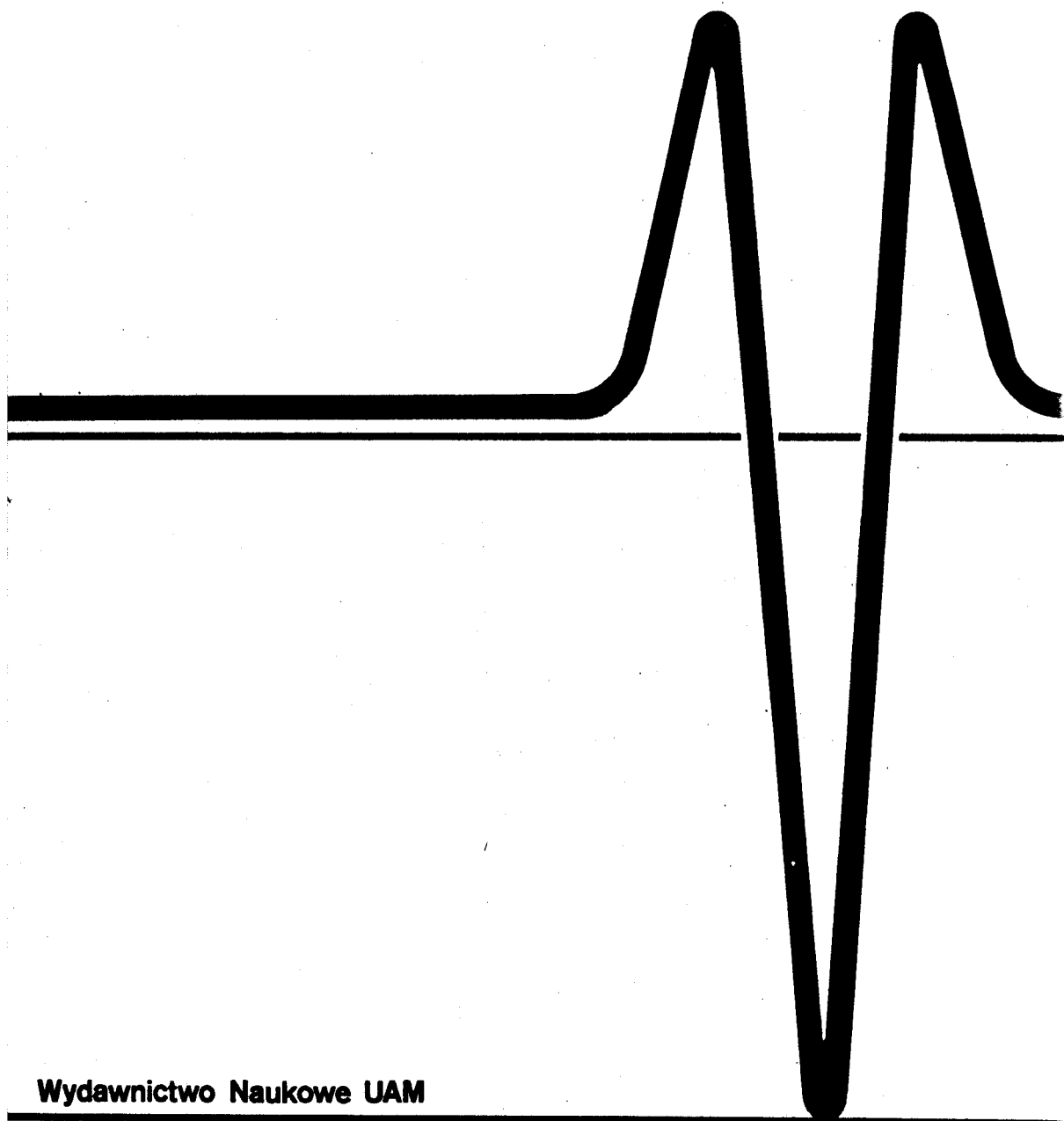


**Generacja pól kwantowych
w procesie propagacji światła
przez nieliniowy ośrodek
aktywny optycznie**

**STANISŁAW KIELICH
RYSZARD TANAŚ
ROMAN ZAWODNY**



UNIwersytet IM. ADAMA MICKIEWICZA W POZNANIU
SERIA FIZYKA NR 58

STANISŁAW KIELICH, RYSZARD TANAŚ,
ROMAN ZAWODNY

GENERACJA PÓL KWANTOWYCH
W PROCESIE PROPAGACJI ŚWIATŁA
PRZEZ NIELINIOWY OŚRODEK
AKTYWNY OPTYCZNIE



POZNAŃ 1987

WSTĘP

W ostatnich latach narasta zainteresowanie badaniami kwantowych i stochastycznych własności pól elektromagnetycznych /1-5/. Szczególnie wiele uwagi poświęca się badaniom możliwości wytwarzania stanów kwantowych pola, które przejawiają się w procesie rozgrupowania fotonów (antykorelacja lub antibunching). Zjawisko antykorelacji fotonów ukazujące jednoznacznie kwantową naturę światła obserwowano dotychczas jedynie w procesie fluorescencji rezonansowej /6,7/. Wykonano również próbę eksperymentu symulacyjnego /8/ potwierdzającego teoretyczne sugestie o antykorelacji fotonów w zjawisku generacji drugiej harmonicznej. Ponieważ fundamentalną sprawą dla wytwarzania kwantowych stanów pola jest oprócz skwantowania pola promieniowania, nieliniowy charakter oddziaływania światła z materią, przeto efekt antykorelacji fotonów analizowano w rozmaitych nieliniowych zjawiskach optycznych jak absorpcja wielofotonowa, procesy parametryczne, generacja harmonicznych, samoindukowana dwójliwość optyczna, rozpraszanie Ramana etc. Liczne prace na ten temat zostały omówione w kilku artykułach przeglądowych /9-16/.

Od kilku lat pojawił się nowy, atrakcyjny problem badania możliwości wytwarzania stanów ścięśnionych pola promieniowania (squeezed states). Stany takie charakteryzują się zmniejszeniem fluktuacji kwantowych w jednej ze składowych pola kosztem wzrostu fluktuacji w drugiej (niekomutującej) składowej pola promieniowania. Jak należało oczekiwać, ścięśnianie stanów kwantowych zaczęto badać w optyce kwantowej najpierw w takich procesach w których ma miejsce nieliniowy respons układu kwantowego na sygnał pola. Teoretyczne przewidywania pokazują, że ścięśnianie stanów kwantowych może wystąpić w następujących nieliniowych procesach optycznych: wzmocnieniu parametrycznym /17-20/, fluorescencji rezonansowej /21-26/, mieszaniu czterech fal /27,28/, generacji harmonicznych /29-33/, propagacji światła w ośrodku z samoindukowaną nieliniowością optyczną /34/, oscylatorze anharmonicznym /35/, absorpcji wielofotonowej /36,37/ oraz rozpraszaniu ramanowskim /38/.

Przeciwieństwem do efektu antykorelacji fotonów, ścięśnianie stanów jest efektem czułym na fazę pola /38/, której fluktuacje mogą znacznie zredukować jego wartości lub nawet go zniszczyć /19/. Pomiar ścięśniania pola wymaga zatem specjalnej techniki homodynowej pozwalającej wyelimi-

ABSTRACT: Kielich Stanisław, Tanaś Ryszard, Zawodny Roman, Generation of quantum field in light propagation through an optically active nonlinear medium. Poznań, 1987, Wydawnictwo Naukowe Uniwersytetu im. Adama Mickiewicza w Poznaniu (Adam Mickiewicz University Press), Seria Fizyka nr 58 pp.61. ISBN 83-232-0049-1. ISSN 0554-825X. Text in Polish.

A free quantum field, traversing and interacting nonlinearly with an optically active medium, is shown to experience a self-induced change in phase originating in an induced rotation of the polarisation ellipse and a nonlinear variation in optical activity. This novel process, accompanying light transmission, reveals new states of the quantum field accessible to observation as photon antibunching and/or light squeezing. A numerical analysis of the resultant antibunching and squeezing is performed and illustrated graphically. In a strong optical field, the photon antibunching effect is shown to be rather small, of the order of $1/n$, whereas the squeezing effect can exceed 97 per cent, which means a reduction of the quantum fluctuations by two orders of magnitude. The dependence of the two effects on the symmetry of the nonlinear medium is also discussed.

Kielich Stanisław, Tanaś Ryszard, Zawodny Roman, Uniwersytet im. Adama Mickiewicza w Poznaniu (Adam Mickiewicz University), Instytut Fizyki (Institute of Physics), ul. Grunwaldzka 6, 60-780 Poznań, Polska - Poland.

Praca wykonana na zlecenie CPBP 01.06.3.05.

Częściowe wyniki tej pracy były referowane na Konferencji UPS-83 (3rd Symposium on Ultrafast Phenomena in Spectroscopy) w Mińsku, ZSRR, 28-30 IX 1983.

Okładkę projektował

PIOTR SIKORSKI

Redaktor

Barbara Wronikowska

Redaktor techniczny

Michał Łyssowski

ISSN 0554-825X

ISBN 83-232-0049-1

WYDAWNICTWO NAUKOWE UNIWERSYTETU
IM. ADAMA MICKIEWICZA W POZNANIU

Wydanie I. Nakład 300+80 egz.

Papier drukowy kl. III. 70 g. 70x100

Ark. wyd. 4,75. Ark. druk. 3,75

Oddano do druku w sierpniu 1987 r.

Druk ukończono w październiku 1987 r.

Zamówienie nr 314/87 - B-8/612

Cena zł 100,-

WYKONANO W ZAKŁADZIE GRAFICZNYM UAM,
POZNAŃ, UL. H. WIENIAWSKIEGO 1

nować szumy oscylatora lokalnego /39-41/. Mimo różnic jakie dzielą antykorelację fotonów od ścieśniania stanów pola, obydwie te procesy mają jedną cechę wspólną, mianowicie ich natura jest czysto kwantowa i pola wykazujące takie własności nie mają odpowiedników w optyce klasycznej. Oba te efekty mogą mieć wspólne obszary istnienia, ale mogą występować w różnych obszarach niezależnie od siebie /24/ lub w danym zjawisku może występować tylko jeden z nich. Poszczególne nieliniowe zjawiska optyczne są w mniejszym lub większym stopniu czułe na występowanie w nich antykorelacji fotonów lub ścieśniania stanów pola, przy czym szczególną rolę odgrywa tutaj proces samoindukowanej nieliniowości optycznej, który może wytworzyć prawie całkowite samościeśnienie pola silnej wiązki światła /34/. Również bardzo interesująca jest ewolucja w czasie efektu ścieśniania pola /39/. Zaproponowano również nowe metody pomiaru stanów ścieśnionych /40,41/.

W naszej pracy wyprowadzamy najpierw ogólne wyrażenia na efektywne hamiltoniany oddziaływania rzędu 2 i 4 w reprezentacji kołowej polaryzacji pola. Hamiltoniany te zawierają nie tylko liniowe i nieliniowe tensory podatności elektryczno-dipolowe, ale również tensory podatności elektryczno-magnetyczne dipolowe, a także elektryczne dipolowo-kwadrupolowe i stosują się do dowolnego ośrodka ze słabą dyspersją przestrzenną. Tak określony hamiltonian pozwala na znalezienie ścisłego rozwiązania równania ruchu Heisenberga w postaci operatora translacji pola promieniowania. W ten sposób pole fali świetlnej po przejściu nieliniowego ośrodka doznaje zmiany fazy, która zależy od kąta skreślenia płaszczyzny polaryzacji silnego światła samoindukującego w ośrodku rotację elipsy polaryzacji i nieliniową zmianę aktywności optycznej /14b/. Właściwym celem pracy jest obliczenie odpowiednich obserwabli charakteryzujących proces antygrupowania fotonów oraz ścieśniania stanów światła przechodzącego przez nieliniowy ośrodek aktywny optycznie.

EFEKTYWNY HAMILTONIAN ODDZIAŁYWANIA

Weźmy pod uwagę układ N mikroukładów (atomy, molekuly lub komórki elementarne kryształu) znajdujących się w objętości V umieszczonej w polu elektro-magnetycznym wiązki świetlnej z wektorem elektrycznym $\vec{E}(\vec{r}, t)$ i magnetycznym $\vec{B}(\vec{r}, t)$ panującym w punkcie \vec{r} i chwili t . Pełny hamiltonian takiego układu ma standardową postać:

$$H = H_N + H_P + H_I \quad (1)$$

gdzie H_N jest hamiltonianem układu N mikroukładów zaś H_P - hamiltonianem swobodnego pola promieniowania.

Nas interesuje wyraźna postać hamiltonianu H_I określającego oddziaływanie układu z polem promieniowania. Oddziaływanie to ma w ogólności charakter nieliniowy i zawiera wszystkie przejścia multipolowe elektryczne i magnetyczne /42, 43/. W nieliniowej optyce posługujemy się dla prostoty i wygody efektywnymi hamiltonianami oddziaływania /44/, w których wystarczy uwzględnić wyrazy z dokładnością do czwartego rzędu względem natężeń pól elektrycznych i magnetycznych /43, 45/.

W niniejszej pracy zajmiemy się tylko składnikami hamiltonianu oddziaływania zależnymi od parzystych potęg pól:

$$H_I = H_I^{(2)} + H_I^{(4)} + \dots = \sum_{n=1}^{\infty} H_I^{(2n)} \quad (2)$$

Ograniczając się do słabej dyspersji przestrzennej (co oznacza, że zaniedbujemy wyższe multipole /45/) możemy napisać dla przypadku N nieskorelowanych molekuł /46/:

$$H_I^{(2)} = -\frac{N}{2} \left\{ \alpha_{ij} E_i E_j + \frac{1}{3} \left[\rho_{i(jk)} E_i \nabla_k E_j + \rho_{(ik)j} (\nabla_k E_i) E_j \right] + \rho_{ij} E_i B_j + \lambda_{ij} B_i E_j + \text{h.c.} \right\} \quad (3)$$

gdzie zgodnie z umową Einsteina mamy sumowanie po powtarzających się wskaźnikach tensorowych i, j, k .

W równaniu (3) tensor rangi 2, α_{ij} określa liniową polaryzowalność elektryczną molekuly wynikającą z przejść kwantowych dipol elektryczny-

-dipol elektryczny. Podobnie pseudotensory rangi 2: ϱ_{ij} i λ_{ij} określają polaryzowalność odpowiednio elektryczno-magnetyczną wynikającą z przejść kwantowych dipol elektryczny-dipol magnetyczny i polaryzowalność magnetyczno-elektryczną wynikającą z przejść kwantowych dipol magnetyczny-dipol elektryczny. Natomiast tensor rangi 3: $\eta_i(jk)$ określa liniową polaryzowalność elektryczną wynikającą z przejść kwantowych dipol elektryczny-kwadrupol elektryczny /45/, zaś $\eta(ik)j$ - odwrotnie.

