dolžine 450 nm določimo z linearnim polarizatorjem (POL), lambda polovic ploščico (HWP) in lambda četrtin ploščico (QWP). Z absorpcijskim filtrom (ND) poskrbimo za želeno intenziteto. Svetlobo zberemo na vzorec z objektivom (OBJ) ter izhodno svetlobo spet skolimiramo. S po dvema dolgovalovnima filtroma LP1 in LP2 se znebimo svetlobe črpalnega laserja in dela fluorescentnega ozadja. LP1 prepušča svetlobo valovne dolžine nad 496 nm in LP2 svetlobo valovne dolžine nad 700 nm. Nepolarizacijski delilnik svetlobe (*non-polarizing beam splitter* NPBS) enakovredno usmeri svetlobo v dva kraka. V vsakem od njiju z dodatno lambda polovic in lambda četrtin ploščico nadzorujemo polarizacijo svetlobe, ki jo detektiramo. Sledeči polarizacijski delilnik svetlobe (*polarizing beam splitter* PBS) prepusti namreč zgolj horizontalno polarizirano svetlobo. Z lečo (LENS) jo skozi filter (LP3), ki prepusti valovne dolžine nad 840 nm, zberemo na detektorja (DET 1 in DET 2).

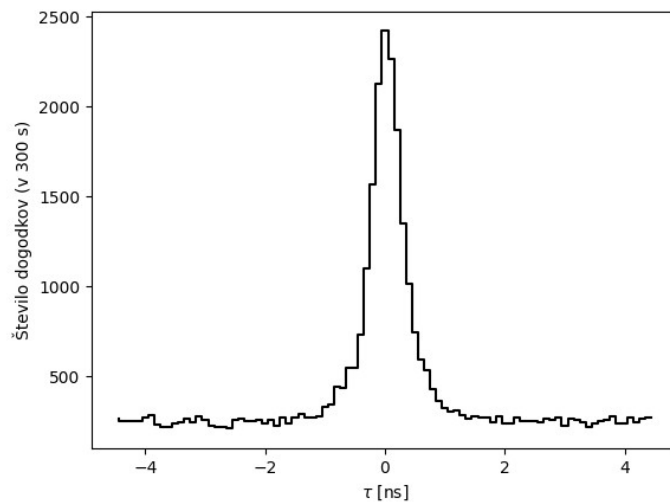
pod imenom SPCM-AQRH Single Photon Counting Module. Za delovanje uporabljata plazovno fotodiodo. Šum popolnoma zaprtih detektorjev je 70 Hz. Tipične vrednosti dogodkov, ki jih zaznata ob prižganem črpalnem laserju, minimalni okoliški svetlobi (ugasnjene luči) in omenjeni izbiri optičnih elementov, so okoli 100 kHz. V večji meri so ti dogodki posledica fluorescence, generirane v optičnih elementih, nepopolnoma odstranjenega črpalnega žarka ter okoliške svetlobe. V primerjavi s tem je SPDC signala največ 100 Hz ob merjenju na eni izmed ugodnejših debelin in pri ustrezni polarizaciji vhodne in izhodne svetlobe. Pri večini drugih meritev je ta številka še mnogo nižja. Prav zaradi tega dogodkov, ki izvirajo iz SPDC, ne moremo meriti neposredno, temveč preko opazovanja istočasno zaznanih dogodkov na obeh detektorjih.

Da so meritve potekale kar se da gladko, smo držalo za vzorec pritrdili na motoriziran podstavek, ki se lahko premika v vseh treh prostorskih dimenzijah. Prav tako sta motorizirani tudi obe lambda polovic in lambda četrtin ploščici pred detektorjema. Vse motorizirane komponente sem povezala z računalnikom. Napisala sem računalniški program v programskem jeziku *python*, s katerim je mogoče na-

staviti želene parametre meritev, med drugim tudi ustrezen položaj motoriziranih komponent. S tem lahko med meritvami določamo polarizacijo, ki jo bodo optične komponente prepustile do detektorjev, ter se premikamo po vzorcu. V realnem času se na zaslonu izrisuje signal z obeh detektorjev, histogram dogodkov na detektorjih v odvisnosti od časa med njimi ter ploščina pod vrhom histograma, ki ustreza signalu SPDC. Meriti je mogoče pri eni sami polarizaciji izhodnih žarkov ali nastaviti zaporedje meritev pri različnih polarizacijah, kar je priročno za samodejno izvajanje celotne tomografije. Prav tako lahko nastavimo, da se vzorec po končanem določenem delu meritev premakne, histogram se ponastavi in meritve se začnejo izvajati od začetka na novem delu vzorca. S tem lahko naredimo 1D, 2D ali 3D prelet čez vzorec.

## 6.1 Meritev toka nastalih fotonских parov in izračun gostotne matrike

Fotona, ki nastaneta preko SPDC, nastaneta hkrati, kar pomeni, da ju tudi detektorja zaznata istočasno. Če izrišemo histogram zaznanih dogodkov v odvisnosti od preteklega časa med njimi, se istočasno zaznani dogodki izrazijo kot vrh pri časovnem zamiku 0 s. Primer histograma je prikazan na sliki 6.2. Prikazuje zaznane horizontalno polarizirane nastale fotone iz prav tako horizontalno polariziranega črpalnega žarka. Celoten čas merjenja je bil v tem primeru 5 min. Širina vrha je v večji meri posledica ločljivosti detektorjev, ki je glede na specifikacije proizvajalca detektorjev 0.35 ns.



Slika 6.2: Histogram zaznanih dogodkov v odvisnosti od časa  $\tau$  med njimi.

Tok zaznanih koincidenč izračunamo tako, da številu dogodkov znotraj intervala  $-0.450 \text{ ns} < \tau < 0.450 \text{ ns}$  (kar ustreza vrhu) odštejemo povprečno vrednost ozadja (dogodki izven vrha) ter vse skupaj delimo s trajanjem merjenja. S tem izmerimo seveda samo fotonske pare s polarizacijo, ki jo določimo z lambda polovic in lambda četrtnin ploščicama pred detektorjema. Če želimo pridobiti celotno informacijo o dvo-fotonskem stanju, moramo meritev ponoviti pri več različnih polarizacijskih stanjih

fotonov. V poglavju 3 smo za bazo polarizacijskih stanj vzeli  $|HH\rangle$ ,  $|HV\rangle$  in  $|VV\rangle$  stanja. Spomnimo se, da sta stanji  $|HV\rangle$  in  $|VH\rangle$  enakovredni, saj nastala fotona med sabo ločimo zgolj po polarizaciji. Zapišimo sedaj stanje  $|HH\rangle$  kot Fockovo stanje  $|2\rangle_H|0\rangle_V$ , stanje  $|HV\rangle$  kot  $|1\rangle_H|1\rangle_V$  in stanje  $|VV\rangle$  kot  $|0\rangle_H|2\rangle_V$ . Valovna funkcija se tako glasi

$$|\psi\rangle = c_1|2\rangle_H|0\rangle_V + c_2|1\rangle_H|1\rangle_V + c_3|0\rangle_H|2\rangle_V. \quad (6.1)$$

Stanju, ki ga lahko opišemo z valovno funkcijo, pravimo čisto stanje. Gostotna matrika zanj je definirana kot

$$\hat{\rho} = |\psi\rangle\langle\psi|. \quad (6.2)$$

V nasprotju s tem sistema v mešanem stanju ne moremo opisati z valovno funkcijo, saj je le-to mešanica različnih stanj  $|\psi_i\rangle$ . Predstavimo ga z gostotno matriko, ki ima v tem primeru obliko

$$\hat{\rho}_m = \sum_i p_i |\psi_i\rangle\langle\psi_i|, \quad (6.3)$$

kjer s  $p_i$  označujemo verjetnost, da se sistem nahaja v stanju  $|\psi_i\rangle$ . Gostotna matrika torej predstavlja razširitev na opis tako čistih kot tudi mešanih stanj, zato jo bomo uporabili za opis ustvarjenih fotonov. Zapišimo jo še v razpisani matrični obliki

$$\hat{\rho} = \begin{bmatrix} \rho_{11} & \rho_{12} & \rho_{13} \\ \rho_{21} & \rho_{22} & \rho_{23} \\ \rho_{31} & \rho_{32} & \rho_{33} \end{bmatrix}. \quad (6.4)$$

Diagonalni elementi gostotne matrike so realna števila, katerih vsota je 1. Določajo verjetnost, da se sistem nahaja v določenem kvantnem stanju. Nadaljni izrazi veljajo za čista stanja, kakršna so v dobrem približku tudi stanja nastalih fotonov. Velja

$$\rho_{nn} = c_n c_n^* = |c_n|^2. \quad (6.5)$$

Izven diagonalni elementi so kompleksno konjugirana števila drug drugega ter vsebujejo informacijo o fazah med stanji:

$$\rho_{nm} = c_n c_m^* = |c_n| |c_m| e^{i(\varphi_n - \varphi_m)}, \quad (6.6)$$

kjer sta  $\varphi_n$  in  $\varphi_m$  fazi stanj. Iz tega sledi

$$\varphi_{12} = -\arctan \frac{\text{Im}(\rho_{12})}{\text{Re}(\rho_{12})} \quad \text{ter} \quad (6.7)$$

$$\varphi_{23} = -\arctan \frac{\text{Im}(\rho_{13})}{\text{Re}(\rho_{13})}, \quad (6.8)$$

kjer sta  $\varphi_{12} = \varphi_1 - \varphi_2$  in  $\varphi_{23} = \varphi_2 - \varphi_3$ . Gostotno matriko moramo sedaj povezati z izmerjenim številom koinciden, ki jih dobimo na detektorjih. Verjetnost, da bo tako prvi detektor kot drugi detektor zaznal po en foton v določenem stanju, je sorazmerna z  $\langle \hat{n}_{ij} \rangle = \langle \hat{a}_i^\dagger \hat{a}_j^\dagger \hat{a}_i \hat{a}_j \rangle$ , kjer  $i$  in  $j$  ustrezata  $H$  oziroma  $V$  stanju. Pričakovano vrednost tega operatorja lahko izračunamo s pomočjo gostotne matrike preko zveze

$$\langle \hat{n}_{ij} \rangle = \text{Tr}(\hat{\rho} \hat{n}_{ij}), \quad (6.9)$$



