

ОБЗОРЫ АКТУАЛЬНЫХ ПРОБЛЕМ

Развитие лазерной спектроскопии спиновых шумов

Г.Г. Козлов, И.И. Рыжов, А.В. Кавокин, В.С. Запасский

Обзор посвящён новому направлению спектроскопии магнитного резонанса, основанному на оптической регистрации стохастической спиновой прецессии, — лазерной спектроскопии спиновых шумов, или спектроскопии спиновых флуктуаций (ССФ). Метод ССФ, подобно спектроскопии ЭПР, позволяет исследовать энергетическую структуру магнитных состояний среды, однако не подразумевает возбуждения регулярной спиновой прецессии и, благодаря использованию лазерно-поляриметрического канала детектирования сигнала, обладает рядом уникальных свойств. В обзоре рассматриваются специфические информационные возможности шумовой техники магнитного резонанса и описываются эксперименты, демонстрирующие эффективность применения этого подхода для изучения энергетических и динамических свойств спиновых подсистем твердотельных и газообразных парамагнетиков. На примере исследований эмиссии экситон-поляритонного конденсата рассмотрены особенности поляризационных флуктуаций вторичного свечения, в том числе неполяризованного света. Приведено строгое теоретическое описание закономерностей формирования поляриметрического сигнала спинового шума, основанное на модели неупругого (рамановского) рассеяния света элементарными носителями момента импульса.

Ключевые слова: спектроскопия спиновых шумов, спектроскопия спиновых флуктуаций, электронный парамагнитный резонанс, поляриметрия, экситон-поляритоны

PACS numbers: 07.57.Pt, 76.30. – v, 78.20.Ls

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2023.05.039367>

Содержание

1. Введение (268).
2. Базовые сведения по спектроскопии спиновых флуктуаций (270).
 - 2.1. Постановка эксперимента.
 - 2.2. Оценка величины сигнала.
 - 2.3. Расчёт корреляционной функции магнитного момента.
3. Эксперименты по спектроскопии спиновых флуктуаций (273).
 - 3.1. Наблюдение ядерной спиновой релаксации и оптического эффекта Штарка.
 - 3.2. Информационная содержательность оптических спектров шумовых сигналов.
 - 3.3. Эффект гигантского усиления спинового шума в неоднородно уширенных системах.
 - 3.4. Наблюдение спиновых флуктуаций в двулучепреломляющих средах.
 - 3.5. Шумы выстраивания.
 - 3.6. Спин-шумовая томография.
 - 3.7. Расширение частотного диапазона спектроскопии спиновых флуктуаций.
 - 3.8. Двухпучковая спектроскопия спиновых флуктуаций.
 - 3.9. Спиновый шум поляритонного лазера и скрытая поляризация неполяризованного света.

4. Спектроскопия спиновых флуктуаций с точки зрения теории рассеяния (284).
 - 4.1. Выражение для сигнала, регистрируемого в спектроскопии спиновых флуктуаций.
 - 4.2. Расчёт поля рассеяния.
 - 4.3. Базовые конфигурации эксперимента.
 5. Заключение (288).
 6. Приложение (288).
- Список литературы (289).

1. Введение

Магнитные свойства вещества представляют большой интерес и для фундаментальной науки, и для её приложений. При изучении таких свойств важную роль играет спектроскопия электронного и ядерного магнитного резонанса (ЭПР и ЯМР), покрывающая частотную область $10^4 - 10^{11}$ Гц и позволяющая исследовать магнитную энергетическую структуру вещества в области частот, прилегающей к дальнему ИК-диапазону. В этой спектральной области энергетический спектр большинства физических объектов обнаруживает зависимость от приложенного магнитного поля, с чем и связано название данного вида спектроскопии. Наличие указанной зависимости играет в спектроскопии магнитного резонанса ключевую роль, поскольку величина и конфигурация магнитного поля могут контролироваться экспериментатором, что оказывается чрезвычайно ценным при проведении и интерпретации оригинальных экспериментов, а также в многочисленных приложениях эффекта магнитного резонанса.

В типичных экспериментах по спектроскопии магнитного резонанса к исследуемому образцу, помещённому в

Г.Г. Козлов^(1,a), И.И. Рыжов^(1,b),
А.В. Кавокин^(1,2,c), В.С. Запасский^(1,d)

⁽¹⁾ Санкт-Петербургский государственный университет,
Университетская набережная 7-9, 199034 Санкт-Петербург,
Российская Федерация

⁽²⁾ Российский квантовый центр, Инновационный центр "Сколково",
Большой бульвар 30, стр. 1, 121205 Москва,
Российская Федерация

E-mail: ^(a) g.kozlov@spbu.ru, ^(b) i.ryzhov@spbu.ru,
^(c) a.kavokin@soton.ac.uk, ^(d) vzap@rambler.ru

Статья поступила 23 января 2023 г.,
после доработки 19 апреля 2023 г.

статическое магнитное поле \mathbf{B} , прикладывают слабое переменное магнитное поле $\mathbf{B}_v \exp(-ivt)$ частоты v и наблюдают отклик образца¹ на это поле как функцию частоты v . Такой отклик обнаруживает резонансы на частотах переходов между уровнями зеемановской энергетической структуры, что позволяет получать информацию о свойствах элементарных носителей магнитного момента исследуемой системы. Поскольку в простейшем случае отклик намагниченности образца $\mathbf{M}(t) = \mathbf{M}_v \exp(-ivt)$ описывается магнитной восприимчивостью $\chi_v = \chi'_v + i\chi''_v$ последнего, $\mathbf{M}_v = \chi_v \mathbf{B}_v$, можно сказать, что в традиционных экспериментах по спектроскопии магнитного резонанса (ЭПР и ЯМР) наблюдается частотная зависимость магнитной восприимчивости χ_v образца, резонансы которой несут информацию о его энергетической структуре в магнитном поле. В настоящей статье речь пойдет об альтернативном способе получения подобной информации, обладающем рядом новых свойств и возможностей.

Как известно, частотная зависимость магнитной восприимчивости связана со спектром мощности *спонтанного шума* намагниченности флуктуационно-диссипационной теоремой [1], поэтому информацию, получаемую методами стандартной спектроскопии магнитного резонанса, можно, в принципе, получать, регистрируя спектр мощности спонтанного шума намагниченности. На эту возможность впервые обратил внимание, по-видимому, Ф. Блох [1], который показал, что спектр магнитной восприимчивости ядер образца можно регистрировать, наблюдая шумы ядерной намагниченности. Успешные эксперименты по такому невозмущающему² наблюдению шумов ядерной намагниченности [2–4] показали жизнеспособность данного экспериментального подхода и продемонстрировали его возможности [5, 6].

В цитированных выше работах (как и во многих других) для наблюдения шумов намагниченности применялась типовая для ЭПР и ЯМР методика, основанная на регистрации электрических сигналов от колебательного контура (резонатора), в который помещался исследуемый образец. Это позволяло в ряде случаев использовать для наблюдения шумов стандартную высокочувствительную аппаратуру спектроскопии ЯМР. Указанный способ, однако, не является единственно возможным. В более ранней работе [7] была продемонстрирована возможность наблюдения спиновых шумов путём детектирования флуктуаций фарадеевского вращения (ФВ) зондирующего света, прошедшего через исследуемый парамагнетик. Основанный на таком подходе метод спектроскопии спиновых флуктуаций (ССФ) или, как его единообразно называют в англоязычной литературе, спектроскопии спиновых шумов (Spin Noise Spectroscopy, SNS), обнаруживает в ряде случаев уникальные возможности и, наряду с классической спектроскопией магнитного резонанса, является в настоящее время важным инструментом исследования энергетической структуры и динамики элементарных носителей магнитных моментов вещества (см., например, обзоры [8–12]).

Метод ССФ, который можно рассматривать как версию оптического метода детектирования магнитного ре-

зонанса [13], лежит на стыке двух научных направлений из разных областей физики: спектроскопии флуктуаций интенсивности света (СФИ) из оптики [14] и метода магнитного резонанса из области радиоспектроскопии [15]. Сочетание свойств этих двух разнородных методов исследования определяет специфику рассматриваемого экспериментального подхода. Как уже было сказано, спиновые (магнитные) шумы, спектр которых отвечает спектру магнитной восприимчивости системы, регистрируются в ССФ как флуктуации поляризации зондирующего лазерного пучка, что определяет концептуальное отличие ССФ от классического метода ЭПР Завойского. В частности, метод спиновых шумов не подразумевает воздействия на систему высокочастотного резонансного возмущения, не требует магнитной поляризации среды и, как мы увидим ниже, позволяет реализовать высокое пространственное разрешение по всем трём координатам. Метод ССФ оказался эффективным для изучения резонансной магнитной восприимчивости нанообъектов (квантовых ям, квантовых точек) [16, 17], для наблюдения динамики ядерной релаксации [18, 19] и нелинейных явлений в таких системах [20]. В настоящее время данная методика активно применяется для изучения атомных систем [21], на одной из которых (парах натрия) была выполнена пионерская работа [7] этого направления и которые служат великолепными модельными объектами для изучения возможностей метода ССФ. Так, в работах [22, 23] была продемонстрирована возможность использования шумовой методики для выявления степени неоднородного уширения оптических спектров, для чего обычно используют метод выжигания спектрального провала. Наличие оптического канала в ССФ обеспечило указанную технику рядом дополнительных информационных возможностей, сближающих её с методами нелинейной оптики [24]. Оптическая специфика метода позволила также предложить двухпучковую схему эксперимента, дающую возможность изучать как временные, так и пространственные корреляции в спиновых системах [25]. Как было показано в [26], метод ССФ позволяет наблюдать не только шумы *вектора* намагниченности, спектрально локализованные на ларморовской частоте, но также и флуктуации, описываемые *тензором* второго ранга, приводящие к появлению шумовой компоненты на удвоенной ларморовской частоте (шумы *выстраивания*). В плане расширения круга объектов ССФ в самое последнее время была экспериментально продемонстрирована возможность применения ССФ к классическим объектам ЭПР-спектроскопии — диэлектрическим кристаллам, активированным парамагнитными ионами [27].

Несмотря на большой объём публикаций по ССФ в англоязычных изданиях, в отечественных журналах к настоящему времени опубликован только один обзор по теории ССФ [28]. Поэтому предлагаемый обзор, содержащий описание экспериментов по ССФ и их интерпретацию, окажется полезным русскоязычному читателю, интересующемуся ССФ.

Материал обзора расположен в следующем порядке. В разделе 2 приведены базовые сведения по ССФ и проведены оценки величины шумовых поляриметрических сигналов. В разделе 3 описаны эксперименты по ССФ, демонстрирующие разнообразные возможности этого экспериментального подхода. В разделе 4 шумовые сигналы, наблюдаемые в ССФ, интерпретируются с точки

¹ Обычно этим откликом является намагниченность $\mathbf{M}(t)$, наблюдаемая прямо или косвенно.

² То есть не требующему какого-либо возбуждения исследуемой системы переменными магнитными полями, необходимого в традиционных методиках.

зрения теории рассеяния, причём показывается, что ССФ можно понимать как гетеродинную регистрацию комбинационного рассеяния. В разделе 5 кратко суммируется содержание обзора и описываются перспективы дальнейшего развития ССФ.

2. Базовые сведения по спектроскопии спиновых флуктуаций

2.1. Постановка эксперимента

Эксперимент по ССФ подразумевает детектирование спиновых флуктуаций среды (флуктуаций намагниченности) через шум её фарадеевского вращения. Принципиальная схема соответствующего эксперимента чрезвычайно проста — линейно поляризованный световой пучок (ниже *зондирующий пучок*) проходит через исследуемую среду и регистрируется поляриметрическим приёмником, выходной сигнал которого подвергается оцифровке и математической обработке (рис. 1). В качестве источника непрерывного монохроматического света I , как правило, используется перестраиваемый по длине волны лазер с малым уровнем избыточных шумов, например, диодный или кольцевой титан-сапфировый. Линейная поляризация зондирующего света и её азимут задаётся комбинацией оптических элементов 2 (например, полуволновой фазовой пластинкой или сочетанием четвертьволновой пластинки и поляризатора). К образцу 3 прикладывается магнитное поле, создаваемое электромагнитом 4. Иногда вместо электромагнита используется сильный постоянный магнит (см., например, [29]), что позволяет изменять направление поля, сохраняя его величину. Прошедший через образец свет направляется в поляриметрический приёмник, состоящий из фазовых пластинок 5, поляризационного светоделителя 6 и дифференциального (балансного) фотоприёмника 7. Выходной электрический сигнал фотоприёмника определяется разностью токов фотодиодов, засвеченных выходными пучками поляризационного светоделителя. В сбалансированном состоянии, когда интенсивности света в плечах балансного детектора равны, среднее выходное напряжение поляриметрического приёмника обращается в нуль. Перед измерениями поляриметрический приёмник, как правило, балансируется так, чтобы его выходной сигнал определялся только *изменениями* поляризации зондирующего пучка, вызванными спиновыми флуктуациями в образце. Получаемый таким образом выходной сигнал фотоприёмника поступает на вход цифрового радиочастотного спектроанализатора 8.

Фазовые пластинки 5 служат для балансировки детектора и переключения между режимами регистрации

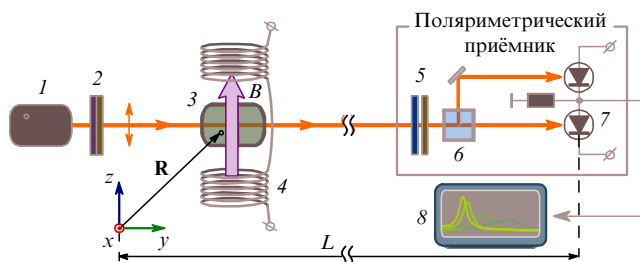


Рис. 1. Схема установки для наблюдения спиновых шумов. Обозначения элементов и пояснение принципа работы см. в тексте.

шумов ФВ и эллиптичности. При наблюдении флуктуаций ФВ перед поляризационным светоделителем 6 устанавливается пластинка $\lambda/2$, используемая для балансировки детектора. При наблюдении флуктуаций эллиптичности перед светоделителем 7 устанавливается также пластинка $\lambda/4$, ориентированная под 45° к собственным поляризациям светоделителя, что позволяет конвертировать изменения эллиптичности в регистрируемые поляриметрическим приёмником повороты плоскости поляризации.

Изменение выходного напряжения δU сбалансированного поляриметрического приёмника, работающего в режиме регистрации ФВ, пропорционально изменению $\delta\phi$ азимута поляризации входного света: $\delta U \sim \delta\phi$. Если образец содержит магнитные частицы (например, атомы или ионы), и проекция магнитного момента i -й частицы на направление распространения зондирующего пучка равна μ_i , то линейно поляризованный зондирующий пучок испытает поворот плоскости поляризации на угол $\delta\phi$ (эффект Фарадея), пропорциональный суммарной проекции магнитного момента частиц, находящихся в пучке: $\delta\phi = \kappa \sum_i \mu_i$ (κ — коэффициент пропорциональности). Если магнитные моменты, составляющие образец, ориентированы в пространстве совершенно хаотично, то среднее фарадеевское вращение плоскости поляризации зондирующего пучка будет равно нулю $\langle \delta\phi \rangle = 0$, однако его среднеквадратичная флуктуация $\langle \delta\phi^2 \rangle$ — шум *фарадеевского вращения* — может быть отличной от нуля. Отличной от нуля будет и среднеквадратичная флуктуация $\langle \delta U^2 \rangle$ выходного напряжения поляриметрического приёмника (см. рис. 1).

Приложенное к парамагнетику магнитное поле не только приводит к его намагничиванию, но и радикальным образом меняет характер флуктуаций его намагниченности. Этот факт имеет большую информационную ценность и лежит в основе метода спектроскопии спиновых флуктуаций.

Механизм формирования шумового сигнала магнитного резонанса можно упрощённо представить себе следующим образом. Если к образцу приложено поперечное (по отношению к зондирующему пучку) магнитное поле B (см. рис. 1), то магнитный момент каждой частицы образца будет прецессировать вокруг него с ларморовой частотой $\Omega_L = g\beta B/\hbar$ (здесь g — g -фактор, характеризующий частицу, β — магнетон Бора, \hbar — постоянная Планка), вследствие чего на этой же частоте будет осциллировать и вклад каждой частицы в полное фарадеевское вращение $\delta\phi$. Поскольку фазы прецессии магнитных моментов частиц случайны, то среднее фарадеевское вращение будет по-прежнему равно нулю $\langle \delta\phi \rangle = 0$. Однако спектр мощности его шума $\mathcal{N}(\nu)$, определяемый преобразованием Фурье корреляционной функции $\langle \delta\phi(0)\delta\phi(t) \rangle$ фарадеевского вращения $\mathcal{N}(\nu) = (2\pi)^{-1} \int \exp(i\nu t) \langle \delta\phi(0)\delta\phi(t) \rangle dt$, обнаружит максимум³ на ларморовой частоте Ω_L . Указанный спектр мощности (вычисляемый аппаратно спектроанализатором 8) является основным результатом измерений в ССФ.

Из приведённого рассмотрения вытекает, что в эксперименте по ССФ спектроанализатор 8 регистрирует фак-

³ При этом из приведённого соотношения видно, что площадь под спектром мощности шума равна среднеквадратичной флуктуации фарадеевского вращения: $\int \mathcal{N}(\nu) d\nu = \langle \delta\phi^2 \rangle$.

тически спектр шумов намагниченности ансамбля частиц образца, попадающих в зондирующий пучок⁴. Как уже было указано, такой спектр по флуктуационно-диссипационной теореме [1] определяется мнимой частью магнитной восприимчивости образца, которая регистрируется в стандартной спектроскопии ЭПР. Это показывает отмеченную ещё в пионерской работе [7] связь ССФ со спектроскопией ЭПР.

Из всего вышеизложенного видно, что методика ССФ сводит задачу наблюдения шумов намагниченности к наблюдению шумов поляризации зондирующего пучка. Как правило, чувствительность применяемых в ССФ дифференциальных поляриметров (см. рис. 1) ограничивается только дробовыми шумами зондирующего пучка [31] и, как следует из приведенных ниже оценок, оказывается достаточной для уверенного наблюдения шума намагниченности (спинового шума) во многих парамагнитных структурах.

2.2. Оценка величины сигнала

Для оценки величины шумового сигнала рассмотрим следующий мысленный эксперимент. Приложим к образцу магнитное поле, параллельное зондирующему пучку (т.е. в направлении оси y на рис. 1). Пусть магнитное поле настолько сильное, что все элементарные магнитные моменты образца оказываются ориентированными вдоль него. В равновесных условиях последнее означает, что величины зеемановских расщеплений магнитных подуровней системы существенно превосходят значение тепловой энергии kT . При этом зондирующий пучок, пройдя через такой полностью поляризованный образец, испытает поворот плоскости поляризации ϕ_s , который мы назовём *вращением насыщения* и который, в принципе, можно измерить. Обозначим число частиц, дающих вклад в указанное вращение⁵, через N . Вклад каждой частицы $\delta\phi_i$ ($i = 1, \dots, N$) в наблюдаемое вращение ϕ_s будет в данном случае одинаков — проекция магнитного момента на направление зондирующего пучка у всех частиц в пучке одна и та же и максимально возможная по модулю. Обозначим её μ . Поэтому полное регистрируемое вращение ϕ_s может быть в рассматриваемом случае выражено с помощью введённого выше коэффициента пропорциональности κ следующим образом:

$$\phi_s = \sum_{i=1}^N \delta\phi_i = \kappa \sum_{i=1}^N \mu_i = N\kappa\mu.$$

Выключим теперь магнитное поле и подождём, пока образец придёт в термодинамически равновесное состояние. Наблюдаемое вращение плоскости поляризации зондирующего пучка $\delta\phi$ будет, как и выше, суммой вкладов частиц: $\delta\phi = \sum_{i=1}^N \delta\phi_i = \kappa \sum_{i=1}^N \mu_i$, в которой величины $\delta\mu_i$ будут случайными, с нулевым средним — ориентирующее магнитные моменты магнитное поле

⁴ Это утверждение справедливо в случае, когда выполняется теорема Ван Флека, говорящая о пропорциональности ФВ и намагниченности. Более общий случай, в котором связь фарадеевского вращения зондирующего пучка и намагниченности среды не является скалярной, рассмотрен подробнее в работе [30].