W tym samym przybliżeniu multipolowym hamiltonian rzędu czwartego ma postać /43,45/:

$$\begin{aligned} \hat{H}_I^{(4)} = -\frac{N}{24} \left\{ \right. & \delta_{ijkl} E_i E_j E_k E_l \\ & + \frac{1}{3} \left[\eta_{ijk}(lm) E_i E_j E_k \nabla_m E_l + \eta_{ij}(km)l E_i E_j (\nabla_m E_k) E_l \right. \\ & \quad \left. + \eta_i(jm)kl E_i (\nabla_m E_j) E_k E_l + \eta(1m)jkl (\nabla_m E_i) E_j E_k E_l \right] \\ & + \kappa_{ijkl} E_i E_j E_k E_l + \varrho_{ijkl} E_i E_j E_k E_l \\ & \left. + \sigma_{ijkl} E_i E_j E_k E_l + \lambda_{ijkl} E_i E_j E_k E_l + \text{h.c.} \right\} \end{aligned} \quad (4)$$

gdzie tensor rangi 4, δ_{ijkl} określa nieliniową polaryzowalność elektryczną dla czterokrotnych przejść kwantowych dipolowo elektrycznych.

Pseudotensory rangi 4: κ_{ijkl} , ϱ_{ijkl} i σ_{ijkl} określają nieliniową polaryzowalność elektryczno-magnetyczną dla przejść kwantowych dipol elektryczny-dipol magnetyczny i wukrotnie dipol elektryczny zaś λ_{ijkl} określa polaryzowalność magnetyczno-elektryczną dla przejść kwantowych dipol magnetyczny-dipol elektryczny i dwukrotnie dipol elektryczny. Tensor rangi 5, $\eta(1m)jkl$ określa nieliniową polaryzowalność elektryczną kwadrupolową dla przejść kwantowych kwadrupol elektryczny-dipol elektryczny i dwukrotnie dipol elektryczny /45/. Natomiast pozostałe trzy określają polaryzowalności elektryczne dipolowe przy czym $\eta_i(jm)kl$ dla przejść kwantowych dipol elektryczny-kwadrupol elektryczny i dwukrotnie dipol elektryczny, zaś w pozostałych dwóch $\eta_{ij}(km)l$ i $\eta_{ijk}(lm)$ kwadrupol elektryczny wystąpi odpowiednio na trzecim i czwartym miejscu. Nawias półokrągły wydziela nam wskaźniki odnoszące się do operatora elektrycznego momentu kwadrupolowego.

W klasycznym przypadku wektor elektryczny pola możemy rozdzielić na dwie zespolone części /1/:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}^{(+)}(\vec{r}, t) + \vec{E}^{(-)}(\vec{r}, t) \quad (5)$$

gdzie składniki $\vec{E}^{(+)}(\vec{r}, t)$ i $\vec{E}^{(-)}(\vec{r}, t)$ związane są odpowiednio z zależnościami czasowymi typu $\exp(-i\omega t)$ (częstości drgań kołowych ω dodatnie) i $\exp(i\omega t)$ (częstości ujemne) oraz są ze sobą sprzężone $\vec{E}^{(-)}(\vec{r}, t) = [\vec{E}^{(+)}(\vec{r}, t)]^*$.

Poprzeczne pole elektryczne może być przedstawione w postaci superpozycji fal płaskich:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \sum_{\vec{k}} \left[\vec{E}^{(+)}(\vec{k}) e^{i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega_{\vec{k}} t)} + \vec{E}^{(-)}(\vec{k}) e^{-i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega_{\vec{k}} t)} \right] \quad (6)$$

Taki sam rozkład zachodzi dla wektora magnetycznego po $\vec{B}(\vec{r}, t)$ gdzie mamy relację (układ SI):

$$B_i^{(+)} = \frac{1}{\omega} \epsilon_{ijk} k_j E_k^{(+)} \quad (7)$$

gdzie ϵ_{ijk} jest antysymetrycznym tensorem Levi-Civita

Jak zwykle światło rozchodzi się wzdłuż osi Z układu kartezjańskiego $\{X, Y, Z\}$. W dalszym ciągu wygodnie będzie posłużyć się reprezentacją kolumnową pola z wektorami jednostkowymi postaci (dla konwencji momentu pędu):

$$\vec{e}_{\pm} = \frac{1}{\sqrt{2}} (\vec{x} \pm i \vec{y}) \quad (8)$$

gdzie \vec{e}_{+} odnosi się do fali prawoskrętnie spolaryzowanej, zaś \vec{e}_{-} do fali lewoskrętnie spolaryzowanej, przy czym \vec{x} i \vec{y} są wektorami jednostkowymi wzdłuż osi X i Y kartezjańskiego układu współrzędnych, zaś $i = \sqrt{-1}$.

Przyjmując, że nasze mikroukłady są swobodnie zorientowane w przestrzeni możemy hamiltoniany (3) i (4) uśrednić na wszystkie możliwe orientacje mikroukładow. W tym przypadku występujące tam teory polaryzowalności w wyniku uśrednienia stają się inwariantami rotacyjnymi /14b/:

$$\begin{aligned} \langle \alpha_{ij} \rangle_{\Omega} &= \alpha \delta_{ij} \\ \langle \eta_{i(jm)} \rangle_{\Omega} &= \langle \eta_{(im)j} \rangle_{\Omega} = 0 \\ \langle \varrho_{ij} \rangle_{\Omega} &= \varrho \delta_{ij}, \quad \langle \lambda_{ij} \rangle_{\Omega} = \lambda \delta_{ij} \end{aligned} \quad (9)$$

gdzie $\alpha = \alpha_{\alpha\alpha}/3$, $\varrho = \varrho_{\alpha\alpha}/3$, $\lambda = \lambda_{\alpha\alpha}/3$ oznaczają średnie polaryzowalności molekuly.

W przypadku nieliniowym mamy /14b/:

$$\langle \delta_{ijkl} \rangle_{\Omega} = \delta_1 \delta_{ij} \delta_{kl} + \delta_2 \delta_{ik} \delta_{jl} + \delta_3 \delta_{il} \delta_{jk} \quad (10)$$

gdzie

$$\delta_1 = \frac{1}{30} [4\delta_{\alpha\alpha\beta\beta} - \delta_{\alpha\beta\alpha\beta} - \delta_{\alpha\beta\beta\alpha}]$$

$$\delta_2 = \frac{1}{30} [-\delta_{\alpha\alpha\beta\beta} + 4\delta_{\alpha\beta\alpha\beta} - \delta_{\alpha\beta\beta\alpha}] \quad (10a)$$

$$\delta_3 = \frac{1}{30} [-\delta_{\alpha\alpha\beta\beta} - \delta_{\alpha\beta\alpha\beta} + 4\delta_{\alpha\beta\beta\alpha}]$$

i podobnie dla pseudotensorów π_{ijkl} , ρ_{ijkl} , σ_{ijkl} i λ_{ijkl} . Dla nieliniowej polaryzowalności dipolowo-kwadrupolowej mamy /14b/:

$$\begin{aligned} \langle \eta_{ijk(lm)} \rangle_{\Omega} &= \eta_1 \delta_{ij} \epsilon_{klm} + \eta_2 \delta_{ik} \epsilon_{jlm} \\ &+ \eta_3 \delta_{il} \epsilon_{jkm} + \eta_4 \delta_{jk} \epsilon_{ilm} \\ &+ \eta_5 \delta_{jl} \epsilon_{ikm} + \eta_6 \delta_{kl} \epsilon_{ijm} \end{aligned} \quad (11)$$

gdzie ϵ_{ijk} jest antysymetrycznym tensorem Levi-Civita, natomiast stałe $\eta_1, \eta_2, \dots, \eta_6$ określa następujące równanie macierzowe:

$$\begin{pmatrix} \eta_1 \\ \eta_2 \\ \eta_3 \\ \eta_4 \\ \eta_5 \\ \eta_6 \end{pmatrix} = \frac{\eta_{\alpha\beta\gamma}(\delta\phi)}{30} \begin{pmatrix} 3 & -1 & 1 & -1 & 1 & 0 \\ -1 & 3 & -1 & -1 & 0 & 1 \\ 1 & -1 & 3 & 0 & -1 & 1 \\ -1 & -1 & 0 & 3 & -1 & -1 \\ 1 & 0 & -1 & -1 & 3 & -1 \\ 0 & 1 & 1 & -1 & -1 & 3 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \delta_{\alpha\beta} \epsilon_{\gamma\delta\phi} \\ \delta_{\alpha\gamma} \epsilon_{\beta\delta\phi} \\ \delta_{\alpha\delta} \epsilon_{\beta\gamma\phi} \\ \delta_{\beta\gamma} \epsilon_{\alpha\delta\phi} \\ \delta_{\beta\delta} \epsilon_{\alpha\gamma\phi} \\ \delta_{\gamma\delta} \epsilon_{\alpha\beta\phi} \end{pmatrix} \quad (11a)$$

Hamiltonian oddziaływania N mikroukładów z polem promieniowania (6) rozchodzącym się w jednym kierunku (sumowanie w (6) ograniczamy do jednego k) można zapisać w postaci (patrz Dodatek I):

$$H_I = H_I^{(2)} + H_I^{(4)}$$

przy czym w przypadku identycznych mikroukładów $H_I^{(2)}$ i $H_I^{(4)}$ w reprezentacji kołowej (8) są określone następująco:

$$\begin{aligned} H_I^{(2)} &= -\frac{1}{2} \chi_R^L [E_+^+ E_+^+ + E_-^+ E_-^+ + E_+^- E_+^- + E_-^- E_-^-] \\ &- \frac{1}{2} \chi_A^L [E_+^+ E_+^- - E_-^+ E_-^- + E_+^- E_+^+ - E_-^- E_-^+] \end{aligned} \quad (12)$$

$$\begin{aligned} H_I^{(4)} &= -\frac{1}{12} \chi_R^{NL} [(E_+^+)^2 (E_+^+)^2 + (E_-^+)^2 (E_-^+)^2 + (E_+^-)^2 (E_+^-)^2 \\ &+ (E_-^-)^2 (E_-^-)^2 + E_+^- (E_+^+)^2 E_+^- + E_-^- (E_-^+)^2 E_-^- \\ &+ \text{składniki o przeciwnych indeksach górnych}] \\ &- \frac{1}{6} \chi_R^{NL} [E_+^+ E_-^+ E_+^- E_-^- + \frac{1}{4} (E_+^+ E_+^- E_-^+ E_-^- + E_+^- E_+^+ E_-^- E_-^+)] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& + \bar{E}_- E_+^+ E_- E_+^+ + \bar{E}_+ E_-^+ E_+ E_-^+ + \bar{E}_- E_+^+ E_- E_+^+ \\
& + \bar{E}_+ E_-^+ E_+ E_-^+ + \bar{E}_- E_+^+ E_- E_+^+ + \bar{E}_+ E_-^+ E_+ E_-^+ \\
& + \text{składniki o przeciwnych indeksach górnych}] \\
- \frac{1}{12} \chi_A^{NL} & [(E_+^-)^2 (E_+^+)^2 - (E_-^-)^2 (E_-^+)^2 + (E_+^- E_+^+)^2 \\
& - (E_-^- E_-^+)^2 + E_+^- (E_+^+)^2 E_-^- - E_-^- (E_-^+)^2 E_+^- \\
& + \text{składniki o przeciwnych indeksach górnych}]
\end{aligned} \quad (13)$$

gdzie wprowadziliśmy liniowe i nieliniowe parametry molekularne (zaniedbujemy poprawki od pola lokalnego):

$$\chi_R^L = \frac{N}{5} \operatorname{Re} \alpha_{\alpha\alpha} \quad (14)$$

$$\chi_A^L = -\frac{1N k_z}{3\omega} \operatorname{Im} \rho_{\alpha\alpha} \quad (14a)$$

$$\chi_R^{NL} = \frac{N}{15} \operatorname{Re} [-\delta_{\alpha\alpha\beta\beta} + 3\delta_{\alpha\beta\alpha\beta}] \quad (15)$$

$$\chi_R^{NL} = \frac{N}{15} \operatorname{Re} [3\delta_{\alpha\alpha\beta\beta} + \delta_{\alpha\beta\alpha\beta}] \quad (15a)$$

$$\begin{aligned}
\chi_A^{NL} = -\frac{1}{15} \frac{4N k_z}{\omega} & \left\{ \frac{1}{\omega} \operatorname{Im} [\delta_{\alpha\alpha\beta\beta} - 3\delta_{\alpha\beta\alpha\beta}] \right. \\
& \left. - \frac{1}{3} \operatorname{Re} \eta_{\alpha(\beta\gamma)\beta\delta} \epsilon_{\alpha\gamma\delta} \right\} \quad (15b)
\end{aligned}$$

przy czym rzeczywiste i urojone części odpowiednich liniowych i nieliniowych polaryzowalności w przypadku braku degeneracji stanu podstawowego określa (D.38), w przypadku degeneracji o krotności parzystej $2n$ wyrażenia (D.42), (D.44) i (D.48), zaś w przypadku krotności nieparzystej $2n+1$ — (D.46), (D.47) i (D.49). Niezerowe i niezależne składowe tensorów polaryzowalności nieliniowych $\operatorname{Re} \delta_{\alpha\beta\gamma\delta}$, $\operatorname{Im} \delta_{\alpha\beta\gamma\delta}$ i $\operatorname{Re} \eta_{\alpha(\beta\gamma)\beta\delta}$ symetrycznych względem inwersji czasu dla 102 punktowych grup magnetycznych zestawione są w tablicach 1-3. Natomiast w tablicy 4 zebrano liniowe χ_R^L , χ_A^L i nieliniowe χ_R^{NL} , χ_R^{NL} , χ_A^{NL} parametry molekularne dla 102 punktowych grup magnetycznych (Dodatek II).

ROZWIĄZANIE RÓWNIANIA RUCHU DLA OPERATORÓW POLA

W elektrodynamice kwantowej wektory pola (6) i (7) traktuje się jako operatory w przestrzeni Hilberta, przy czym mamy:

$$\vec{E}^{(+)}(\mathbf{k}) = 1 \sum_{\lambda} c(\omega_{\mathbf{k}}) \vec{e}^{(\lambda)}(\mathbf{k}) \hat{a}_{\mathbf{k}\lambda} \quad (16)$$

gdzie $c(\omega_k)$ jest czynnikiem normującym zależnym od stosowanego układu jednostek:

$$c(\omega_k) = \begin{cases} \left(\frac{2\pi\hbar\omega_k}{V} \right)^{1/2} & \text{w CGS} \\ \left(\frac{\hbar\omega_k}{2\epsilon_0 V} \right)^{1/2} & \text{w SI} \end{cases} \quad (16a)$$

przy czym V jest objętością kwantyzacji.

