ИЗВЕСТИЯ АКАДЕМИИ НАУК СССР

Т. 48, № 3 СЕРИЯ ФИЗИЧЕСКАЯ 1984

УДК 621.535.55

С. КЕЛИХ и Р. ТАНАШ

КВАНТОВЫЕ ФЛУКТУАЦИИ ПРИ РАСПРОСТРАНЕНИИ СВЕТА ЧЕРЕЗ ИЗОТРОПНЫЕ СРЕДЫ С САМОИНДУЦИРОВАННОЙ ОПТИЧЕСКОЙ АКТИВНОСТЬЮ *

Рассматривается взаимодействие интенсивного пучка света с изотропной (макроскопически) средой, состоящей из N молекул в полости с объемом V. Взаимодействие между полем и отдельной молекулой описывается эффективным гамильтонианом:

$$H_I=-\alpha_{\sigma\tau}(\omega)E_\sigma^{(-)}E_\tau^{(+)}-\frac{1}{2}\gamma_{\sigma\tau\nu\rho}(\omega)E_\sigma^{(-)}E_\tau^{(-)}E_\nu^{(+)}E_\rho^{(+)}-$$
$$-i\rho_{\sigma\tau}(\omega)E_\sigma^{(-)}B_\tau^{(+)}-\frac{i}{2}\sigma_{\sigma\tau\nu\rho}(\omega)E_\sigma^{(-)}E_\tau^{(-)}E_\nu^{(+)}B_\rho^{(+)}, \qquad (1)$$

где $\alpha_{\sigma\tau}(\omega)$ и $\gamma_{\sigma\tau\nu\rho}(\omega)$ — тензоры поляризуемости и гиперполяризуемости молекул. Эти тензоры не равны нулю даже в случае, когда молекулы сферически симметричны. Тензоры $\rho_{\sigma\tau}(\omega)$ и $\sigma_{\sigma\tau\nu\rho}(\omega)$ описывают естественную, а также нелинейную оптическую активность. В отсутствие поглощения все четыре тензора являются действительными величинами (выделение i делает тензоры $\rho_{\sigma\tau}(\omega)$ и $\sigma_{\sigma\tau\nu\rho}(\omega)$ действительными). В выражении (1) суммирование по повторяющимся греческим индексам производится.

Электромагнитное поле рассматривается как квантованное. В случае монохроматического пучка с частотой ω, распространяющегося вдоль оси z лабораторной системы координат, его можно записать в следующем виде:

$$E_\sigma^{(+)}(z,t)=i\left(\frac{2\pi\hbar\omega}{V}\right)^{1/2}e^{-i(\omega t-kz)}\sum_{\lambda=1,2}e_\sigma^{(\lambda)}a_\lambda, \qquad (2)$$

где $k=\omega/c$. Суммирование в выражении (2) производится по двум возможным взаимно перпендикулярным поляризациям поля. Для оператора $B_\tau^{(+)}$ имеем

$$B_\tau^{(+)}=\frac{1}{\omega}\varepsilon_{\tau\nu\rho}k_\nu E_\rho^{(+)}, \qquad (3)$$

где $\varepsilon_{\tau\nu\rho}$ — полностью антисимметричный тензор Леви — Чивита. Операторная природа поля учитывается операторами уничтожения a_λ и рождения a_λ^+, подчиняющимися правилам перестановки для бозонов.

После введения кругового базиса, связанного с правым круговым и левым круговым векторами поляризации $\mathbf{e}^{(+)}=\frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{x}+i\hat{y})$ и $\mathbf{e}^{(-)}=\frac{1}{\sqrt{2}}(\hat{x}-i\hat{y})$ ($\hat{x}$ и $\hat{y}$ — единичные векторы вдоль x и y соответственно), мы вводим операторы

$$a_+=\frac{1}{\sqrt{2}}(a_x-ia_y), \qquad a_-=\frac{1}{\sqrt{2}}(a_x+ia_y). \qquad (4)$$

Поляризация падающего пучка (обычно эллиптическая) может быть описана как суперпозиция двух круговых компонентов.

* Статью с английского языка перевели А. А. Афанасьев и Н. А. Козел.