⁵ Это число частиц, попадающих в пучок как пространственно, так и спектрально, т.е. резонансных зондирующему пучку (при сильном неоднородном уширении оптической линии не все частицы, геометрически попадающие в пучок, дадут одинаковый вклад).

теперь отсутствует. Прямой расчёт среднеквадратичной флуктуации $\langle \delta\phi^2 \rangle$ показывает, что $\langle \delta\phi^2 \rangle = \kappa^2 N \langle \mu^2 \rangle$. Здесь $\langle \mu^2 \rangle$ — средний квадрат магнитного момента какой-либо одной, например, первой частицы (в силу статистической эквивалентности частиц эта величина не зависит от номера частицы). Комбинируя выражение для $\langle \delta\phi^2 \rangle$ с выражением для ϕ_s , и учитывая, что $\langle \mu^2 \rangle / \mu^2 \sim 1$, приходим к следующему соотношению, связывающему вращение насыщения со среднеквадратичной флуктуацией вращения в отсутствие сильного поляризующего поля:

$$\langle \delta\phi^2 \rangle \sim \frac{\phi_s^2}{N}. \quad (1)$$

Соотношение (1) может быть применено для оценки шумов фарадеевского вращения в экспериментах ССФ, поскольку величина вращения насыщения ϕ_s может быть оценена по статическому вращению образца в относительно небольших магнитных полях (обозначим его ϕ_0), когда $g\beta B \ll kT$ — в этом случае $\phi_s \sim \phi_0 kT/g\beta B$.

Из соотношения (1) сразу видно, что для экспериментов ССФ выгодно (до известной степени) фокусировать зондирующий пучок. Действительно, пока фокусировка не сопровождается оптической нелинейностью, предельное вращение ϕ_s не зависит от того, сфокусирован зондирующий пучок или нет. В то же время число N частиц в пучке при фокусировке уменьшается, что приводит к возрастанию наблюдаемой в ССФ величины $\langle \delta\phi^2 \rangle$ (1). Стоит отметить, что наблюдаемый в ССФ сигнал тем самым обнаруживает чувствительность к известной технике Z-сканирования при полном отсутствии нелинейных по мощности света оптических эффектов [9, 32] и тем самым имеет томографический потенциал, рассматриваемый подробнее в разделе 3.6.

Чтобы оценить возможность регистрации спинового шума в шумах фарадеевского вращения $\langle \delta\phi^2 \rangle$, сравним теперь спектральную плотность таких шумов с плотностью неизбежно присутствующего на выходе поляриметрического приёмника дробового шума зондирующего пучка (см. рис. 1). Оценим сначала величину $\langle \delta\phi^2 \rangle$ для типичного объекта ССФ — кюветы с парами щелочного металла размером 1 см при концентрации атомов металла $n = 10^{12} \text{ см}^{-3}$. Прделаем расчёт для случая, когда кювета зондируется несфокусированным лазерным пучком диаметром 3 мм и мощностью $I = 5$ мВт, причём частота пучка отстроена от частоты атомного перехода на 1–2 ГГц, т.е. на величину порядка доплеровского уширения. При этом кювета оказывается прозрачной для зондирующего пучка, и поглощением света в среде можно пренебречь. Поскольку в рассматриваемом случае поляризационный шум создаётся атомами, магнитный момент которых прецессирует в приложенном поперечном магнитном поле (см. рис. 1), спектр мощности шума будет иметь максимум на частоте прецессии $\Omega_L = g\beta B/\hbar$, причём ширина указанного максимума будет $\sim 1/T_2$ (T_2 — время поперечной спиновой релаксации).

Пользуясь тем, что площадь под шумовым спектром $\int \mathcal{N}(\nu) d\nu = \langle \delta\phi^2 \rangle$ может быть оценена как $\mathcal{N}(\Omega_L)/T_2$, получаем следующую оценку для плотности мощности шума на частоте прецессии, где указанная плотность максимальна: $\mathcal{N}(\Omega_L) \sim \langle \delta\phi^2 \rangle T_2 = \phi_s^2 T_2 / N$. Как показано в [31], для поляриметрического приёмника (см. рис. 1) дробовой шум фотонов эквивалентен флуктуациям азимута

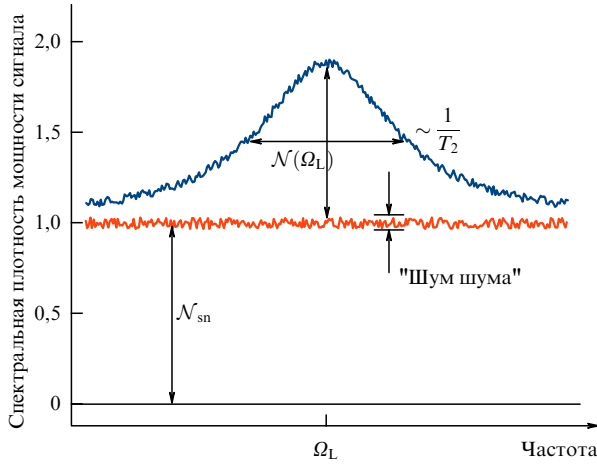


Рис. 2. Схематический вид наблюдаемых в ССФ сигналов.

поляризации входного пучка, имеющим *белый* спектр, плотность которого $\mathcal{N}_{\text{sn}}(\nu)$ не зависит от частоты ν и определяется соотношением: $\mathcal{N}_{\text{sn}}(\nu) \sim \hbar\omega/I$ [рад² Гц⁻¹] (здесь I и $\hbar\omega$ — соответственно мощность зондирующего пучка [Вт] и энергия его кванта [Дж]). Таким образом, отношение величины спинового шума к дробовому шуму поляриметрического приёмника может быть оценено следующим образом:

$$\frac{\mathcal{N}(\Omega_L)}{\mathcal{N}_{\text{sn}}} \sim \frac{\phi_s^2 T_2}{N} \frac{I}{\hbar\omega}. \quad (2)$$

В рассматриваемом случае $T_2 \approx 10^{-5}$ с, предельное вращение $\phi_s \approx 1$, число атомов в пучке $N \approx 10^{12}$ и производительность фотонов $I/\hbar\omega \approx 10^{17}$ с⁻¹. Поэтому $\mathcal{N}(\Omega_L)/\mathcal{N}_{\text{sn}} \approx 1$, откуда следует, что спектр спинового шума на выходе спектроанализатора должен иметь вид колоколообразного (лоренцева) контура шириной $1/T_2$, расположенного на горизонтальной "подставке", соответствующей дробовому шуму фотоприёмника, причём амплитуды "колокола" и "подставки" в рассмотренном примере должны быть примерно одинаковыми, как показано на рис. 2.

Заметим следующее: равенство амплитуд спинового и дробового шумов, выступающих в описанных измерениях в роли сигнала и шума соответственно, вовсе не означает, что отношение сигнал/шум при этом составит величину порядка единицы, поскольку реальный шум, ограничивающий возможность наблюдения спиновых флуктуаций, определяется не величиной дробовой "подставки", а её стохастическими флуктуациями, т.е. "шумом дробового шума". Как известно [33], точность определения мощности белого шума в полосе γ при времени измерения τ описывается фактором $(\gamma\tau)^{-1/2}$. Данный фактор, часто составляющий несколько порядков величины, позволяет проводить измерения спинового шума на существенно субдробовом уровне. В качестве одного из выдающихся примеров наблюдения информативного шума интенсивности света (на уровне 10^{-4} от дробового) можно привести работу Форрестера [34], выполненную в долазерную эпоху. В реальном эксперименте при использовании фокусировки зондирующего пучка и работе с наиболее благоприятными объектами относительная величина спиновой компоненты шума может достигать сотен процентов.

2.3. Расчёт корреляционной функции магнитного момента

Приведём теперь простейший модельный расчёт спектра мощности шума $\mathcal{N}(\nu)$, регистрируемого в ССФ, когда магнитный момент частиц образца описывается эффективным спином $1/2^6$. Как было сказано выше, указанный спектр определяется корреляционной функцией $\mathcal{N}(\nu) = (2\pi)^{-1} \int \exp(i\nu t) \langle \delta\phi(0) \delta\phi(t) \rangle dt$ случайного поляриметрического сигнала $\delta\phi$, который в типичных для ССФ случаях можно считать суммой вкладов N частиц образца (атомов, ионов), попадающих в зондирующий пучок: $\delta\phi = \sum_{i=1}^N \delta\phi_i = \kappa \sum_{i=1}^N \mu_i$. Учитывая статистическую независимость и эквивалентность указанных частиц и то, что вклад каждой частицы в поляриметрический сигнал фарадеевского вращения определяется проекцией её магнитного момента на направление зондирующего пучка (в данном случае на направление оси y), получаем для шумового спектра $\mathcal{N}(\nu)$ следующее соотношение:

$$\begin{aligned} \mathcal{N}(\nu) &= \frac{\kappa^2}{2\pi} \int \exp(i\nu t) \sum_{i,k=1}^N \langle \mu_i(t) \mu_k(0) \rangle dt \rightarrow \\ &\rightarrow \mathcal{N}(\nu) = \frac{N\kappa^2}{2\pi} \int \exp(i\nu t) \langle S_y(t) S_y(0) \rangle dt. \end{aligned} \quad (3)$$

Мы здесь пренебрегли средними вида $\langle \mu_i \rangle \langle \mu_k \rangle$, $i \neq k$, не играющими существенной роли для ССФ, и обозначили через $S_y \equiv \mu_i$ y -проекцию магнитного момента какой-либо одной (произвольной, например, i -й) частицы.

Назовём лабораторную систему координат с осью y параллельной зондирующему пучку K -системой (см. рис. 1). Произведём расчёт коррелятора $\langle S_y(t) S_y(0) \rangle$ для случая *наклонного* магнитного поля, когда у этого поля, кроме компоненты B_z (показанной на рис. 1), есть компонента B_y вдоль направления зондирующего пучка, и полное поле $B = (B_y^2 + B_z^2)^{1/2}$ наклонено на угол $\phi = \arctan(B_y/B_z)$ к направлению z лабораторной K -системы координат.

Перейдём теперь в систему координат K' , повернутую на угол ϕ относительно оси x K -системы. В такой системе магнитное поле будет иметь только z -компоненту $\mathbf{B} = (0, 0, B) = (0, 0, (B_y^2 + B_z^2)^{1/2})$. Проекции магнитного момента в K' -системе (обозначим их M_x, M_y и M_z) удовлетворяют уравнениям Блоха [35]

$$\begin{cases} \dot{M}_x = \Omega_L M_y - \frac{M_x}{T_2} \\ \dot{M}_y = -\Omega_L M_x - \frac{M_y}{T_2} \\ \dot{M}_z = \frac{M_{\text{eq}} - M_z}{T_1} \end{cases} \quad \text{при } \Omega_L \equiv \frac{\mu B}{\hbar} = \frac{\mu \sqrt{B_y^2 + B_z^2}}{\hbar}. \quad (4)$$

Здесь $\mu \equiv g\beta$ определяет магнитный момент рассматриваемой частицы⁷, T_1 и T_2 — его времена продольной и поперечной релаксации, а $M_{\text{eq}} = 0,5\mu \text{ th}[\mu B/2kT]$ — термодинамически равновесное значение проекции магнитного момента частицы на направление магнитного поля. Решение этих уравнений при заданных при $t = 0$ значе-

⁶ В случае произвольного эффективного спина расчёт производится аналогично.

⁷ Здесь g — g -фактор рассматриваемой частицы образца и β — магнетон Бора.

ниях проекций $M_x(0)$, $M_y(0)$, $M_z(0)$ имеет вид

$$\begin{cases} M_x(t) = \exp\left(-\frac{t}{T_2}\right) [M_x(0) \cos(\Omega_L t) - M_y(0) \sin(\Omega_L t)], \\ M_y(t) = \exp\left(-\frac{t}{T_2}\right) [M_x(0) \sin(\Omega_L t) + M_y(0) \cos(\Omega_L t)], \\ M_z(t) = M_{\text{eq}} + [M_z(0) - M_{\text{eq}}] \exp\left(-\frac{t}{T_1}\right). \end{cases} \quad (5)$$

Переход в лабораторную K -систему координат осуществляется следующим преобразованием проекций спина (поворотом на угол $-\phi$)

$$\begin{pmatrix} S_x \\ S_y \\ S_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 0 & 0 \\ 0 & \cos \phi & -\sin \phi \\ 0 & \sin \phi & \cos \phi \end{pmatrix} \begin{pmatrix} M_x \\ M_y \\ M_z \end{pmatrix}, \quad (6)$$

откуда получаем:

$$\begin{aligned} \langle S_y(0)S_y(t) \rangle &= \langle M_y(0)M_y(t) \rangle \cos^2 \phi + \\ &+ \langle M_z(0)M_z(t) \rangle \sin^2 \phi + \\ &+ \langle M_y(0)M_z(t) \rangle \cos \phi \sin \phi - \\ &- \langle M_z(0)M_y(t) \rangle \cos \phi \sin \phi. \end{aligned} \quad (7)$$

Подставим в соотношения (7) величины $M_y(t)$ и $M_z(t)$ из (5). При этом возникнут средние вида

$$\begin{aligned} \langle M_y^2(0) \rangle, \quad \langle M_z^2(0) \rangle, \\ \langle M_y(0)M_z(0) \rangle, \quad \langle M_y(0)M_x(0) \rangle. \end{aligned} \quad (8)$$

Это термодинамические средние операторов проекций магнитного момента, матрицы которых $M_{x,y,z}$ выражаются через матрицы Паули $M_{x,y,z} = \mu \sigma_{x,y,z}$. Усреднение производится в K' -системе координат с равновесной матрицей плотности, в рассматриваемом случае эффективного спина $1/2$ имеющей вид

$$\begin{aligned} \rho_{\text{eq}} &= \frac{1}{Z} \begin{pmatrix} \exp\left(-\frac{\mu B}{2kT}\right) & 0 \\ 0 & \exp\left(\frac{\mu B}{2kT}\right) \end{pmatrix}, \\ Z &= \exp\left(-\frac{\mu B}{2kT}\right) + \exp\left(\frac{\mu B}{2kT}\right). \end{aligned} \quad (9)$$

При вычислении средних вида $\langle M_x(0)M_y(0) \rangle$ следует учитывать, что матрицы Паули в операторах M_x и M_y не коммутируют, поэтому среднее вычисляется как $\langle M_x(0)M_y(0) \rangle = \mu^2 \text{Sp} \rho_{\text{eq}} [\sigma_x \sigma_y + \sigma_y \sigma_x] / 2$. Ненулевыми будут только диагональные по проекциям средние

$$\begin{aligned} \langle M_y^2(0) \rangle &= \langle M_z^2(0) \rangle = \frac{\mu^2}{4}, \quad \langle M_{\text{eq}} M_z(0) \rangle = M_{\text{eq}}^2, \\ M_{\text{eq}} &= \frac{\mu}{2} \text{th} \frac{\mu B}{2kT}, \end{aligned} \quad (10)$$

откуда

$$\begin{aligned} \langle M_y(0)M_y(t) \rangle &= \frac{\mu^2}{4} \exp\left(-\frac{|t|}{T_2}\right) \cos(\Omega_L t), \\ \langle M_z(0)M_z(t) \rangle &= M_{\text{eq}}^2 + \left[\frac{\mu^2}{4} - M_{\text{eq}}^2\right] \exp\left(-\frac{|t|}{T_1}\right). \end{aligned} \quad (11)$$

Здесь мы учли, что корреляторы есть чётные функции времени. Подставляя эти выражения в (7) и вычисляя спектр мощности шума $\mathcal{N}(\nu)$ как преобразование Фурье от корреляционной функции $\langle S_y(0)S_y(t) \rangle$, получим:

$$\begin{aligned} \frac{\mathcal{N}(\nu)}{Nk^2} &= \frac{T_2 \mu^2 \cos^2 \phi}{8} \left[\mathcal{L}([\nu - \Omega_L]T_2) + \mathcal{L}([\nu + \Omega_L]T_2) \right] + \\ &+ \frac{T_1 [\mu^2 - 4M_{\text{eq}}^2] \sin^2 \phi}{4} \mathcal{L}(\nu T_1) + \sin^2 \phi M_{\text{eq}}^2 \delta(\nu), \end{aligned} \quad (12)$$

где лоренциан $\mathcal{L}(x) \equiv [\pi(1+x^2)]^{-1}$. Из выражения (12) видно, что в наклонном магнитном поле спектр шума *не мономодальный* [9]: наряду с лоренцевым пиком на ларморовой частоте Ω_L появляется пик на нулевой частоте с шириной $\sim 1/T_1$. Таким образом, шумовой спектр несёт информацию не только о *величине* магнитного поля, в котором находится образец, но и об *ориентации* этого поля по отношению к зондирующему пучку. Указанное свойство может оказаться полезным при использовании методики ССФ для магнитометрии.

Как видно из приведённых оценок, наблюдение спинового шума в парах щелочных металлов с мощными и узкими линиями разрешённых оптических переходов, в принципе, не требует какой-либо экзотической аппаратуры (малошумящих усилителей, сложных алгоритмов обработки данных и пр.). Об этом говорит, в частности, тот факт, что первый эксперимент по ССФ [7] был выполнен с использованием типовой электроники того времени. Однако для применения метода ССФ к объектам с менее благоприятными магнитооптическими характеристиками потребовалась существенная модификация техники накопления и обработки шумового сигнала. В частности, применение цифровых спектроанализаторов на основе быстрого преобразования Фурье (вместо спектроанализаторов сканирующего типа) позволило радикальным образом увеличить чувствительность метода [36–39]. В результате метод ССФ был успешно применён к исследованиям полупроводниковых структур и превратился в рабочий инструмент данной важной области современной физики. Особое место среди объектов ССФ занимают парамагнетики с неоднородно уширенными оптическими переходами, мощность шума которых может испытывать гигантский рост в условиях резонансного зондирования. Наиболее выразительным примером такого рода систем служат диэлектрические кристаллы с примесными редкоземельными ионами. О них речь пойдёт в разделе 3.3.

3. Эксперименты по спектроскопии спиновых флуктуаций

В настоящем разделе мы опишем некоторые эксперименты по ССФ, демонстрирующие возможности этой методики. В пионерском эксперименте [7], положившем начало ССФ, объектом наблюдения служили пары щелочного металла, однако широкое распространение указанная методика начала получать после её применения к твердотельным полупроводниковым средам, представляющим большой интерес для современной фотоники и микроэлектроники [36, 40]. Поэтому мы начнём данный раздел с описания экспериментов на полупроводниковых системах. Эффективность применения к ним метода ССФ обусловлена их достаточно высокой магнитооптической активностью и возможностью использо-

вания микрорезонаторов, увеличивающих чувствительность методики ССФ и приводящих к ряду специфических эффектов.