## 6.1. Meritev toka nastalih fotonских parov in izračun gostotne matrike

kjer s  $\text{Tr}$  označujemo sled matrike. Izraz lahko razpišemo v

$$\langle \hat{n}_{ij} \rangle = \langle 2|_H \langle 0|_V \hat{\rho} \hat{n}_{ij} |2\rangle_H |0\rangle_V + \langle 1|_H \langle 1|_V \hat{\rho} \hat{n}_{ij} |1\rangle_H |1\rangle_V + \langle 0|_H \langle 2|_V \hat{\rho} \hat{n}_{ij} |0\rangle_H |2\rangle_V. \quad (6.10)$$

Verjetnost za detekcijo  $|HH\rangle$  stanja bi bila tako na primer sorazmerna z

$$\langle \hat{n}_{HH} \rangle = \langle \hat{a}_H^\dagger \hat{a}_H^\dagger \hat{a}_H \hat{a}_H \rangle = \langle 2|_H \langle 0|_V \hat{\rho} \hat{a}_H^\dagger \hat{a}_H^\dagger \hat{a}_H \hat{a}_H |2\rangle_H |0\rangle_V, \quad (6.11)$$

saj sta ostala dva člena nič. Sledi

$$\langle \hat{n}_{HH} \rangle = 2 \langle 2|_H \langle 0|_V \hat{\rho} |2\rangle_H |0\rangle_V = 2\rho_{11}, \quad (6.12)$$

oziroma

$$\rho_{11} = \frac{1}{2} \langle \hat{n}_{HH} \rangle. \quad (6.13)$$

S tem smo povezali izmerjene koincidence stanja  $|HH\rangle$  z elementom  $\rho_{11}$  gostotne matrike. Matriko na koncu še normaliziramo, tako da velja

$$\rho_{11} + \rho_{22} + \rho_{33} = 1. \quad (6.14)$$

Matrika ima 9 kompleksnih elementov. Ker so diagonalni elementi realni, izvendia-  
gonalni pa kompleksno konjugirana števila drug drugega, nam ostane 9 neodvisnih  
realnih parametrov. Za izračun celotne gostotne matrike moramo torej izmeriti tok  
nastalih fotonov devetih različnih kombinacij polarizacij. V našem primeru smo  
merili stanja  $|HH\rangle$ ,  $|HV\rangle$ ,  $|VV\rangle$ ,  $|HD\rangle$ ,  $|HR\rangle$ ,  $|VA\rangle$ ,  $|VL\rangle$ ,  $|DD\rangle$  in  $|DR\rangle$ , kjer  
so  $D$ ,  $A$ ,  $R$  in  $L$  po vrsti diagonalna, antidiagonalna, desna krožna in leva krožna  
polarizacija. Stanje fotonov, ki ga ustvarimo preko SPDC, torej dobimo tako, da  
najprej izmerimo tok koincidence pri devetih različnih kombinacijah polarizacij, iz  
katerih nato izračunamo gostotno matriko.

Ker se SPDC običajno uporablja kot vir prepletenih fotonov, je smiselno preveriti  
stopnjo prepletenosti  $C$  nastalih fotonov. Definirana je kot [30]

$$C = |2c_1c_3 - c_2^2|. \quad (6.15)$$

Minimalno vrednost prepletenosti  $C = 0$  dobimo za fotona z enako polarizacijo, med-  
tem ko je maksimalna vrednost  $C = 1$  pri paru fotonov z med seboj pravokotnima  
Jonesovima vektorjema. Vizualno se prepletenost lepo vidi iz prikaza polarizacij  
fotonov na Poincarejevi sferi. Med sabo pravokotne polarizacije so prikazane na  
nasprotnih oseh. S  $\theta_{12}$  označimo kot med polarizacijama fotonov. Tedaj je zveza  
med  $\theta_{12}$  in prepletenostjo [31]

$$C = \frac{1 - \cos \theta_{12}}{3 + \cos \theta_{12}}. \quad (6.16)$$

Bližje kot je kot  $\theta_{12}$  vrednosti  $180^\circ$ , bolj sta fotona med sabo prepletena.

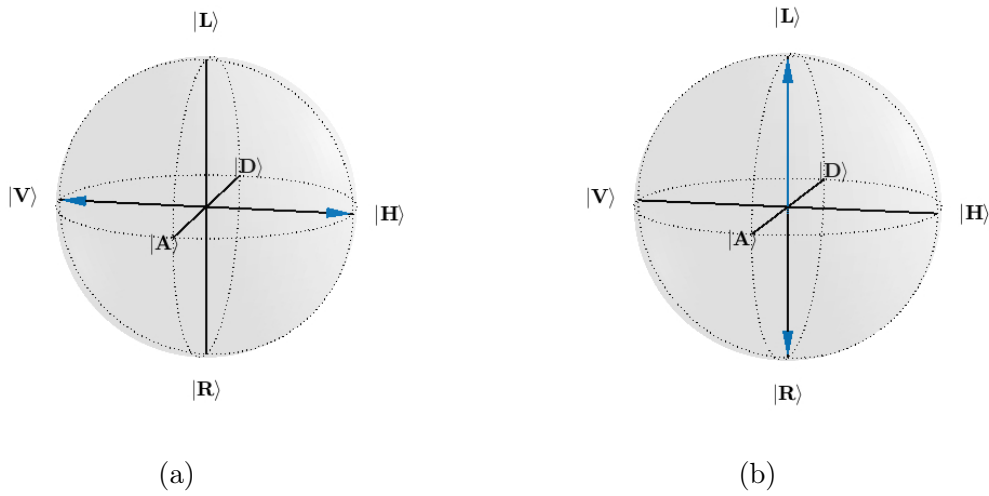
Primer neprepletenega stanja je  $|\psi\rangle = |HH\rangle$ , saj v vsakem primeru na izbranem  
detektorju zaznamo foton s horizontalno polarizacijo. Oba vektorja na Poincarejevi  
sferi kažeta v smeri  $|H\rangle$ . V nasprotju s tem bi bilo stanje  $|\psi\rangle = |HV\rangle$  popolnoma  
prepleteno. Pred meritvijo namreč ne vemo, ali bomo na izbranem detektorju zaznali  
foton s horizontalno ali vertikalno polarizacijo. Šele z meritvijo dobimo informacijo  
o njegovi polarizaciji, s čimer izvemo tudi polarizacijsko stanje drugega fotona. Na

Poincarejevi sferi bi eden izmed vektorjev kazal v  $|H\rangle$  smeri ter drugi v  $|V\rangle$ , kot je to prikazano na sliki 6.3.a. Primer stanja popolnoma prepletenih fotonov je tudi  $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|HH\rangle + |VV\rangle)$ . Stanje namreč lahko zapišemo kot  $|\psi\rangle = \sqrt{2}|RL\rangle$ , saj velja  $|R\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle - i|V\rangle)$  in  $|L\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle + i|V\rangle)$ , zato

$$|\psi\rangle = \sqrt{2}|RL\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|H\rangle - i|V\rangle)(|H\rangle + i|V\rangle) \quad (6.17)$$

$$= \frac{1}{\sqrt{2}}(|HH\rangle + |VV\rangle), \quad (6.18)$$

kjer smo zopet upoštevali enakovrednost  $|HV\rangle$  in  $|VH\rangle$  stanja. Na Poincarejevi sferi bi bila vektorja torej usmerjena proti  $|R\rangle$  in  $|L\rangle$  osema, kar je prikazano na sliki 6.3.b.



Slika 6.3: Poincarejevi sferi za popolnoma prepleteni stanji. a) Poincarejeva sfera za stanje  $|\psi\rangle = |HV\rangle$ . b) Poincarejeva sfera za stanje  $|\psi\rangle = \frac{1}{\sqrt{2}}(|HH\rangle + |VV\rangle)$ .