W (16) $\hat{a}_{\vec{k}\lambda}$ jest operatorem anihilacji fotonu z pędem $\hbar\vec{k}$ i stanem polaryzacji λ określonym wektorem jednostkowym $\hat{e}^{(\lambda)}(\vec{k})$. Operatory anihilacji i kreacji fotonów $\hat{a}_{\vec{k}\lambda}^+$ i $\hat{a}_{\vec{k}\lambda}^-$ spełniają reguły komutacji bosonów:

$$\begin{aligned} [\hat{a}_{\vec{k}\lambda}^+, \hat{a}_{\vec{k}'\lambda'}^+] &= \delta_{\vec{k}\vec{k}'} \delta_{\lambda\lambda'} \\ [\hat{a}_{\vec{k}\lambda}^-, \hat{a}_{\vec{k}\lambda}^-] &= [\hat{a}_{\vec{k}\lambda}^+, \hat{a}_{\vec{k}\lambda}^-] = 0 \end{aligned} \quad (17)$$

Wektory jednostkowe określające stan polaryzacji fali są w ogólności zespolone i spełniają warunki ortogonalności i unormowania:

$$e_{\vec{k}\sigma}^{(\lambda)*} e_{\vec{k}\tau}^{(\lambda')} = \delta_{\sigma\tau} \delta_{\lambda\lambda'}, \quad e_{\vec{k}\sigma}^{(\lambda)} k_\sigma = 0 \quad (18)$$

Dla fali prawie monochromatycznej o częstości drgań kołowych ω i rozchodzącej się wzdłuż osi z laboratoryjnego układu współrzędnych możemy w (6) opuścić sumowanie po wskaźniku k , i napisać wobec (16):

$$E_{\vec{0}}^+(z, t) = i C(\omega) \exp[-i(\omega t - kz)] \sum_{\lambda=1,2} e_{\vec{0}}^{(\lambda)} \hat{a}_\lambda \quad (19)$$

gdzie $k = \omega/c$ jest wartością bezwzględną wektora falowego \vec{k} .

Pole (19) przedstawia faktycznie dwumodowy opis, kiedy to pole jest koherentną superpozycją dwóch modów z wzajemnie prostopadłymi polaryzacjami. Na ogół opis dwumodowy może być zastąpiony przez jeden mod z eliptyczną polaryzacją pola:

$$e_{\vec{0}} \hat{a} = e_{\vec{0}}^{(1)} \hat{a}_1 + e_{\vec{0}}^{(2)} \hat{a}_2 \quad (20)$$

gdzie $e_{\vec{0}}^{(1)}$ i $e_{\vec{0}}^{(2)}$ oznaczają σ -składowe ortogonalnych jednostkowych wektorów polaryzacji $\hat{e}^{(1)}$ i $\hat{e}^{(2)}$ poszczególnych modów \hat{a}_1 i \hat{a}_2 , podobnie $e_{\vec{0}}$ jest σ -składową wektora polaryzacji modu \hat{a} .

Transformacja (20) może być rozumiana jako rozkład początkowo eliptycznie spolaryzowanego światła na dwa ortogonalne mody. Uwzględniając warunki unormowania (18) otrzymujemy na podstawie (20):

$$\hat{a} = e_1^* \hat{a}_1 + e_2^* \hat{a}_2 \quad (21)$$

gdzie

$$e_1^* = e_0^* e_0^{(1)}, \quad e_2^* = e_0^* e_0^{(2)}$$

Przyjmując, że odpowiednie mody są liniowo spolaryzowane wzdłuż osi x i y , mamy na podstawie (21):

$$\hat{a} = e_x^* \hat{a}_x + e_y^* \hat{a}_y \quad (22)$$

gdzie mamy /48/:

$$\begin{aligned} e_x &= \cos \eta \cos \theta - i \sin \eta \sin \theta \\ e_y &= \cos \eta \sin \theta + i \sin \eta \cos \theta \end{aligned} \quad (23)$$

przy czym θ i η oznaczają odpowiednio azymut i eliptyczność elipsy polaryzacji światła padającego.

Odpowiednio do kołowej reprezentacji polaryzacji pola (8) możemy wobec (20) i (22) napisać transformacje:

$$\begin{aligned} \hat{a}_1 &= \hat{a}_+ = \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{a}_x - i \hat{a}_y) \\ \hat{a}_2 &= \hat{a}_- = \frac{1}{\sqrt{2}} (\hat{a}_x + i \hat{a}_y) \end{aligned} \quad (24)$$

Obie reprezentacje mogą być użyte do opisu oddziaływania światła eliptycznie spolaryzowanego z ośrodkiem materialnym. Jednakże jak pokazano poprzednio /33, 34, 49/ reprezentacja kołowa ma przewagę nad reprezentacją kartezjańską, gdyż pozwala znaleźć rozwiązanie równania ruchu na operatory pola w postaci propagatora.

Ewolucję operatorów pola w czasie opisują równania ruchu Heisenberga:

$$\frac{\partial E^{(\pm)}(r,t)}{\partial t} = \frac{1}{i\hbar} [E^{(\pm)}(r,t), H] \quad (25)$$

W przypadku pola swobodnego występujący tu hamiltonian H jest tylko hamiltonianem H_F swobodnego pola promieniowania. W tym przypadku rozwiązaniem (25) jest pole elektryczne dane wzorami (6) określającymi „szybkozmienną” ewolucję czasową.

W wyniku oddziaływania pola promieniowania z ośrodkiem materialnym hamiltonian H w (25) zawiera oprócz H_F również hamiltonian oddziaływania H_I . W tym przypadku rozwiązaniem (25) nie jest już pole swobodne (6), ale pojawiają się dodatkowe wyrazy zależne od czasu. Ta dodatkowa „wolnozmienna” zależność od czasu, wynikająca wyłącznie z oddziaływania H_I powoduje, że amplitudy $E^{(\pm)}(k)$ dane wzorem (16) stają się zależne od czasu.

Na ogół rozważa się ewolucję czasową operatorów pola znajdującego się we wnętrzu o objętości V . W naszym przypadku mamy jednak do czynienia z propagacją fali przez ośrodek o pewnej długości z . W tym przypadku pole fali wychodzącej z ośrodka będzie zależało od długości drogi z , którą przebyło ono w ośrodku aktywnym. W przypadku fal płaskich aby przejść od problemu pola we wnętrzu do problemu propagacji wystarczy zastąpić czas t przez $+z/c$, gdzie c jest prędkością światła /44/. W tej sytuacji równania ruchu Heisenberga (25) stają się równaniami opisującymi zależność operatorów k -tego modu pola od z :

$$\frac{\partial E^{(\pm)}(k; z)}{\partial z} = \frac{1}{i\hbar c} [E^{(\pm)}(k; z), H] \quad (26)$$

Następny kluczowy krok polega na takim dobraniu hamiltonianu oddziaływania H_I , aby można było uzyskać rozwiązanie równania (26) w dostatecznie ogólnej postaci analitycznej. Takie rozwiązanie zapewnia zastosowanie efektywnego hamiltonianu oddziaływania, który dla interesującego nas problemu określony jest przez (12) i (13) oraz polem elektrycznym w postaci kwantowej (19). Biorąc w (12) i (13) operatory pola E w porządku normalnym, otrzymamy hamiltonian efektywny w postaci:

$$\begin{aligned} H_I^{(2)} = & - \tilde{\chi}_R^L (\hat{a}_+^+ \hat{a}_+ + \hat{a}_-^+ \hat{a}_-) \\ & - i \tilde{\chi}_A^L (\hat{a}_+^+ \hat{a}_+ - \hat{a}_-^+ \hat{a}_-) \end{aligned} \quad (27)$$

$$\begin{aligned} H_I^{(4)} = & - \frac{1}{2} \tilde{\chi}_R^{NL} (\hat{a}_+^{+2} \hat{a}_+^2 + \hat{a}_-^{+2} \hat{a}_-^2) \\ & - \tilde{\chi}_R^{NL} \hat{a}_+^+ \hat{a}_-^+ \hat{a}_- \hat{a}_+ \\ & - \frac{1}{2} \tilde{\chi}_A^{NL} (\hat{a}_+^{+2} \hat{a}_+^2 - \hat{a}_-^{+2} \hat{a}_-^2) \end{aligned} \quad (28)$$

gdzie oznaczyliśmy:

$$\tilde{\chi}_R^L = c(\omega)^2 \chi_R^L, \quad \tilde{\chi}_A^L = c(\omega)^2 \chi_A^L \quad (29)$$

$$\tilde{\chi}_R^{NL} = c(\omega)^4 \chi_R^{NL}, \quad \tilde{\chi}_A^{NL} = c(\omega)^4 \chi_A^{NL} \quad (30)$$

$$\tilde{\chi}_A^{NL} = c(\omega)^4 \chi_A^{NL}$$

Na podstawie (26)-(28) otrzymujemy równanie ruchu na operatory pola (eliminujemy ewolucję swobodną):

$$\frac{d}{dz} a_{\pm}(z) = \frac{i}{\hbar c} \left\{ \tilde{\chi}_R^L \pm i \tilde{\chi}_A^L \right. \quad (31)$$

$$+ \left[\tilde{\chi}_R^{NL} \pm i \tilde{\chi}_A^{NL} \right] \hat{a}_\pm^+ (z) \hat{a}_\pm (z) + \tilde{\chi}_R^{NL} \hat{a}_\pm^+ (z) \hat{a}_\pm (z) \Big\} \hat{a}_\pm (z)$$

Ponieważ $\hat{a}_\pm^+ \hat{a}_\pm$ i $\hat{a}_\pm^+ \hat{a}_\pm$ są stałymi ruchu, przeto powyższe równanie ma ściśle rozwiązanie formalne w postaci operatora translacji:

$$\hat{a}_\pm (z) = \exp \left\{ i \left[\varphi_\pm (z) + \varepsilon_\pm (z) \hat{a}_\pm^+ (0) \hat{a}_\pm (0) + \delta (z) \hat{a}_\pm^+ (0) \hat{a}_\mp (0) \right] \right\} \hat{a}_\pm (0) \quad (32)$$

gdzie oznaczyliśmy:

$$\begin{aligned} \varphi_\pm (z) &= \frac{z}{\hbar c} \left(\tilde{\chi}_R^L \pm i \tilde{\chi}_A^L \right) \\ \varepsilon_\pm (z) &= \frac{z}{\hbar c} \left(\tilde{\chi}_R^{NL} \pm i \tilde{\chi}_A^{NL} \right) \\ \delta (z) &= \frac{z}{\hbar c} \tilde{\chi}_R^{NL} \end{aligned} \quad (33)$$

Pamiętając, że składowa operatora polaryzacji dipolowej jest z definicji /46/:

$$\hat{P}^+ = - \frac{\partial H_I}{\partial E^-} \quad (34)$$

oraz, że mamy w reprezentacji kołowej:

$$(n_\pm^2 - 1) E_\pm^+ = 4\pi P_\pm^+ \quad (35)$$

otrzymujemy na podstawie (27) i (28) na współczynniki załamania światła fal prawoskrętnie lub lewoskrętnie spolaryzowanych:

$$n_\pm^2 - 1 = \frac{4\pi}{c(\omega)^2} \left\{ \tilde{\chi}_F^L \pm i \tilde{\chi}_A^L + \left[\tilde{\chi}_R^{NL} \pm i \tilde{\chi}_A^{NL} \right] \hat{a}_\pm^+ \hat{a}_\pm + \tilde{\chi}_R^{NL} \hat{a}_\pm^+ \hat{a}_\mp \right\} \quad (36)$$

Stąd otrzymujemy na kołową dwójłomność optyczną w obecności silnego światła:

$$n_+^2 - n_-^2 = \frac{4\pi}{c(\omega)^2} \left\{ 2 i \tilde{\chi}_A^L + \left[\tilde{\chi}_R^{NL} - \tilde{\chi}_R^{NL} \right] (\hat{a}_+^+ \hat{a}_+ - \hat{a}_-^+ \hat{a}_-) \right\} \quad (37)$$

$$+ i \tilde{\chi}_A^{NL} (\hat{a}_+^\dagger \hat{a}_+ + \hat{a}_-^\dagger \hat{a}_-)$$

Jest to kwantowa postać otrzymanego poprzednio wzoru klasycznego /47/, w którym pierwszy wyraz określa naturalną aktywność optyczną ośrodka, drugi - indukowaną silnym światłem eliptycznym rotację elipsy polaryzacji /50/ a trzeci - nieliniową zmianę aktywności optycznej wywołaną silnym światłem /14b, 45, 48, 51/.

Biorąc pod uwagę (36) i (37), możemy pole (32) zapisać w postaci znanej z elipsometrii:

$$\hat{a}_\pm(z) = \exp(i\alpha \pm i\phi) \hat{a}_\pm(0) \quad (38)$$

gdzie mamy z definicji:

$$\alpha = \frac{1}{2} \frac{\omega}{c} (n_+ + n_-) z = \alpha_0 + \delta\alpha \quad (39)$$

$$\phi = \frac{1}{2} \frac{\omega}{c} (n_+ - n_-) z = \phi_0 + \delta\phi \quad (40)$$

przy czym ϕ jest kątem skręcenia płaszczyzny polaryzacji po przejściu światła przez ośrodek o długości z .

W nieobecności silnego pola mamy:

$$\alpha_0 = \frac{z}{\hbar c} \tilde{\chi}_R^L \quad (39a)$$

$$\phi_0 = \frac{z}{\hbar c} \tilde{\chi}_A^L \quad (40a)$$

natomiast zmiany wywołane silnym polem kwantowym wynoszą:

$$\delta\alpha = \frac{z}{2\hbar c} \left\{ \left[\tilde{\chi}_R^{NL} + \tilde{\chi}_R^{NL} \right] (\hat{a}_+^\dagger \hat{a}_+ + \hat{a}_-^\dagger \hat{a}_-) + i \tilde{\chi}_A^{NL} (\hat{a}_+^\dagger \hat{a}_+ - \hat{a}_-^\dagger \hat{a}_-) \right\} \quad (41)$$

$$\delta\phi = \frac{z}{2\hbar c} \left\{ \left[\tilde{\chi}_R^{NL} - \tilde{\chi}_R^{NL} \right] (\hat{a}_+^\dagger \hat{a}_+ - \hat{a}_-^\dagger \hat{a}_-) + i \tilde{\chi}_A^{NL} (\hat{a}_+^\dagger \hat{a}_+ + \hat{a}_-^\dagger \hat{a}_-) \right\} \quad (42)$$

Jeśli w szczególności światło jest spolaryzowane liniowo, wtedy otrzymujemy ($a_+ = a_- = a/\sqrt{2}$):

$$\delta\alpha = \frac{z}{2\hbar c} \left[\tilde{\chi}_R^{NL} + \tilde{\chi}_R^{NL} \right] \hat{a}^\dagger \hat{a} \quad (41a)$$

$$\delta\phi = \frac{iz}{2\hbar c} \tilde{\chi}_A^{NL} \hat{a}^\dagger \hat{a} \quad (42a)$$

a więc widzimy, że w tym przypadku $\delta\phi$ pojawia się tylko w ośrodku z nieliniową aktywnością optyczną.