Кратко напомним важные для ССФ свойства полупроводниковых материалов и микрорезонаторов на их основе. Прежде всего отметим, что зондируемый в области прозрачности собственный полупроводник не должен обнаруживать наблюдаемых в ССФ шумов оптической восприимчивости, поскольку последние связаны главным образом с флуктуациями заселённости электронных энергетических уровней в зонах. Эти флуктуации в собственном полупроводнике сильно подавлены: валентная зона полностью заполнена, а зона проводимости полностью пуста, и при низких температурах спонтанные межзональные переходы практически исключены. Флуктуации оптической восприимчивости становятся возможными в случае частичного заселения уровней зоны проводимости электронами или при образовании незаполненных уровней (дырок) в валентной зоне. И то и другое может быть осуществлено легированием полупроводникового образца или его дополнительным оптическим возбуждением в области поглощения (*оптическое легирование*). Пусть, например, образец легирован мелкой донорной примесью, так что электроны с примесных уровней термически возбуждаются в зону проводимости, частично заселяя энергетические уровни указанной зоны. При этом оптические переходы из валентной зоны в заселённые состояния зоны проводимости становятся невозможными (вследствие принципа Паули), и связанная с такими переходами оптическая восприимчивость уменьшается. Возможные флуктуации распределения примесных электронов по уровням зоны проводимости (в том числе и их спиновая динамика) вызывают флуктуации оптической восприимчивости, которые можно наблюдать методом ССФ. Аналогичная ситуация может быть получена и оптическим заселением уровней зоны проводимости образца. В обоих случаях электроны, возникшие в зоне проводимости полупроводникового образца, можно до известной степени считать теми частицами, которые фигурировали в приведённом в предыдущем разделе рассмотрении, причём концентрацией данных частиц можно управлять в широких пределах, меняя концентрацию примеси или интенсивность оптического возбуждения образца.

Современные нанотехнологии позволяют получать тончайшие слои полупроводниковых материалов (квантовые ямы, ансамбли квантовых точек), которые активно изучаются методами традиционной оптической спектроскопии и обнаруживают свойства, важные для фундаментальной науки и приложений [41]. Спектроскопия спиновых флуктуаций способна предоставить дополнительные и зачастую уникальные возможности исследования таких структур, однако их малая толщина может затруднять прямое наблюдение поляризационного шума. Для преодоления этой трудности выращиваются структуры, где исследуемый фрагмент среды располагается внутри микрорезонатора — интерферометра Фабри–Перо, образованного двумя тесно расположенными брэгговскими зеркалами. Размещение исследуемого слоя в микрорезонаторе эквивалентно увеличению толщины исследуемого фрагмента в Q раз (Q — добротность микрорезонатора). Указанное увеличение обусловлено многократным отражением зондирующего пучка от зеркал резонатора и, соответственно, многократным прохожде-

нием зондирующего пучка через фрагмент структуры, находящийся между ними. Надо заметить, однако, что при регистрации шумовых сигналов фарадеевского вращения, в отличие от сигналов регулярных, явление увеличения эффективной длины среды в резонаторе имеет определённую специфику. В экспериментах по ССФ зависимость шумового поляриметрического сигнала $(\langle \delta\phi^2 \rangle)^{1/2}$ от длины образца L оказывается обычно корневой, поскольку, как показано в разделе 2, $(\langle \delta\phi^2 \rangle)^{1/2} = \kappa(N\langle \mu_1^2 \rangle)^{1/2} \sim \sqrt{L}$. С качественной точки зрения такая зависимость получается вследствие того, что вклады различных участков образца в полную флуктуацию фарадеевского вращения $\delta\phi$ не коррелированы между собой. Важно, что при использовании микрорезонаторов следует ожидать *линейной* (т.е. более сильной) зависимости амплитуды шумового поляриметрического сигнала от эффективной длины образца QL по следующей причине. Как было отмечено выше, зондирующий пучок, многократно отражаясь в микрорезонаторе, фактически проходит через образец Q раз. Время, требуемое на указанное многократное прохождение, для употребляемых в экспериментах по ССФ тонких резонаторов, оценивается как $\sim QL_{\text{res}}/c$, где L_{res} — длина микрорезонатора, c — скорость света, и, как правило, существенно меньше периода ларморовой прецессии спинов образца. Поэтому наличие микрорезонатора эквивалентно прохождению зондирующего пучка через Q *одинаковых* образцов, вклады которых в поляриметрический сигнал полностью скоррелированы. Отметим, что поляриметрические шумы от образцов с микрорезонатором можно наблюдать не только в прошедшем, но и в отражённом пучке.

Опишем теперь некоторые конкретные исследования указанных систем, основанные на использовании микрорезонаторов и иллюстрирующие возможности ССФ.

3.1. Наблюдение ядерной спиновой релаксации и оптического эффекта Штарка

Остановимся сначала на одном из наиболее эффективных применений ССФ для регистрации внутренних полей, возникающих в полупроводниковой системе в условиях оптической накачки. Исследуемая наноструктура и схема этого эксперимента приведены на рис. 3. Шумовой сигнал наблюдался от межзеркального промежутка микрорезонатора, представлявшего собой слой n -легированного GaAs. Протокол эксперимента был следующим. Частота линейно поляризованного зондирующего пучка устанавливалась равной резонансной частоте микрорезонатора, и наблюдался спектр шумов фарадеевского вращения в отражённом пучке. Наблюдаемый максимум в спектре спиновых флуктуаций соответствовал ларморовой частоте прецессии электронов зоны проводимости в приложенном магнитном поле. Затем с помощью четвертьволновой фазовой пластинки (см. рис. 3) зондирующему пучку придавалась небольшая эллиптичность, после чего частотный максимум шумового спектра смещался, причём временная динамика указанного смещения имела две составляющих: медленную экспоненциальную, с характерным временем около 20 с, и вторую, фактически безынерционную. После "выключения" эллиптичности зондирующего пучка спектр шума возвращался к исходному, демонстрируя аналогичную динамику (рис. 4а).

Эксперимент удалось интерпретировать [19], полагая, что медленная составляющая связана с поляриза-

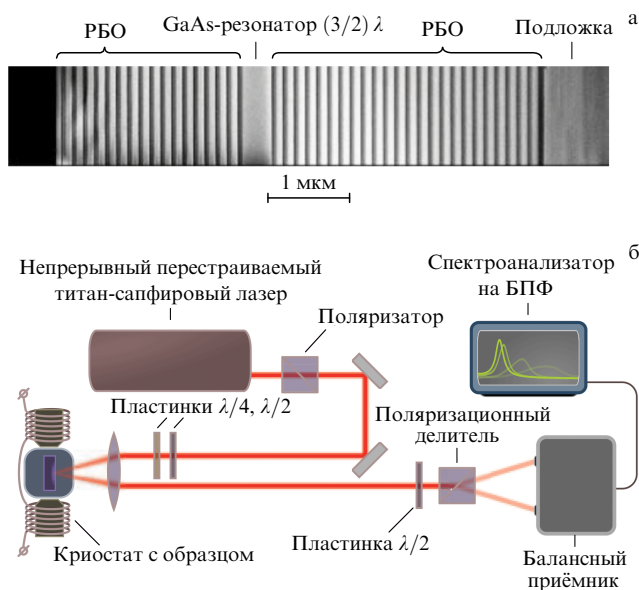


Рис. 3. Наблюдение ядерной поляризации и оптического эффекта Штарка. Исследуемый микрорезонатор (а) и схема эксперимента (б). (Из работы [19].)

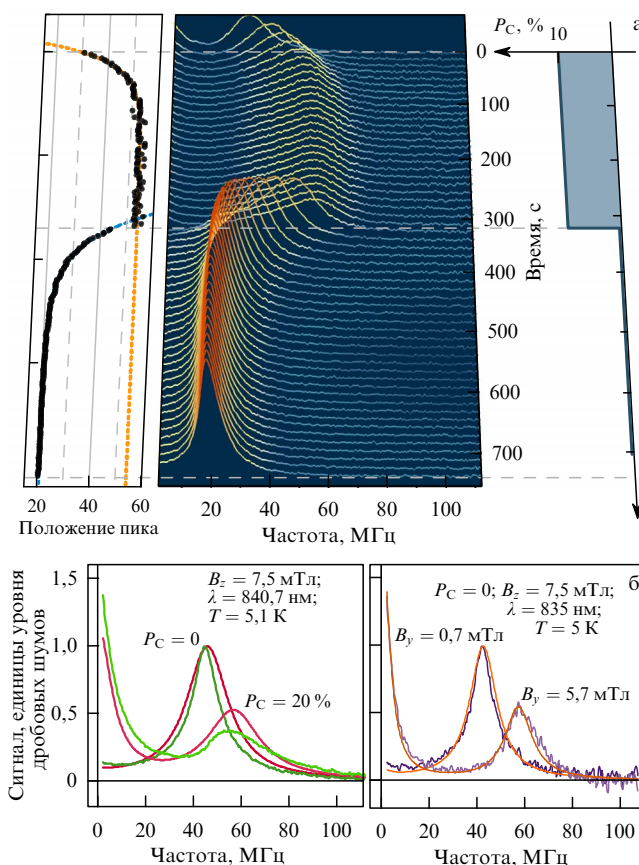


Рис. 4. Наблюдение светоиндуцированного эффективного магнитного поля и динамической поляризации ядер в слое *n*-GaAs в условиях высокой плотности мощности зондирующего света. (а) Смещение максимума шумового спектра при увеличении и уменьшении степени эллиптичности света. (б) Сравнение характерного изменения формы спектра спиновых шумов при увеличении эллиптичности зондирующего пучка (слева) и при включении дополнительного поперечного магнитного поля (справа). Величина поперечного магнитного поля B_z одинакова и постоянна во всех экспериментах.

цией ядер, вызванной накачкой эллиптически поляризованным светом [42], а безынерционная — с оптическим эффектом Штарка. Известный эффект оптической ориентации спинов ядер [42] приводит к возникновению эффективного магнитного поля (поля Оверхаузера), действующего на спины электронов зоны проводимости и смещающего частотный максимум связанного с ними поляриметрического шума. Для ориентации ядер требуется накачка светом, несущим угловой момент, поэтому эффект имеет место только при эллиптической поляризации зондирующего пучка, который играет роль накачивающего света. Характерные времена ядерной динамики могут иметь масштаб десятков секунд, как это и наблюдалось в описанном эксперименте.

Феноменология безынерционной составляющей динамики шумового спектра соответствует так называемому обратному эффекту Фарадея [43, 44]. В [19] она связывалась с перенормировкой гамильтониана электронов в сильном оптическом поле, причём в случае эллиптической поляризации этого поля указанная перенормировка оказывается эквивалентной действию эффективного магнитного поля ("оптического" поля), вызывающего дополнительное расщепление спиновых уровней и смещающего максимум шумового спектра. "Оптическое" поле направлено параллельно зондирующему пучку, поэтому в экспериментах с поперечной ориентацией статического магнитного поля (геометрия Фойхта) "оптическое" поле приводит не только к смещению прецессионной компоненты шумового спектра, но и к появлению максимума на нулевой частоте аналогично приложению некоторого наклонного поля (см. формулу (12) и рис. 4б). Опираясь на выводы раздела 2.3, величину создаваемого "оптического" поля можно оценить в единицах магнитной индукции (рис. 4б).

Оба описанных эффекта (оптическая ориентация ядер и светоиндуцированное эффективное магнитное поле) требуют достаточно большой плотности оптического излучения и поэтому наиболее ярко проявляются на образцах, помещённых в микрорезонатор.

3.2. Информационная содержательность оптических спектров шумовых сигналов

Одной из важных особенностей ССФ, отличающих её от классической спектроскопии ЭПР, является наличие дополнительной — оптической — степени свободы, использование которой существенно обогащает возможности исследования спиновых систем. В настоящем разделе мы рассмотрим особенности поведения сигналов спиновых шумов при резонансном зондировании среды и покажем, что зависимость мощности спиновых флуктуаций от частоты ω зондирующего пучка содержит недоступную для линейной оптики информацию о характере уширения оптического перехода. Данное обстоятельство сыграло важную роль в развитии метода ССФ и расширении круга объектов этой методики.

Как было сказано выше, в типичных для ССФ случаях регистрируемый поляриметрический сигнал $\delta\phi$ можно представить суммой вкладов $\delta\phi_i$ отдельных частиц, составляющих изучаемый образец, причём вклад i -й частицы пропорционален её магнитному моменту μ_i . Учтём теперь, что коэффициент пропорциональности (мы обозначали его κ) может зависеть от частоты зондирующего пучка ω и быть различным у разных частиц: $\delta\phi_i = \kappa_i(\omega)\mu_i$. Если пренебречь вкладом в магнитооптическую актив-

ность, связанным с частотным сдвигом энергетических уровней частицы в магнитном поле (так называемым A -членом [45], который обычно мал), то при простейшем рассмотрении можно характеризовать частицу *одной* частотой оптического резонанса ω_0 , $\omega_i \equiv \omega_0$. В этом случае частотная зависимость $\kappa_i(\omega)$ имеет дисперсионный вид⁸, и получается, что $\delta\phi_i = a_i\mu_i[\omega_0 - \omega]/[(\omega_0 - \omega)^2 + \delta_i^2]$, где a_i определяется силой осциллятора оптического перехода, а δ_i характеризует его однородную ширину. Естественно допустить, что сила осциллятора a_i и однородная ширина δ_i не флуктуируют во времени и в первом приближении одинаковы для всех частиц, т.е. $a_i \rightarrow a$ и $\delta_i \rightarrow \delta$. Магнитный момент μ_i каждой частицы совершает случайное прецессионное движение с ларморовой частотой Ω_L , подробно рассмотренное выше. Что касается частот переходов ω_i , то возможны три существенно различных случая.

1. Разброс частот ω_i меньше однородной ширины δ и можно положить $\omega_i = \omega_0$ (*однородное уширение*).

2. Частоты ω_i различны у разных частиц и постоянны во времени (*статическое неоднородное уширение*).

3. Частоты ω_i различны и стохастически зависят от времени (*динамическое неоднородное уширение*).

Первые два случая реализуются тогда, когда источником спиновых флуктуаций служат локализованные магнитные моменты в твердотельных матрицах. При относительно высоких температурах однородное уширение оптических переходов, связанное с тепловыми колебаниями кристаллической решётки, зачастую превалирует. При снижении температуры однородная ширина уменьшается и начинает играть роль статическое неоднородное уширение спектров, обусловленное различного рода пространственными неоднородностями системы. В некоторых случаях, как, например, в ансамблях квантовых точек полупроводниковых структур, статическое неоднородное уширение имеет морфологическую природу и является определяющим фактором формирования оптического спектра. Третий случай реализуется в классических объектах ССФ — парах щелочных металлов, когда неоднородное уширение оптического перехода определяется эффектом Доплера.

Как уже отмечалось, благодаря статистической эквивалентности частиц образца спектр мощности шума определяется преобразованием Фурье коррелятора вклада какой-либо *одной* (например, первой) частицы $\mathcal{N}(v) = N[2\pi]^{-1} \int \exp(ivt) \langle \delta\phi_1(t) \delta\phi_1(0) \rangle dt$. В простейшей модели можно считать, что $\mu_1(t)$ и $\omega_1(t)$ представляют собой независимые случайные процессы, и при вычислении коррелятора $\langle \delta\phi_1(t) \delta\phi_1(0) \rangle$ произвести "расщепление". Тогда указанный коррелятор представляется в виде

$$\langle \delta\phi_1(t) \delta\phi_1(0) \rangle = a^2 \langle \mu_1(t) \mu_1(0) \rangle \times \underbrace{\left\langle \frac{\omega_1(t) - \omega}{[\omega_1(t) - \omega]^2 + \delta^2} \frac{\omega_1(0) - \omega}{[\omega_1(0) - \omega]^2 + \delta^2} \right\rangle}_{D(t)}. \quad (13)$$

Коррелятор спинового движения $\langle \mu_1(t) \mu_1(0) \rangle$ был вычислен ранее (см. формулы (3)–(12)) и в простейшем случае $\langle \mu_1(t) \mu_1(0) \rangle = [\mu^2/4] \exp(-|t|/T_2) \cos(\Omega_L t)$. Коррелятор $D(t)$ (13) зависит от того, какой из трёх перечисленных выше случаев реализуется в эксперименте. В наиболее

простом (первом) случае однородного уширения $\omega_1(t) = \omega_0 = \text{const}$ и мы получаем:

$$\langle \delta\phi_1(t) \delta\phi_1(0) \rangle = a^2 \langle \mu_1(t) \mu_1(0) \rangle \left[\frac{\omega_0 - \omega}{[\omega_0 - \omega]^2 + \delta^2} \right]^2. \quad (14)$$

Во втором случае (статическое неоднородное уширение) частота $\omega_1(t)$ не зависит от времени, но является случайной. Обозначим через $\rho_\Delta(\omega_1 - \omega_0)$ её функцию распределения, которую будем считать нормированной $\int \rho_\Delta(\omega_1 - \omega_0) d\omega_1 = 1$, имеющей характерную ширину Δ и центрированной на $\omega_1 = \omega_0$. В данном случае коррелятор $\langle \delta\phi_1(t) \delta\phi_1(0) \rangle$ определяется соотношением

$$\langle \delta\phi_1(t) \delta\phi_1(0) \rangle = a^2 \langle \mu_1(t) \mu_1(0) \rangle \times \int \rho_\Delta(\omega_1 - \omega_0) \left[\frac{\omega_1 - \omega}{[\omega_1 - \omega]^2 + \delta^2} \right]^2 d\omega_1, \quad (15)$$

переходящим в (14) при $\Delta \ll \delta$. При $\Delta \gg \delta$ интеграл в (15) можно вычислить, воспользовавшись тем, что вклад второго сомножителя в квадратных скобках существенно отличен от нуля лишь в малой области $|\omega - \omega_1| \sim \sim \delta$ и ведёт себя фактически как $\pi\delta(\omega_1 - \omega)/\delta$. Поэтому

$$\langle \delta\phi_1(t) \delta\phi_1(0) \rangle = \frac{a^2\pi}{\delta} \langle \mu_1(t) \mu_1(0) \rangle \rho_\Delta(\omega - \omega_0). \quad (16)$$

Из формулы (16) видно, что оптическая спектральная зависимость шумового сигнала при неоднородном уширении практически воспроизводит контур поглощения $\sim \rho_\Delta(\omega - \omega_0)$ и существенно отлична от нуля в его центре при $\omega = \omega_0$. Это качественно отличается от случая однородного уширения, когда спектральная зависимость шумового сигнала (14) обращается в нуль в центре контура поглощения при $\omega = \omega_0$. Таким образом, наблюдение оптической спектральной зависимости шумового сигнала в эксперименте по ССФ даёт возможность определить характер уширения оптической линии поглощения [22].