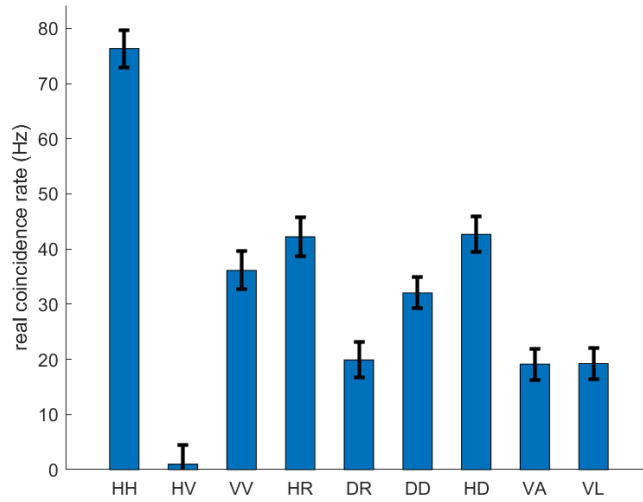
## 6.2 Meritve na vzorcu litijevega niobata

Da bi preverili delovanje naše eksperimentalne postavitve in protokola za izračun gostotne matrike, smo meritve najprej opravili na vzorcu kristala litijevega niobata  $\text{LiNbO}_3$  in rezultate primerjali z že obstoječo raziskavo Sultanova in Chekhove [32]. Naš vzorec je bila 7  $\mu\text{m}$  tanka plast litijevega niobata. Zaradi simetrij v svoji strukturi ima ta kristal nelinearnostni tenzor oblike [10]

$$d = \begin{bmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{bmatrix}, \quad (6.19)$$

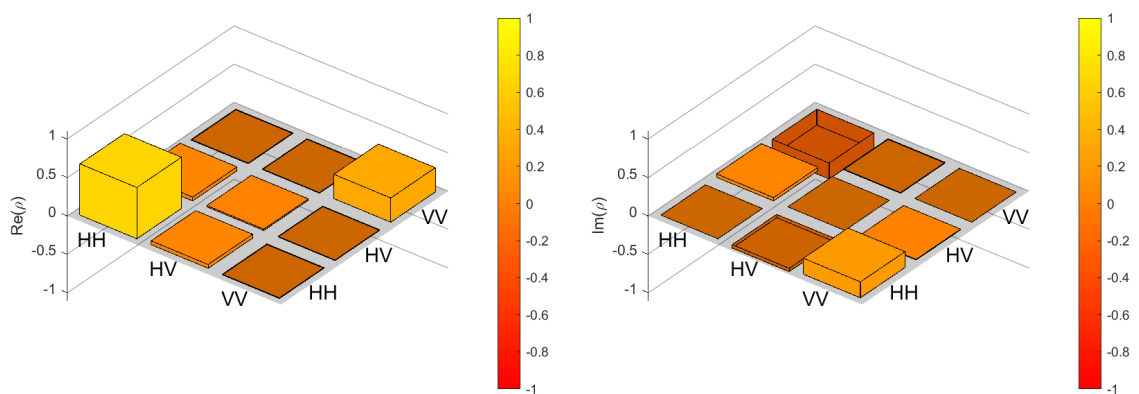
pri čemer so približne vrednosti komponent  $d_{22} = 2.5 \text{ pm/V}$ ,  $d_{21} = -4.6 \text{ pm/V}$  in  $d_{33} = -41.7 \text{ pm/V}$  [33]. Vidimo, da je komponenta  $d_{33}$  opazno večja od ostalih dveh. Smer, ki jo določa indeks 3, smo zato definirali kot horizontalno smer, medtem ko indeks 2 določa vertikalno smer. V naši postavitvi sta horizontalna in vertikalna

smer pravokotni na vpadni črpalni žarek. Moč črpalnega žarka smo nastavili na 0.8 mW ter njegovo polarizacijo z optičnimi elementi zasukali v linearno horizontalno polarizacijo. Koincidence na obeh detektorjih smo za vsako od devetih kombinacij polarizacij izhodnih fotonov merili 5 min. Tok zaznanih koincidenc pri posameznih polarizacijah je prikazan na sliki 6.4.



Slika 6.4: Tok koincidenc pri različnih kombinacijah polarizacij izhodnih fotonov. Vzorec je litijev niobat.

Takoj opazimo, da je stanja  $|HV\rangle$  opazno manj od ostalih ter stanja  $|HH\rangle$  približno dvakrat več od stanja  $|VV\rangle$ . Slednje se sklada z raziskavo Sultanova in Chekhove [32]. Dobljene vrednosti pretvorimo v gostotno matriko. Realni in imaginarni del gostotne matrike sta prikazana na sliki 6.5



(a) Realni del gostotne matrike

(b) Imaginarni del gostotne matrike

Slika 6.5: Realni in imaginarni del gostotne matrike za litijev niobat pri črpalnem žarku s horizontalno polarizacijo.

Očitno je, da sta stanja  $|HH\rangle$  in  $|VV\rangle$  precej verjetnejši od stanja  $|HV\rangle$ . Absolutne vrednosti koeficientov  $c_1$ ,  $c_2$  in  $c_3$  valovne funkcije iz enačbe (6.1) dobimo s

korenjenjem diagonalnih elementov gostotne matrike. V našem primeru dobimo

$$|c_1| = 0.82 \pm 0.04, \quad (6.20)$$

$$|c_2| = 0.13 \pm 0.23, \quad (6.21)$$

$$|c_3| = 0.56 \pm 0.03. \quad (6.22)$$

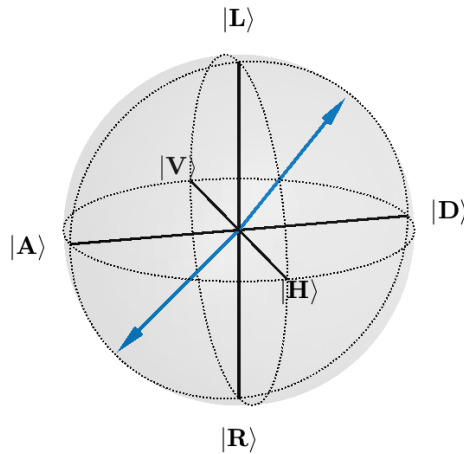
Informacijo o fazah med njimi vsebujejo izvendiagonalni elementi. Medsebojni vrednosti faz sta

$$\varphi_{12} = -0.7 \pm 0.9, \quad (6.23)$$

$$\varphi_{23} = -1.5 \pm 0.6. \quad (6.24)$$

$$(6.25)$$

Iz koeficientov izračunamo prepletenost, ki v tem primeru znaša  $C = 0.90 \pm 0.09$ . Stanje je prikazano še na Poincarejevi sferi na sliki 6.6. Vidimo, da je skladno z veliko prepletenostjo tudi kot med polarizacijama fotonov na sferi velik.



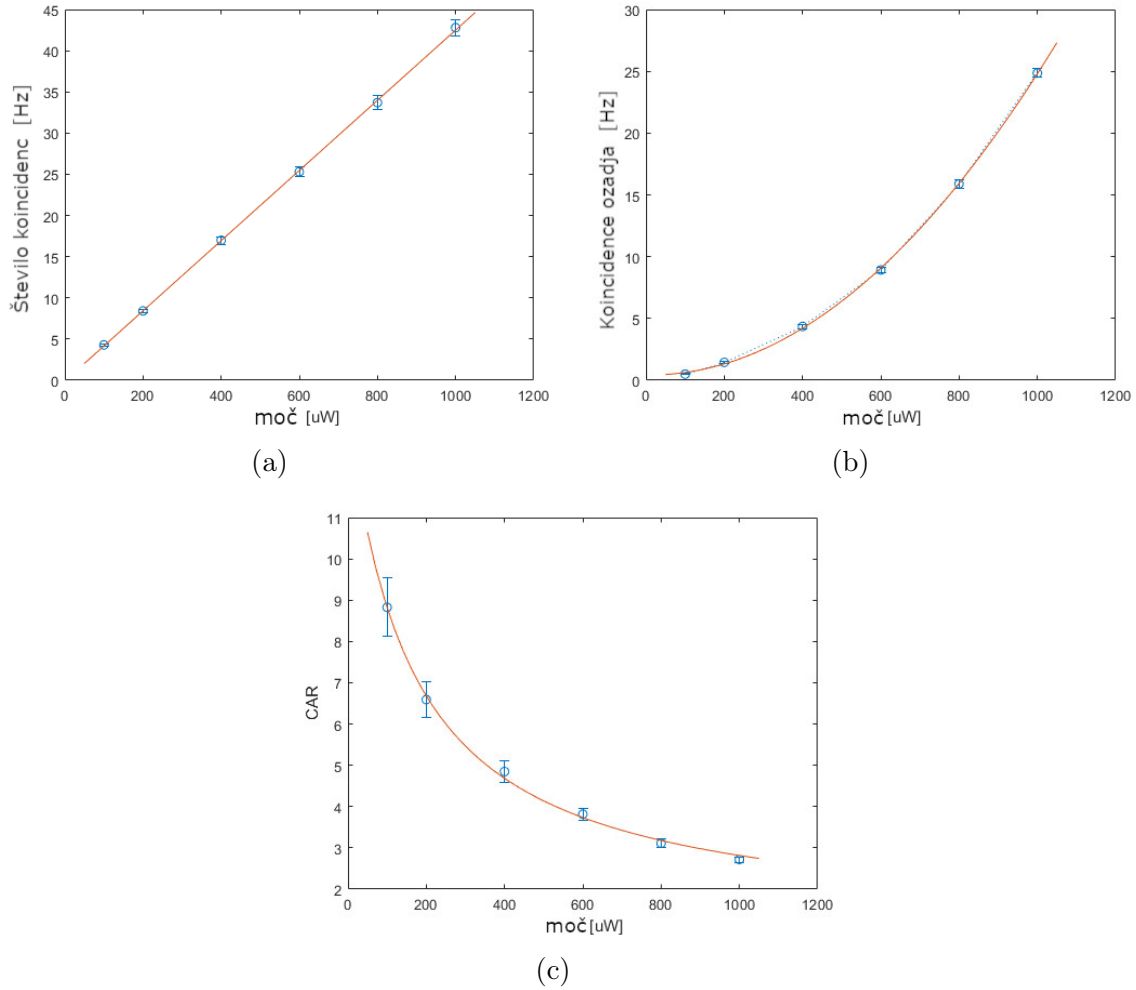
Slika 6.6: Poincarejeva sfera za litijev niobat pri horizontalno polariziranem črpalnem žarku.

## 7. Meritve na vzorcu FNLC

Namen naše eksperimentalne postavitve je bil preučiti SPDC v feroelektričnem nematskem tekočem kristalu. Za začetek smo preučili odvisnost koincidenč na detektorjih od moči črpalnega žarka, nato odvisnost SPDC signala od debeline celice ter na koncu iskali ustrezne parametre za nastanek prepletenih fotonov stanj.