ANTYGRUPOWANIE FOTONÓW

Ponieważ w ośrodku izotropowym opisywanym hamiltonianem oddziaływania danym przez (27) i (28) operatory liczby fotonów $\hat{a}_+^+ \hat{a}_+$ i $\hat{a}_-^+ \hat{a}_-$ są stałymi ruchu (komutują z hamiltonianem) to również dowolna funkcja tych operatorów jest stałą ruchu i w związku z tym statystyka fotonów składowych spolaryzowanych kołowo nie zmienia się w wyniku oddziaływania z ośrodkiem. Jeżeli składowa taka była przed ośrodkiem np. w stanie koherentnym z poissonowskim rozkładem liczby fotonów, to na wyjściu rozkład liczby fotonów będzie w dalszym ciągu poissonowski mimo, że stan pola na wyjściu, jak to pokażemy w następnym rozdziale, wcale nie musi być stanem koherentnym.

Jeżeli więc na wejściu do ośrodka pole nie wykazywało antygrupowania fotonów, to żadna ze składowych kołowych nie będzie wykazywała antygrupowania fotonów także na wyjściu. Łatwo jednak się przekonać /34/, że polaryzacja liniowa nie zachowuje się w czasie propagacji światła w izotropowym ośrodku nieliniowym, który jest przedmiotem rozważań w niniejszej pracy. Jeżeli weźmiemy dla przykładu składową spolaryzowaną wzdłuż osi x , to operator liczby fotonów $\hat{a}_x^+ \hat{a}_x$ takiej składowej nie komutuje z hamiltonianem oddziaływania, co oznacza, że również statystyka fotonów takiej składowej może ulec zmianie na skutek oddziaływania z ośrodkiem. Znając rozwiązania (32) dla operatorów pola $\hat{a}_+(z)$ i $\hat{a}_-(z)$ dla składowych o polaryzacji kołowej możemy korzystając z (24) napisać odpowiednie równania dla operatorów $\hat{a}_x(z)$ i $\hat{a}_y(z)$. Rozwiązania te pozwalają obliczyć wszystkie charakterystyki składowych x i y , wychodzących z ośrodka (możemy wybrać jedną z nich umieszczając za ośrodkiem odpowiednio zorientowany polaryzator) o ile znamy stan pola na wejściu. I tak, zakładając, że pole padające jest w stanie koherentnym z eliptyczną polaryzacją o azymucie θ i eliptyczności η , otrzymujemy dla średniej liczby fotonów w modzie x po przebyciu przez światło drogi z w ośrodku następujące wyrażenie:

$$\begin{aligned} \langle \hat{a}_x^+(z) \hat{a}_x(z) \rangle &= \frac{1}{2} \langle [\hat{a}_+^+(z) + \hat{a}_-^+(z)] [\hat{a}_+(z) + \hat{a}_-(z)] \rangle \\ &= \frac{1}{2} (|\alpha_+|^2 + |\alpha_-|^2) \\ &\quad + \operatorname{Re} \left\{ \alpha_+^* \alpha_- \exp \left[-i(\varphi_+ - \varphi_-) + (e^{-1(\epsilon_+ - \delta)} - 1) |\alpha_+|^2 \right. \right. \\ &\quad \left. \left. + (e^{i(\epsilon_- - \delta)} - 1) |\alpha_-|^2 \right] \right\} \end{aligned} \quad (43)$$

gdzie

$$\alpha_+ = \frac{\alpha}{\sqrt{2}} (\cos \eta + \sin \eta) e^{-i\theta} \quad (44)$$

$$\alpha_- = \frac{\alpha}{\sqrt{2}} (\cos \eta - \sin \eta) e^{i\theta}$$

zaś α jest wartością własną operatora anihilacji wiązki padającej, o której zakładamy, że jest w stanie koherentnym

$$\hat{a}(0)|\alpha\rangle = \alpha|\alpha\rangle \quad (45)$$

Zatem $|\alpha|^2 = |\alpha_+|^2 + |\alpha_-|^2$ jest średnią liczbą fotonów wiązki padającej. Wielkości $\varphi_{\pm} = \varphi_{\pm}(z)$, $\epsilon_{\pm} = \epsilon_{\pm}(z)$ i $\delta = \delta(z)$ dane są przez (33). Dla skrócenia zapisu opuszczamy w nich argument z .

Po uwzględnieniu (44), wyrażenie (43) można zapisać w nieco innej postaci:

$$\langle \hat{a}_x^+(z)\hat{a}_x(z) \rangle = \frac{|\alpha|^2}{2} \left\{ 1 + \cos 2\eta \exp B \cos(2\theta + C) \right\} \quad (46)$$

gdzie

$$B = \frac{|\alpha|^2}{2} (1 + \sin 2\eta) [\cos(\epsilon_+ - \delta) - 1] \\ + \frac{|\alpha|^2}{2} (1 - \sin 2\eta) [\cos(\epsilon_- - \delta) - 1]$$

$$C = -(\varphi_+ - \varphi_-) \\ - \frac{|\alpha|^2}{2} (1 + \sin 2\eta) \sin(\epsilon_+ - \delta) \\ + \frac{|\alpha|^2}{2} (1 - \sin 2\eta) \sin(\epsilon_- - \delta)$$

Formuła (46) została otrzymana z uwzględnieniem kwantowych własności pola promieniowania, tzn. z wykorzystaniem reguł komutacji (17). Dla porównania warto w tym miejscu przytoczyć odpowiednią formułę dla pola opisywanego klasycznie:

$$\langle \hat{a}_x^+(z)\hat{a}_x(z) \rangle_{\text{klas}} = \frac{1}{2} (|\alpha_+|^2 + |\alpha_-|^2) \\ + \Re \left\{ \alpha_+^* \alpha_- \exp[-i(\varphi_+ - \varphi_-) - i(\epsilon_+ - \delta)] |\alpha_+|^2 \right. \\ \left. + i(\epsilon_- - \delta) |\alpha_-|^2 \right\} \\ = \frac{|\alpha|^2}{2} \left\{ 1 + \cos 2\eta \cos [2\theta - (\varphi_+ - \varphi_-) \right. \\ \left. - \frac{|\alpha|^2}{2} (1 + \sin 2\eta) (\epsilon_+ - \delta) \right. \\ \left. + \frac{|\alpha|^2}{2} (1 - \sin 2\eta) (\epsilon_- - \delta) \right\} \quad (47)$$

$$= \frac{|\alpha|^2}{2} \left\{ 1 + \cos 2\eta \cos [2\theta - (\varphi_+ - \varphi_-)] \right. \\ \left. - \frac{|\alpha|^2}{2} \sin 2\eta (\varepsilon_+ + \varepsilon_- - 2\delta) \right. \\ \left. - \frac{|\alpha|^2}{2} (\varepsilon_+ - \varepsilon_-) \right\}$$

W formule (47) można, podobnie jak w (37), łatwo zidentyfikować poszczególne efekty związane z rozchodzeniem się światła. Tak więc, $\varphi_+ - \varphi_-$ opisuje naturalną aktywność optyczną, $\varepsilon_+ + \varepsilon_- - 2\delta$ określa indukowaną silnym światłem rotację elipsy polaryzacji (ze względu na $\sin 2\eta$ występujący w tym członie konieczna jest eliptyczna polaryzacja światła padającego), zaś $\varepsilon_+ - \varepsilon_-$ opisuje nieliniową zmianę aktywności optycznej.

Aby jeszcze bardziej uwydatnić różnicę pomiędzy kwantowym wyrażeniem (46) i jego klasycznym odpowiednikiem (47) założymy, że ośrodek składa się z molekuł nieaktywnych optycznie. Wtedy $\varphi_+ - \varphi_- = 0$ i $\varepsilon_+ = \varepsilon_- = \varepsilon$. Założymy ponadto, że światło padające jest spolaryzowane liniowo ($\eta = 0$) z azymutem $\theta = \frac{\pi}{2}$, tzn. prostopadle do kierunku obserwowanego. Wtedy klasyczne wyrażenie (47) staje się zerem, natomiast wyrażenie kwantowe (46) ze względu na występujący w nim eksponent jest różne od zera. Oznacza to, że w przypadku pola kwantowego pojawiają się fotony o polaryzacji prostopadłej do polaryzacji światła padającego. Innymi słowy, w ośrodku nieliniowym polaryzacja liniowa pola kwantowego nie zachowuje się. Efekt ten był dyskutowany przez Ritze /49/.

Przejdziemy teraz do zasadniczego tematu tego rozdziału, a mianowicie problemu antygrupowania fotonów. Aby rozstrzygnąć, czy pole wychodzące z ośrodka wykazuje efekt antygrupowania fotonów należy obliczyć funkcję korelacji drugiego rzędu $\langle \hat{a}_x^{+2}(z) \hat{a}_x^2(z) \rangle$. Korzystając z rozwiązań (32), przy założeniu, że wiązka padająca jest w stanie koherentnym $|\alpha\rangle$ otrzymujemy:

$$\begin{aligned} \langle \hat{a}_x^{+2}(z) \hat{a}_x^2(z) \rangle &= \frac{1}{4} \langle [\hat{a}_+^+(z) + \hat{a}_-^+(z)]^2 [\hat{a}_+(z) + \hat{a}_-(z)]^2 \rangle \quad (48) \\ &= \frac{1}{4} (|\alpha_+|^4 + |\alpha_-|^4 + 4 |\alpha_+|^2 |\alpha_-|^2) \\ &\quad + \frac{1}{2} \operatorname{Re} \left\{ \alpha_+^{*2} \alpha_-^2 \exp[-i(\varepsilon_+ - \varepsilon_-) - 2i(\varphi_+ - \varphi_-)] \right. \\ &\quad \left. + (e^{-2i(\varepsilon_+ - \delta)} - 1) |\alpha_+|^2 \right. \\ &\quad \left. + (e^{2i(\varepsilon_- - \delta)} - 1) |\alpha_-|^2 \right\} \\ &\quad + 2 |\alpha_+|^2 \alpha_+^* \alpha_- \exp[-i(\varepsilon_+ - \delta) - i(\varphi_+ - \varphi_-)] \\ &\quad \left. + (e^{-i(\varepsilon_+ - \delta)} - 1) |\alpha_+|^2 \right. \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
 & + (e^{1(\epsilon_- - \delta)} - 1) |\alpha_-|^2] \\
 & + 2 |\alpha_-|^2 \alpha_-^* \alpha_+ \exp [-i(\epsilon_- - \delta) + i(\varphi_+ - \varphi_-) \\
 & + (e^{1(\epsilon_+ - \delta)} - 1) |\alpha_+|^2 \\
 & + (e^{-1(\epsilon_- - \delta)} - 1) |\alpha_-|^2] \}
 \end{aligned}$$

(gdzie α_+ i α_- dane są przez (45). Światło wychodzące wykazuje efekt antykorelacji fotonów, jeżeli:

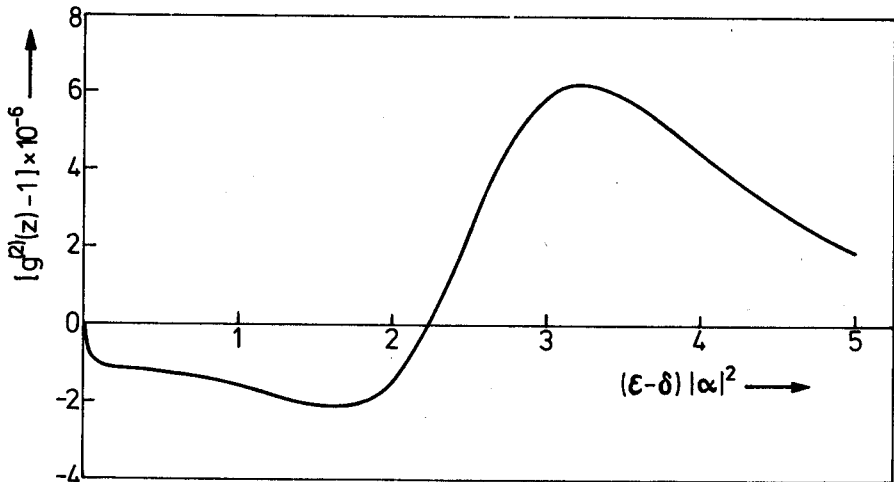
$$\langle \hat{a}_x^{+2}(z) \hat{a}_x^2(z) \rangle - \langle \hat{a}_x^+(z) \hat{a}_x(z) \rangle^2 < 0 \quad (49)$$

Wyrażenie (48) jest dość skomplikowane i trudno bez analizy numerycznej stwierdzić czy warunek (49) jest spełniony. Często definiuje się unormowaną funkcję korelacji drugiego rzędu:

$$g^{(2)}(z) = \frac{\langle \hat{a}_x^{+2}(z) \hat{a}_x^2(z) \rangle}{\langle \hat{a}_x^+(z) \hat{a}_x(z) \rangle^2} \quad (50)$$

i wtedy (49) można zapisać:

$$g^{(2)}(z) - 1 < 0 \quad (51)$$



Rys.1. Zależność $g^{(2)}(z) - 1$ od $[\epsilon(z) - \delta(z)] |\alpha|^2$ dla $\epsilon - \delta = 1 \times 10^{-6}$, $\theta = -\pi/4$ i $\varphi = \pi/6$

Na rys.1 przedstawiony jest wykres funkcji $g^{(2)}(z)-1$ w zależności od $(\epsilon - \delta) |\alpha|^2$ dla ośrodka złożonego z molekuł nieaktywnych optycznie oraz dla eliptycznej polaryzacji światła padającego z $\eta = \pi/8$ oraz $\theta = -\pi/4$. Wykres ten pokazuje oscylacyjne zachowanie się funkcji $g^{(2)}(z)-1$ z ujemnymi oraz dodatnimi wartościami. Ujemne wartości świadczą o istnieniu efektu antykorelacji fotonów. Dla molekuł optycznie nieaktywnych funkcja ta zależy od jednego tylko parametru molekularnego

$$\epsilon(z) - \delta(z) = -\frac{2Nz}{\hbar c} \tilde{\sigma}_1(\omega) \quad (52)$$

który na rys.1 przyjęliśmy jako równy 1×10^{-6} , zgodnie z oszacowaniami zrobionymi przez Ritze i Bandilla /52/. Aby uzyskać wartości $(\epsilon - \delta) |\alpha|^2$ rzędu jedności trzeba wiązki o średniej liczbie fotonów $|\alpha|^2 \approx 10^6$. Z wykresu widać, że wartości $g^{(2)}(z)-1$ uzyskane w tym procesie są bardzo małe - rzędu $1/|\alpha|^2$. Możliwość otrzymania efektu antykorelacji fotonów w takim procesie została przewidziana przez Tanasia i Kielicha /34a/ metodą perturbacyjną, a następnie potwierdzona przez Ritze /49/, który otrzymał ściśle rozwiązania.