Последовательный анализ третьего случая (динамическое неоднородное уширение) требует задания модели атомных столкновений, однако получить все важные для ССФ результаты можно с помощью следующего упрощённого рассмотрения. Наблюдаемая частота атомного резонанса $\omega_1(t)$ отличается от частоты атомного перехода ω_0 доплеровским сдвигом: $\omega_1(t) = \omega_0 + kv_y(t)$ (здесь $k = \omega/c$, а $v_y(t)$ — проекция скорости атома на направление зондирующего пучка, испытывающая случайные изменения при межатомных столкновениях). Величина коррелятора $D(t=0) \equiv D_0$ может быть вычислена как

$$D_0 = \int \left[\frac{\omega_0 + kv - \omega}{[\omega_0 + kv - \omega]^2 + \delta^2} \right]^2 \rho_M(v) dv. \quad (17)$$

Здесь $\rho_M(v) = [v_T\sqrt{\pi}]^{-1} \exp(-[v/v_T]^2)$ — распределение Максвелла (v_T — средняя тепловая скорость атома). Обозначим через τ_c среднее время между атомными столкновениями. Поскольку за время $t < \tau_c$ изменение скорости атома маловероятно, то очевидно, что $D(t < \tau_c) \approx D_0$. При временах $t \gg \tau_c$ скорости $v_y(t)$ и $v_y(0)$ становятся *независимыми* случайными величинами, имеющими максвелловские функции распределения. Поэтому усреднение каждого из сомножителей (13) коррелятора $D(t)$ может быть в этом случае выполнено

⁸ Если регистрируются шумы фарадеевского вращения [45].

независимо и мы получаем, что

$$D(t \gg \tau_c) \equiv D_\infty = \left[\int \frac{\omega_0 + kv - \omega}{[\omega_0 + kv - \omega]^2 + \delta^2} \rho_M(v) dv \right]^2. \quad (18)$$

Для вычисления коррелятора $D(t)$ при произвольных временах можно использовать интерполяционную формулу

$$D(t) = D_\infty + [D_0 - D_\infty] \exp\left(-\frac{|t|}{\tau_c}\right). \quad (19)$$

Уже сейчас уместно обратить внимание на то, что при $\delta < kv_T$ величины D_0 и D_∞ имеют существенно различную зависимость от частоты ω зондирующего пучка. Рассуждение, аналогичное приведённому перед формулой (16), показывает, что D_0 приближённо воспроизводит контур поглощения и достигает максимума при $\omega = \omega_0$, в то время как D_∞ обращается в нуль в центре контура поглощения при $\omega = \omega_0$ вследствие чётности распределения Максвелла $\rho_M(v)$.

Подставляя (19) в (13) и вычисля преобразование Фурье для приведённого под формулой (13) упрощённого спинового коррелятора, получаем, что частотная зависимость наблюдаемого в ССФ шумового спектра имеет вид⁹

$$\mathcal{N}(v) \sim D_\infty T_2 L ([v - \Omega_L] T_2) + [D_0 - D_\infty] \tau L ([v - \Omega_L] \tau), \quad (20)$$

где $1/\tau \equiv 1/\tau_c + 1/T_2$.

В реальном эксперименте с парами щелочных металлов время между столкновениями τ_c может быть как существенно меньшим (при наличии в кювете буферного газа), так и существенно большим (при его отсутствии) времени спиновой релаксации T_2 . В случае $T_2 \ll \tau_c$ наблюдаемый шумовой спектр определяется выражением $\mathcal{N}(v) \sim D_0 T_2 L([v - \Omega_L] T_2)$ и имеет повторяющую контур поглощения и характерную для *неоднородно уширенной системы* зависимость от частоты зондирующего пучка ω . В случае $T_2 \gg \tau_c$ шумовой спектр, регистрируемый в частотном окне v_s , таком что $1/T_2 < v_s < 1/\tau_c$, имеет вид $\mathcal{N}(v) \sim D_\infty T_2 L([v - \Omega_L] T_2)$ и при $\omega = \omega_0$ обращается в нуль, как при *однородном уширении* [22]. Такой эффект *гомогенизации* шумового спектра атомной системы с неоднородным (доплеровским) уширением был обнаружен и исследован в работе [46]. Качественно этот эффект гомогенизации можно рассматривать как результат того, что спектр оптических частот каждого атома, испытывая многократные столкновения с атомами буферного газа, успевает за время T_2 практически полностью заполнить весь доплеровский контур линии оптического перехода.

3.3. Эффект гигантского усиления спинового шума в неоднородно уширенных системах

Оптическая спектроскопия спиновых шумов, подразумевающая зависимость характеристик спиновых флуктуаций от длины волны зондирующего света, по своим возможностям радикальным образом отличается от обычной линейной оптической спектроскопии. Послед-

няя, как известно, не способна определить характер уширения оптического перехода, тогда как спиновые шумы для однородно и неоднородно уширенных переходов могут различаться самым радикальным образом не только по спектральным, но и по амплитудным характеристикам.

Для оценки величины шумового сигнала в условиях резонансного зондирования контура оптического перехода с доминирующим неоднородным уширением вернёмся к формуле (1), связывающей предельное фарадеевское вращение ϕ_s образца с ожидаемым шумовым сигналом $\langle \delta\phi^2 \rangle$. Вычисляя входящее в данную формулу число частиц образца N , засвечиваемых зондирующим пучком, как nV (здесь n — концентрация частиц, а V — объём образца, засвечиваемый зондирующим пучком), можно получить сильно заниженную оценку для шумового сигнала $\langle \delta\phi^2 \rangle$ по следующей причине. Если частота ω зондирующего пучка попадает в область неоднородно уширенной линии поглощения, то входящее в (1) число частиц N , дающих вклад в поляриметрический сигнал, может быть существенно меньше, чем Vn , поскольку указанный вклад дают только те частицы, для которых отстройка положения их оптического резонанса от частоты зондирующего пучка ω не превышает однородной ширины δ этого резонанса. Число N таких "резонансных" частиц может быть оценено как $N \approx nV\delta/\Delta$ (здесь Δ — величина неоднородного уширения), после чего формула (1) принимает вид

$$\langle \delta\phi^2 \rangle \sim \frac{\Delta}{\delta} \frac{\phi_s^2}{nV}. \quad (21)$$

Формула (21) показывает, что образцы с большим относительным неоднородным уширением Δ/δ могут обнаруживать мощные шумовые сигналы и служить хорошими объектами для ССФ, даже если их *регулярная* магнитооптическая активность (ϕ_s) невелика. Интересно, что в случае запрещённых оптических переходов с чрезвычайно малыми значениями однородных ширин такой выигрыш может быть огромным. Качественно это можно объяснить тем, что проигрыш в шумовом сигнале, связанный в данном случае с небольшой величиной предельного вращающего ϕ_s , с избытком компенсируется выигрышем, связанным с огромной величиной относительного неоднородного уширения Δ/δ . Указанный эффект, названный эффектом *гигантского усиления спинового шума*, был недавно продемонстрирован экспериментально [27] на некоторых диэлектрических кристаллах с трёхвалентными редкоземельными ионами. На запрещённых по чётности внутриконтурных ($4f-4f$) переходах таких ионов фактор отношения неоднородной ширины линии к однородной может достигать 7–8 порядков величины, обеспечивая соответствующий выигрыш в величине шумового сигнала. Описанный эффект позволил впервые применить методику спинового шума к кристаллам с парамагнитными примесными центрами и таким образом включить их в круг объектов ССФ. Заметим, что проведённые предварительные исследования и сделанные оценки [47] показывали бесперспективность использования разрешённых межконтурных ($4f-5d$) переходов редкоземельных ионов с мощной магнитооптической активностью в качестве объектов ССФ.

В качестве иллюстрации на рис. 5 приведены одни из первых результатов детектирования спектров маг-

⁹ Для краткости мы не пишем здесь лоренцианов, центрированных на отрицательных частотах (см. формулу (12)).

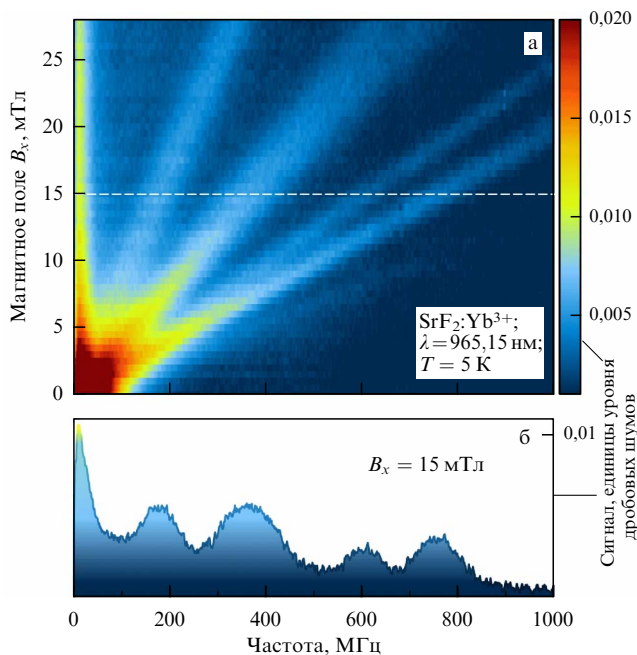


Рис. 5. Зависимость спектра спиновых флуктуаций иона иттербия в кристалле фтористого стронция от величины приложенного поперечного магнитного поля (а) и один из спектров зависимости (б), (место среза обозначено на цветовой карте штриховой прямой). (Из работы [27].)

нитного резонанса методом спектроскопии спиновых шумов в кристаллах фторида стронция с примесными ионами Yb^{3+} [27]. Сигнал спиновой прецессии регистрировался при резонансном зондировании образца на частоте внутрiconфигурационного $f-f$ -перехода примесного иона. В качестве источника зондирующего излучения использовался кольцевой титан-сапфировый лазер, способный обеспечить необходимую узость спектра.

Успешные эксперименты по детектированию магнитного резонанса в спектре спиновых шумов редкоземельных ионов в кристаллах позволяли рассчитывать на возможность применения ССФ к этим ионам в стеклообразных матрицах, где отношение неоднородных ширинок $f-f$ -переходов к однородным может достигать огромных значений. Шансы на успех в данном случае очевидным образом снижались большими ширинами линий магнитного резонанса, формируемых хаотически ориентированными анизотропными примесными центрами с различающимися g -факторами. В экспериментах со стеклообразными матрицами с примесью ионов неодима и иттербия, действительно, не обнаруживались шумы фарадеевского вращения, связанные со спиновой намагниченностью. Были, однако, обнаружены ранее не наблюдавшиеся поляризационные флуктуации иной природы, которые (в диапазоне частот до 1 ГГц) характеризовались "белым" спектром и проявлялись как шумы эллиптичности (а не вращения плоскости поляризации). Обнаруженные шумы были приписаны специфичным для стёкол флуктуациям структурного окружения примесных ионов [48]. Полученные результаты продемонстрировали применимость спектроскопии поляризационных флуктуаций для изучения структурной динамики разупорядоченных сред, описываемой обычно в модели двухъямных потенциалов.

3.4. Наблюдение спиновых флуктуаций в двулучепреломляющих средах

Эффект Фарадея, лежащий в основе метода ССФ, всегда определял, как ранее считалось, одно из важнейших требований к объекту исследований — условие его оптической изотропности (или, по крайней мере, изотропности в плоскости, перпендикулярной направлению распространения зондирующего света). Логика такого требования представлялась вполне естественной: измерение шумов фарадеевского вращения подразумевает возможность измерения самого фарадеевского вращения, что в двулучепреломляющих средах практически невозможно. Проведённый теоретический анализ поставленной задачи, однако, показал, что это не так и что стохастические флуктуации гирации или линейного двулучепреломления в сильно анизотропных средах могут регистрироваться так же успешно, как и в средах изотропных. Качественно различие в воздействии линейного двулучепреломления на регулярную и шумовую гирацию можно объяснить следующим образом. Эффект подавления ФВ линейным двулучепреломлением наблюдается на длинах анизотропной среды, превышающих толщину (или сопоставимых с толщиной) полуволновой пластинки. По указанной причине на пространственно не коррелированную гирацию (с нулевой корреляционной длиной) линейная анизотропия среды никакого воздействия не оказывает. В работе [49] было представлено строгое теоретическое рассмотрение данной задачи и показано, что сильно анизотропные оптические кристаллы, способные самым кардинальным образом влиять на поляризацию проходящего через них света, с точки зрения шумовой спектроскопии оказываются практически изотропными — мощность спиновых флуктуаций не обнаруживает заметной зависимости ни от состояния поляризации зондирующего света, ни от направления его распространения.

Успех работы [49] был развит и в приложении к востребованным в настоящее время полупроводниковым материалам — галогенидным перовскитам. В работе [50] наблюдалось существенное подавление фарадеевского вращения монокристалла MAPbI_3 при фазовом переходе из кубической в низкосимметричную фазу, но при этом успешно были зарегистрированы сигналы флуктуаций фарадеевского вращения, в сочетании с техникой вращающегося поля позволившие исследовать анизотропию спиновой подсистемы и обнаружить двойникование кристалла [51]. Приведённые результаты существенно образом расширяют круг объектов ССФ и представляются чрезвычайно важными с точки зрения использования рассматриваемой спектроскопической методики как для фундаментальных исследований, так и для практических приложений.

3.5. Шумы выстраивания

В рамках приведённого выше рассмотрения регистрируемые в ССФ флуктуации фарадеевского вращения или флуктуации *гиротропии* (циркулярного двулучепреломления) являются результатом флуктуирующей разницы в числе спинов, ориентированных параллельно и антипараллельно направлению распространения зондирующего света. Можно сказать, что шумы гиротропии отражают шумы спиновой *ориентации*. Гиротропия описывается антисимметричной частью тензора поляризуемости или дуальным ей *вектором* гирации. Так что в

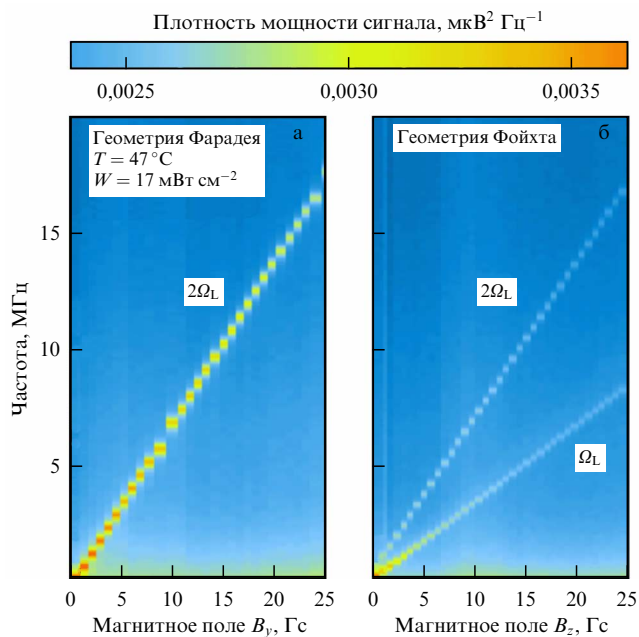


Рис. 6. Зависимость спектров флуктуаций эллиптичности атомов цезия от величины приложенного магнитного поля в геометриях Фарадея (а) и Фойхта (б).

стандартной геометрии ССФ регистрируются флуктуации антисимметричной части тензора поляризуемости среды. Из чисто симметричных соображений, однако, можно предположить, что флуктуирующая анизотропия среды может возникать в результате различия числа спинов, ориентированных поперёк светового луча в двух ортогональных направлениях (например, по горизонтали и по вертикали). Такие флуктуации в общем случае не сопровождаются флуктуациями намагниченности и гиротропии среды, а проявляются как шумы симметричной части поляризуемости среды, или шумы линейного двулучепреломления. В атомной физике такой вид спинового упорядочения (регулярного или стохастического) носит название *выстраивания*. В отличие от шумов ориентации, шумы выстраивания наблюдаются не как флуктуации азимута поляризации прошедшего через среду света, а как шумы его эллиптичности. Ниже, в разделе 4, где ССФ интерпретирована с точки зрения теории рассеяния, показано, что такого рода шумы могут наблюдаться на обычной установке ССФ, в которой поляриметрический приёмник работает в режиме регистрации эллиптичности входного пучка. В общем случае шумы выстраивания обнаруживаются и на ларморовой частоте (Ω_L), и на частоте её второй гармоники ($2\Omega_L$) [26].

В отличие от шумов ориентации, шумы выстраивания наиболее выразительно проявляются в геометрии Фарадея, когда зондирующий световой пучок распространяется вдоль внешнего магнитного поля. Экспериментально шум выстраивания наблюдался в работе [26] на парах атомов цезия. Рисунок 6 иллюстрирует полученные в этой работе результаты. Подчеркнём, что наличие второй гармоники ларморовой частоты в спектре шумов выстраивания не является проявлением какой-либо нелинейности изучаемой системы, поэтому появление таких шумов должно приниматься во внимание при экспериментальном изучении нелинейных эффектов и построении моделей для их описания.

3.6. Спин-шумовая томография

Данная методика использует специфическую пространственную *локальность* регистрируемого в ССФ шумового сигнала. Как известно, величина регулярного фарадеевского вращения (в линейной оптике) от сечения зондирующего пучка не зависит. Напротив, в ССФ, где измеряется стохастический (а не регулярный) сигнал фарадеевского вращения, это не так. Как уже отмечалось, по мере уменьшения сечения зондирующего пучка (при сохранении его полной мощности) растёт относительная величина спиновой флуктуации ($\sim 1/\sqrt{N}$) и, соответственно, растёт величина шумового сигнала.

Поэтому для сфокусированного гауссова зондирующего пучка основной вклад в шумовой сигнал вносит область перетяжки, длина которой в направлении распространения пучка (длина Рэлея) оценивается как ρ_c^2/λ (здесь ρ_c — радиус перетяжки, λ — длина волны света). Если пучок формируется полностью засвеченной линзой с фокусным расстоянием f и диаметром d , то при $\lambda \approx 1$ мкм радиус перетяжки пучка ($\rho_c \approx \lambda f/d$) может быть легко сделан порядка единиц микрон, а длина Рэлея — порядка десятков микрон. Перемещая образец в таком пучке и наблюдая шумовой сигнал, можно измерить пространственное распределение спинов, создающих шумовой сигнал, с указанным выше пространственным разрешением. Описанный метод томографии был впервые продемонстрирован в работе [52] на примере пространственного разрешения по глубине двух слоёв n-GaAs субмиллиметровой толщины с различным уровнем легирования. В работе [53] спектроскопия спиновых шумов гигагерцевого диапазона была применена для изучения рельефа электронного g -фактора в объёмном арсениде галлия вблизи границы кристалла. Благодаря использованию широкоапертурной оптики достигнутое в указанной работе продольное пространственное разрешение составило ~ 11 мкм.

Отметим следующее. Возможность реализации трёхмерной томографии на основе ССФ ещё раз демонстрирует близость ССФ к эффектам нелинейной оптики, поскольку зависимость величины сигнала (в данном случае — шумового сигнала) от сечения пучка (при его постоянной интенсивности) есть не что иное, как зависимость сигнала от плотности световой мощности, а последнее обычно является прямым свидетельством оптической нелинейности.