### 7.1 Odvisnost koincidenč od moči črpalnega žarka

Naš vzorec je bila 9  $\mu\text{m}$  debela celica, napolnjena s FNLC. Površini sta vsiljevali nasprotno vzporedno smer molekul, zato se je preko celice ustvaril zasuk molekul za  $180^\circ$ . Smer molekul na prvi plasti vzorca smo poimenovali horizontalna smer ter smer pravokotno nanjo in v ravnini plasti vertikalna smer. Črpalnemu žarku smo polarizacijo zasukali v horizontalno smer. Prav tako smo optične komponente pred detektorjema nastavili tako, da je do detektorjev prišla samo horizontalno polarizirana svetloba. Z ND filtrom smo uravnavali moč črpalnega žarka in sicer od 100  $\mu\text{W}$  do 1 mW. Pri vsaki izmed izbranih moči smo signal na detektorjih zajemali 4 min. Iz histograma zaznanih dogodkov v odvisnosti od časa med njimi smo izračunali tok nastalih fotonov parov ter tok naključnih koincidenč na detektorjih. Na sliki 7.1.a so prikazane meritve koincidenč, ki so posledica nastalih fotonov parov preko SPDC. Meritvam se najboljše prilaga narisana oranžna premica, kar pomeni, da tok fotonov parov z močjo narašča linearno. To se sklada z ugotovitvijo iz kvantne izpeljave v poglavju 3, kjer smo dobili kvadrate absolutnih vrednosti koeficientov v valovni funkciji nastalih fotonov sorazmerne z intenziteto črpalnega žarka. Na sliki 7.1.b je prikazan tok naključnih koincidenč v odvisnosti od moči črpalnega žarka. V nasprotju s tokom fotonov parov se naključne koincidence, ki so v večji meri posledica fluorescence in prepuščene laserske svetlobe skozi filtre, z močjo črpalnega žarka povečujejo kvadratično (prilegajoča parabola). Tudi to se sklada s teorijo. Verjetnost, da foton ozadja po naključju pade na detektor v nekem časovnem intervalu, je sorazmerna s celotnim številom fotonov ozadja. Enako velja za drugi detektor. Torej je verjetnost, da v določenem časovnem intervalu oba detektorja zaznata dogodek, sorazmerna s kvadratom celotnega števila fotonov ozadja. Slika 7.1.c prikazuje razmerje med tokom parov fotonov iz SPDC in naključnimi sočasnimi dogodki, kar označujemo s CAR (*coincidence to accidental ratio*). Po pričakovanjih je CAR obratno sorazmeren z močjo črpalnega žarka.



Slika 7.1: Tok koincidence v odvisnosti od moči horizontalno polariziranega črpalnega žarka. Z modro barvo so označene meritve, z oranžno pa prilegajoče krivulje. a) Tok nastalih fotonov preko SPDC. Prilegajoča krivulja je premica. b) Tok naključnih koincidence na detektorjih. Prilegajoča krivulja je parabola. c) Razmerje med tokom koincidence zaradi fotonov preko SPDC, in naključnih koincidence na detektorjih.

Na tem mestu ocenimo še izkoristek nastalih fotonov preko SPDC iz črpalnega žarka. Izkoristek  $\eta$  definirajmo kot

$$\eta = \frac{I_{SPDC}}{I_p}, \quad (7.1)$$

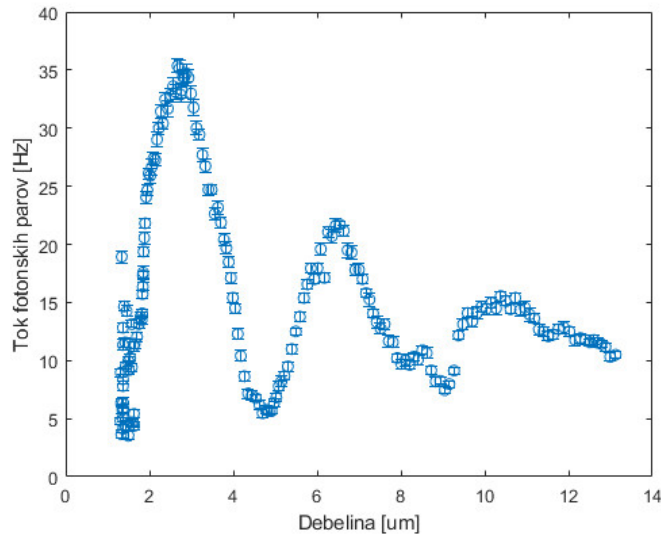
kjer je  $I_{SPDC}$  številski tok fotonov preko SPDC in  $I_p$  številski tok črpalnih fotonov. Slednjega lahko izračunamo iz moči črpalnega žarka  $P_p$  kot

$$I_p = P_p \frac{\lambda_p}{hc}, \quad (7.2)$$

pri čemer je  $h$  Planckova konstanta,  $c$  svetlobna hitrost in  $\lambda_p$  valovna dolžina črpalnega žarka, ki je v našem primeru 450 nm. Moči 1 mW tako ustreza tok približno  $2 \cdot 10^{15}$  fotonov na sekundo. Preko SPDC iz njih vsako sekundo nastane okoli 40 parov fotonov (ocenjeno iz slike 7.1.a). Iz tega sledi izkoristek reda velikosti  $\eta \sim 10^{-14}$ .

## 7.2 Odvisnost SPDC signala od debeline FNLC

Za namen preučevanja odvisnosti SPDC signala od debeline celice smo izdelali klinasto celico, ki se ji je debelina približno linearno povečevala od 1.8  $\mu\text{m}$  do 20  $\mu\text{m}$ . Površini celice sta tudi v tem primeru vsiljevali nasprotno vzporedno smer molekul, s čimer smo preko celice zopet dobili 180° zasuk molekul. Moč črpalnega žarka smo nastavili na 1 mW. Merili smo koincidence horizontalno polariziranih fotonov iz prav tako horizontalno polariziranega črpalnega žarka. Pri določeni debelini smo merili 5 min ter se nato premaknili na novo mesto z večjo debelino. Tekočekristalno celico smo predhodno umerili, da smo natančneje poznali debelino FNLC na posameznem mestu. Rezultati meritev so prikazani na sliki 7.2.



Slika 7.2: Tok koincidence horizontalno polariziranih fotonov v odvisnosti od debeline FNLC pri horizontalno polariziranem črpalnem žarku.

Opazimo periodično spreminjanje intenzitete. Ker nimamo faznega ujemanja,  $\Delta k$  v enačbi za intenziteto (4.2) ni 0, kar privede do spreminjanja intenzitete s kvadratom sinusa  $\frac{\Delta k L}{2}$ . To postane očitno, če je debelina tekočega kristala večja od koherentne razdalje. Tudi dobljene meritve v grobem prikazujejo takšno odvisnost. Ena izmed razlik med meritvami in enačbo (4.2) je manjšanje amplitude intenzitete z debelino vzorca pri dobljenih rezultatih. Vzrok temu je nekolinearnost črpalnega fotona in nastalega fotonskega para. Fotoni, ki gredo skozi vzorec pod kotom  $\alpha$  glede na najkrajšo razdaljo  $d_0$  skozi celico, naredijo pot

$$d = \frac{d_0}{\cos \alpha}. \quad (7.3)$$

Naj bo  $\alpha$  kot, ki ga določa numerična apertura objektiva. Razlika med najkrajšo potjo in potjo  $d$  je

$$\Delta d = d - d_0 = d_0 \left( \frac{1}{\cos \alpha} - 1 \right). \quad (7.4)$$

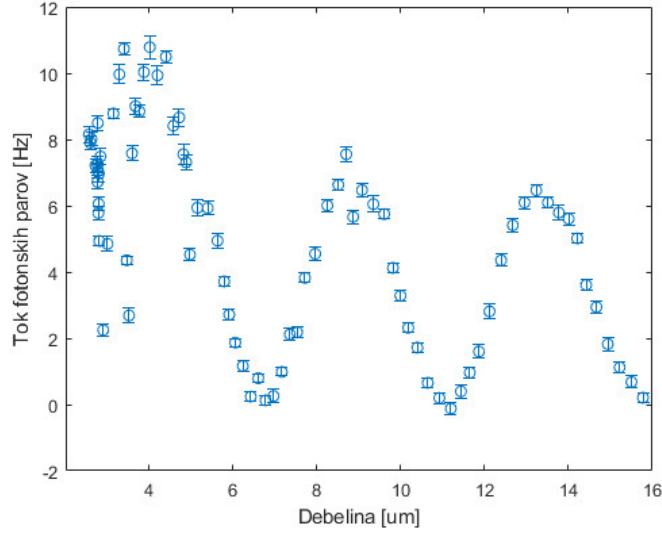
Iz tega sledi, da se razlika dolžin poti med žarki, ki padejo na objektiv, večja z debelino vzorca. Pri zelo velikih debelinah bi zato dobili izpovprečen kvadrat sinusa.

To smo eksperimentalno preverili tako, da smo za drugi objektiv postavili majhno okroglo odprtino, ki je prepustila samo fotone znotraj premera nekaj milimetrov. S tem smo učinkovito zmanjšali numerično aperturo, saj se je maksimalen kot fotonov skozi vzorec, pri katerem ti še pridejo na detektor, zmanjšal. Rezultat prikazuje slika 7.3. Pri tem je potrebno omeniti, da je slednje izmerjeno na drugem mestu tekočerkristalne celice kot meritve na sliki 7.2. Vidimo, da sta v primeru dodatne zaslonke amplitudi drugega in tretjega vrha v okviru napake enaki. Prav tako sta vrednosti toka pri minimumih praktično nič za razliko od minimumov toka koincidenz brez zaslonke, kjer so se vrednosti minimumov z debelino povečevale. Vse to nakazuje na to, da se z izločitvijo žarkov, ki preletijo vzorec pod večjimi koti, zmanjša izpovprečevanje signala.