W przypadku molekuł aktywnych optycznie $\varphi_+ - \varphi_- \neq 0$, $\epsilon_+ - \epsilon_- \neq 0$ i trzeba wtedy stosować pełne rozwiązania dane wzorami (47) i (48). Jeżeli jednak $\tilde{\sigma}_1(\omega) = 0$, to wyrażenia te znowu znacznie się upraszczają, ponieważ:

$$\epsilon_+ - \delta = -(\epsilon_- - \delta) = i \frac{Nz}{\hbar c} [\tilde{\sigma}_2(\omega) + \tilde{\sigma}_3(\omega)] = \sigma \quad (53)$$

Otrzymujemy wtedy:

$$\begin{aligned} & \langle \hat{a}_x^+(z) \hat{a}_x(z) \rangle \\ & = \frac{|\alpha|^2}{2} \left\{ 1 + \cos 2\eta \exp [|\alpha|^2 (\cos \sigma - 1)] \cos [2\theta - (\varphi_+ - \varphi_-) - |\alpha|^2 \sin \sigma] \right\} \end{aligned} \quad (54)$$

$$\begin{aligned} & \langle \hat{a}_x^{+2}(z) \hat{a}_x^2(z) \rangle \\ & = \frac{|\alpha|^4}{4} \left\{ 1 + \frac{1}{2} \cos^2 2\eta + \frac{1}{2} \cos^2 2\eta \exp D \cos E + 2 \cos 2\eta \exp F \cos G \right\} \end{aligned}$$

gdzie

$$\begin{aligned} D & = |\alpha|^2 (\cos 2\sigma - 1) \\ E & = 4\theta - 2(\varphi_+ - \varphi_-) - 2\sigma - |\alpha|^2 \sin 2\sigma \\ F & = |\alpha|^2 (\cos \sigma - 1) \\ G & = 2\theta - (\varphi_+ - \varphi_-) - \sigma - |\alpha|^2 \sin \sigma \end{aligned} \quad (55)$$

Wyrażenia (54) i (55) zależą od dwóch parametrów molekularnych

$$\rho_+ - \rho_- = \frac{iNz}{\hbar c} \tilde{\rho} \quad \text{oraz} \quad \sigma = \frac{iNz}{\hbar c} [\tilde{\sigma}_2(\omega) + \tilde{\sigma}_3(\omega)]$$

opisujących naturalną i nieliniową aktywność optyczną.

Wszystkie otrzymane tutaj wyrażenia są w dalszym ciągu słuszne dla dowolnej polaryzacji wiązki padającej określonej przez parametry θ i η . Warto zauważyć, że dla polaryzacji kołowej światła padającego ($\eta = \pm \pi/4$) otrzymujemy:

$$\begin{aligned} \langle \hat{a}_x^+(z) \hat{a}_x(z) \rangle &= \frac{|\alpha|^2}{2} \\ \langle \hat{a}_x^{+2}(z) \hat{a}_x^2(z) \rangle &= \frac{|\alpha|^4}{4} \end{aligned} \quad (56)$$

a więc $g^{(2)}(z) - 1 = 0$. Jest to zgodne z tym co powiedzieliśmy wcześniej, że statystyka fotonów wiązki kołowo spolaryzowanej nie zmienia się. Polaryzator przepuszczający tylko składową x powoduje jedynie zmniejszenie intensywności wiązki padającej do połowy, ale jej statystyka pozostaje bez zmian. Wszelkie odstępstwa od polaryzacji kołowej wiązki padającej będą już, jak łatwo sprawdzić, powodowały zmiany statystyki fotonów w wiązce przechodzącej przez ośrodek nieliniowy. Można w ten sposób wytworzyć stany pola wykazujące antykorelację fotonów chociaż, jak pokazują obliczenia numeryczne przedstawione graficznie na rys.1, wartość efektu antykorelacji jest niewielka jeżeli wiązka padająca jest silna ($|\alpha|^2$ duże).

STANY ŚCIEŚNIONE POLA

Fakt, że statystyka fotonów wiązki spolaryzowanej kołowo nie zmienia się przy przejściu światła przez izotropowy ośrodek nieliniowy nie oznacza jednak, że stan pola również nie zmienia się na skutek takiego oddziaływania. Okazuje się, że pole w wyniku takiego oddziaływania może znaleźć się w stanie ścieśnionym, który nie ma odpowiednika klasycznego. Aby to pokazać wprowadzimy dwa hermitowskie operatory pola \hat{Q}_σ i \hat{P}_σ zdefiniowane następująco:

$$\hat{Q}_\sigma = \hat{a}_\sigma + \hat{a}_\sigma^+, \quad \hat{P}_\sigma = -i(\hat{a}_\sigma - \hat{a}_\sigma^+) \quad (57)$$

gdzie σ oznacza $+$ (-) w bazie kołowej lub $x(y)$ w bazie kartezjańskiej. Operatory \hat{Q} i \hat{P} spełniają następującą regułę komutacji:

$$[\hat{Q}_\sigma, \hat{P}_\sigma] = 2i \delta_{\sigma\sigma'} \quad (58)$$

Stan ścieśniony pola elektromagnetycznego definiuje się /21/ jako taki stan pola, w którym kwadrat nieoznaczoności \hat{Q}_G lub \hat{P}_G jest mniejszy od jedności:

$$\langle (\Delta \hat{Q}_G)^2 \rangle < 1 \quad \text{lub} \quad \langle (\Delta \hat{P}_G)^2 \rangle < 1 \quad (59)$$

gdzie $\Delta \hat{Q}_G = \hat{Q}_G - \langle \hat{Q}_G \rangle$. Wprowadzając porządek normalny operatorów kreacji i anihilacji definicja (59) może być przepisana w postaci /21, 22/:

$$\langle : (\Delta \hat{Q}_G)^2 : \rangle < 0 \quad \text{lub} \quad \langle : (\Delta \hat{P}_G)^2 : \rangle < 0 \quad (60)$$

Aby obliczyć wielkości występujące w definicji (60) w rozważanym przez nas procesie propagacji światła w ośrodku nieliniowym, należy do (60) wstawić operatorowe rozwiązania (32) oraz obliczyć wartość średnią w stanie kwantowym wiązki padającej o którym założyliśmy, że jest stanem koherentnym $|\alpha\rangle$ zdefiniowanym przez (45). Jeżeli któraś z normalnie uporządkowanych wariancji okaże się ujemna, to odpowiednia składowa pola wiązki wychodzącej jest w stanie ścieśnionym, który nie ma odpowiednika klasycznego. Obliczenia nasze dają dla normalnie uporządkowanych wariancji wiązki wychodzącej z ośrodka następujące wyrażenia:

$$\begin{aligned} & \langle : [\Delta \hat{Q}_\pm(z)]^2 : \rangle \\ &= \langle : [\hat{a}_\pm(z) + \hat{a}_\pm^\dagger(z)]^2 : \rangle - \langle \hat{a}_\pm(z) \hat{a}_\pm^\dagger(z) \rangle^2 \\ &= 2 \operatorname{Re} \left\{ \alpha_\pm^2 \exp [2i \varphi_\pm + i \epsilon_\pm + (e^{2i\epsilon_\pm} - 1) |\alpha_\pm|^2 \right. \\ & \quad \left. + (e^{2i\delta} - 1) |\alpha_\mp|^2] \right. \\ & \quad \left. - \alpha_\pm^2 \exp [2i \varphi_\pm + 2(e^{i\epsilon_\pm} - 1) |\alpha_\pm|^2 \right. \\ & \quad \left. + 2(e^{i\delta} - 1) |\alpha_\mp|^2] \right\} \\ & + 2 |\alpha_\pm|^2 \left\{ 1 - \exp [2(\cos \epsilon_\pm - 1) |\alpha_\pm|^2 + 2(\cos \delta - 1) |\alpha_\mp|^2] \right\} \end{aligned} \quad (61)$$

gdzie α_\pm dane są przez (44), zaś $\varphi_\pm = \varphi_\pm(z)$, $\epsilon_\pm = \epsilon_\pm(z)$ oraz $\delta = \delta(z)$ - przez (33). Dla operatorów \hat{P}_\pm otrzymujemy:

$$\langle : [\Delta \hat{P}_\pm(z)]^2 : \rangle = -2 \operatorname{Re} \{ \dots \} + 2 |\alpha_\pm|^2 \{ \dots \} \quad (62)$$

gdzie wyrażenia w nawiasach są takie same jak w (61).

Szczególnie interesujący jest przypadek kołowej polaryzacji wiązki padającej ponieważ, jak pokazaliśmy wcześniej, statystyka fotonów takiej wiązki nie zmienia się. Założmy więc, że wiązka padająca jest spolaryzo-

wana kołowo z $\eta = \pi/4$ i $\theta = 0$. Wtedy $|\alpha_+|^2 = |\alpha|^2$, $|\alpha_-|^2 = 0$ i (61) przyjmuje znacznie prostszą postać:

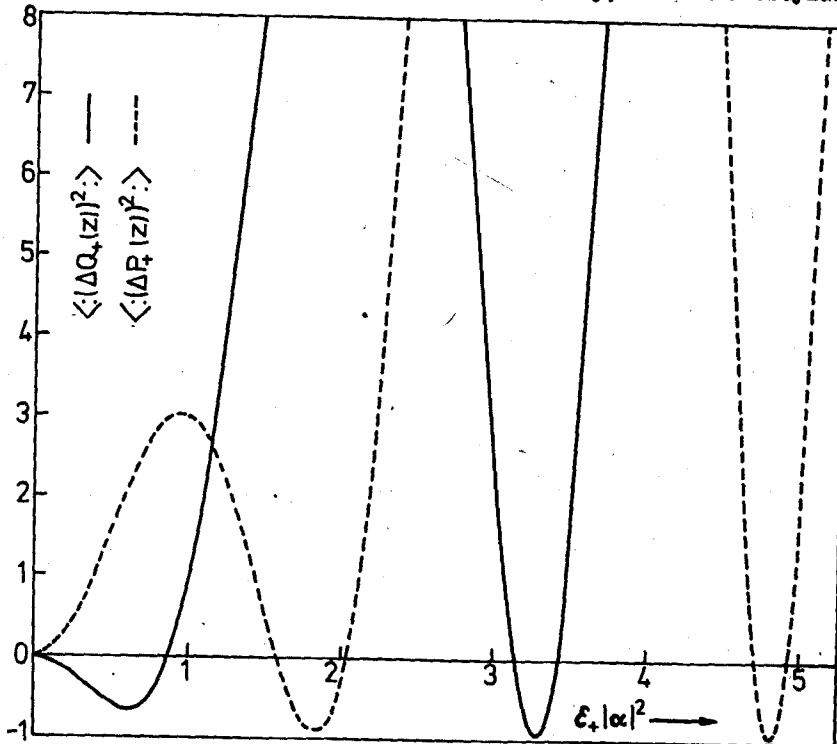
$$\begin{aligned} & \langle : [\Delta \hat{Q}_+(z)]^2 : \rangle \\ &= 2|\alpha|^2 \left\{ \exp[|\alpha|^2(\cos 2\varepsilon_+ - 1)] \cos(\varphi_+ + \varepsilon_+ + |\alpha|^2 \sin 2\varepsilon_+) \right. \\ & \quad \left. - \exp[2|\alpha|^2(\cos \varepsilon_+ - 1)] \cos(\varphi_+ + 2|\alpha|^2 \sin \varepsilon_+) \right\} \quad (63) \\ & + 2|\alpha|^2 \left\{ 1 - \exp[2|\alpha|^2(\cos \varepsilon_+ - 1)] \right\} \end{aligned}$$

Podobnie (62) przechodzi w:

$$\langle : [\Delta \hat{P}_+(z)]^2 : \rangle = -2|\alpha|^2 \{ \dots \} + 2|\alpha|^2 \{ \dots \} \quad (64)$$

z wyrażeniami w nawiasach identycznymi jak w (63).

Przyjmując fazę początkową pola φ_0 w taki sposób aby $\varphi_+(z) + \varphi_0 = 0$ oraz przyjmując wartość $\varepsilon_+(z) = 1 \times 10^{-6}$, podobnie jak w przypadku zjawiska antykorelacji fotonów, wyrażenia (63) i (64) zilustrowano graficznie na rys.2. Z rysunku widać, że (63) i (64) mają charakter oscylacyjny



Rys.2. Zależność $\langle : [\Delta \hat{Q}_+(z)]^2 : \rangle$ i $\langle : [\Delta \hat{P}_+(z)]^2 : \rangle$ od $\varepsilon_+(z)|\alpha|^2$ dla $\varepsilon_+ = 1 \times 10^{-6}$, $\theta=0$, $\varphi_+ + \varphi_0 = 0$ i $\eta = \pi/4$

w zależności od $\epsilon_+(z)$ $|\alpha|^2$ przyjmując wartości zarówno dodatnie jak i ujemne. Dla wartości ujemnych odpowiednia składowa pola $\hat{Q}_+(z)$ bądź $\hat{P}_+(z)$ jest ściśniona. Oznacza to, że mimo poissonowskiej statystyki fotonów pole może być w stanie ściśnionym. Warto także zwrócić uwagę na wartości efektu ściśniania pola możliwe do uzyskania w rozważanym procesie. Otóż przy używanej przez nas definicji operatorów \hat{Q}_+ i \hat{P}_+ dozwoloną przez mechanikę kwantową wartością dla (63) lub (64) jest wartość -1 , która oznacza zerowe fluktuacje pola. Z rysunku widać, że pierwsze minimum $\langle : [\Delta \hat{Q}_+(z)]^2 : \rangle$ ma wartość $-0,66$, zaś drugie minimum ma już wartość $-0,97$ - czyli 97% wartości dozwolonej przez mechanikę kwantową. Wartość ta oznacza redukcję fluktuacji kwantowych istniejących w wiązce koherentnej o dwa rzędy wielkości. Pierwsze minimum funkcji $\langle : [\Delta \hat{P}_+(z)]^2 : \rangle$ ma wartość $-0,92$, czyli również znacznie zredukowane fluktuacje kwantowe. Wyrażenia (63) i (64) przy odpowiedniej zamianie zmiennych są identyczne z odpowiednimi wyrażeniami dla oscylatora anharmonicznego /35/.