Поскольку мы предполагаем, что среда состоит из свободно ориентирующихся молекул, гамильтониан (1) может быть упрощен посредством изотропного усреднения (по всем возможным молекулярным ориентациям Ω) тензоров, описывающих молекулярные свойства. Это дает [1]

$$\langle\alpha_{\sigma\tau}(\omega)\rangle_\Omega=\alpha(\omega)\delta_{\sigma\tau},$$
$$\langle\gamma_{\sigma\tau\nu\rho}(\omega)\rangle_\Omega=\gamma_1(\omega)\delta_{\sigma\tau}\delta_{\nu\rho}+\gamma_2(\omega)\delta_{\sigma\nu}\delta_{\tau\rho}+\gamma_3(\omega)\delta_{\sigma\rho}\delta_{\tau\nu}, \tag{5}$$

где $\alpha(\omega)$, $\gamma_1(\omega)$, $\gamma_2(\omega)$, $\gamma_3(\omega)$ — вращательные инварианты этих тензоров [1]. Такая же процедура применительно к тензорам $\rho_{\sigma\tau}(\omega)$ и $\sigma_{\sigma\tau\nu\rho}(\omega)$ дает соответствующие вращательные инварианты: $\rho(\omega)$, $\sigma_1(\omega)$, $\sigma_2(\omega)$, $\sigma_3(\omega)$. После подстановки выражения (5) в (1) и введения кругового базиса (4) гамильтониан взаимодействия (1) принимает вид

$$H_I=-\tilde{\alpha}(\omega)(a_+^+a_++a_-^+a_-)-\frac{1}{2}\{4\tilde{\gamma}_1(\omega)a_+^+a_-^+a_-a_++$$
$$+[\tilde{\gamma}_2(\omega)+\tilde{\gamma}_3(\omega)]((a_+^{+2}a_+^2+a_-^{+2}a_-^2+2a_+^+a_-^+a_-a_+)\}-$$
$$-\tilde{\rho}(\omega)(a_+^+a_+-a_-^+a_-)-\frac{1}{2}[\tilde{\sigma}_2(\omega)+\tilde{\sigma}_3(\omega)](a_+^{+2}a_+^2-a_-^{+2}a_-^2), \tag{6}$$

где введены обозначения

$$\tilde{\alpha}(\omega)=\frac{2\pi\hbar\omega}{V}\alpha(\omega),\qquad \tilde{\gamma}_i(\omega)=\left(\frac{2\pi\hbar\omega}{V}\right)^2\gamma_i(\omega),$$
$$\tilde{\rho}(\omega)=\frac{2\pi\hbar\omega}{cV}\rho(\omega),\qquad \tilde{\sigma}_i(\omega)=\frac{1}{c}\left(\frac{2\pi\hbar\omega}{V}\right)^2\sigma_i(\omega). \tag{7}$$

Из гамильтониана взаимодействия (6) видно, что $a_+^+a_+$ и $a_-^+a_-$ коммутируют с этим гамильтонианом. Это означает, что числа фотонов в обеих круговых компонентах есть константы движения (в отсутствие поглощения). Это, однако, не имеет места для операторов $a_x^+a_x$ и $a_y^+a_y$, откуда следует, что в нелинейной среде (даже изотропной) линейная поляризация не сохраняется.

Используя гамильтониан взаимодействия (6), можно легко записать уравнения движения Гейзенберга для операторов a_+ и a_-, описывающие их временную эволюцию. Поскольку нас интересует проблема распространения, а не поля в полости, мы произведем замену $z=-ct$. Тогда уравнения принимают вид (свободная эволюция устранена)

$$\frac{d}{dz}a_\pm(z)=-\frac{iN}{\hbar c}\{\tilde{\alpha}(\omega)\pm\tilde{\rho}(\omega)+[\tilde{\gamma}_2(\omega)+\tilde{\gamma}_3(\omega)\pm(\tilde{\sigma}_2(\omega)+\tilde{\sigma}_3(\omega))]\times$$
$$\times a_\pm^+(z)a_\pm(z)+[2\tilde{\gamma}_1(\omega)+\tilde{\gamma}_2(\omega)+\tilde{\gamma}_3(\omega)]a_\mp^+(z)a_\mp(z)\}a_\pm(z), \tag{8}$$

где N — число молекул.

Поскольку величины $a_+^+a_+$ и $a_-^+a_-$ являются константами движения, уравнения (8) имеют простые экспоненциальные решения

$$a_\pm(z)=\exp\{i[\varphi_\pm(z)+\varepsilon_\pm(z)a_\pm^+(0)a_\pm(0)+\delta(z)a_\mp^+(0)a_\mp(0)]\}a_\pm(0). \tag{9}$$

Здесь

$$\varphi_\pm(z)=-\frac{Nz}{\hbar c}[\tilde{\alpha}(\omega)\pm\tilde{\rho}(\omega)],$$
$$\varepsilon_\pm(z)=-\frac{Nz}{\hbar c}[\tilde{\gamma}_2(\omega)+\tilde{\gamma}_3(\omega)\pm(\tilde{\sigma}_2(\omega)+\tilde{\sigma}_3(\omega))],$$
$$\delta(z)=-\frac{Nz}{\hbar c}[2\tilde{\gamma}_1(\omega)+\tilde{\gamma}_2(\omega)+\tilde{\gamma}_3(\omega)]. \tag{10}$$

Решения (9), являющиеся точными операторными решениями, позволяют вычислять любую характеристику поля после прохождения пути в нелинейной среде.