Iz meritev opazimo še eno odstopanje od modela, ki ga opisuje enačba (4.2). Izračunali smo, da bi morala za naš vzorec koherenčna razdalja znašati  $L_{coh} = 5.9 \mu\text{m}$ . V nasprotju s tem meritve nakazujejo na koherenčno razdaljo  $1.9 \mu\text{m}$ , kar je približno trikrat manj od napovedi. Vzrokov za to je več. Med drugim na koherenčno razdaljo verjetno tako kot prej vplivajo različne dolžine prepotovanih poti med žarki. Poleg tega lomne količnike, ki nastopajo v enačbi za koherenčno razdaljo (5.6), dobimo z ekstrapolacijo izmerjenih vrednosti pri drugih valovnih dolžinah, zato tudi ti niso točni. Napaka se še poveča, ko naredimo razliko vrednosti lomnih količnikov. Potrebno je omeniti tudi, da so lomni količniki izračunani za centralno valovno dolžino nastalih fotonov, torej  $900 \text{ nm}$ , medtem ko na detektor pride širši spekter fotonov (dolgovalovno prepustni filter pred detektorjema prepušča valovne dolžine nad  $840 \text{ nm}$ ). Prav tako na koherenčno razdaljo vpliva tudi  $180^\circ$  zasuk molekul. Da bi preverila, kateri izmed naštetih vzrokov je v največji meri zaslužen za manjšo koherenčno razdaljo od napovedane, sem v modelu Kavčiča in Sultanovega [1] sistematično spreminjala vrednosti lomnih količnikov, valovno dolžino črpalnega žarka, valovno dolžino nastalih fotonov ter zasuk molekul. Pri vsakemu izmed spremenjenih parametrov se je koherenčna razdalja nekoliko spremenila, a v nobenem primeru znatno (ostajala je nad  $5 \mu\text{m}$ ). V prihodnje zato načrtujemo izdelavo natančnejšega modela, pri katerem bi namesto Jonesovih matrik uporabili numerične metode ter opisali tudi fotone, ki vzorec preletijo pod kotom. S takšnim modelom upamo, da bomo lahko pojasnili tudi izmerjeno vrednost koherenčne razdalje.



### 7.3. Simulacija spreminjanja prepletenosti fotonov z debelino in vhodno polarizacijo



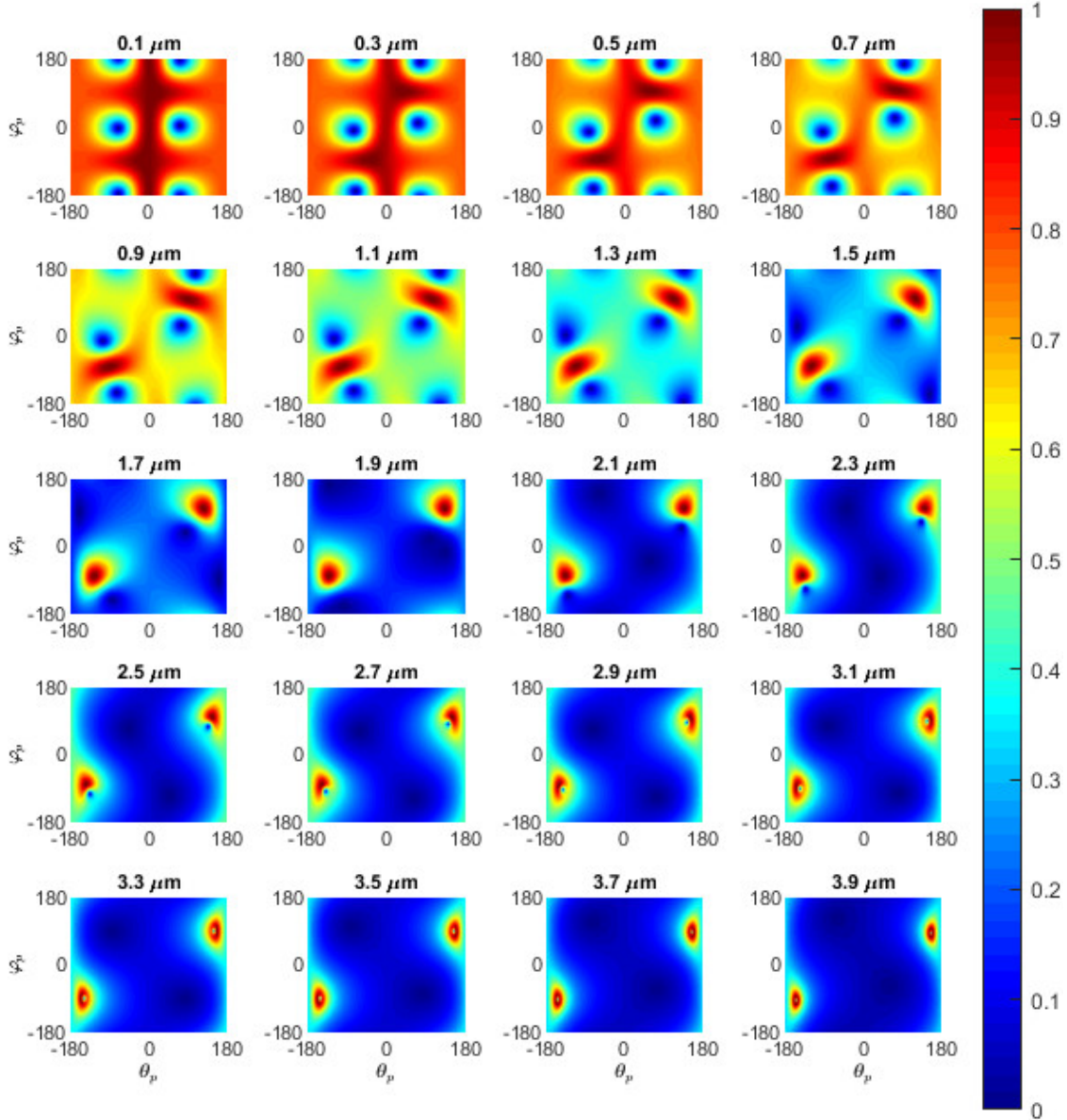
Slika 7.3: Tok koincidenz horizontalno polariziranih fotonov v odvisnosti od debeline FNLC pri horizontalno polariziranem črpalnem žarku ter dodatni zaslonki pred detektorjema.

## 7.3 Simulacija spreminjanja prepletenosti fotonov z debelino in vhodno polarizacijo

Iz slike 7.2 je očitno, da se zaznane koincidence močno zmanjšajo (tudi sedemkrat), ko se pomaknemo k debelinam, različnim od koherentne razdalje. Prav tako je število koincidenz močno odvisno od polarizacije vhodnega žarka in izhodnih fotonov. Če želimo izmeriti celotno tomografijo, kot je opisana v poglavju 6, moramo izmeriti devet različnih kombinacij polarizacij izhodnih fotonov, med katerimi so pogosto tudi takšne, pri katerih je zelo slabo izrazit koincidenčni vrh v primerjavi z ozadjem. Posledično moramo ustrezno podaljšati čas meritev, kar že v primeru 7 minut na meritev ene kombinacije izhodnih fotonov pomeni več kot eno uro zajemanja signala. Ker se SPDC uporablja kot vir prepletenih fotonov v kvantnih aplikacijah, sem želela ustvariti pare fotonov, ki bi bili med sabo čim bolj prepleteni. Dobljeno stanje in stopnjo prepletenosti za vsak posamezen primer lahko izračunamo šele iz meritev celotne tomografije. Ker bi bilo časovno zelo zamudno naključno iskati vhodno polarizacijo in debelino vzorca, pri katerih bi bila prepletenost visoka, sem pred izvedbo meritev s teoretičnim modelom, ki sta ga razvila Kavčič in Sultanov [1], preverila, kakšna naj bi bila prepletenost izhodnega stanja pri določenih debelinah vzorca ter pri določeni polarizaciji vhodnega žarka. Simulacijo sem izvedla pri debelinah od 0.1  $\mu\text{m}$  do 3.9  $\mu\text{m}$  v koraku po 0.2  $\mu\text{m}$ . Pri vsaki debelini sem za različne vhodne polarizacije s simulacijo izračunala koeficiente valovne funkcije izhodnih fotonov ter iz njih stopnjo prepletenosti. Pri tem je potrebno imeti v mislih, da je določeno stanje lahko močno prepleteno, vendar ga nastane premalo, da bi ga lahko ločili od ozadja, zato tudi za uporabo v aplikacijah ni primerno. Po drugi strani pa lahko dobimo zelo veliko signala pri drugačni polarizaciji črpalnega žarka, a je to skoraj popolnoma neprepleteno. S simulacijo napovedana prepletenost v odvisnosti od debeline tekočerkristalne celice in vhodne polarizacije je prikazana na sliki 7.4. Pri tem

s  $\theta_p$  in  $\varphi_p$  označujemo kota, ki nastopata v Jonesovem vektorju za črpalni žarek

$$\mathbf{e}_p = \begin{bmatrix} \cos \frac{\theta_p}{2} \\ \cos \frac{\theta_p}{2} e^{i\varphi_p} \end{bmatrix}. \quad (7.5)$$



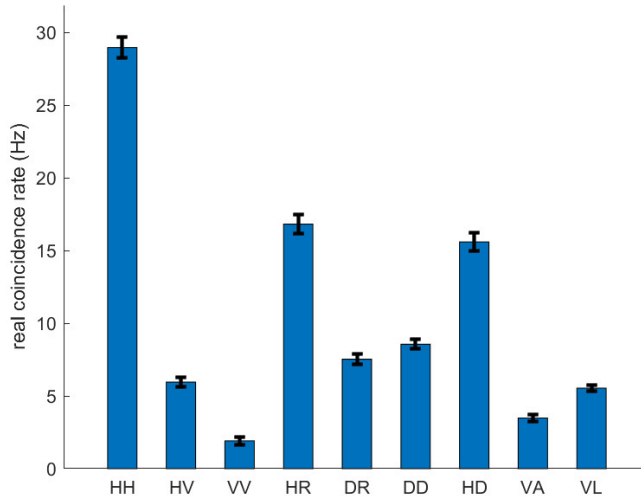
Slika 7.4: Prepletenost stanja v odvisnosti od polarizacije črpalnega žarka ter debeline vzorca. Posamezne barve ustrezajo določeni stopnji prepletenosti.