Dla składowej x polaryzacji wiązki wychodzącej odpowiednie równanie ma postać:

$$\begin{aligned}
 & \langle : [\Delta \hat{Q}_x(z)]^2 : \rangle \\
 &= \langle : [\hat{a}_x(z) + \hat{a}_x^+(z)]^2 : \rangle - \langle \hat{a}_x(z) + \hat{a}_x^+(z) \rangle^2 \\
 &= \frac{1}{2} [\langle : [\hat{a}_+(z) + \hat{a}(z) + \hat{a}_+^+(z) + \hat{a}_-^+(z)]^2 : \rangle \\
 &\quad - \langle \hat{a}_+(z) + \hat{a}(z) + \hat{a}_+^+(z) + \hat{a}_-^+(z) \rangle^2] \\
 &= \text{Re} \left\{ \alpha_+^2 \exp [2i\varphi_+ + i\epsilon_+ + (e^{2i\epsilon_+} - 1) |\alpha_+|^2 + (e^{2i\delta} - 1) |\alpha_-|^2] \right. \\
 &\quad - \alpha_+^2 \exp [2i\varphi_+ + 2(e^{i\epsilon_+} - 1) |\alpha_+|^2 + 2(e^{i\delta} - 1) |\alpha_-|^2] \\
 &\quad + \alpha_-^2 \exp [2i\varphi_- + i\epsilon_- + (e^{2i\epsilon_-} - 1) |\alpha_-|^2 + (e^{2i\delta} - 1) |\alpha_+|^2] \\
 &\quad - \alpha_-^2 \exp [2i\varphi_- + 2(e^{i\epsilon_-} - 1) |\alpha_-|^2 + 2(e^{i\delta} - 1) |\alpha_+|^2] \\
 &\quad + 2\alpha_+ \alpha_- \exp [i(\varphi_+ + \varphi_- + \delta) + (e^{i(\epsilon_+ + \delta)} - 1) |\alpha_+|^2 + (e^{i(\epsilon_- - \delta)} - 1) |\alpha_-|^2] \\
 &\quad \left. - 2\alpha_+ \alpha_- \exp [i(\varphi_+ + \varphi_-) + (e^{i\epsilon_+ + i\delta} - 2) |\alpha_+|^2 \right. \\
 &\quad \left. + (e^{i\epsilon_-} - 2) |\alpha_-|^2] \right\} \\
 &+ \left\{ |\alpha_+|^2 + |\alpha_-|^2 \right. \\
 &\quad \left. - |\alpha_+|^2 \exp [2(\cos \epsilon_+ - 1) |\alpha_+|^2 + 2(\cos \delta - 1) |\alpha_-|^2] \right\}
 \end{aligned} \tag{65}$$

$$\begin{aligned}
& - |\alpha_-|^2 \exp [2(\cos \varepsilon - 1) |\alpha_-|^2 + 2(\cos \delta - 1) |\alpha_+|^2] \\
& + 2 \operatorname{Re} \left\{ \alpha_+^* \alpha_- \exp [-i(\varphi_+ - \varphi_-) + (e^{-i(\varepsilon_+ - \delta)} - 1) |\alpha_+|^2 + (e^{i(\varepsilon - \delta)} - 1) |\alpha_-|^2] \right. \\
& \quad \left. - \alpha_+^* \alpha_- \exp [-i(\varphi_+ - \varphi_-) + (e^{-i\varepsilon_+ + i\delta} - 2) |\alpha_+|^2 \right. \\
& \quad \quad \left. + (e^{i\varepsilon} + e^{-i\delta} - 2) |\alpha_-|^2] \right\}
\end{aligned}$$

gdzie wszystkie wielkości zostały zdefiniowane wcześniej. Dla drugiej składowej pola otrzymujemy

$$\langle : [\Delta \hat{P}_x(z)]^2 : \rangle = -\operatorname{Re} \{ \dots \} + \{ \dots \} \quad (66)$$

z nawiasami identycznymi jak w (65).

Wyrażenia (65) i (66) są wyrażeniami ścisłymi. Są one niestety bardzo skomplikowane i jedynie numeryczna analiza pozwala rozstrzygnąć problem ścieśniania stanów pola. Wyrażenia te mogą być znacznie uproszczone przy pewnych założeniach co do polaryzacji wiązki padającej i charakteru ośrodka.

Dla molekuł nieaktywnych optycznie szczegółowa analiza (65) i (66) została zrobiona wcześniej /34/. Okazało się, że także składowe $\hat{Q}_x(z)$ i $\hat{P}_x(z)$ mogą być ścieśnione po przejściu przez ośrodek nieliniowy. Maksymalne wartości ścieśnienia dla tych składowych są takie same jak dla \hat{Q}_+ i \hat{P}_+ , chociaż minima mogą się pojawić dla innych wartości natężenia pola. Interesujący jest także fakt, że przy liniowej polaryzacji wiązki padającej ortogonalnej do polaryzacji mierzonej ($\theta = \pi/2$) pojawiające się pole może być również w stanie ścieśnionym.

Dla molekuł aktywnych optycznie trzeba stosować pełne rozwiązania (65) i (66). Zwykle jednak tensory opisujące nieliniową aktywność optyczną są kilka rzędów wielkości mniejsze od tensorów $\chi_{ijkl}(\omega)$ i w praktyce $\varepsilon_+ \approx \varepsilon_-$. Można więc na ogół zaniedbać w tym procesie wkład od nieliniowej aktywności optycznej, który byłby istotny tylko wtedy gdyby wyrażenie zależało od różnicy $\varepsilon_+ - \varepsilon_-$.

Opisany mechanizm wytwarzania stanów ścieśnionych pola jest uniwersalny w tym sensie, że zachodzi on także dla molekuł czy atomów o sferycznej symetrii.

ZAKOŃCZENIE

Przedmiotem naszych rozważań był problem wytwarzania pól kwantowych, które nie mają odpowiedników klasycznych w procesie propagacji światła przez nieliniowy ośrodek optycznie aktywny. Rozważano możliwość pojawienia się dwóch nieklasycznych efektów - antygrupowania fotonów i ścieśniania stanów pola. Pokazano, że obydwa nieklasyczne efekty mogą pojawić

się w odpowiednich składowych pola na wyjściu. Tak więc proces propagacji światła w ośrodku nieliniowym może być źródłem pól nieklasycznych. Jednak w przypadku silnych pól efekt antygrupowania fotonów, który można uzyskać tą drogą jest niewielki (rys.1), rzędu $|\alpha|^{-2} = \langle n \rangle^{-1}$ odwrotności średniej liczby fotonów wiązki padającej. Jak pokazał Ritze /49/ efekt antykorelacji otrzymany w takim procesie można powiększyć poprzez interferencję z inną wiązką, w wyniku której średnia liczba fotonów wiązki wypadkowej zostaje znacznie zredukowana.

Analizowany proces propagacji światła okazuje się być znacznie bardziej efektywny jeśli chodzi o wytwarzanie stanów pola wykazujących efekt ścieśniania. Jak pokazaliśmy, można tą drogą uzyskać efekt ścieśnienia około 97%. Efekt ten występuje także w przypadku kołowo spolaryzowanej wiązki padającej, dla której nie ma zmiany statystyki fotonów. Oznacza to, że mogą istnieć stany ścieśnione pola o poissonowskim rozkładzie fotonów, który jest charakterystyczny dla pola w stanie koherentnym. Powyższe rozważania pokazują także wyraźnie różnicę pomiędzy efektem antygrupowania fotonów i ścieśniania stanów światła. Postać rozwiązań (32) dla operatorów pola, która w istocie opisuje nieliniową zmianę fazy pola prowadzi do powstania stanów ścieśnionych pola, natomiast liczba fotonów $\hat{a}_+^+ \hat{a}_+ (\hat{a}_-^+ \hat{a}_-)$ która od fazy nie zależy, nie ulega zmianie. Aby uzyskać efekt antygrupowania fotonów trzeba dokonać nieliniowej zmiany liczby fotonów. Można tego dokonać dla składowych x i y polaryzacji, dla których liczba fotonów $\hat{a}_x^+ \hat{a}_x (\hat{a}_y^+ \hat{a}_y)$ ulega zmianie na skutek oddziaływania.

Warto podkreślić, że otrzymane rozwiązania są ścisłe, co rzadko udaje się uzyskać w tego typu problemach. Rozwiązania te są słuszne dla dowolnej polaryzacji wiązki padającej i uwzględniają w sposób jawny własności molekuł oddziałujących z polem.

Proces ścieśniania stanów pola wywołany oddziaływaniem tegoż pola z ośrodkiem nieliniowym nazwaliśmy /34/ procesem samościeśniania stanów pola. Jest to nowy i wydajny sposób wytwarzania pól kwantowych polegający na tym, że silna wiązka lasera przechodząc przez ośrodek powoduje jego nieliniowość optyczną dzięki której doznaje samościeśniania własnych stanów pola. Proces samościeśniania (samościskania) występuje w mniejszym lub większym stopniu we wszystkich zjawiskach nieliniowych, nawet wtedy gdy nie dokonujemy jego detekcji.

W ostatnich latach rozwinęły się eksperymentalne i teoretyczne badania nieliniowej aktywności optycznej metodami spektroskopii laserowej /47,53-56/. Różne aspekty antykorelacji fotonów oraz stanów ścieśnionych pola są przedstawione w /57-177/. Na szczególną uwagę zasługują nowe pomiary antykorelacji fotonów /126, 127/ oraz pierwsze próby wytworzenia stanów ścieśnionych pola elektromagnetycznego /128,186-188/.

DODATEK I

Ograniczając się do przypadku słabej dyspersji przestrzennej i pomijając sumowanie po k , liniowy $H_I^{(2)}(p)$ i nieliniowy $H_I^{(4)}(p)$ hamiltonian oddziaływania p -tego mikroukładu (atom, molekula) z polem promieniowania można zapisać w postaci (układ SI):

$$H_I^{(2)}(p) = - [H(-\bar{\omega}; \dot{\omega})_p + H(\dot{\omega}; -\bar{\omega})_p] \quad (D.1)$$

$$\begin{aligned} H_I^{(4)}(p) = & - [H(-\bar{\omega}; -\bar{\omega}, \dot{\omega}, \dot{\omega})_p + H(-\bar{\omega}; \dot{\omega}, -\bar{\omega}, \dot{\omega})_p \\ & + H(-\bar{\omega}; \dot{\omega}, \dot{\omega}, -\bar{\omega})_p + H(\dot{\omega}; \dot{\omega}, -\bar{\omega}, -\bar{\omega})_p \\ & + H(\dot{\omega}; -\bar{\omega}, \dot{\omega}, \bar{\omega})_p + H(\dot{\omega}; -\bar{\omega}, -\bar{\omega}, \dot{\omega})_p] \end{aligned} \quad (D.2)$$

gdzie

$$\begin{aligned} H(-\bar{\omega}; \dot{\omega})_p = & \frac{1}{2} \left\{ \alpha(p; -\omega; \omega) E_{1j}^- E_j^+ \right. \\ & + \frac{1}{2} \left[\eta(p; -\omega; \omega) E_{1(jk)}^- \nabla_k E_j^+ + \eta(p; -\omega; \omega) (\nabla_k E_1^-) E_j^+ \right] \\ & \left. + \varrho(p; -\omega; \omega) E_{1j}^- E_j^+ + \lambda(p; -\omega; \omega) E_{1j}^- E_j^+ \right\} \\ & + \text{h.c.} \end{aligned} \quad (D.3)$$

$$H(-\bar{\omega}; -\bar{\omega}, \dot{\omega}, \dot{\omega})_p$$

$$= \frac{1}{24} \left\{ \delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) E_{1jkl}^- E_j^+ E_k^+ E_l^+ \right.$$

$$\begin{aligned}
& + \frac{1}{3} \left[\eta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^- E_j^- E_k^+ \nabla_m E_l^+ \right. \\
& \quad \left. + \eta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^- E_j^- (\nabla_m E_k^+) E_l^+ \right. \\
& \quad \left. + \eta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^- (\nabla_m E_j^-) E_k^+ E_l^+ \right. \\
& \quad \left. + \eta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) (\nabla_m E_i^-) E_j^- E_k^+ E_l^+ \right] \\
& + \rho(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^- E_j^- E_k^+ E_l^+ + \mathcal{K}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^- E_j^- E_k^+ E_l^+ \\
& + \mathcal{G}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^- E_j^- E_k^+ E_l^+ + \lambda(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) E_i^- E_j^- E_k^+ E_l^+ \\
& + \text{h.c.}
\end{aligned} \tag{D.4}$$

przy czym w powyższych wyrażeniach

$$\vec{E}^\pm = \vec{E}^\pm(\vec{r}, t), \quad \vec{B}^\pm = \vec{B}^\pm(\vec{r}, t) \tag{D.5}$$

zaś

$$\vec{E}^\pm(\vec{r}, t) = \vec{E}^\pm(\vec{k}) e^{\pm i(\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t)} \tag{D.6}$$

Ostatnia relacja wynika z ograniczenia sumy w (6) do jednego składnika, co oznacza, że rozpatrujemy przypadek pola optycznego o jednym wektorze falowym.

Charakterystyczną cechą liniowej i nieliniowej teorii odpowiedzi /178/ w przypadku sygnału oscylującego w czasie z częstością kołową ω jest zależność responsu od ω , zwana potocznie dyspersją czasową. Zgodnie z tym, w przypadku sygnału optycznego hamiltonian (3) i (4) winien zawierać zależność od dyspersji czasowej. Zależność tę wprowadzono do hamiltonianu przez uwzględnienie dyspersji czasowej w stałych sprzężeniach (liniowych i nieliniowych polaryzowalnościach elektrycznych i magnetycznych). Liniowe i nieliniowe polaryzowalności elektryczne i magnetyczne p-tej molekuly w ujęciu kwantowomechanicznym można znaleźć w /43, 112/:

$$\chi_A^{(a)} \chi_C^{(c)}(p; -\omega; \omega) =$$

$$= \frac{\int \psi(p)\psi(p)}{h} \left[\frac{\langle \psi\psi_f(p) | M_A^{(a)} | \phi\phi_g(p) \rangle \langle \phi\phi_g(p) | M_C^{(c)} | \psi\psi_f(p) \rangle}{\omega + \omega_{\phi(p)\psi(p)}} + \frac{\langle \psi\psi_f(p) | M_C^{(c)} | \phi\phi_g(p) \rangle \langle \phi\phi_g(p) | M_A^{(a)} | \psi\psi_f(p) \rangle}{-\omega + \omega_{\phi(p)\psi(p)}} \right]$$

$$(a) \chi_{DQC}^{(d,q,c)}(p; -\omega, -\omega, \omega, \omega)$$

(D.7)

$$= S([M_A^{(a)}, M_D^{(d)}], [M_Q^{(q)}, M_C^{(c)}]) \frac{\int \psi(p)\psi(p)}{3!h}$$

$$\frac{\langle \psi\psi_f(p) | E_{\phi\phi_g(p)} E_{\xi\xi_h(p)} E_{\xi\xi_r(p)} | \psi\psi_f(p) \rangle}{\phi\phi_g(p), \xi\xi_h(p), \xi\xi_r(p) + \psi\psi_f(p)}$$