3.7. Расширение частотного диапазона спектроскопии спиновых флуктуаций

Использование оптических детекторов для регистрации сигналов модуляции интенсивности света на ларморовой частоте, как может показаться, существенно ограничивает частотный диапазон ЭПР-спектроскопических измерений методом ССФ. Это, однако, не так. Наиболее простой способ преодоления такого ограничения состоит в использовании метода гетеродинамирования сигнала модуляцией интенсивности. Для указанной цели используют зондирующий пучок, интенсивность которого промодулирована на частоте ν_T , превосходящей верхнюю границу диапазона регистрации. При этом происходит частотный сдвиг шумового спектра $\mathcal{N}(\nu) \rightarrow \mathcal{N}(\nu - \nu_T)$, что позволяет перенести его в частотную область, доступную для наблюдения. Впервые описанный приём был применён в работе [53], где для оптического гетеродинамирования использовалось излучение

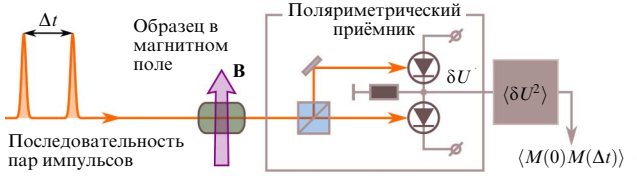


Рис. 7. Схема регистрации спиновой прецессии в СВЧ-диапазоне, значительно превышающем полосу частот поляризиметрического приёмника.

лазера, работающего в режиме синхронизации мод. Такое излучение представляет собой гребёнку коротких импульсов, период следования которых $1/\nu_T$ значительно превышает длительность каждого из них. Поскольку временная зависимость интенсивности такого излучения содержит большое число гармоник $n\nu_T$, $n = 1, 2, 3, \dots$, гетеродинирование в данном случае даёт *серию* сдвинутых шумовых спектров $\mathcal{N}(\nu) \rightarrow \mathcal{N}(\nu - n\nu_T)$, $n = \pm 1, \pm 2, \pm 3, \dots$, которые могут быть выделены изменением частотного окна регистрации шумового сигнала. В работе [53] таким образом удалось провести измерения спектров спиновых шумов в диапазоне нескольких ГГц.

Стоит отметить, что в качестве гетеродина может использоваться также гармоническая модуляция непрерывного излучения, реализуемая, например, с применением ячейки Поккельса и высокочастотного синтезатора. Другой возможный вариант — использование в качестве зондирующего пучка смешанного излучения двух стабилизированных непрерывных лазеров, частоты которых отстроены на величину ν_T . Плавная перестройка частоты одного из источников при этом позволит изменять частоту ν_T и тем самым перенести сигнал ССФ из областей частот порядка десятков и даже сотен ГГц, что может быть использовано для измерения ларморовских частот в очень сильных магнитных полях или исследования расщеплений иной природы.

Применение зондирующего лазерного пучка с высокочастотной модуляцией интенсивности позволяет также реализовать интересный способ прямого измерения зависимости от времени корреляционной функции поляризиметрического шума в диапазоне чрезвычайно коротких времён. Ниже представлено упрощённое описание предложенного в работе [54] способа оптического наблюдения шумовой прецессии спинов на частоте ~ 30 ГГц, значительно превосходящей полосу пропускания $\Delta\nu_D$ используемых в ССФ фотодетекторов и аналого-цифровых преобразователей (АЦП). Наблюдение спиновой прецессии в работе [54] осуществлялось с помощью сверхкоротких (длительностью порядка сотни фемтосекунд) лазерных импульсов, следующих с частотой $\nu_T \approx \approx 100$ МГц. Из такой последовательности импульсов с помощью линии задержки (или применением специальных лазерных систем) формировалась последовательность пар импульсов, разделённых временным интервалом Δt , который можно было варьировать в процессе эксперимента в диапазоне от нуля до сотен пикосекунд. Эта последовательность пар импульсов использовалась для зондирования образца в схеме ССФ (рис. 7), причём полоса пропускания фотоприёмников была $\Delta\nu_D \sim \sim \nu_T \ll 1/\Delta t$.

Рассмотрим зондирование образца n -й парой оптических импульсов, прошедших через образец в моменты

времени nT и $nT + \Delta t$ соответственно. Выходной сигнал поляризиметрического приёмника δU будет определяться фарадеевским вращением (или пропорциональной ему намагниченностью $M(t)$) образца *только* в моменты nT и $nT + \Delta t$, когда образец зондировался светом. Поскольку полоса пропускания фотоприёмников сравнительно узкая, $\Delta\nu_D \ll 1/\Delta t$, рассматриваемая пара оптических импульсов не разрешается в выходном сигнале, вследствие чего $\delta U \sim M(nT) + M(nT + \Delta t)$. Согласно предложенной в [54] методике, выходной сигнал δU оцифровывался, возводился в квадрат и усреднялся:

$$\begin{aligned} \langle \delta U^2 \rangle &\sim \langle M^2(nT) \rangle + \langle M^2(nT + \Delta t) \rangle + \\ &+ 2 \langle M(nT)M(nT + \Delta t) \rangle = \\ &= 2 \langle M^2 \rangle + 2 \langle M(0)M(\Delta t) \rangle, \end{aligned} \quad (22)$$

а полученный результат записывался как функция задержки Δt между импульсами. Как видно из приведённого соотношения, часть $\langle \delta U^2 \rangle$, зависящая от Δt , пропорциональна корреляционной функции намагниченности $\langle M(0)M(\Delta t) \rangle$, преобразование Фурье которой (спектр мощности шума намагниченности) наблюдается в стандартных ССФ-экспериментах. Образцом в эксперименте [54] служил легированный GaAs, время задержки Δt изменялось от нуля до сотен пикосекунд, причём функция $\langle M(0)M(\Delta t) \rangle$ демонстрировала осцилляции с периодом около 100 пс, затухающие с характерным временем порядка одной наносекунды. Такое поведение коррелятора $\langle M(0)M(\Delta t) \rangle$ соответствует частотам спиновой прецессии порядка десятков гигагерц и временам спиновой релаксации $\sim 10^{-9}$ с.

Интересный вариант развития описанной выше техники представлен в работе [55], где для зондирования применялась система из двух независимых импульсных лазеров с синхронизацией мод. Излучение лазеров объединялось в один зондирующий пучок и пропускалось через образец на стандартную поляризиметрическую схему, аналогичную схеме рис. 7. Небольшое различие в частоте следования импульсов обеспечивает непрерывное "сканирование" задержки δt между импульсами. Спектр восстанавливается при помощи быстрого преобразования Фурье от сигнала, который в данном случае представляет собой автокорреляционную функцию. При этом достигается полоса регистрации, определяемая величиной δt^{-1} с постоянным разрешением δt_{\max}^{-1} , где δt_{\max} — максимальная задержка между импульсами. В работе [55] достигнутая таким образом полоса регистрации составила более 150 ГГц.

3.8. Двухпучковая спектроскопия спиновых флуктуаций

Во всех описанных выше экспериментах по ССФ регистрировался *частотный* спектр мощности спинового шума, связанный с *временной* корреляционной функцией спонтанных флуктуаций намагниченности образца. В работе [25] показано, что методом ССФ можно, в принципе, измерить также и *пространственную* корреляционную функцию намагниченности изучаемой системы, если использовать дополнительный световой пучок, когерентный с зондирующим и наклонённый по отношению к нему на угол θ (рис. 8).

Как рассмотрено подробнее в разделе 4, в ССФ фактически наблюдается оптическое поле, *неупруго* рассеянное образцом, восприимчивость которого испытывает

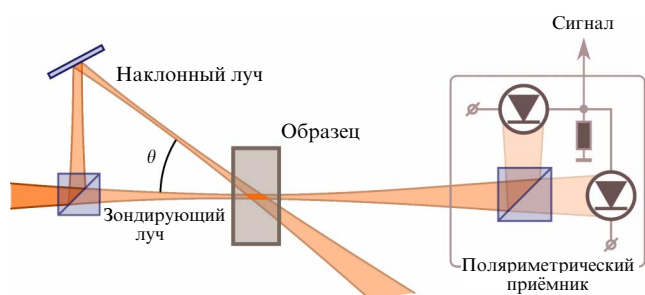


Рис. 8. Двухпучковая конфигурация ССФ.

случайные флуктуации (комбинационное рассеяние света). В обычной геометрии эксперимента по ССФ указанное поле действует на фотоприёмники совместно с полем зондирующего пучка и испытывает усиление благодаря эффекту гетеродина на квадратичных фотодетекторах. Важно, что гетеродином (local oscillator) в данном эксперименте служит зондирующий пучок, порождающий рассеянное поле. При наличии дополнительного наклонного пучка в поле, рассеянном образцом, появляется дополнительная составляющая, порождённая вторым пучком. Часть такой составляющей, попадающая в апертуру приёмного устройства, также гетеродинируется (причём гетеродином по-прежнему служит зондирующий пучок, поскольку наклонный пучок не попадает в фотодетекторы) и даёт вклад в выходной сигнал поляризметрического приёмника. Как показано в [25], этот вклад естественным образом зависит от перекрытия зондирующего и наклонного пучков в области образца. Однако наиболее важным является тот факт, что при определённых условиях (в частности, когда размер области перекрытия пучков существенно превышает длину световой волны $\lambda = 2\pi/k$), этот вклад пропорционален фурье-образу полной пространственно-временной корреляционной функции намагниченности (гиротропии) образца $\int \exp(i[kr \sin \theta + vt]) \langle M(0, 0) M(\mathbf{r}, t) \rangle dt d\mathbf{r}$. Таким образом, наблюдая связанный с наклонным пучком вклад в шумовой поляризметрический сигнал при различных углах θ , можно, в принципе, измерить полный пространственно-временной коррелятор намагниченности образца. Вклад наклонного пучка в поляризметрический сигнал спиновых шумов был зарегистрирован в работе [56]. Стоит отметить также работу [57], где была представлена схожая с описанной выше экспериментальная техника, в которой рассеянное поле смешивалось с гетеродином. Фаза последнего контролировалась, что позволяло наблюдать не только за частотой прецессии спинов, но и за волновым вектором рассеянного света. В качестве примера представлено исследование объёмного *p*-легированного слоя CdTe, для которого продемонстрировано отсутствие пространственных корреляций.

Отметим, что подобная двухлучевая схема гетеродина может применяться и для высокочувствительного детектирования *упруго* рассеянного света. При этом спектр регистрируемого сигнала рассеяния оказывается центрированным на нулевой частоте, с шириной, определяемой динамикой неоднородности среды. В силу того что область пересечения двух пучков, формирующая сигнал, может быть сделана достаточно малой, такая методика позволяет реализовать не только высокую чувствительность к слабой неоднородности среды, но и высокое

пространственное разрешение при томографических измерениях. Достоинства такой методики были экспериментально продемонстрированы в [58].

3.9. Спиновый шум поляритонного лазера и скрытая поляризация неполяризованного света

Наконец, рассмотрим один нестандартный вариант применения ССФ — регистрацию поляризационных флуктуаций не *рассеянного*, а *испущенного* исследуемым объектом когерентного света. В "классической" постановке эксперимента для наблюдения сигнала обязательно требуется опорный луч, в роли которого может выступать как прошедший через образец свет (стандартная схема), так и отщеплённый внешний пучок, смешанный с рассеянным полем (так называемая схема гомодинамирования сигнала, [59]). Однако аналогичной процедуре поляризметрического анализа может быть подвергнут и испущенный какой-либо системой свет. Тривиальным, но востребованным на практике примером может служить анализ поляризационных или интенсивностных флуктуаций излучения лазерного источника, позволяющий установить общий уровень его избыточных шумов и наличие резких спектральных особенностей, связанных, например, с межмодовыми биениями. Для этого достаточно направить излучение источника *I* (см. рис. 1) в балансный поляризметрический (для исследования поляризационных шумов) либо в одиночный фотоприёмник (для исследования шумов интенсивности). Значительно более глубокие результаты можно получить при исследовании когерентных источников излучения нового типа — бозе-эйнштейновских конденсатов экситон-поляритонов, или поляритонных лазеров, излучение которых содержит скрытую поляризацию даже в том случае, когда оно в среднем не поляризовано. Мы приводим рассмотрение данного приложения ССФ в отдельном разделе, замыкая тем самым обзор экспериментов по ССФ возвратом к полупроводниковым структурам, так как существующие поляритонные лазеры строятся на основе полупроводниковых микрорезонаторов.

Поляризационные характеристики света часто описываются в терминах вектора Стокса (вектора на сфере Пуанкаре), позволяющего оценить преимущественную поляризацию луча или её отсутствие. В последнем случае, когда все поляризационные компоненты вектора равны нулю, свет считается неполяризованным. Такой свет может быть результатом усреднения поляризации светового поля по времени, по спектру или каким-то другим образом, но вектор Стокса не содержит информации об этих деталях. Подобная ситуация может реализовываться на практике, например, в случае усиленного спонтанного излучения, суперпозиции многих независимых классических излучателей или излучения поляритонного лазера.

Для света, в среднем не поляризованного, распределение векторов Стокса по сфере Пуанкаре может быть существенно различным. На рисунке 9 представлено несколько вариантов реализации таких "неполяризованных" источников: (а) линейные излучатели со случайной ориентацией азимута плоскости поляризации, (б) равное количество право- и левовращающе поляризованных излучателей, (в) набор эллиптических излучателей с фиксированной ориентацией осей эллипса, (г) полностью случайные излучатели (истинно неполяризованный свет). Перечисленные выше типы неполяризованного излуче-

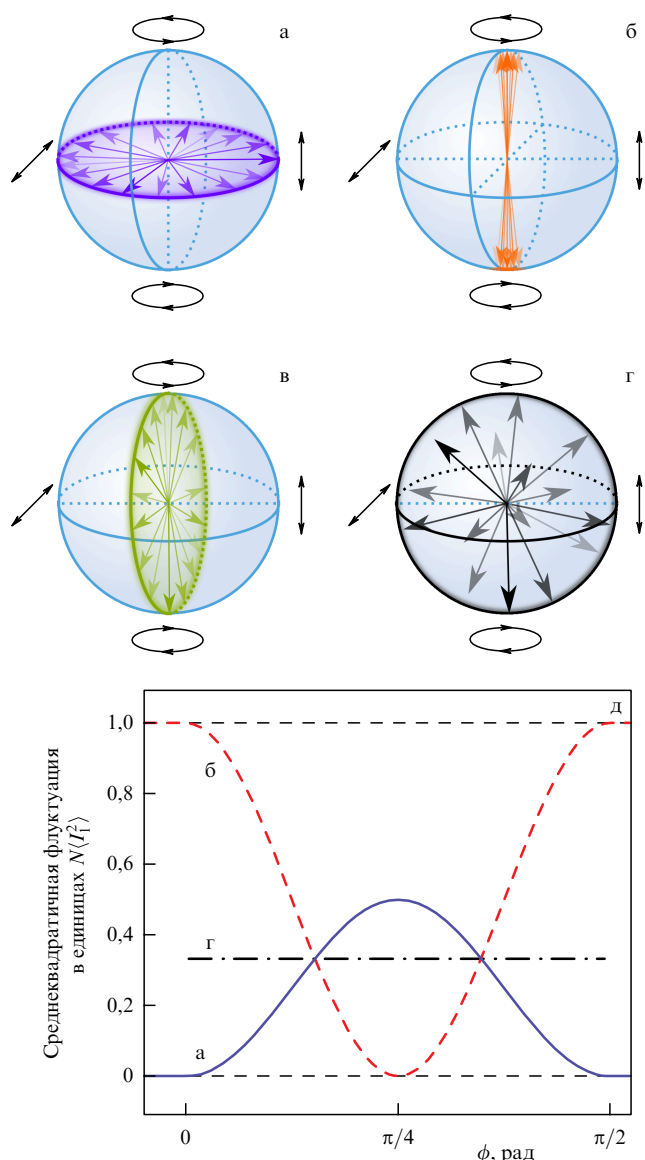


Рис. 9. (а–г) Некоторые особые случаи распределения одиночных эмиттеров по сфере Пуанкаре для не поляризованного в среднем света. (д) Зависимость от ориентации четвертьволновой пластинки перед детектором для некоторых распределений. Пояснения в тексте.

ния могут быть отличены друг от друга по характеру поляризационных флуктуаций. Характер скрытой поляризации может быть выявлен при помощи выбора в качестве 5 (см. рис. 1) четвертьволновой пластинки и регистрации интегрального сигнала шума в зависимости от её ориентации [60]. На рисунке 9д представлены соответствующие теоретические зависимости для случаев (а, б, г). При пропускании через четвертьволновую пластинку света от излучателя с распределением (а) он становится аналогичен излучению с распределением (в), поэтому может быть зарегистрирован вращением непосредственно балансного фотоприёмника.

Таким образом, в некоторых случаях возможно выявить *скрытую поляризацию* излучателя, что может помочь в интерпретации микроскопических механизмов формирования излучающей среды. Мы воспользовались этим для исследования поляритонного лазера до и после порога генерации лазерного света [61]. Излучение поляритонных лазеров создаётся ансамблем квазичас-

тиц экситон-поляритонов, формирующихся в полупроводниковых гетероструктурах под воздействием оптической накачки [62] или прямой электрической инжекции [63]. Частицы быстро накапливаются в одном из квантовых состояний нижней по энергии дисперсионной ветки экситонных поляритонов благодаря эффекту бозонной стимуляции [64]. Вследствие данного эффекта вероятность, а следовательно, и скорость перехода в состояние тем выше, чем больше частиц в нём уже находится. Рекомбинация экситон-поляритонов из сформированного таким образом бозонного конденсата, энергия и волновой вектор которого хорошо определены, приводит к испусканию света, соответствующего всем характеристикам лазерного излучения: оно когерентно, монохроматично, канализовано и поляризовано, при этом являясь спонтанным. Для ССФ указанные объекты представляют интерес, так как теория предсказывает возникновение гигантского поляризационного шума излучения [65]. Природа такого шума связана непосредственно со стохастическим процессом формирования конденсата, с одной стороны, и с эффектом бозонной стимуляции — с другой. Кроме того, как показано в [66], полную степень поляризации излучения поляритонного лазера, т.е. квадратный корень из суммы квадратов степеней линейной, диагональной и циркулярной поляризации, можно рассматривать как параметр порядка перехода от некогерентного газа экситонных поляритонов к бозонному конденсату. Таким образом, формирование поляритонного конденсата всегда сопровождается резким ростом степени поляризации света, излучённого микрорезонатором. В общем случае поляризация излучения поляритонного лазера случайна [64], однако часто имеет место пиннинг поляризации к одной из кристаллографических осей [67]. Такой пиннинг может быть вызван лёгкой оптической анизотропией брэгговских зеркал, образующих микрорезонатор. В случае отсутствия пиннинга усреднённая по времени или по ансамблю возбуждающих импульсов степень поляризации поляритонного конденсата может быть близка к нулю, в то время как его мгновенная полная поляризация может достигать 80–90 % [68]. Столь необычное поведение поляризации излучённого света отличает поляритонный лазер от обычных полупроводниковых лазеров. Спектроскопия спинового шума является методом, способным выявить и характеризовать данную особенность поляритонного лазера [65].

В качестве образца использовался высокодобротный микрорезонатор на основе GaAs, содержащий четыре набора из трёх квантовых ям, расположенных в пучностях резонатора [69]. Нерезонансная накачка, спектрально настроенная выше стоп-зоны зеркала, создавала резервуар горячих экситонов, которые затем релаксировали и высвечивались через фотонную моду резонатора (вставка на рис. 10а). Схема эксперимента представлена на рис. 10а. Накачка 1, отражённая от микроэлектромеханической матрицы зеркал 2, фокусировалась на образец 3 объективом 4. Свет, испускаемый образцом вдоль направления его эпитаксиального роста, фильтровался от рассеянного света накачки элементом 5 (например, дифракционной решёткой или полосовым фильтром). Затем пучок направлялся на стандартную схему ССФ 6 для регистрации флуктуаций поворота плоскости поляризации.