Opazimo, da so z večanjem debeline območja z največjo prepletenostjo bližje kotoma  $\theta_p = \pm 180^\circ$  in  $\varphi_p = \pm 90^\circ$ , kar ustreza levo sučni eliptični polarizaciji, ki se približuje vertikalni polarizaciji. Simulacija kaže tudi na to, da se z debelino območje visoke prepletenosti manjša. Ker je horizontalna smer določena z največjo komponento  $d$  tenzorja, na vertikalno polariziran črpalni žarek vplivajo skorajda

ničelne komponente tega tenzorja, kar pomeni majhno verjetnost za nastanek foton-skega para. Če želimo ustvariti merljiv tok stanj z visoko prepletenostjo, je takšna stanja smiselno iskati pri debelinah, kjer za visoko prepletenost še ne potrebujemo črpalnega žarka s skorajda vertikalno polarizacijo. Hkrati moramo upoštevati, da se intenziteta nastalih fotonov z debelino spreminja tudi zaradi neujemanja faz (slika 7.2). Ker želimo poleg visoke prepletenosti doseči tudi čim večjo intenziteto nastalih fotonov, ni najboljša, če se nahajamo v območju minimumov intenzitete. Za doseg velike prepletenosti ter hkrati zadovoljive intenzitete nastalih fotonov je posledično iz mest z veliko prepletenostjo na sliki 7.4 potrebno izbrati tiste, pri katerih črpalni žarek občuti dovolj veliko nelinearnost materiala ter fazno neujemanje ne privede do prevelike destruktivne interference.

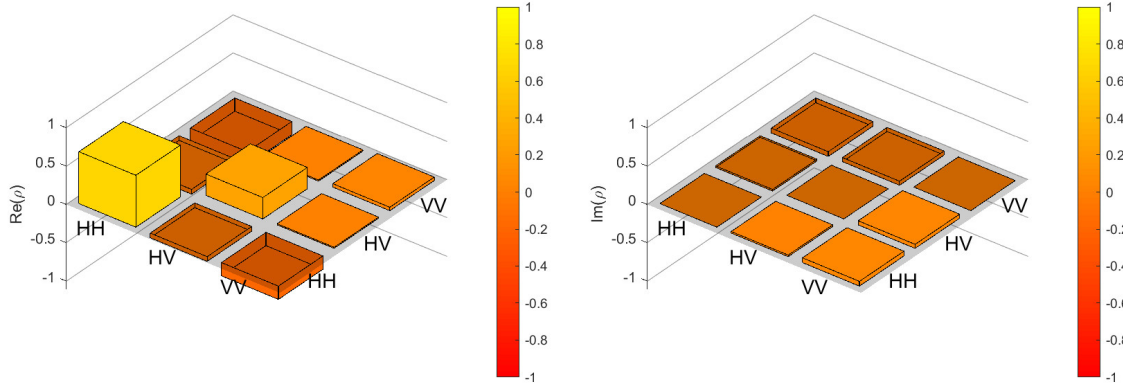
## 7.4 Tomografija na vzorcu FNLC

Na klinastem vzorcu FNLC s  $180^\circ$  zasukom molekul sem izvedla tomografijo pri različnih debelinah ter različnih vhodnih polarizacijah. Pri tem sem se glede intenzitete opirala na meritve toka koincidenč v odvisnosti od debeline iz razdelka 7.2. Potrebno je poudariti, da slika 7.2 ustreza horizontalno polariziranemu črpalnemu žarku, medtem ko se za drugačno polariziran žarek maksimumi nekoliko premaknejo. Za začetek si pogledjmo primer nastanka parov fotonov z majhno prepletenostjo. Meritev je bila izvedena pri debelini  $1.8 \mu\text{m} \pm 0.1 \mu\text{m}$  ter desni krožni polarizaciji črpalnega žarka, kjer je bilo relativno veliko koincidenč pri merjenju stanja  $|HH\rangle$ . Rezultati simulacije iz slike 7.4 so napovedovali prepletenost pod 0.2. Pri vsaki kombinaciji polarizacij izhodnih fotonov smo signal na detektorjih zajemali 5 min. Izmerjen tok koincidenč je prikazan na sliki 7.5.



Slika 7.5: Tok koincidenč pri različnih kombinacijah polarizacij izhodnih fotonov. Debelina FNLC na mestu meritve je bila  $1.8 \mu\text{m} \pm 0.1 \mu\text{m}$ . Črpalni žarek je bil desno krožno polariziran.

Takoj opazimo nekajkrat večji tok nastalih fotonov s horizontalno polarizacijo  $HH$  kot s polarizacijama  $VV$  ali  $HV$ . Posledično ima tudi realni del gostotne matrike izrazito  $\rho_{11}$  komponento, kar je prikazano na sliki 7.6.



(a) Realni del gostotne matrike

(b) Imaginarni del gostotne matrike

Slika 7.6: Realni in imaginarni del gostotne matrike za FNLC debeline  $1.8 \mu\text{m} \pm 0.1 \mu\text{m}$  in desno krožno polariziran črpalni žarek.

Absolutne vrednosti koeficientov valovne funkcije, kot smo jih definirali v enačbi (6.1), so v tem primeru

$$|c_1| = 0.82 \pm 0.01, \quad (7.6)$$

$$|c_2| = 0.53 \pm 0.02, \quad (7.7)$$

$$|c_3| = 0.21 \pm 0.01, \quad (7.8)$$

faze med njimi pa

$$\varphi_{12} = -0.33 \pm 0.34, \quad (7.9)$$

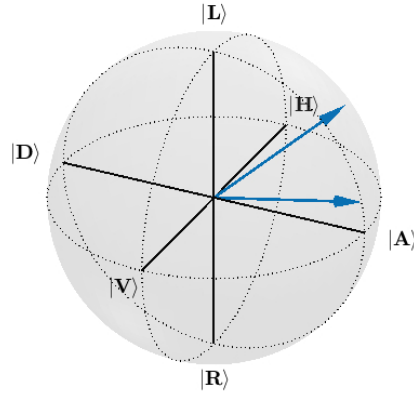
$$\varphi_{23} = -0.35 \pm 0.17. \quad (7.10)$$

$$(7.11)$$

Očitno je, da je verjetnost za detekcijo stanja  $|HH\rangle$  več kot dvakrat večja od detekcije stanj  $|HV\rangle$  ali  $|VV\rangle$ . Na sliki 7.7 je stanje prikazano na Poincarejevi sferi. Takoj opazimo, da je kot med polarizacijama majhen, kar pomeni majhno prepletenost. Njena vrednost, izračunana iz koeficientov valovne funkcije, znaša  $C = 0.12 \pm 0.2$ , kar se sklada z napovedjo simulacije, ki je pri tej debelini tekočerkristalne celice in polarizaciji črpalnega žarka napovedala prepletenost 0.14.

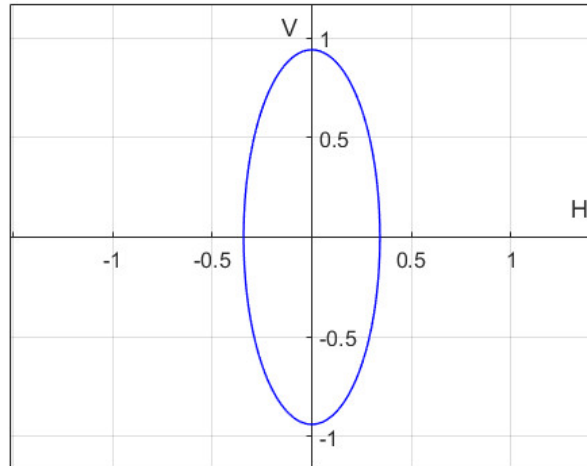
Sedaj si pogledjmo še primer, ko se s polarizacijo črpalnega žarka približamo vrednostim, pri katerih naj bi glede na simulacijo dobili veliko prepletenost izhodnih fotonov. Hkrati moramo paziti, da je koincidenca na detektorjih dovolj, da jih lahko ločimo od ozadja, zato sem se osredotočila na območja, kjer visoka prepletenost še ni omejena zgolj na črpalni žarek z zelo veliko vertikalno komponento polarizacije. Upoštevajoč sliko 7.4 sem tako večjo pozornost namenila najtanjšim območjem naše tekočerkristalne celice, torej debelinam med  $1.8 \mu\text{m}$  in  $2 \mu\text{m}$ . Med grobim preletom stanj na nekaj različnih mestih ter pri različnih polarizacijah črpalnega žarka so bile najbolj obetavne meritve pri eliptično polariziranem črpalnem žarku z vrednostima kotov  $\theta_p$  in  $\varphi_p$  Jonesovega vektorja  $\theta_p = 140^\circ$  in  $\varphi_p = 90^\circ$ . Za boljšo predstavbo o obliki takšne polarizacije je ta prikazana v ravnini  $HV$  na sliki 7.8.