Поскольку $a_+^+a_+$ и $a_-^+a_-$ — константы движения, ни интенсивность, ни статистика фотонов этих компонент не претерпевают никаких изменений. Если, однако, для отбора конкретной декартовой компоненты выходящего поля, например компоненты x, используется поляризатор, среднее число фотонов в этой компоненте будет описываться выражением

$$\langle a_x^+(z)a_x(z)\rangle=\frac{1}{2}|\alpha|^2\{1+\cos 2\eta \exp[(\cos(\varepsilon_+-\delta)-1)|\alpha_+|^2+$$
$$+(\cos(\varepsilon_--\delta)-1)|\alpha_-|^2]\cos[2\theta-(\varphi_+-\varphi_-)-$$
$$-\sin(\varepsilon_+-\delta)|\alpha_+|^2+\sin(\varepsilon_--\delta)|\alpha_-|^2]\}, \tag{11}$$

полученным в предположении, что входящий пучок находится в когерентном состоянии $|\alpha\rangle$ со средним числом фотонов, равным $|\alpha|^2=|\alpha_+|^2+|\alpha_-|^2$. В выражении (11) θ и η — азимут и эллиптичность поляризационного эллипса входящего пучка соответственно. Если последний поляризован линейно ($\eta=0$) с азимутом $\theta=\pi/2$ (перпендикулярно x) и если молекулы оптически неактивны, то формула (11) все равно будет давать значение, отличное от нуля, исключительно благодаря квантовым свойствам поля. Этот эффект обсуждался в работе Ритце [2]. Как мы показали ранее в работе [3], используя теорию возмущений, в этой компоненте может иметь место также эффект фотонной антигруппировки. Наш результат был подтвержден Ритце [2], который получил точные решения.

Недавно мы показали [4], что в такой системе могут генерироваться так называемые сжатые состояния. Хотя для двух круговых компонент поля статистика фотонов не изменяется, эти компоненты могут сжиматься за счет нелинейного взаимодействия со средой.

Если определить эрмитовские операторы

$$Q_\pm=a_\pm+a_\pm^+,\qquad P_\pm=-i(a_\pm-a_\pm^+), \tag{12}$$

то электромагнитное поле будет находиться в сжатом состоянии, если [5]

$$\langle:(\Delta Q_\pm)^2:\rangle<0 \text{ или } \langle:(\Delta P_\pm)^2:\rangle<0, \tag{13}$$

где двоеточие означает нормальный порядок, и $\Delta Q_\pm=Q_\pm-\langle Q_\pm\rangle$.

Используя решения (9), вычисляем нормально упорядоченную дисперсию:

$$\begin{aligned}\langle:(\Delta Q_\pm(z))^2:\rangle=2\mathrm{Re}\{\alpha_\pm^2\exp[2i\varphi_\pm(z)+i\varepsilon_\pm(z)+\\ +(e^{2i\varepsilon_\pm(z)}-1)|\alpha_\pm|^2+(e^{2i\delta(z)}-1)|\alpha_\mp|^2]-\alpha_\pm^2\exp[2i\varphi_\pm(z)+\\ +2(e^{i\varepsilon_\pm(z)}-1)|\alpha_\pm|^2+2(e^{i\delta(z)}-1)|\alpha_\mp|^2]\}+\\ +2|\alpha_\pm|^2\{1-\exp[2(\cos\varepsilon_\pm(z)-1)|\alpha_\pm|^2+2(\cos\delta(z)-1)|\alpha_\mp|^2]\}.\end{aligned} \tag{14}$$

Численный анализ выражения (14) показывает, что оно является осциллирующим и становится отрицательным для некоторых значений параметров. Соответствующие кривые приводятся в работе [4]. Это означает, что поле становится сжатым. Этот эффект сжатия универсален, поскольку он существует даже для сферически-симметричных молекул (и даже атомов). Из (14) видно, что линейная и нелинейная оптическая активность лишь незначительно сказывается на формуле. В анизотропной среде могут проявляться также другие вклады, например вклады, связанные с электрическими квадрупольными моментами, но их роль в этом эффекте довольно незначительна. Следует подчеркнуть, однако, что сжатие подобно фотонной антигруппировке [6] представляет собой чисто квантовый эффект и не может наблюдаться для классических полей.

Институт физики Университета
им. А. Мицкевича, Познань,
Польская Народная Республика

Литература

1. *Келих С.* Молекулярная нелинейная оптика. М.: Наука, 1981.
2. *Ritze H. H.* Z. Phys., 1980, B. B39, S. 353.
3. *Tanas R., Kielich S.* Opt. Communs, 1979, v. 39, p. 443.
4. *Tanas R., Kielich S.* Opt. Communs, 1983, v. 45, p. 351.
5. *Walls D. F., Zoller P.* Phys. Rev. Letts, 1981, v. 47, p. 709.
6. *Paul H.* Rev. Mod. Phys., 1982, v. 54, p. 1061.