Сначала был проведён ряд экспериментов при гауссовом профиле пучка накачки, в результате которых было

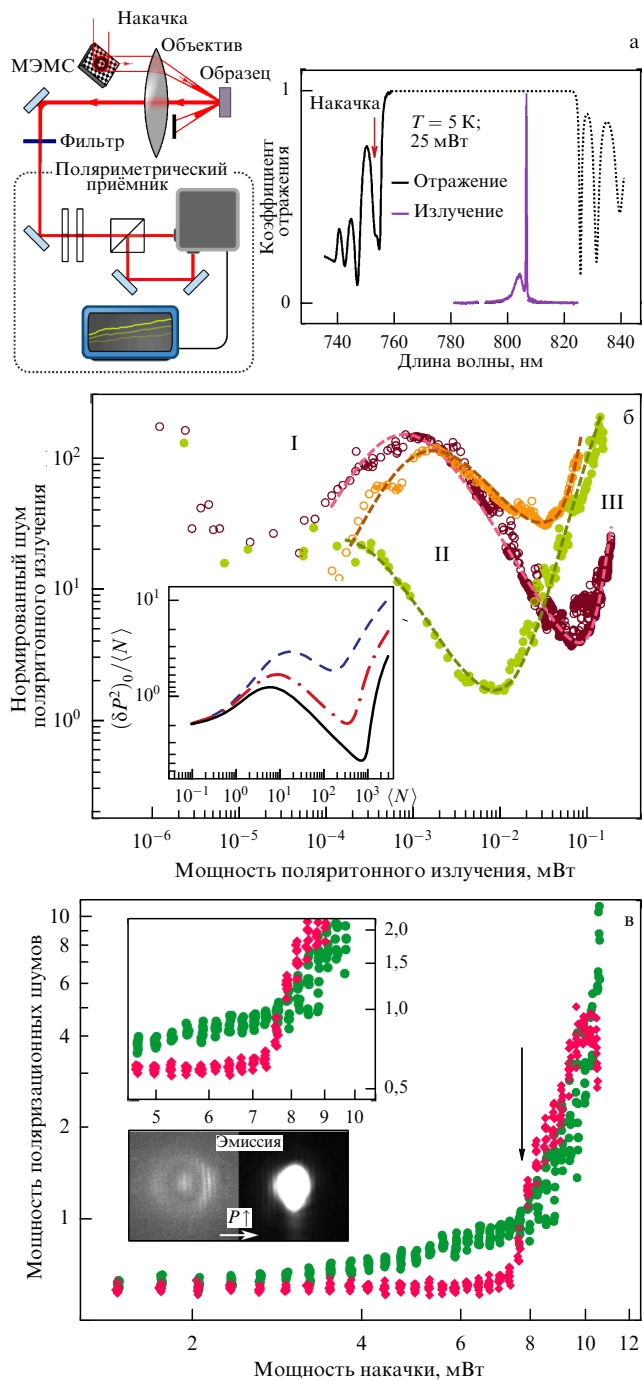


Рис. 10. (а) Установка по регистрации шумов эмиссии поляритонного лазера в оптической ловушке. (б) Зависимость нормированного интеграла флуктуаций вращения плоскости поляризации испущенного света от его мощности (вставка — примеры теоретического расчёта зависимости). (в) Зависимость интеграла флуктуаций вращения плоскости поляризации (круги) и эллиптичности (ромбы) от мощности накачки в случае кольцевой ловушки (вставка — увеличенный фрагмент зависимости в области порога генерации, указан стрелкой).

получено несколько важных результатов. Во-первых, излучение действительно характеризовалось избыточными поляризационными и интенсивностными шумами, во много раз превышавшими уровень дробовых флуктуаций. Наблюдаемый спектр плотности мощности флуктуаций был "белым" в области частот, доступных для регистрации, при любых условиях эксперимента, поэтому регистрировался суммарный сигнал в некоторой

ограниченной полосе частот (до 100 МГц). Данная величина записывалась в зависимости от мощности накачки или мощности излучённого света, причём динамический диапазон её изменений оказался более чем на два порядка шире, чем диапазон изменения полной мощности света¹⁰, что говорит об очень высокой чувствительности техники ССФ к изменениям в изучаемой поляритонной системе. Кроме того, зависимость нормированных¹¹ флуктуаций поворота плоскости поляризации от мощности излучённого света оказалась существенно немонотонной: сначала флуктуации растут (участок I на рис. 10б), затем снижаются (участок II) и после этого снова нарастают (участок III). В работе [61] установлена следующая пропорциональность флуктуаций поляризации P , нормированных на среднее число частиц в основном поляритонном состоянии $\langle N \rangle$:

$$\frac{(\delta P^2)_0}{\langle N \rangle} \propto \frac{\langle N \rangle}{\Gamma_0 + |\alpha| \langle N \rangle^{3/2}}, \quad (23)$$

где Γ_0 — скорость рекомбинации поляритонов в линейном режиме, α — эффективная константа поляритон-поляритонного взаимодействия поляритонов с параллельными спинами, в свою очередь зависящая от скорости затухания флуктуаций числа частиц в основном состоянии (см. [61]). На начальном участке I шум растёт за счёт уменьшения скорости затухания флуктуаций в результате бозе-стимуляции и соответствующего уменьшения первого члена в знаменателе уравнения (23). Когда поляритон-поляритонное взаимодействие увеличивается, начинает доминировать второй член в знаменателе и нормированный поляризационный шум уменьшается, что соответствует участку II. Нарастание на последнем участке III, по-видимому, свидетельствует о потере режима сильной связи и переходе в режим классического лазера.

В случае, когда образец поляритонного лазера характеризуется двулучепреломлением вследствие напряжений или дефектов структуры, испущенный свет имеет некоторую преимущественную поляризацию (благодаря упомянутому выше эффекту пиннинга поляризации [67]). Однако в случае высокого качества структуры и отсутствия в ней выделенных направлений свет может быть практически полностью деполаризованным в статическом смысле, но характеризоваться поляризационными флуктуациями, подобными рассмотренным выше. Действительно, в эксперименте с такими образцами было установлено [60], что состав их неполяризованного излучения близок к распределению случайных эмиттеров по экватору сферы Пуанкаре (рис. 9а). Эти измерения были выполнены при гауссовой форме пучка накачки.

Изменение пространственного профиля пучка накачки позволяет создавать оптические ловушки для конденсата благодаря возникающему пространственному гра-

¹⁰ В экспериментах по исследованию поляритонных лазеров кривая зависимости мощности излучаемого света от мощности накачки часто используется для определения положения порога лазерной генерации (например, [70]).

¹¹ При измерении спектров спиновых шумов света изменяющейся интенсивности почти всегда целесообразно нормировать результат измерения на мощность падающего на детектор пучка, так как это позволяет напрямую сравнивать между собой результаты измерений, а также исключить из рассмотрения подставку дробовых шумов света, всегда линейно зависящую от интенсивности света на приёмнике.

диенту энергии поляритонов — в области более высокой плотности мощности возникает голубой сдвиг экситон-поляритонных уровней, что приводит к накоплению квазичастиц в локальных минимумах потенциала. Варьируя форму и размер таких ловушек, можно существенно менять режим излучения возникающего конденсата [71, 72]. В работе [73] методом ССФ исследовались зависимости флуктуаций вращения плоскости поляризации и эллиптичности излучения конденсатов в ловушках разной формы. Общей и наиболее значимой особенностью наблюдаемых сигналов (рис. 10в) являлась существенно различная их зависимость от мощности накачки. Флуктуации вращения плоскости поляризации возникают в излучении задолго до достижения порога лазерной поляритонной генерации (отмечен стрелкой), в то время как флуктуации эллиптичности резко возникают после порога и значительно усиливаются при увеличении мощности накачки, начиная преобладать над шумами вращения. Описанный эффект можно интерпретировать следующим образом. В невозмущённом образце присутствуют небольшие механические напряжения из-за рассогласования решёток материалов, образующих гетероструктуру. Величина такой анизотропии недостаточна, чтобы вызвать пиннинг поляризации излучаемого света, тем не менее она подавляет эллиптическую поляризацию излучения и её флуктуации. Увеличение мощности накачки выше пороговой приводит к росту $\langle N \rangle$ и увеличению эффективного магнитного поля, возникающего в результате спин-зависимых поляритон-поляритонных взаимодействий [74]. В силу их сильной спиновой анизотропии флуктуации разности населённостей между циркулярно поляризованными компонентами конденсата вызывают вращение его псевдоспина. Данный эффект носит название самоиндуцированной ларморовской прецессии псевдоспина и рассмотрен детально в работе [73]. Отметим, что в терминах распределения эмиттеров по сфере Пуанкаре это соответствует переходу от конфигурации (а) при допороговых мощностях накачки к распределению (б) за порогом.

Таким образом, ССФ является методом, способным выявить и характеризовать скрытую поляризацию излучения. Эта способность оказывается чрезвычайно важной для исследований поляритонного лазера. Чувствительность метода особенно высока в полупроводниковых микрорезонаторах высокой добротности, где сигнал спинового шума усиливается за счёт многократной циркуляции света между зеркалами [16]. В частности, спектроскопия спинового шума позволяет выявить "скрытую" мгновенную поляризацию поляритонного конденсата в тех случаях, когда усреднённая по времени поляризация конденсата близка к нулю [60].

4. Спектроскопия спиновых флуктуаций с точки зрения теории рассеяния

4.1. Выражение для сигнала, регистрируемого в спектроскопии спиновых флуктуаций

В предыдущих разделах при описании экспериментов по ССФ и при проведении численных оценок мы неявно предполагали, что исследуемый образец можно считать однородным *ротатором*¹², поворачивающим плоскость

поляризации зондирующего пучка на случайный угол $\delta\phi$, представимый суммой вкладов от N частиц образца, попадающих в зондирующий пучок: $\delta\phi = \sum_{i=1}^N \delta\phi_i$, $\delta\phi_i \equiv \kappa\mu_i$ (см. раздел 2). Такое предположение нуждается в обосновании, поскольку ясно, что наблюдаемые в ССФ шумовые сигналы в общем случае являются результатом *рассеяния* зондирующего пучка на образце, оптическая восприимчивость которого неоднородна в пространстве и флуктуирует во времени. Поясним механизм образования шумовых сигналов в ССФ с этой точки зрения.

В ССФ наблюдаются флуктуации оптической восприимчивости, вызванные случайной прецессией магнитных моментов частиц образца на ларморовской частоте $\Omega_L = g\beta B/\hbar$ и приводящие к появлению в спектре рассеянного излучения компонент с частотами $\omega \pm \Omega_L$ (эффект комбинационного, или рамановского, рассеяния с переворотом спина). В актуальном для нас случае слабого рассеяния оптическое поле на входе поляриметрического приёмника (см. рис. 1), можно считать суммой полей зондирующего пучка и поля рассеяния. Интерференция зондирующего поля и смещённых по частоте на $\pm\Omega_L$ компонент рассеянного поля сопровождается биениями интенсивности на частоте Ω_L (эффект гетеродинамирования). Этот эффект приводит к появлению в выходном токе фотодетекторов 7 спектральной компоненты на частоте Ω_L ¹³, которая и регистрируется в ССФ как поляриметрический шум, спектрально локализованный на данной частоте. Отметим, что для наблюдения упомянутых биений перед фотодетекторами необходимо установить поляризационный светоделитель b (см. рис. 1), поскольку биения интенсивности возникают только при интерференции одинаково поляризованных полей, а, как мы увидим ниже, поляризация рассеянного и зондирующего полей может быть различной. Из приведённого рассмотрения видно, что ССФ представляет собой, по сути, гетеродинную регистрацию комбинационного рассеяния, на что было указано в работе [75].

Прежде чем переходить к расчёту рассеянного поля, о котором говорилось выше, опишем количественную модель поляриметрического приёмника рис. 1 и приведём формулы для вычисления его выходного сигнала. Мы приведём эти формулы для случая, когда поляриметрический приёмник работает в режиме регистрации фарадеевского вращения (т.е. в качестве 5 выступает полуволновая фазовая пластинка). Введём систему координат, ось z которой направлена по магнитному полю (в геометрии Фойхта), ось y параллельна зондирующему пучку (см. рис. 1), а плоскость zx параллельна плоскостям fotocувствительных поверхностей фотодетекторов 7. Будем считать, что главные направления поляризационного делителя b развёрнуты на угол ϕ по отношению к осям z и x указанной системы координат¹⁴. Обозначим через E комплексное оптическое поле, которое *действовало бы* на нижний (верхний) фотодетектор в случае, когда поляризационный делитель b удалён из приёмника (заменён зеркалом, направляющим излучение в верхний фотодетектор); причём физический смысл

¹³ Поскольку фотодетекторы 7 поляриметрического приёмника являются квадратичными — их выходной ток пропорционален *интенсивности* поля на fotocувствительных поверхностях.

¹⁴ При закреплённом поляризационном делителе b угол ϕ можно менять, вращая фазовую пластинку 5, которая в этом случае выбирается полуволновой.

¹² То есть фрагментом однородной среды, обладающей циркулярным двулучепреломлением или *гиротропией*.

будем придавать вещественной части \mathbf{E} , которую обозначим каллиграфической буквой $\mathcal{E} \equiv \text{Re } \mathbf{E}$. Тогда фототок, например, нижнего фотодетектора с точностью до несущественного для нас сейчас коэффициента определяется следующим интегралом:

$$T^{-1} \int_0^T dt \int_S dx dz \mathcal{E}^2,$$

где S — фоточувствительная поверхность фотодетектора, а усреднение по времени t производится по промежутку T , содержащему большое число оптических периодов $2\pi/\omega$ и малому по сравнению с характерным временем изменения поляриметрического сигнала — в нашем случае это период ларморовой прецессии: $2\pi/\omega \ll T \ll 2\pi/\Omega_L$. Наличие в схеме поляризационного делителя γ приводит к тому, что на каждый из фотодетекторов попадает какая-то одна из проекций $\mathcal{E}_{x,z}$ введённого выше поля \mathcal{E} , причём благодаря мостовой схеме включения фотодетекторов выходной сигнал U определяется разностью их фототоков. Имея всё это в виду, можно получить для сигнала U следующее выражение:

$$U = \frac{1}{T} \int_0^T dt \int_S dx dz [\cos [2\phi](\mathcal{E}_x^2 - \mathcal{E}_z^2) - 2 \sin [2\phi] \mathcal{E}_x \mathcal{E}_z], \quad (24)$$

где $\mathcal{E}_{x,z} \equiv \text{Re } E_{x,z}$.

В соответствии со сказанным выше комплексное поле \mathbf{E} может быть представлено как $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 + \mathbf{E}_1$, где \mathbf{E}_0 — поле зондирующего пучка, а \mathbf{E}_1 — поле, рассеянное образцом. В экспериментах по ССФ регистрируется только часть δU выходного сигнала поляриметрического приёмника, пропорциональная \mathbf{E}_1 . Для указанной части с помощью формулы (24) можно получить выражение

$$\delta U = \frac{2}{T} \int_0^T dt \int_S dx dz \{ \cos [2\phi](\mathcal{E}_{0x}\mathcal{E}_{1x} - \mathcal{E}_{0z}\mathcal{E}_{1z}) - \sin [2\phi](\mathcal{E}_{0x}\mathcal{E}_{1z} + \mathcal{E}_{0z}\mathcal{E}_{1x}) \}, \quad (25)$$

где $\mathcal{E}_{0x,z} \equiv \text{Re } E_{0x,z}$ и $\mathcal{E}_{1x,z} \equiv \text{Re } E_{1x,z}$. Перейдём к вычислению поля рассеяния \mathbf{E}_1 , входящего в эту формулу.

4.2. Расчёт поля рассеяния

Расчёт поля рассеяния \mathbf{E}_1 проведём при следующих упрощающих допущениях:

1) наблюдаемый в эксперименте по ССФ поляриметрический шум порождается совокупностью некоторых частиц (атомов, ионов), попадающих в зондирующий пучок;

2) оптическое поле, действующее на каждую частицу, можно считать равным полю зондирующего пучка, которое предполагается известным (приближение однократного рассеяния и отсутствие самодействия);

3) оптический отклик каждой частицы может быть рассчитан в линейном приближении.

При использовании указанных допущений вычисление δU сводится к нахождению вклада в поляриметрический сигнал какой-либо *одной* частицы и суммированию по всем частицам, попадающим в зондирующий пучок. Найдём поле рассеяния одной частицы (сохраним для этого поля обозначение \mathbf{E}_1) и вычислим по формуле (25) вклад δu_r этой частицы в поляриметрический сигнал. Будем считать, что частица имеет радиус-вектор \mathbf{R} (см. рис. 1) и представляет собой точечный диполь, совер-

шающий вынужденные колебания в поле зондирующего пучка \mathbf{E}_0 . Распределение поляризации, создаваемое такой частицей в пространстве, имеет вид

$$\mathbf{P}(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{R}-\mathbf{r}) \begin{pmatrix} \langle d_x \rangle \\ \langle d_y \rangle \\ \langle d_z \rangle \end{pmatrix} \exp(-i\omega t), \quad (26)$$

где $\langle d_{x,y,z} \rangle$ — проекции амплитуд колебаний дипольного момента рассматриваемой частицы. Искомое поле \mathbf{E}_1 представляет собой поле излучения точечного диполя и может быть найдено решением неоднородного уравнения Гельмгольца

$$\Delta \mathbf{E}_1 + k^2 \mathbf{E}_1 = -4\pi k^2 \mathbf{P}, \quad k \equiv \frac{\omega}{c}. \quad (27)$$

Поскольку нас интересует излучение частицы в направлении оси y (образец смещён по отношению к поляриметрическому приёмнику именно в этом направлении, см. рис. 1) мы опустили в правой части уравнения (27) член $-4\pi \nabla \text{div } \mathbf{P}$ — прямая проверка показывает, что в рассматриваемой геометрии регистрации рассеянного поля \mathbf{E}_1 им можно пренебречь¹⁵. По той же причине в выражении (26) для поляризации можно опустить компоненту $\langle d_y \rangle$ — излучение диполя в направлении оси y связано только с компонентами, ортогональными данной оси.

Уравнение (27) выводится в предположении, что зависимость от времени всех входящих в него полей является гармонической, $\sim \exp(-i\omega t)$. Мы будем пользоваться этим уравнением и тогда, когда *амплитуда* колебаний поля поляризации $\mathbf{P}(\mathbf{r})$ испытывает медленную (по сравнению с частотой оптических колебаний ω) модуляцию на частоте спиновой прецессии $\Omega_L \ll \omega$. Решение уравнения (27) может быть получено с помощью функции Грина оператора Гельмгольца $\Gamma(\mathbf{r}) = -\exp(ikr)/4\pi r$, удовлетворяющей уравнению $\Delta \Gamma(\mathbf{r}) + k^2 \Gamma(\mathbf{r}) = \delta(\mathbf{r})$:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_1(\mathbf{r}) &= -4\pi k^2 \int d^3 \mathbf{r}' \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \mathbf{P}(\mathbf{r}') = \\ &= k^2 \int d^3 \mathbf{r}' \frac{\exp(ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \mathbf{P}(\mathbf{r}'). \end{aligned} \quad (28)$$

Вспомня, что $\mathcal{E}_1 = \text{Re } \mathbf{E}_1$, и подставляя (28) в (25), получаем для вклада δu_r одной частицы в регистрируемый сигнал следующее выражение:

$$\begin{aligned} \delta u_r &= \frac{2k^2}{T} \text{Re} \int_0^T dt \int d^3 \mathbf{r}' \{ \cos [2\phi] (\Phi_x(\mathbf{r}') P_x(\mathbf{r}') - \\ &\quad - \Phi_z(\mathbf{r}') P_z(\mathbf{r}')) - \sin [2\phi] (\Phi_x(\mathbf{r}') P_z(\mathbf{r}') + \Phi_z(\mathbf{r}') P_x(\mathbf{r}')) \}, \end{aligned} \quad (29)$$

где

$$\begin{aligned} \Phi_i(\mathbf{r}') &\equiv \int_S dx dz \mathcal{E}_{0i}(x, y, z, t) \frac{\exp(ik|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|)}{|\mathbf{r}-\mathbf{r}'|} \Big|_{y=L} \equiv \\ &\equiv \Phi_i^+(\mathbf{r}') \exp(-i\omega t) + \Phi_i^-(\mathbf{r}') \exp(i\omega t), \quad i = x, z. \end{aligned} \quad (30)$$

Здесь $\mathbf{r} \equiv (x, y, z)$, а L определяет положение плоскости поверхностей S фотодетекторов, по которым идёт интегрирование в (25) (см. рис. 1). Поляризация $\mathbf{P}(\mathbf{r}')$ (26) зависит от времени как $\exp(-i\omega t)$, поэтому после усред-

¹⁵ Наличие такого члена вытекает из уравнений Максвелла.