(D.8)

przy czym

$$E_{\phi\phi_g(p)} E_{\xi\xi_h(p)} E_{\xi\xi_r(p)}$$

(D.8a)

$$= \frac{M_A^{(a)} | \phi\phi_g(p) \rangle \langle \phi\phi_g(p) | M_D^{(d)} | \xi\xi_h(p) \rangle \langle \xi\xi_h(p) | M_Q^{(q)} | \xi\xi_r(p) \rangle \langle \xi\xi_r(p) | M_C^{(c)} | \psi\psi_f(p) \rangle}{[\omega + \omega_{\phi(p)\psi(p)}] [\omega + \omega_{\xi(p)\psi(p)}] [\omega + \omega_{\xi(p)\psi(p)}]}$$

$$+ \frac{M_A^{(a)} | \phi\phi_g(p) \rangle \langle \phi\phi_g(p) | M_Q^{(q)} | \xi\xi_h(p) \rangle \langle \xi\xi_h(p) | M_D^{(d)} | \xi\xi_r(p) \rangle \langle \xi\xi_r(p) | M_C^{(c)} | \psi\psi_f(p) \rangle}{[\omega + \omega_{\phi(p)\psi(p)}] \omega_{\xi(p)\psi(p)} [\omega + \omega_{\xi(p)\psi(p)}]}$$

$$+ \frac{M_D^{(d)} | \phi\phi_g(p) \rangle \langle \phi\phi_g(p) | M_Q^{(q)} | \xi\xi_h(p) \rangle \langle \xi\xi_h(p) | M_C^{(c)} | \xi\xi_r(p) \rangle \langle \xi\xi_r(p) | M_A^{(a)} | \psi\psi_f(p) \rangle}{[\omega + \omega_{\phi(p)\psi(p)}] \omega_{\xi(p)\psi(p)} [-\omega + \omega_{\xi(p)\psi(p)}]}$$

$$+ \frac{M_C^{(c)} | \phi\phi_g(p) \rangle \langle \phi\phi_g(p) | M_A^{(a)} | \xi\xi_h(p) \rangle \langle \xi\xi_h(p) | M_D^{(d)} | \xi\xi_r(p) \rangle \langle \xi\xi_r(p) | M_Q^{(q)} | \psi\psi_f(p) \rangle}{[-\omega + \omega_{\phi(p)\psi(p)}] \omega_{\xi(p)\psi(p)} [\omega + \omega_{\xi(p)\psi(p)}]}$$

$$+ \frac{M_Q^{(q)} | \phi\phi_g(p) \rangle \langle \phi\phi_g(p) | M_D^{(d)} | \xi\xi_h(p) \rangle \langle \xi\xi_h(p) | M_C^{(c)} | \xi\xi_r(p) \rangle \langle \xi\xi_r(p) | M_A^{(a)} | \psi\psi_f(p) \rangle}{[-\omega + \omega_{\phi(p)\psi(p)}] \omega_{\xi(p)\psi(p)} [-\omega + \omega_{\xi(p)\psi(p)}]}$$

$$+ \frac{M_C^{(c)} | \phi\phi_g(p) \rangle \langle \phi\phi_g(p) | M_C^{(c)} | \xi\xi_h(p) \rangle \langle \xi\xi_h(p) | M_A^{(a)} | \xi\xi_r(p) \rangle \langle \xi\xi_r(p) | M_D^{(d)} | \psi\psi_f(p) \rangle}{[-\omega + \omega_{\phi(p)\psi(p)}] [-2\omega + \omega_{\xi(p)\psi(p)}] [-\omega + \omega_{\xi(p)\psi(p)}]}$$

gdzie $S([M_A^{(a)}, M_D^{(d)}], [M_Q^{(q)}, M_C^{(c)}])$ jest operatorem oznaczającym sumowanie po permutacjach elementów zawartych w nawiasach kwadratowych, zaś

$$\begin{aligned}
 \alpha(p_i - \omega_j; \omega) &= \chi_{e e}^{(1)(1)}(p_i - \omega_j; \omega) \\
 \eta(p_i - \omega_j; \omega)_{i(jk)} &= \chi_{e e}^{(1)(2)}(p_i - \omega_j; \omega)_{i(jk)} \\
 \eta(p_i - \omega_j; \omega)_{(ik)j} &= \chi_{e e}^{(2)(1)}(p_i - \omega_j; \omega)_{(ik)j} \\
 \rho(p_i - \omega_j; \omega)_{ij} &= \chi_{e m}^{(1)(1)}(p_i - \omega_j; \omega)_{ij} \\
 \lambda(p_i - \omega_j; \omega)_{ij} &= \chi_{m e}^{(1)(1)}(p_i - \omega_j; \omega)_{ij}
 \end{aligned} \tag{D.9}$$

oraz

$$\begin{aligned}
 \delta(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} &= \chi_{e eee}^{(1)(1,1,1)}(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} \\
 \eta(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijk(lm)} &= \chi_{e eee}^{(1)(1,1,2)}(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijk(lm)} \\
 \eta(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ij(km)l} &= \chi_{e eee}^{(1)(1,2,1)}(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ij(km)l} \\
 \eta(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{i(jm)kl} &= \chi_{e eee}^{(1)(2,1,1)}(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{i(jm)kl} \\
 \eta(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{(im)jkl} &= \chi_{e eee}^{(2)(1,1,1)}(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{(im)jkl} \\
 \rho(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} &= \chi_{e eem}^{(1)(1,1,1)}(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} \\
 \kappa(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} &= \chi_{e eme}^{(1)(1,1,1)}(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} \\
 \sigma(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} &= \chi_{e mee}^{(1)(1,1,1)}(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} \\
 \lambda(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} &= \chi_{m eee}^{(1)(1,1,1)}(p_i - \omega_j; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl}
 \end{aligned} \tag{D.10}$$

Wyrażenie (D.7) i (D.8) jest kwantowomechaniczną definicją odpowiednio liniowych i nieliniowych polaryzowalności p-tej molekuly w jednym ze stanów stacjonarnych f-krotnie zdegenerowanego poziomu energetycznego o energii $\hbar\omega_{\psi(p)}$. Stan ten określa nam funkcja falowa $\psi_{\psi(p)}$ gdzie przez ψ oznaczono zespół liczb kwantowych numerujących poziomy energetyczne molekuly p, zaś $\psi_f(p)$ określa zespół liczb kwantowych numerujących stany poziomu ψ . Ponadto przez $\int \psi(p) \psi(p)$ oznaczono wartość oczekiwaną niezaburzonej macierzy gęstości w stanie stacjonarnym $|\psi(p)\rangle$ (prawdopodobieństwo, że p-ta molekula znajduje się w stanie stacjonarnym $|\psi(p)\rangle$), zaś $\omega_{\phi(p)\psi(p)} = \omega_{\phi(p)} - \omega_{\psi(p)}$ jest częstotliwością przejścia między dowolnym stanem poziomu $\phi(p)$ i $\psi(p)$, zaś $M_A^{(a)}$ jest operatorem multipolowego momentu elektrycznego ($A = e$) lub magnetycznego ($A = m$) rzędu a.

Korzystając z definicji (D.7) i (D.8) można pokazać, że

$$\begin{aligned} \chi_{AC}^{(a)(c)*}(p; -\omega; \omega) &= \chi_{AC}^{(a)(c)}(p; \omega; -\omega) \\ \chi_{DQC}^{(a)(d,q,c)*}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) &= \chi_{DQC}^{(a)(d,q,c)}(p; \omega; \omega, -\omega, -\omega) \end{aligned} \quad (D.11)$$

Ponadto łatwo sprawdzić niezmiennosc nieliniowych polaryzowalności względem następujących przestawień

$$\begin{aligned} \chi_{DQC}^{(a)(d,q,c)}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) &= \chi_{QDC}^{(a)(q,d,c)}(p; -\omega; \omega, -\omega, \omega) \\ &= \chi_{CQD}^{(a)(c,q,d)}(p; -\omega; \omega, \omega, -\omega) \\ &= \chi_{DCQ}^{(a)(d,c,q)}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) \\ &= \chi_{ACQ}^{(d)(a,q,c)}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) \\ &= \chi_{ACQ}^{(d)(a,c,q)}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) \end{aligned}$$

dzięki czemu polaryzowalności

$$\chi_{DQC}^{(a)(d,q,c)}(p; -\omega; \omega, -\omega, \omega) \text{ występujące w } H(-\bar{\omega}; \bar{\omega}, -\bar{\omega}, \bar{\omega})_p$$

oraz polaryzowalności

$${}^A \chi_{DQC}^{(a)(d,q,c)}(p; -\omega; \omega, \omega, -\omega) \text{ występujące w } H(-\bar{\omega}; \bar{\omega}, \bar{\omega}, -\bar{\omega})_p$$

można zastąpić odpowiednio przez

$${}^A \chi_{QDC}^{(a)(q,d,c)}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_p \quad \text{i} \quad {}^A \chi_{CQD}^{(a)(c,q,d)}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_p$$

a więc tego samego typu (ta sama zależność od częstości ω tzn. $-\omega; -\omega; \omega; \omega$) jak w $H(-\bar{\omega}; -\bar{\omega}, \bar{\omega}, \bar{\omega})_p$.

Podobnie polaryzowalności występujące w

$$H(\bar{\omega}; -\bar{\omega}, \bar{\omega}, -\bar{\omega})_p \quad \text{i} \quad H(\bar{\omega}; -\bar{\omega}, -\bar{\omega}, \bar{\omega})_p$$

można zastąpić przez występujące w

$$H(\bar{\omega}; \bar{\omega}, -\bar{\omega}, -\bar{\omega})_p.$$

Z powyższego widać, że (D.12) pozwala zredukować stałe sprzężenia występujące w (D.2) z sześciu do dwóch typów, natomiast (D.11) pozwala zastąpić stałe sprzężenie typu

$${}^A \chi_{DQC}^{(a)(d,q,c)}(p; \omega; \omega, -\omega, -\omega)$$

przez

$${}^A \chi_{DQC}^{(a)(d,q,c)*}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)$$

a więc redukuje problem do jednego typu sprzężenia.

W najogólniejszym przypadku liniowe i nieliniowe polaryzowalności są zespolone, a więc można je zapisać w postaci:

$$\begin{aligned} {}^A \chi_C^{(a)(c)}(p; -\omega; \omega) &= {}^A \chi_C^{(a)(c)}(p; -\omega; \omega) \\ &+ i {}^A \chi_C^{(a)(c)''}(p; -\omega; \omega) \end{aligned} \quad (D.13)$$

$$\begin{aligned}
 {}_A^{(a)}\chi_{DQC}^{(d,q,c)}(p;-\omega;-\omega,\omega,\omega) &= {}_A^{(a)}\chi_{DQC}^{(d,q,c)'}(p;-\omega;-\omega,\omega,\omega) \\
 &+ i {}_A^{(a)}\chi_{DQC}^{(d,q,c)''}(p;-\omega;-\omega,\omega,\omega)
 \end{aligned} \tag{D.14}$$

gdzie

$${}_A^{(a)}\chi_C^{(c)'}(p;-\omega;\omega) = \operatorname{Re} {}_A^{(a)}\chi_C^{(c)}(p;-\omega;\omega) \tag{D.15}$$

$${}_A^{(a)}\chi_C^{(c)''}(p;-\omega,\omega) = \operatorname{Im} {}_A^{(a)}\chi_C^{(c)}(p;-\omega;\omega) \tag{D.16}$$

i podobnie dla

$${}_A^{(a)}\chi_{DQC}^{(d,q,c)'}(p;-\omega;-\omega,\omega,\omega) \quad \text{i} \quad {}_A^{(a)}\chi_{DQC}^{(d,q,c)''}(p;-\omega;-\omega,\omega,\omega)$$

Korzystając z (D.7) i (D.8) możemy otrzymać wyrażenia kwantowo-mechaniczne określające rzeczywiste i urojone części liniowych i nieliniowych polaryzowalności, co pozwoli łatwo sprawdzić prawdziwość dodatkowych następujących relacji przestawień /179-181/:

$${}_A^{(a)}\chi_C^{(c)'}(p;-\omega; \underset{i_1 \dots i_a}{j_1 \dots j_c}) = {}_C^{(c)}\chi_A^{(a)'}(p;-\omega; \underset{j_1 \dots j_c}{i_1 \dots i_a}) \tag{D.17}$$

$${}_A^{(a)}\chi_C^{(c)''}(p;-\omega; \underset{i_1 \dots i_a}{j_1 \dots j_c}) = - {}_C^{(c)}\chi_A^{(a)''}(p;-\omega; \underset{j_1 \dots j_c}{i_1 \dots i_a}) \tag{D.18}$$

$$\begin{aligned}
 {}_A^{(a)}\chi_{DQC}^{(d,q,c)'}(p;-\omega;-\omega,\omega,\omega) &= {}_Q^{(q)}\chi_{CAD}^{(c,a,d)'}(p;-\omega;-\omega,\omega,\omega) \\
 &\quad \underset{k_1 \dots k_q}{l_1 \dots l_c} \underset{i_1 \dots i_a}{j_1 \dots j_d}
 \end{aligned} \tag{D.19}$$

$$\begin{aligned}
 {}_A^{(a)}\chi_{DQC}^{(d,q,c)''}(p;-\omega;-\omega,\omega,\omega) &= - {}_Q^{(q)}\chi_{CAD}^{(c,a,d)''}(p;-\omega;-\omega,\omega,\omega) \\
 &\quad \underset{k_1 \dots k_q}{l_1 \dots l_c} \underset{i_1 \dots i_a}{j_1 \dots j_d}
 \end{aligned} \tag{D.20}$$

W powyższych wyrażeniach wskaźniki $i_1 \dots i_a$ numerują składowe operatora multipolowego momentu $M_A^{(a)}$ elektrycznego ($A = e$) lub magnetycznego ($A = m$) rzędu a , który jest tensorem rangi a i w bazie kartezjańskiej ma postać:

$$M_A^{(a)} = \hat{e}_{i_1} \dots \hat{e}_{i_a} M_A^{(a)} i_1 \dots i_a \quad (D.21)$$

gdzie wskaźniki i_p dla $p = 1, \dots, a$ mogą przyjmować wartości x, y, z , a \hat{e}_{i_p} jest wektorem jednostkowym wzdłuż określonej osi układu. Jeśli $A = e$ to $M_e^{(a)}$ jest tensorem biegunowym i symetrycznym względem a! przedstawień wskaźników $i_1 \dots i_a$, natomiast dla $A = m$ $M_m^{(a)}$ jest tensorem osiowym symetrycznym względem $(a-1)!$ przedstawień wskaźników $i_2 \dots i_a$. Wskaźniki względem których tensor jest niezmienniczy wydzielono w (D.3) i (D.4) w nawiasie okrągłym.

Działając operatorem odwrócenia czasu R /182/ na kwantowomechaniczne wyrażenie określające rzeczywistą i urojoną część liniowej jak również nieliniowej polaryzowalności można sprawdzić, że

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} \alpha(p; -\omega; \omega)_{ij} & \quad \operatorname{Im} \rho(p; -\omega; \omega)_{ij} & \quad \operatorname{Im} \lambda(p; -\omega; \omega)_{ij} \\ \operatorname{Re} \eta(p; -\omega; \omega)_{i(jk)} & \quad \operatorname{Re} \eta(p; -\omega; \omega)_{(ik)j} \\ \operatorname{Re} \delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} \\ \operatorname{Re} \eta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{ijk(lm)} & \quad \operatorname{Re} \eta(i; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{ij(km)l} \\ \operatorname{Re} \eta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{i(jm)kl} & \quad \operatorname{Re} \eta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{(im)jkl} \\ \operatorname{Im} \rho(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} & \quad \operatorname{Im} \mathcal{H}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} \\ \operatorname{Im} \sigma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} & \quad \operatorname{Im} \lambda(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{ijkl} \end{aligned} \quad (D.22)$$

są niezmiennicze względem inwersji czasu /182, 183/ zaś pozostałe zmieniają znak.