Debelina FNLC, pri kateri sem nato izvedla tomografijo, je znašala  $1.9 \mu\text{m} \pm 0.1 \mu\text{m}$ . Ker je bilo koincidenca manj kot v primeru desne krožne polarizacije, sem



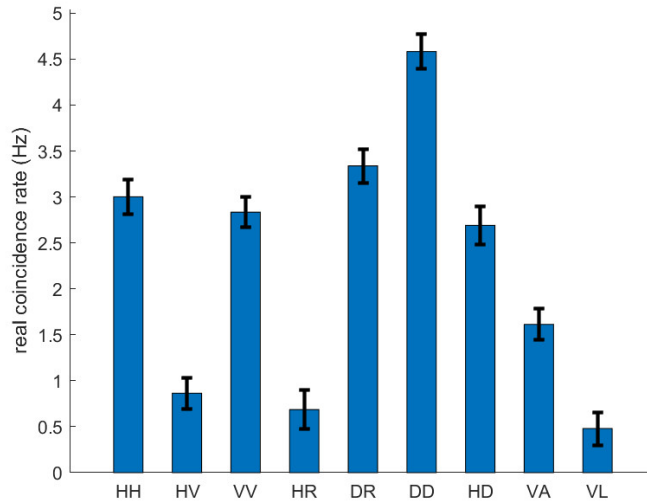
Slika 7.7: Poincarejeva sfera za stanje izhodnih fotonov pri debelini FNLC  $1.8 \mu\text{m} \pm 0.1 \mu\text{m}$  ter desno krožno polariziranim črpalnem žarku.

pri vsaki kombinaciji polarizacij izhodnih fotonov signal zajemala 10 min. Dobljen tok koincidenč je prikazan na sliki 7.9. V nasprotju s prejšnjim primerom sta tukaj stanji  $|HH\rangle$  in  $|VV\rangle$  v okviru napake enakovredno zastopani. Gostotna matrika za ta primer je prikazana na sliki 7.10.

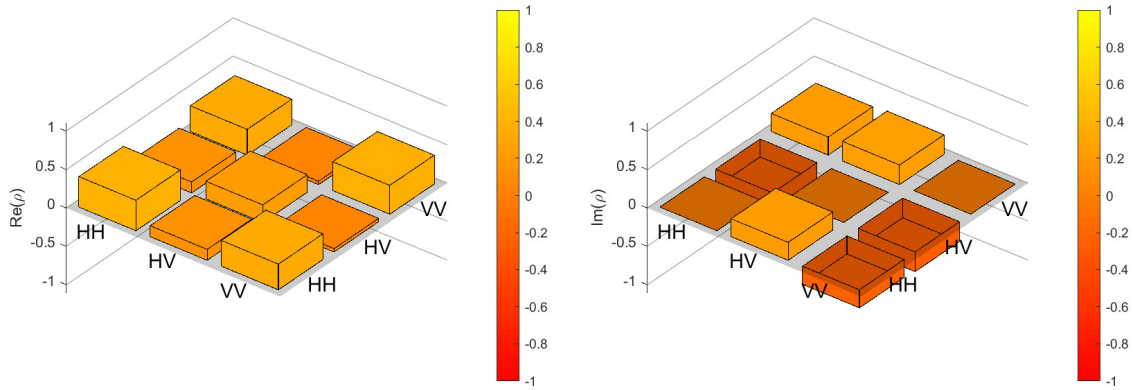


Slika 7.8: Polarizacija črpalnega žarka pri meritvah SPDC na FNLC debeline  $1.9 \mu\text{m} \pm 0.1 \mu\text{m}$ .

Komponente tako realnega kot imaginarnega dela matrike so v primerjavi s prejšnjim primerom bolj raznolike. Neničelni so tudi izvendiagonalni elementi obeh matrik, ki poskrbijo za faze med koeficienti valovne funkcije. Absolutne vrednosti



Slika 7.9: Tok koincidenč pri različnih kombinacijah polarizacij izhodnih fotonov. Debelina FNLC na mestu meritve je bila  $1.9 \mu\text{m} \pm 0.1 \mu\text{m}$ . Črpalni žarek je bil eliptično polariziran.



(a) Realni del gostotne matrike

(b) Imaginarni del gostotne matrike

Slika 7.10: Realni in imaginarni del gostotne matrike za FNLC debeline  $1.9 \mu\text{m} \pm 0.1 \mu\text{m}$  ter eliptično polariziran črpalni žarek.

koeficientov valovne funkcije znašajo

$$|c_1| = 0.63 \pm 0.03, \quad (7.12)$$

$$|c_2| = 0.48 \pm 0.05, \quad (7.13)$$

$$|c_3| = 0.61 \pm 0.02, \quad (7.14)$$

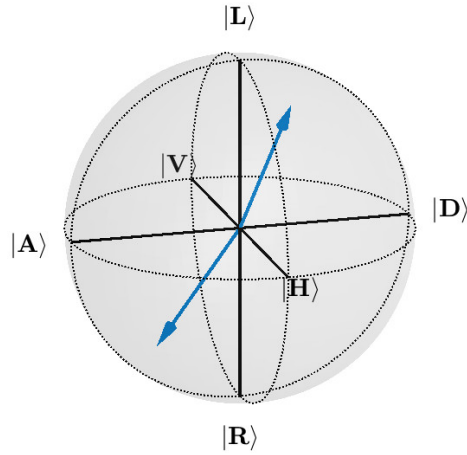
njihove medsebojne faze pa

$$\varphi_{12} = 1.02 \pm 0.2, \quad (7.15)$$

$$\varphi_{23} = -0.61 \pm 0.2. \quad (7.16)$$

$$(7.17)$$

Absolutni vrednosti koeficientov stanj  $|HH\rangle$  in  $|VV\rangle$  sta v okviru napake enaki, medtem ko je verjetnost za izmerjeno stanje  $|HV\rangle$  nekoliko manjša. Stanje prikažimo še na Poincarejevi sferi na sliki 7.11. Kot med polarizacijama je  $168^\circ \pm 20^\circ$ . Iz koeficientov valovne funkcije izračunamo prepletenost nastalega fotonskega para. Njena vrednost je enaka  $C = 0.98 \pm 0.07$ , kar je nekoliko več od napovedi simulacije, ki znaša 0.88. S tem smo po nam znanih informacijah prvi v Sloveniji ustvarili prepletene fotone.



Slika 7.11: Poincarejeva sfera za stanje izhodnih fotonov pri debelini FNLC  $1.9 \mu\text{m} \pm 0.1 \mu\text{m}$  ter eliptično polariziranim črpalnim žarku.





## 8. Zaključek

Eksperimentalna postavitve, ki smo jo razvili za zaznavanja fotonov, ustvarjenih preko SPDC, nam je omogočila preučevanje števila in polarizacijskih lastnosti fotonov, ustvarjenih v tekočih kristalih. Med drugim smo preučili odvisnost intenzitete SPDC signala od debeline tekočokristalne celice. Z izvedbo polarizacijske tomografije smo določili polarizacijska stanja nastalih fotonovskih parov ter nazadnje uspešno ustvarili prepletene fotone. Meritve na kristalu litijevega niobata so privedle do rezultatov, ki so se skladali z obstoječimi raziskavami, s čimer smo dobili potrditev o ustreznosti naše eksperimentalne postavitve. Nadaljevali smo na vzorcih FNLC, ki za razliko od ostalih tekočokristalnih faz vsebujejo polarni orientacijski red in s tem nelinearne lastnosti drugega reda. Po pričakovanjih se je tok sočasno nastalih parov fotonov iz SPDC povečeval linearno z močjo črpalnega žarka. Ker je ta odvisnost za naključne koincidence na detektorjih kvadratična, je razmerje med tvorjenimi pari in ozadjem obratno sorazmerno z močjo črpalnega žarka, kar je potrebno imeti v mislih pri povečevanju vhodne moči.

Ugotovili smo, da se spreminjanje intenzitete SPDC signala z debelino ne ujema popolnoma s teoretično predpostavko o vrednosti koherentne razdalje, ki je približno trikrat večja od izmerjene. Prav tako naš teoretični model ni predvidel izpoprečevanja intenzitete z debelino vzorca. Slednje je v večji meri verjetno posledica fotonov, ki vzorec preletijo pod določenim kotom in zato v njem prepotujejo daljšo razdaljo od debeline vzorca. Ker je vzrokov za odstopanje izmerjene koherentne razdalje od napovedane vrednosti najverjetneje več, bi bilo v prihodnje smiselno eksperimentalno preveriti, kateri parametri najbolj vplivajo na spreminjanje koherentne razdalje. Prav tako bi bilo smiselno nadgraditi teoretični model, da bi ta med drugim opisal tudi fotone, ki vzorec preletijo pod določenim kotom glede na pravokotnico na njegovo površino.

Ker se SPDC v kvantnih aplikacijah uporablja kot vir prepletenih fotonov, je bil namen magistrske naloge med drugim preveriti tudi, na kakšen način lahko uravnava polarizacijska stanja izhodnih fotonovskih parov. V pomoč nam je bil teoretični model, ki sta ga razvila Kavčič in Sultanov [1], s katerim smo dobili okvirno predstavbo o potrebnih parametrih za določeno stopnjo prepletenosti. Pri izbiri možnih polarizacij črpalnega žarka in pri izbiri debeline tekočokristalne celice smo morali biti pozorni, da je bila intenziteta nastalih fotonovskih parov zadovoljivo velika. Za določitev polarizacijskega stanja smo izvedli polarizacijsko tomografijo ter iz nje izračunali gostotno matriko stanja. Na isti tekočokristalni celici s spremenljivo debelino smo ustvarili fotone z nizko prepletenostjo  $C = 0.12 \pm 0.2$  ter močno prepletene fotone s  $C = 0.98 \pm 0.07$ . Po nam znanih informacijah smo s tem prvi v Sloveniji uspeli ustvariti prepletene pare fotonov.