нения по времени в выражение для регистрируемого сигнала войдёт только компонента Φ_i^- функции Φ_i . Мы приведём результат вычисления этой компоненты для случая, когда зондирующим пучком является линейно поляризованный гауссов пучок с азимутом поляризации θ , распространяющийся в направлении оси y и имеющий перетяжку при $y = 0$. Комплексное электрическое поле такого пучка имеет вид [25]

$$\mathbf{E}_0(\mathbf{r}) = \exp[i(ky - \omega t)] \sqrt{\frac{8W}{c}} \frac{kQ}{2k + iQ^2y} \times \\ \times \exp\left[-\frac{kQ^2(x^2 + z^2)}{2(2k + iQ^2y)}\right] \mathbf{D} \equiv \mathcal{A}_0(\mathbf{r}) \mathbf{D} \exp(-i\omega t), \\ \mathbf{D} = \begin{pmatrix} \sin \theta \\ 0 \\ \cos \theta \end{pmatrix}, \quad (31)$$

здесь $\mathbf{r} = (x, y, z)$, а параметр Q определяется как $Q \equiv 2/\rho_c$, где ρ_c — радиус пучка по e -уровню поля в перетяжке (каустики). Поляризация пучка определяется единичным вектором Джонса \mathbf{D} , имеющим в данном случае только x и z компоненты¹⁶. Приведённый в приложении расчёт компонент Φ_i^- для гауссова пучка (31) приводит к следующему результату [58]:

$$\begin{pmatrix} \Phi_x^-(\mathbf{r}') \\ \Phi_z^-(\mathbf{r}') \end{pmatrix} = -\mathbf{D} \frac{i\pi}{k} \mathcal{A}_0^*(\mathbf{r}'), \quad |\mathbf{r}'| \ll L, \quad (32)$$

где $\mathcal{A}_0^*(\mathbf{r}')$ определяется формулой (31). Подставляя (26) и (32) в формулу (29), получаем следующее выражение для вклада рассматриваемой частицы в поляриметрический сигнал: $\delta u_r = 2\pi k \operatorname{Im} \mathcal{A}^*(\mathbf{R})\{\langle d_x \rangle \sin[\theta - 2\phi] - \langle d_z \rangle \cos[\theta - 2\phi]\}$.

В проделанном выше расчёте мы считали, что поляриметрический приёмник работает в режиме регистрации фарадеевского вращения, когда \mathcal{E} на рис. 1 — полуволновая фазовая пластинка, причём её вращение соответствует изменению угла ϕ . Примем теперь во внимание, что в реальном эксперименте для компенсации избыточных шумов зондирующего пучка поляриметрический приёмник всегда *балансируется*, для чего угол ϕ выбирается таким, что выходной сигнал U приёмника, засвеченного только зондирующим пучком \mathbf{E}_0 , обращается в нуль¹⁷. Если, как мы и считали выше, зондирующий пучок линейно поляризован, то это означает, что $\phi = \theta + \pi/4$ (см. формулу (24), в которой $\mathcal{E} \rightarrow \mathbf{E}_0$, определённое в (31)), и, следовательно, сигнал фарадеевского вращения от одной частицы, регистрируемый сбалансированным приёмником, определяется выражением $\delta u_r = 2\pi k \operatorname{Im} \mathcal{A}^*(\mathbf{R})[\langle d_z \rangle \sin \theta - \langle d_x \rangle \cos \theta]$.

Рассмотрим теперь случай, когда поляриметрический приёмник работает в режиме регистрации эллиптичности. Для перехода в этот режим в качестве \mathcal{E} устанавливается четвертьволновая фазовая пластинка, которая ориентируется так, что её оси образуют угол $\pi/4$ с главными направлениями поляризационного делителя \mathcal{E} . Можно проверить, что при произвольно ориентированном *линейно* поляризованном входном оптическом пучке выходной сигнал приёмника, работающего в этом режиме, равен нулю и появляется, только если поляриза-

ция входного пучка становится эллиптической. В результате расчёта, аналогичного приведённому выше, получается, что выражение для сигнала эллиптичности от одной частицы (обозначим его δu_e) отличается от выражения для δu_r только заменой символа Im на символ Re . Таким образом, сигналы δu_r и δu_e могут быть компактно представлены как мнимая и вещественная части одного комплексного сигнала δu , определяемого соотношением

$$\delta u = \delta u_e + i\delta u_r = 2\pi k \mathcal{A}^*(\mathbf{R})(\langle d_z \rangle \sin \theta - \langle d_x \rangle \cos \theta) = \\ = 2\pi k \mathcal{A}^*(\mathbf{R})[\mathbf{d} \times \mathbf{D}]_y. \quad (33)$$

В соответствии с принятыми выше допущениями, вектор \mathbf{d} амплитуды дипольного момента частицы может быть выражен через амплитуду напряжённости поля зондирующего пучка с помощью тензора поляризуемости α рассматриваемой частицы (атома, иона): $d_i = \mathcal{A}(\mathbf{R})\alpha_{ik}D_k$. В условиях типового эксперимента по ССФ частицы исследуемого образца не возбуждаются никаким внешним воздействием и находятся в квантовом состоянии, являющемся случайной линейной комбинацией расщеплённых магнитным полем стационарных состояний. Такое *суперпозиционное* состояние нестационарно и обязательно зависит от времени, причём характерные частоты данной зависимости определяются частотами упомянутых магнитных расщеплений. Это, в свою очередь, приводит к временной зависимости тензора α и регистрируемого в ССФ поляриметрического сигнала δu .

Как видно, вычисление временной зависимости поляриметрического сигнала сводится к вычислению нестационарной восприимчивости (тензора поляризуемости) частиц образца, находящихся в суперпозиционном состоянии. Общий характер подобных расчётов иллюстрирует случай, когда такими частицами являются атомы, у которых основной энергетический уровень в нулевом магнитном поле представляет собой мультиплет с полным моментом F (т.е. $2F + 1$ вырожденных при $\mathbf{B} = 0$ состояний $|M\rangle$ с проекцией $\hbar M$ момента на ось z , причём $M = -F, 1 - F, \dots, F$). Выделим из указанных атомов какой-либо один и рассмотрим его в тот момент времени, когда он влетает в зондирующий пучок (пусть этот момент $t = 0$). Будем считать, что энергетическое расстояние до ближайшего возбуждённого состояния рассматриваемого атома настолько велико, что атомная волновая функция $|\Psi(t = 0)\rangle = |\Psi(0)\rangle$ может быть представлена линейной комбинацией состояний *только* указанного мультиплета $|\Psi(0)\rangle = \sum_{M=-F}^F C_M(0)|M\rangle$, где $C_M(0)$ — случайные комплексные числа, причём $\sum_{M=-F}^F |C_M(0)|^2 = 1$. Матрица H_B гамильтониана взаимодействия атома с внешним магнитным полем \mathbf{B} в представлении волновых функций основного атомного мультиплета $|M\rangle$, $M = -F, \dots, F$ имеет вид $H_B = \hbar^{-1}g_L\beta(\mathbf{B}, \mathbf{J}) \equiv (\Omega_L, \mathbf{J})$, где $J_{x,y,z}$ — известные матрицы операторов проекции момента [76], а g_L — фактор Ланде рассматриваемого мультиплета. Атомная волновая функция удовлетворяет уравнению Шрёдингера $i\Psi = H_B\Psi$, поэтому $\Psi(t) = \exp(-iH_B t)\Psi(0)$. Поскольку оператор $\exp(-iH_B t) = \exp(-(\Omega_L, \mathbf{J})t)$ является оператором пространственного поворота вокруг вектора Ω_L на угол $\Omega_L t$ [76], динамика волновой функции в нашем случае представляет собой её пространственное вращение вокруг направления магнитного поля с ларморовой частотой Ω_L . Такое же вращение испытывают и все величины, связанные с волновой функцией. Например, вектор магнитного момента

¹⁶ Это следствие поперечности электромагнитной волны. Изменением поляризации на краях пучка мы пренебрегаем.

¹⁷ В этом случае появление выходного сигнала связано с рассеянным полем \mathbf{E}_1 .

атома $\mu = g_L \beta \langle \Psi | \mathbf{J} | \Psi \rangle$ вращается вокруг магнитного поля с ларморовой частотой. Интересующий нас тензор поляризуемости атома α в теории линейного отклика также определяется атомной волновой функцией $|\Psi(t)\rangle$ (или соответствующей матрицей плотности). Поэтому при описанном выше изменении атомной волновой функции тензор атомной поляризуемости испытывает преобразование, эквивалентное вращению системы координат вокруг магнитного поля с ларморовой частотой. С некоторыми упрощениями это преобразование можно представить себе нижеследующим образом.

Если исследуемая атомная система прозрачна для зондирующего пучка, то тензор α можно в разумном приближении считать эрмитовым $\alpha_{ik} = \alpha_{ki}^*$ и записать в виде суммы вещественной симметричной и мнимой антисимметричной частей $\alpha = \alpha^s + \alpha^a$, где $\alpha_{ik}^{s(a)} \equiv [\alpha_{ik} + (-)\alpha_{ki}]/2$. С помощью символа Леви – Чевиты ε_{ikj} мнимой антисимметричной части α^a может быть сопоставлен вещественный вектор *гирации* [77] \mathbf{G} : $\alpha_{ik}^a = i\varepsilon_{ikj} G_j$. Вещественный тензор α^s может быть полностью описан своими главными значениями и положением главных осей. С использованием приведённых упрощений динамику тензора атомной поляризуемости, о которой шла речь выше, можно представить вращением вектора гирации \mathbf{G} и главных осей тензора α^s вокруг магнитного поля с ларморовой частотой Ω_L . Отметим здесь, что поскольку все векторы, определяемые суперпозиционной волновой функцией мультиплета с заданным полным моментом, пропорциональны друг другу, введённый выше вектор гирации \mathbf{G} пропорционален вектору намагниченности μ , которым мы пользовались в предыдущих разделах для описания вкладов частиц образца в сигнал фарадеевского вращения.

Записанная в терминах симметричного тензора α^s и вектора гирации \mathbf{G} , формула (33) принимает вид

$$\delta u = 2\pi k |\mathcal{A}(\mathbf{R})|^2 ([\alpha^s \mathbf{D} \times \mathbf{D}]_y + iG_y) = 2\pi k |\mathcal{A}(\mathbf{R})|^2 \times \left[\frac{\alpha_{zz}^s - \alpha_{xx}^s}{2} \sin(2\theta) - \alpha_{zx}^s \cos(2\theta) + iG_y \right]. \quad (34)$$

4.3. Базовые конфигурации эксперимента

С помощью приведённой формулы проанализируем две базовые геометрии эксперимента по оптическому детектированию спиновых флуктуаций.

В первой из них, геометрии Фойхта (типичной для ССФ), наблюдаются шумы фарадеевского вращения, причём магнитное поле ориентировано по оси z перпендикулярно зондирующему пучку (см. рис. 1). При такой постановке эксперимента от каждой частицы регистрируется только мнимая часть поляриметрического сигнала $\delta u_r = 2\pi k |\mathcal{A}(\mathbf{R})|^2 G_y(t)$, связанная с y -проекцией вектора гирации. Поскольку в данном случае вектор гирации каждой частицы вращается вокруг оси z с ларморовой частотой Ω_L , его проекция G_y совершает гармонические колебания на той же частоте. Поэтому наблюдаемый в указанной геометрии шум фарадеевского вращения будет спектрально локализован на ларморовой частоте Ω_L . Как было отмечено выше, вектор гирации пропорционален вектору намагниченности, использованному в предыдущих разделах для описания подобного эксперимента, поэтому рассмотренный случай подтверждает приведённый в этих разделах анализ с точки зрения теории рассеяния.

Рассмотрим теперь альтернативную геометрию ССФ, называемую *геометрией Фарадея*, когда магнитное поле направлено параллельно зондирующему пучку, а поляриметрический приёмник работает в режиме регистрации эллиптичности. В этом случае от каждой частицы регистрируется только вещественная часть поляриметрического сигнала $\delta u_e = 2\pi k |\mathcal{A}(\mathbf{R})|^2 \times [\alpha^s(t) \mathbf{D} \times \mathbf{D}]_y$. Как было сказано выше, зависимость от времени тензора α^s соответствует вращению его главных осей вокруг оси y , по которой в данном случае направлено магнитное поле. Обозначим через $Y(\phi)$ матрицу преобразования координат при повороте координатной системы вокруг оси y на угол ϕ . Тогда $\alpha^s(t) = Y(-\Omega_L t) \alpha^s(0) Y(\Omega_L t)$. Поскольку y -проекция векторного произведения любых двух векторов \mathbf{A} и \mathbf{B} не меняется при таком преобразовании этих векторов: $[\mathbf{A} \times \mathbf{B}]_y = [Y(\Omega_L t) \mathbf{A} \times Y(\Omega_L t) \mathbf{B}]_y$, мы можем написать для регистрируемого сигнала эллиптичности δu_e следующую цепочку равенств:

$$\begin{aligned} \delta u_e &= 2\pi k |\mathcal{A}(\mathbf{R})|^2 [Y(-\Omega_L t) \alpha^s(0) Y(\Omega_L t) \mathbf{D} \times \mathbf{D}]_y = \\ &= 2\pi k |\mathcal{A}(\mathbf{R})|^2 [\alpha^s(0) Y(\Omega_L t) \mathbf{D} \times Y(\Omega_L t) \mathbf{D}]_y. \end{aligned} \quad (35)$$

Эта цепочка показывает, что преобразование тензора поляризуемости α^s в данном случае эквивалентно повороту вектора Джонса \mathbf{D} зондирующего пучка вокруг оси y на угол $\Omega_L t$. Такой поворот соответствует замене $\theta \rightarrow \theta + \Omega_L t$ в выражении (31) для вектора \mathbf{D} :

$$Y(\Omega_L t) \mathbf{D} = \begin{pmatrix} \sin[\theta + \Omega_L t] \\ 0 \\ \cos[\theta + \Omega_L t] \end{pmatrix}. \quad (36)$$

Таким образом, выражение для наблюдаемого в геометрии Фарадея поляриметрического сигнала δu_e можно получить, совершая в формуле (34) замену $\theta \rightarrow \theta + \Omega_L t$, $\alpha_{ik}^s \rightarrow \alpha_{ik}^s(0)$ и сохраняя только вещественную часть величины δu :

$$\begin{aligned} \delta u_e &= 2\pi k |\mathcal{A}(\mathbf{R})|^2 \left[\frac{\alpha_{zz}^s(0) - \alpha_{xx}^s(0)}{2} \sin[2(\theta + \Omega_L t)] - \right. \\ &\quad \left. - \alpha_{zx}^s(0) \cos[2(\theta + \Omega_L t)] \right]. \end{aligned} \quad (37)$$

Из последней формулы видно, что в геометрии Фарадея вклад каждой частицы осциллирует во времени на *удвоенной* ларморовой частоте $2\Omega_L$, вследствие чего шум эллиптичности, регистрируемый в данной геометрии, оказывается спектрально локализованным на частоте $2\Omega_L$, как это имело место в описанном в предыдущем разделе эксперименте [26].

Таким образом, упрощённую картину образования поляриметрических шумов, использованную в предыдущих разделах, удаётся обосновать с точки зрения теории рассеяния.

Заканчивая этот раздел, отметим, что регистрируемые в ССФ спектры мощности поляриметрического шума, строго говоря, определяются преобразованиями Фурье корреляционных функций $\langle \delta u_r(t) \delta u_r(0) \rangle$ и $\langle \delta u_e(t) \delta u_e(0) \rangle$, вычисление которых требует учёта релаксационных процессов и построения конкретной модели движения частиц образца через зондирующий пучок. Подобные расчёты выполнены в [25, 26].

5. Заключение

Спектроскопия спиновых флуктуаций представляет собой один из редких случаев прямого использования содержания флуктуационно-диссипационной теоремы, подразумевающего возможность извлечения спектра линейной восприимчивости системы из спектра её спонтанных шумов. Отчасти к шумовым измерениям подобного рода можно отнести исследования спектров люминесценции или других видов спонтанного свечения объектов. Однако лишь в двух методах спектроскопии: спектроскопии спиновых флуктуаций и спектроскопии ЭПР — эти два подхода сошлись в таком рафинированном виде. Экспериментальное сопоставление указанных подходов позволило впервые сравнить их возможности и обнаружить ряд любопытных особенностей шумовой техники магнитного резонанса. Разумеется, надо принимать во внимание, что шумовая методика в реализованном виде использует *оптический* метод детектирования намагниченности, существенно обогащающий её возможности. Успехи ССФ показали, что использование стохастических сигналов, несмотря на их статистически малую величину для макроскопических образцов (по сравнению с сигналами регулярного отклика), позволяет реализовать вполне практичный метод изучения спектра восприимчивости среды и её внутренней динамики.

Перспективность дальнейшего развития метода ССФ определяется многообразием возможностей его применения в радиоспектроскопических и оптических исследованиях парамагнитных сред, а также постоянно возрастающей ролью спиновых степеней свободы в устройствах современной фотоники и информатики. В последнее время круг объектов ССФ был существенно расширен — наряду с атомными и полупроводниковыми системами, которые уже можно назвать классическими объектами ССФ, в него вошли диэлектрики с примесными парамагнитными ионами, и была показана перспективность применения этой методики к объектам со слабо-разрешёнными оптическими переходами. Активно исследуются информационные возможности многолучевых методов ССФ. По мере дальнейшего развития данного научного направления и изучения его информационного потенциала всё более важную роль будут приобретать вопросы корректного теоретического описания формирования сигналов ССФ в средах с различной кинематикой носителей спина, при различных условиях зондирования среды и при различных конфигурациях измерительной установки. Именно поэтому в настоящем обзоре было уделено большое внимание строгому решению базовых задач ССФ в модели неупругого рассеяния света.

Благодарности. Обзор подготовлен при финансовой поддержке гранта Российского научного фонда № 21-72-10021. А.В. Кавокин выражает благодарность гранту СПбГУ № 95442589 за поддержку теоретических исследований, которые легли в основу раздела 3.9. Исследования галогенидных перовскитов, результаты которых изложены в разделе 3.4, выполнены при поддержке Министерства науки и высшего образования Российской Федерации в рамках Мегагранта № 075-15-2022-1112. Представленные экспериментальные результаты, за исключением результатов рис. 5, получены на стенде ресурсного центра "Нанопотоника" Научного парка СПбГУ.

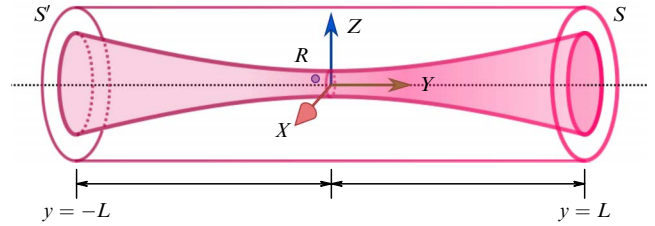


Рис. 11. Пояснения в тексте.

6. Приложение

Приведём расчёт функции Φ_i^- (формула (30)). Введём следующие вспомогательные функции: $\mathbf{F}(\mathbf{r}') \equiv \int_S dx dz \mathbf{E}_0(\mathbf{r}) \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \sim \exp(-i\omega t)$ и $\mathbf{P}(\mathbf{r}') \equiv \int_S dx dz \times \mathbf{E}_0^*(\mathbf{r}) \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{r}') \sim \exp(i\omega t)$, зависящие от времени, соответственно, как $\exp(-i\omega t)$ и как $\exp(i\omega t)$ (см. формулу (31)). Тогда нетрудно видеть, что $\Phi_x(\mathbf{r}') = -2\pi[F_x(\mathbf{r}') + P_x(\mathbf{r}')] \equiv -2\pi P_x(\mathbf{r}')$ и, следовательно, $\Phi_x^-(\mathbf{r}') \exp(i\omega t) = -2\pi P_x(\mathbf{r}')$. Для расчёта интеграла в выражении для $P_x(\mathbf{r}')$ используем формулу Кирхгофа для поля $\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})$:

$$\mathbf{E}_0^*(\mathbf{R}) = \int_{\partial V} \left[\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r}) \frac{\partial \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{R})}{\partial n} - \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{R}) \frac{\partial \mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})}{\partial n} \right] dS. \quad (38)$$

Здесь ∂V — произвольная замкнутая поверхность, окружающая точку \mathbf{R} , а символ $\partial/\partial n$ означает производную по нормали к поверхности ∂V . Будем для определённости считать, что фоточувствительная поверхность S фотоприёмников больше, чем "сечение" зондирующего гауссова пучка, и фотоприёмники "перехватывают" практически весь поток его энергии (напомним, что S находится в плоскости $y = L \gg |\mathbf{R}|$). Кроме того, будем считать, что размеры поверхности S (обозначим эти размеры символом \sqrt{S}) существенно меньше расстояния L от рассеивающей частицы до фотоприёмников: $\sqrt{S} \ll L$. Выберем теперь поверхность ∂V в виде цилиндра с осью, параллельной оси y , опирающегося справа на поверхность S ($y = L$), а слева — на симметричную ей относительно начала координат поверхность S' ($y = -L$) (рис. 11).

Поскольку зондирующий пучок находится внутри построенного таким образом цилиндра, интеграл в формуле Кирхгофа (38) можно вычислять только по поверхностям S и S' — на боковой поверхности цилиндра напряжённость поля зондирующего пучка пренебрежимо мала. Обе указанные поверхности перпендикулярны оси y и имеют противоположно направленные векторы нормалей, поэтому на поверхности S нормальная производная вычисляется как $\partial/\partial n \rightarrow \partial/\partial y$, а на поверхности S' — как $\partial/\partial n \rightarrow -\partial/\partial y$. Вычислим производную функции Грина $\partial \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{R})/\partial n$ на поверхности S (т.е. при $y = L$):

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{R})}{\partial n} \right|_S &= \frac{\partial \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{R})}{\partial y} = \frac{\partial \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{R})}{\partial |\mathbf{r}-\mathbf{R}|} \frac{\partial |\mathbf{r}-\mathbf{R}|}{\partial y} = \\ &= \frac{\partial \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{R})}{\partial |\mathbf{r}-\mathbf{R}|} \frac{y-R_y}{|\mathbf{r}-\mathbf{R}|} = \\ &= \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{R}) \left[ik - \underbrace{\frac{1}{|\mathbf{r}-\mathbf{R}|}}_{\approx L^{-1} \ll k} \right] \underbrace{\frac{L-R_y}{|\mathbf{r}-\mathbf{R}|}}_{\approx 1} \approx ik \Gamma(\mathbf{r}-\mathbf{R}). \end{aligned} \quad (39)$$

Использованные приближения оправданны, так как $R, \sqrt{S} \ll L$ ($R \equiv |\mathbf{R}|$) и, следовательно, $|L - R_y|, |\mathbf{r} - \mathbf{R}| \sim L$. Это позволяет в выражении в квадратных скобках пренебречь вторым слагаемым, поскольку $|\mathbf{r} - \mathbf{R}|^{-1} \sim L^{-1} \ll k = 2\pi/\lambda$. Кроме того, фактор $[y - R_y]/|\mathbf{r} - \mathbf{R}|$ при $r, y \gg R$ практически равен 1 на поверхности S . Аналогично вычисляется производная функции Грина $\partial\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R})/\partial n$ на поверхности S' (т.е. при $y = -L$):

$$\begin{aligned} \left. \frac{\partial\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R})}{\partial n} \right|_{S'} &= -\frac{\partial\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R})}{\partial y} = -\frac{\partial\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R})}{\partial|\mathbf{r} - \mathbf{R}|} \frac{\partial|\mathbf{r} - \mathbf{R}|}{\partial y} = \\ &= -\frac{\partial\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R})}{\partial|\mathbf{r} - \mathbf{R}|} \frac{y - R_y}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}|} = \\ &= -\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}) \left[ik - \underbrace{\frac{1}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}|}}_{\approx L^{-1} \ll k} \right] \underbrace{\frac{-L - R_y}{|\mathbf{r} - \mathbf{R}|}}_{\approx -1} \approx \\ &\approx ik\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}). \end{aligned} \quad (40)$$

Таким образом, получаем, что на обеих поверхностях S и S' имеет место соотношение

$$\left. \frac{\partial\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R})}{\partial n} \right|_S = ik\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}). \quad (41)$$

Переходим теперь к вычислению входящей в (38) производной $\partial\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})/\partial n$. Вычислим её сперва на поверхности S , где $\partial/\partial n = \partial/\partial y$. При этом в выражении для $\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})$, вытекающем из (31), учтём только первый экспоненциальный множитель — он зависит от y наиболее сильно. Зависимостью от y остальных факторов, описывающих распределение амплитуды колебаний поля в зондирующем пучке, можно пренебречь, если длина Рэлея пучка $\sim \rho_c^2/\lambda$ существенно превосходит длину волны λ (обычно так и бывает). Имея это в виду, получаем, что

$$\left. \frac{\partial\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})}{\partial n} \right|_S = \frac{\partial\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})}{\partial y} = -ik\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r}). \quad (42)$$

Аналогичный расчёт производной $\partial\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})/\partial n$ на поверхности S' приводит к выражению

$$\left. \frac{\partial\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})}{\partial n} \right|_{S'} = -\frac{\partial\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})}{\partial y} = ik\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r}). \quad (43)$$

Подставляя полученные соотношения в формулу (38), получаем

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_0^*(\mathbf{R}) &= \int_S \left[\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r}) \frac{\partial\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R})}{\partial n} - \Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}) \frac{\partial\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})}{\partial n} \right] dS + \\ &+ \underbrace{\int_{S'} \left[\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r}) \frac{\partial\Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R})}{\partial n} - \Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}) \frac{\partial\mathbf{E}_0^*(\mathbf{r})}{\partial n} \right] dS}_{=0} = \\ &= 2ik \int_S \mathbf{E}_0^*(\mathbf{r}) \Gamma(\mathbf{r} - \mathbf{R}) dS = 2ik \mathbf{P}(\mathbf{R}). \end{aligned} \quad (44)$$

Вспоминая, что $\Phi_\alpha^-(\mathbf{r}') \exp(i\omega t) = -2\pi P_\alpha(\mathbf{r}')$, получаем

$$\mathbf{E}_{0\alpha}^*(\mathbf{R}) = -\frac{ik}{\pi} \Phi_\alpha^-(\mathbf{R}) \exp(i\omega t), \quad (45)$$

откуда с помощью формулы (31) получается результат (32).

Список литературы

1. Kubo R. *Statistical Mechanics* (Amsterdam: North-Holland, 1965); Пер. на англ. яз.: Кубо Р. *Статистическая механика* (Пер. с англ. под ред. Н Д Зубарева) (М.: Мир, 1967)
2. Sleator T et al. *Phys. Rev. Lett.* **55** 1742 (1985)
3. Sleator T et al. *Phys. Rev. B* **36** 1969 (1987)
4. McCoy M A, Ernst R R. *Chem. Phys. Lett.* **159** 587 (1989)
5. Guéron M, Leroy J L J. *Magn. Reson.* 1969 **85** 209 (1989)
6. Müller N, Jerschow A. *Proc. Natl. Acad. Sci. USA* **103** 6790 (2006)
7. Александров Е Б, Запаский В С. *ЖЭТФ* **81** 132 (1981); Aleksandrov E B, Zapasskii V S. *Sov. Phys. JETP* **54** 64 (1981)
8. Müller G M et al. *Physica E* **43** 569 (2010)
9. Zapasskii V S. *Adv. Opt. Photon.* **5** 131 (2013)
10. Hübner J et al. *Phys. Status Solidi B* **251** 1824 (2014)
11. Sinitsyn N A, Pershin Yu V. *Rep. Prog. Phys.* **79** 106501 (2016)
12. Глазов М М. *ЖЭТФ* **149** 547 (2016); Glazov M M. *J. Exp. Theor. Phys.* **122** 472 (2016)
13. Запаский В С, Козлов Г Г. *УФН* **187** 675 (2017); Zapasskii V S, Kozlov G G. *Phys. Usp.* **60** 628 (2017)
14. Александров Е Б и др. *УФН* **140** 547 (1983); Aleksandrov E B et al. *Sov. Phys. Usp.* **26** 643 (1983)
15. Weil J A, Bolton J R. *Electron Paramagnetic Resonance: Elementary Theory and Practical Applications* 2nd ed. (Hoboken, NJ: Wiley-Interscience, 2007)
16. Poltavtsev S V et al. *Phys. Rev. B* **89** 081304 (2014)
17. Dahbashi R et al. *Phys. Rev. Lett.* **112** 156601 (2014)
18. Ryzhov I I et al. *Appl. Phys. Lett.* **106** 242405 (2015)
19. Ryzhov I I et al. *Sci. Rep.* **6** 21062 (2016)
20. Ryzhov I I et al. *J. Appl. Phys.* **117** 224305 (2015)
21. Mitsui T. *Phys. Rev. Lett.* **84** 5292 (2000)
22. Zapasskii V S et al. *Phys. Rev. Lett.* **110** 176601 (2013)
23. Yang L et al. *Nat. Commun.* **5** 4949 (2014)
24. Glazov M M, Zapasskii V S. *Opt. Express* **23** 11713 (2015)
25. Kozlov G G, Ryzhov I I, Zapasskii V S. *Phys. Rev. A* **95** 043810 (2017)
26. Fomin A A et al. *Phys. Rev. Res.* **2** 012008 (2020)
27. Kamenskii A N et al. *Phys. Rev. Res.* **2** 023317 (2020)
28. Смирнов Д С, Манцевич В Н, Глазов М М. *УФН* **191** 973 (2021); Smirnov D S, Mantsevich V N, Glazov M M. *Phys. Usp.* **64** 923 (2021)
29. Kamenskii A N et al. *Phys. Rev. B* **105** 014416 (2022)
30. Kozlov V O et al. *Phys. Rev. B* **107** 064427 (2023)
31. Запаский В С. *Журн. приклад. спектроскоп.* **37** 181 (1982); Zapasskii V S. *J. Appl. Spectrosc.* **37** 857 (1982)
32. Kozlov G G, Ryzhov I I, Zapasskii V S. *Phys. Rev. A* **97** 013848 (2018)
33. Харкевич А А. *Спектры и анализ* (М.: Либроком, 2009); Пер. на англ. яз.: Kharkevich A A. *Spectra and Analysis* (New York: Consultants Bureau, 1960)
34. Forrester A T, Gudmundsen R A, Johnson P O. *Phys. Rev.* **99** 1691 (1955)
35. Abragam A. *The Principles of Nuclear Magnetism* (Oxford: Clarendon Press, 1961); Пер. на русск. яз.: Абрагам А. *Ядерный магнетизм* (Пер. с англ. под ред. Г В Скряцкого) (М.: ИЛ, 1963)
36. Römer M, Hübner J, Oestreich M. *Rev. Sci. Instrum.* **78** 103903 (2007)
37. Römer M et al. *Phys. Rev. B* **81** 075216 (2010)
38. Crooker S A et al. *Phys. Rev. Lett.* **104** 036601 (2010)
39. Müller G M et al. *Appl. Phys. Lett.* **97** 192109 (2010)
40. Oestreich M et al. *Phys. Rev. Lett.* **95** 216603 (2005)
41. Weisbuch C, Vinter B. *Quantum Semiconductor Structures: Fundamentals and Applications* (Boston, MA: Academic Press, 1991)
42. Fleisher V G, Merkulov I A. "5. Optical orientation of the coupled electron-nuclear spin system of a semiconductor", in *Optical Orientation* (Modern Problems in Condensed Matter Sciences, Vol. 8, Eds F Meier, B P Zakharchenya) (Amsterdam: North-Holland, 1984) p. 173
43. van der Ziel J P, Pershan P S, Malmstrom L D. *Phys. Rev. Lett.* **15** 190 (1965)
44. Battiato M, Barbalinardo G, Oppeneer P M. *Phys. Rev. B* **89** 014413 (2014)

45. Buckingham A D, Stephens P J *Annu. Rev. Phys. Chem.* **17** 399 (1966)
46. Petrov M Yu et al. *Phys. Rev. A* **97** 032502 (2018)
47. Запасский В С *Физика твёрдого тела* **61** 946 (2019); Zapasskii V S *Phys. Solid State* **61** 847 (2019)
48. Kozlov V O et al. *J. Non-Cryst. Solids* **621** 122610 (2023)
49. Kozlov V O et al. *Phys. Rev. Lett.* **129** 077401 (2022)
50. Shumitskaya A A et al. *Adv. Opt. Mater.* 2302095 (2023) <https://doi.org/10.1002/adom.202302095>
51. Kozlov V O et al. "Spin noise of a halide perovskite", arXiv:2311.06077
52. Römer M, Hübner J, Oestreich M *Appl. Phys. Lett.* **94** 112105 (2009)
53. Müller G M et al. *Phys. Rev. B* **81** 121202 (2010)
54. Berski F et al. *Phys. Rev. Lett.* **111** 186602 (2013)
55. Hübner J et al. *Opt. Express* **21** 5872 (2013)
56. Petrov M Yu et al. *Phys. Rev. B* **97** 125202 (2018)
57. Cronenberger S et al. *Phys. Rev. Lett.* **123** 017401 (2019)
58. Kozlov G G, Zapasskii V S, Shapochkin P Yu *Appl. Opt.* **57** B170 (2018)
59. Sterin P et al. *Phys. Rev. Appl.* **9** 034003 (2018)
60. Kozlov G G et al. *Phys. Rev. A* **98** 043810 (2018)
61. Ryzhov I I et al. *Phys. Rev. B* **93** 241307 (2016)
62. Wertz E et al. *Appl. Phys. Lett.* **95** 051108 (2009)
63. Schneider C et al. *Nature* **497** 348 (2013)
64. Read D et al. *Phys. Rev. B* **80** 195309 (2009)
65. Glazov M M et al. *Phys. Rev. B* **88** 041309 (2013)
66. Baumberg J J et al. *Phys. Rev. Lett.* **101** 136409 (2008)
67. Levrat J et al. *Phys. Rev. Lett.* **104** 166402 (2010)
68. Balas Y C et al. *Phys. Rev. Lett.* **128** 117401 (2022)
69. Tsotsis P et al. *New J. Phys.* **14** 023060 (2012)
70. Christopoulos S et al. *Phys. Rev. Lett.* **98** 126405 (2007)
71. Cristofolini P et al. *Phys. Rev. Lett.* **110** 186403 (2013)
72. Pickup L et al. *Phys. Rev. B* **103** 155302 (2021)
73. Ryzhov I I et al. *Phys. Rev. Res.* **2** 022064 (2020)
74. Shelykh I et al. *Phys. Rev. B* **70** 115301 (2004)
75. Горбовицкий Б М, Перель В И *Оптика и спектроскопия* **54** 388 (1983); Gorbovitskii B M, Perel V I *Opt. Spectrosc.* **54** 229 (1983)
76. Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Квантовая механика (нерелятивистская теория)* 6-е изд., испр. (М.: Физматлит, 2004); Пер. на англ. яз.: Landau L D, Lifshitz E M *Quantum Mechanics: Non-Relativistic Theory* (Oxford: Pergamon Press, 1981)
77. Ландау Л Д, Лифшиц Е М *Электродинамика сплошных сред* (М.: Физматлит, 2005) с. 30; Пер. на англ. яз.: Landau L D, Lifshitz E M *Electrodynamics of Continuous Media* (Oxford: Pergamon Press, 1984)

Development of laser spectroscopy of spin noise

G.G. Kozlov^(1,a), I.I. Ryzhov^(1,b), A.V. Kavokin^(1,2,c), V.S. Zapasskii^(1,d)

⁽¹⁾ St. Petersburg State University, Universitetskaya naberezhnaya 7-9, 199034 St. Petersburg, Russian Federation

⁽²⁾ Russian Quantum Center, Innovation Center Skolkovo, Bol'shoi bul'var 30, str. 1, 121205 Moscow, Russian Federation

E-mail: ^(a) g.kozlov@spbu.ru, ^(b) i.ryzhov@spbu.ru, ^(c) a.kavokin@soton.ac.uk, ^(d) vzap@rambler.ru

The review is devoted to a new branch in magnetic resonance spectroscopy based on the optical detection of stochastic spin precession: laser spin noise spectroscopy (SNS). The SNS method, like EPR spectroscopy, makes it possible to study the energy structure of the magnetic states of the medium but does not imply excitation of regular spin precession and, due to the use of a laser-polarimetric signal detection channel, has a number of unique properties. In the review, we consider the specific information capabilities of the magnetic resonance noise technique and describe experiments demonstrating the efficiency of this approach for studying the energy-related and dynamic properties of spin subsystems in solid and gaseous paramagnets. Via the example of exciton-polariton condensate emission, we consider the specific features of polarization noise in secondary luminescence, including the case of unpolarized light. A rigorous theoretical description of the polarimetric spin noise signal formation is given based on the model of inelastic (Raman) light scattering by elementary angular momentum carriers.

Keywords: spin noise spectroscopy, spin fluctuation spectroscopy, electron paramagnetic resonance, polarimetry, exciton-polaritons

PACS numbers: 07.57.Pt, **76.30.-v**, 78.20.Ls

Bibliography — 77 references

Received 23 January 2023, revised 19 April 2023

Uspekhi Fizicheskikh Nauk **194** (3) 268–290 (2024)

Physics – Uspekhi **67** (3) (2024)

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNr.2023.05.039367>

DOI: <https://doi.org/10.3367/UFNe.2023.05.039367>