Do zdaj smo stanja nastalih fotonovskih parov spreminjali zgolj s polarizacijo črpalnega žarka ter z debelino celice. V prihodnje bi za ta namen lahko izkoristili

tudi odzivnost molekul FNLC na električno polje. S tem bi bilo mogoče spremenjati stanja fotonskega para pri izbrani debelini in polarizaciji črpalnega žarka že s povečevanjem napetosti na vzorcu.

V našem primeru smo imeli vzorec s  $180^\circ$  zasukom molekul. Več kot toliko ga s sidranjem ali z električnim poljem ne moremo ustvariti. Vseeno bi bilo zanimivo preučevati SPDC v vzorcih z zasukom molekul, ki bi bil večkratnih  $360^\circ$ . S tem bi lahko ustvarili podoben učinek kot z izmenjujočo orientacijo plasti (*periodic polling*) v običajnih trdnih kristalih, namenjenih generaciji parov fotonov, in tako omogočili kvazi-ujemanje faz. Pri tem bi bila za ojačanje signala seveda potrebna ustrezna debelina periode zasuka molekul. Večkratni zasuk molekul bi lahko dosegli z dodatkom kiralnih dopantov tekočemu kristalu. Debelina vzorca tako ne bi bila več omejena na vrednosti enake ali manjše od koherentne razdalje, zaradi česar bi lahko izdelali debelejšje celice, kar bi privedlo do večje intenzitete nastalih fotonskih parov.

Zaključimo lahko, da smo z opravljenimi meritvami dobili spodbudne rezultate za delo v prihodnje. Obetavna je predvsem enostavna nastavljivost stanj izhodnih fotonov, kar bi bila velika prednost za bodočo uporabo v kvantnih aplikacijah.

## 9. Literatura

- [1] V. Sultanov, A. Kavčič, M. Kokkinakis, N. Sebastián, N. Osterman, M. V. Chekhova and M. Humar, *Entangled photons from liquid crystals: a new paradigm of tunable quantum light sources* (2024), arXiv:2401.07362 [physics.optics] .
- [2] D. Bouwmeester, J.-W. Pan, K. Mattle, M. Eibl, H. Weinfurter and A. Zeilinger, *Experimental quantum teleportation*, Nature **390**, 575–579 (1997).
- [3] J.-P. Bourgoin, N. Gigov, B. Higgins, Z. Yan, E. Meyer-Scott, A. Khandani, N. Lütkenhaus and T. Jennewein, *Experimental quantum key distribution with simulated ground-to-satellite photon losses and processing limitations*, Physical Review A **92**, 052339 (2015).
- [4] W. Tittel, J. Brendel, H. Zbinden and N. Gisin, *Quantum Cryptography Using Entangled Photons in Energy-Time Bell States*, Phys. Rev. Lett. **84**, 4737 (2000).
- [5] J. L. O’Brien, *Optical Quantum Computing*, Science **318**, 1567–1570 (2007).
- [6] J. Cheung, C. Chunnillall, E. Woolliams, N. Fox, J. Mountford, J. Wang and P. Thomas, *The quantum candela: A re-definition of the standard units for optical radiation*, Journal of Modern Optics - J MOD OPTIC **54**, 373 (2007).
- [7] B. Ndagano, H. Defienne, D. Branford, Y. D. Shah, A. Lyons, N. Westerberg, E. M. Gauger and D. Faccio, *Quantum microscopy based on Hong–Ou–Mandel interference*, Nature Photonics **16**, 384–389 (2022).
- [8] W. H. Louisell, A. Yariv and A. E. Siegman, *Quantum Fluctuations and Noise in Parametric Processes. I.*, Phys. Rev. **124**, 1646 (1961).
- [9] D. C. Burnham and D. L. Weinberg, *Observation of Simultaneity in Parametric Production of Optical Photon Pairs*, Phys. Rev. Lett. **25**, 84 (1970).
- [10] R. Boyd, *Nonlinear Optics* (Elsevier Science, 2020).
- [11] P. G. Kwiat, K. Mattle, H. Weinfurter, A. Zeilinger, A. V. Sergienko and Y. Shih, *New High-Intensity Source of Polarization-Entangled Photon Pairs*, Phys. Rev. Lett. **75**, 4337 (1995).
- [12] R.-B. Jin, R. Shimizu, K. Wakui, M. Fujiwara, T. Yamashita, S. Miki, H. Terai, Z. Wang and M. Sasaki, *Pulsed Sagnac polarization-entangled photon source with a PPKTP crystal at telecom wavelength*, Opt. Express **22**, 11498 (2014).

- [13] S. Tanzilli, W. Tittel, H. De Riedmatten, H. Zbinden, P. Baldi, M. DeMicheli, D. Ostrowsky and N. Gisin, *PPLN waveguide for quantum communication*, The European Physical Journal D - Atomic, Molecular and Optical Physics **18**, 155–160 (2002).
- [14] T. Santiago-Cruz, V. Sultanov, H. Zhang, L. A. Krivitsky and M. V. Chekhova, *Entangled photons from subwavelength nonlinear films*, Opt. Lett. **46**, 653 (2021).
- [15] V. Sultanov, T. Santiago-Cruz and M. V. Chekhova, *Flat-optics generation of broadband photon pairs with tunable polarization entanglement*, Optics Letters **47**, 3872 (2022).
- [16] N. M. H. Duong, G. Saerens, F. Timpu, M. T. Buscaglia, V. Buscaglia, A. Morandi, J. S. Müller, A. Maeder, F. Kaufmann, A. S. Solntsev and R. Grange, *Spontaneous parametric down-conversion in bottom-up grown lithium niobate microcubes*, Opt. Mater. Express **12**, 3696 (2022).
- [17] G. Saerens, T. Dursap, I. Hesner, N. M. H. Duong, A. S. Solntsev, A. Morandi, A. Maeder, A. Karvounis, P. Regreny, R. J. Chapman, A. Danescu, N. Chauvin, J. Penuelas and R. Grange, *Background-Free Near-Infrared Biphoton Emission from Single GaAs Nanowires*, Nano Letters **23**, 3245 (2023).
- [18] M. V. Martin Čopič, *Fotonika*, 1st ed. (Fakulteta za matematiko in fiziko, Ljubljana, 2020).
- [19] H. Nishikawa, K. Shiroshita, H. Higuchi, Y. Okumura, Y. Haseba, S.-i. Yamamoto, K. Sago and H. Kikuchi, *A Fluid Liquid-Crystal Material with Highly Polar Order*, Advanced Materials **29**, 1702354 (2017).
- [20] R. Mandle, S. Cowling and J. Goodby, *Rational Design of Rod-Like Liquid Crystals Exhibiting Two Nematic Phases*, Chemistry - A European Journal **23** (2017).
- [21] R. Mandle, S. Cowling and J. Goodby, *A Nematic to Nematic Transformation Exhibited by a Rod-Like Liquid Crystal*, Physical Chemistry Chemical Physics **19** (2017).
- [22] C. Couteau, *Spontaneous parametric down-conversion*, Contemporary Physics **59**, 291–304 (2018).
- [23] J. Schneeloch and J. C. Howell, *Introduction to the transverse spatial correlations in spontaneous parametric down-conversion through the biphoton birth zone*, Journal of Optics **18**, 053501 (2016).
- [24] J. Schneeloch, S. H. Knarr, D. F. Bogorin, M. L. Levangie, C. C. Tison, R. Frank, G. A. Howland, M. L. Fanto and P. M. Alsing, *Introduction to the absolute brightness and number statistics in spontaneous parametric down-conversion*, Journal of Optics **21**, 043501 (2019).
- [25] G. Fowles, *Introduction to Modern Optics*, Dover Books on Physics Series (Dover Publications, 1989).

- 
- [26] C. L. Folcia, J. Ortega, R. Vidal, T. Sierra and J. Etxebarria, *The ferroelectric nematic phase: an optimum liquid crystal candidate for nonlinear optics*, Liquid Crystals **49**, 899–906 (2022).
- [27] N. Sebastián, R. J. Mandle, A. Petelin, A. Eremin and A. Mertelj, *Electrooptics of mm-scale polar domains in the ferroelectric nematic phase*, Liquid Crystals **48**, 2055–2071 (2021).
- [28] X. Chen, V. Martinez, E. Korblova, G. Freychet, M. Zhernenkov, M. A. Glaser, C. Wang, C. Zhu, L. Radzihovsky, J. E. MacLennan, D. M. Walba and N. A. Clark, *The smectic Z A phase: Antiferroelectric smectic order as a prelude to the ferroelectric nematic*, Proceedings of the National Academy of Sciences **120**, 10.1073/pnas.2217150120 (2023).
- [29] J. C. Dainty, *Optical waves in crystals. A. Yariv and P. Yeh Wiley, 1984, pp xi + 589, £47.45*, Optics Laser Technology **17**, 217 (1985).
- [30] M. Fedorov and N. Miklin, *Schmidt modes and entanglement*, Contemporary Physics **55**, 94 (2014).
- [31] M. V. Chekhova and M. V. Fedorov, *The Schmidt modes of biphoton qutrits: Poincaré-sphere representation*, Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics **46**, 095502 (2013).
- [32] V. Sultanov and M. Chekhova, *Temporally Distilled High-Dimensional Biphotonic States from Thin Sources*, ACS Photonics **11**, 2 (2024).
- [33] D. N. N. V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, *Handbook of nonlinear optical crystals*, Vol. 29 (Springer-Verlag, 1991).