Jednym z postulatów mechaniki kwantowej jest niezmienniczość równania Schrödingera względem operacji odwrócenia czasu R /183/. Z postulatu tego wynika, że jeśli rozwiązaniem równania Schrödingera jest funkcja falowa ψ to również rozwiązaniem jest funkcja $\psi' = R\psi$ przy czym obu stanom odpowiada ta sama energia $E_{\psi} = E_{R\psi}$. Wielkość fizyczna \mathcal{W} jest niezmiennicza względem inwersji czasu gdy jej wartość w stanie ψ i $R\psi$

jest taka sama, zaś antysymetryczna - gdy różni się znakiem /182/. Oczywiście relacja $R\psi = \psi$ wyklucza istnienie wielkości autysymetrycznych względem inwersji czasu.

Przyjmując, że nasz p-ty mikroukład jest swobodnie zorientowany w przestrzeni możemy (D.1) i (D.2) uśrednić na wszystkie możliwe orientacje mikroukładów. Wykonując to zgodnie z (9-11) oraz korzystając z (7) i relacji przestawień (D.11-D.20), liniowy $H_I^{(2)}(p)$ i nieliniowy $H_I^{(4)}(p)$ hamiltonian oddziaływania p-tego mikroukładu z polem promieniowania przyjmie w reprezentacji kołowej (8) postać:

$$\begin{aligned} \langle H_I^{(2)}(p) \rangle_{\Omega} &= -\frac{1}{2} \chi_R^L(p) [E_+^- E_+^+ + E_-^- E_-^+ + E_+^+ E_+^- + E_-^+ E_-^-] \\ &\quad - \frac{i}{2} \chi_A^L(p) [E_+^- E_+^+ - E_-^- E_-^+ + E_+^+ E_+^- - E_-^+ E_-^-] \end{aligned} \quad (D.23)$$

$$\begin{aligned} \langle H_I^{(4)}(p) \rangle_{\Omega} &= -\frac{1}{12} \chi_R^{NL}(p) [(E_+^-)^2 (E_+^+)^2 + (E_-^-)^2 (E_-^+)^2 \\ &\quad + (E_+^+ E_+^-)^2 + (E_-^+ E_-^-)^2 \\ &\quad + \text{człony o przeciwnych indeksach górnych}] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &- \frac{1}{12} \bar{\chi}_R^{NL}(p) [E_+^- (E_+^+)^2 E_+^- + E_-^- (E_-^+)^2 E_-^-] \\ &- \frac{1}{12} \bar{\chi}_R^{NL*}(p) [E_+^+ (E_+^-)^2 E_+^+ + E_-^+ (E_-^-)^2 E_-^+] \\ &- \frac{1}{6} \chi_R^{NL}(p) [E_+^- E_-^- E_+^+ E_-^+ \end{aligned} \quad (D.24)$$

$$\begin{aligned} &\quad + \frac{1}{4} (E_+^- E_+^+ E_-^- E_-^+ + E_-^- E_-^+ E_+^- E_+^+ \\ &\quad + E_+^- E_-^- E_+^+ E_-^+ + E_-^- E_+^+ E_-^+ E_+^-) \end{aligned}$$

+ człony o przeciwnych indeksach górnych]

$$\begin{aligned} &- \frac{1}{24} \bar{\chi}_R^{NL}(p) [E_+^- E_+^+ E_-^- E_+^- + E_-^- E_-^+ E_+^- E_-^- \\ &\quad + E_+^- E_+^+ E_-^- E_+^- + E_-^- E_-^+ E_+^- E_-^-] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} &- \frac{1}{24} \bar{\chi}_R^{NL*}(p) [E_+^+ E_+^- E_-^- E_+^+ + E_-^+ E_-^- E_+^+ E_-^+ \\ &\quad + E_+^+ E_+^- E_-^- E_+^+ + E_-^+ E_-^- E_+^+ E_-^+] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
& -\frac{1}{12} \chi_A^{NL}(p) [(E_+^-)^2 (E_+^+)^2 - (E_-^-)^2 (E_-^+)^2 \\
& \quad + (E_+^- E_+^+)^2 - (E_-^- E_-^+)^2 \\
& \quad + E_+^- (E_+^+)^2 E_+^- - E_-^- (E_-^+)^2 E_-^- \\
& \quad + \text{człony o przeciwnych indeksach górnych}]
\end{aligned}$$

gdzie

$$\chi_R^L(p) = \frac{1}{3} \operatorname{Re} \alpha(p; -\omega; \omega) \quad (\text{D.25})$$

$$\chi_A^L(p) = -\frac{ik_z}{3\omega} \operatorname{Im} \gamma(p; -\omega; \omega) \quad (\text{D.26})$$

$$\chi_R^{NL}(p) = \frac{1}{15} \operatorname{Re} [-\delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\alpha\beta\beta} + 3\delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\alpha\beta}] \quad (\text{D.27})$$

$$\bar{\chi}_R^{NL}(p) = \frac{1}{15} [-\delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\alpha\beta\beta} + 3\delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\alpha\beta}] \quad (\text{D.28})$$

$$\bar{\chi}_R^{NL}(p) = \frac{1}{15} \operatorname{Re} [3\delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\alpha\beta\beta} + \delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\alpha\beta}] \quad (\text{D.29})$$

$$\bar{\chi}_R^{NL}(p) = \frac{1}{15} [3\delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\alpha\beta\beta} + \delta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\alpha\beta}] \quad (\text{D.30})$$

$$\begin{aligned}
\chi_A^{NL}(p) = & -\frac{1}{15} \frac{4k_z}{\omega} \left\{ \frac{1}{\omega} \operatorname{Im} [\sigma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\alpha\beta\beta} - 3\sigma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\alpha\beta}] \right. \\
& \left. - \frac{1}{3} \operatorname{Re} \eta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha(\beta\gamma)\beta\delta} \varepsilon_{\alpha\gamma\delta} \right\} \quad (\text{D.31})
\end{aligned}$$

oraz

$$\mathbf{E} = \mathbf{E}(k) \quad (\text{D.32})$$

Całkowity hamiltonian oddziaływania pola optycznego ze zbiorem N mikroukładów znajdujących się w jednostce objętości zgodnie z (1) i (2) jest równy:

$$H_I = H_I^{(2)} + H_I^{(4)} + \dots = \sum_{n=1}^{\infty} H_I^{(2n)} \quad (\text{D.33})$$

gdzie

$$H_I^{(2n)} = \sum_{p=1}^N \langle H_I^{(2n)}(p) \rangle_{\Omega} \quad (D.34)$$

Założmy, że nasz układ składa się z takich samych mikroukładów. W tym wypadku sumowanie po p znacznie się upraszcza i staje się trywialne jeśli stan podstawowy mikroukładu jest niezdegenerowany. W przypadku braku degeneracji mamy:

$$E\psi = \psi \quad (D.35)$$

co powoduje znikanie polaryzowalności antysymetrycznych względem inwersji czasu, dzięki czemu:

$$\bar{\chi}_R^{NL}(p) = \bar{\chi}_R^{NL*}(p) = \chi_R^{NL}(p) \quad (D.36)$$

$$\bar{\bar{\chi}}_R^{NL}(p) = \bar{\bar{\chi}}_R^{NL*}(p) = \bar{\chi}_R^{NL}(p) \quad (D.37)$$

i sumowanie po p sprowadza się do przemnożenia stałych (D.25-D.31) przez N , co prowadzi do (12-15) ze stałymi molekularnymi:

$$\text{Re } \alpha_{\alpha\alpha} = \text{Re } \alpha_{\alpha\alpha}(p; -\omega; \omega) \quad , \quad \text{Im } \rho_{\alpha\alpha} = \text{Im } \rho_{\alpha\alpha}(p; -\omega; \omega)$$

$$\text{Re } \bar{\chi}_{\alpha\beta\gamma\delta} = \text{Re } \bar{\chi}_{\alpha\beta\gamma\delta}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega) \quad (D.38)$$

$$\text{Im } \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta} = \text{Im } \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)$$

$$\text{Re } \eta_{\alpha(\beta\gamma)\delta\delta} = \text{Re } \eta_{\alpha(\beta\gamma)\delta\delta}(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)$$

Założmy, że poziom podstawowy Ψ mikroukładu jest zdegenerowany $2u$ -krotnie, przy czym poszczególne stany numerujemy liczbą $f=1,2,3,\dots,u$ tak przyporządkowaną poszczególnym funkcjom falowym, że

$$E\Psi_{2f-1}(p) = \Psi_{2f}(p) \quad (D.39)$$

Z kwantowej teorii obsadzeń wiadomo /184/, że prawdopodobieństwo znalezienia się mikroukładu w którymkolwiek ze stanów s -krotnie zdegenerowanego poziomu Ψ jest takie samo i wynosi $1/s$. Z tego wynika, że w przypadku dużej liczby N identycznych mikroukładów w jednostce objętości w każdym ze stanów s -krotnie zdegenerowanego poziomu Ψ znajdzie się taka

sama liczba mikronkładów równa $(N/S)\rho_{\psi\psi}$. W naszym przypadku liczba ta będzie równa $N/2u$ ponieważ $\rho_{\psi\psi}$ włączyliśmy już do (D.7) i (D.8) określających liniowe i nieliniowe polaryzowalności. Wobec powyższego sumowanie po p możemy zastąpić sumowaniem po stanach $2u$ -krotnie zdegenerowanego poziomu ψ :

$$\sum_{p=1}^N \gamma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \quad (D.40)$$

$$= \frac{N}{2u} \sum_{f=1}^u \left[\gamma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \psi_{2f-1}(p) + \gamma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \psi_{2f}(p) \right]$$

gdzie pierwszy składnik jest nieliniową polaryzowalnością w stanie $\psi_{2f-1}(p)$ zaś drugi w $\psi_{2f}(p)$, przy czym polaryzowalności te są zespolone. Pamiętając o tym, że polaryzowalności symetryczne względem inwersji czasu mają taką samą wartość w stanie $\psi_{2f-1}(p)$ i $\psi_{2f}(p) = R\psi_{2f-1}(p)$, zaś antysymetryczne różnią się znakiem, wobec (D.40), (D.10), (D.14) i (D.22) mamy:

$$\sum_{p=1}^N \gamma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} = N \text{Re} \gamma_{\alpha\beta\gamma\delta} \quad (D.41)$$

gdzie średnia polaryzowalność:

$$\text{Re} \gamma_{\alpha\beta\gamma\delta} = \frac{1}{u} \sum_{f=1}^u \text{Re} \gamma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \psi_{2f-1}(p) \quad (D.42)$$

Postępując w podobny sposób mamy:

$$\sum_{p=1}^N \sigma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} = i N \text{Im} \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta} \quad (D.43)$$

gdzie

$$\text{Im} \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta} = \frac{1}{u} \sum_{f=1}^u \text{Im} \sigma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \psi_{2f-1}(p) \quad (D.44)$$

W przypadku nieparzystej krotności $(2u+1)$ degeneracji poziomu ψ założymy dodatkowo, że przynajmniej dla jednego stanu (oznaczymy go przez $\psi_0(p)$) musi zachodzić:

$$R\psi_0(p) = \psi_0(p) \quad (D.45)$$

zaś dla pozostałych mamy (D.39). Ze względu na (D.45) polaryzowalność antysymetryczna względem inwersji czasu w stanie $\psi_0(p)$ zeruje się. Po-

stępując podobnie jak poprzednio, zamiast (D.42) i (D.44) otrzymamy te-
raz:

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta} = & \frac{1}{2u+1} \left[\operatorname{Re} \sigma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \psi \psi_0(p) \right. \\ & \left. + 2 \sum_{f=1}^u \operatorname{Re} \sigma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \psi \psi_{2f-1}(p) \right] \end{aligned} \quad (\text{D.46})$$

$$\begin{aligned} \operatorname{Im} \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta} = & \frac{1}{2u+1} \left[\operatorname{Im} \sigma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \psi \psi_0(p) \right. \\ & \left. + 2 \sum_{f=1}^u \operatorname{Im} \sigma(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \psi \psi_{2f-1}(p) \right] \end{aligned} \quad (\text{D.47})$$

Korzystając z (D.41)-(D.47) możemy wykonać w (D.34) sumowanie po p . W przypadku degeneracji poziomu podstawowego zarówno o krotności parzystej jak i nieparzystej, $H_I^{(2)}$ i $H_I^{(4)}$ opisane są w dalszym ciągu przez (12-13) przy czym parametry molekularne (14) i (15) są określone przez średnie liniowe i nieliniowe polaryzowalności, równe dla degeneracji parzystej:

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} \alpha_{\alpha\alpha} &= \frac{1}{u} \sum_{f=1}^u \operatorname{Re} \alpha(p; -\omega; \omega)_{\alpha\alpha} \psi \psi_{2f-1}(p) \\ \operatorname{Im} \rho_{\alpha\alpha} &= \frac{1}{u} \sum_{f=1}^u \operatorname{Im} \rho(p; -\omega; \omega)_{\alpha\alpha} \psi \psi_{2f-1}(p) \\ \operatorname{Re} \eta_{\alpha(\beta\gamma)\beta\delta} &= \frac{1}{u} \sum_{f=1}^u \operatorname{Re} \eta(p; -\omega; -\omega, \omega, \omega)_{\alpha(\beta\gamma)\beta\delta} \psi \psi_{2f-1}(p) \end{aligned} \quad (\text{D.48})$$

zaś $\operatorname{Re} \sigma_{\alpha\alpha\beta\beta}$ i $\operatorname{Re} \sigma_{\alpha\beta\alpha\beta}$ określa (D.42) a $\operatorname{Im} \sigma_{\alpha\alpha\beta\beta}$ i $\operatorname{Im} \sigma_{\alpha\beta\alpha\beta}$ - (D.44); natomiast dla degeneracji nieparzystej:

$$\begin{aligned} \operatorname{Re} \alpha_{\alpha\alpha} &= \frac{1}{2u+1} \left[\operatorname{Re} \alpha(p; -\omega; \omega)_{\alpha\alpha} \psi \psi_0(p) \right. \\ & \left. + 2 \sum_{f=1}^u \operatorname{Re} \alpha(p; -\omega; \omega)_{\alpha\alpha} \psi \psi_{2f-1}(p) \right] \\ \operatorname{Im} \rho_{\alpha\alpha} &= \frac{1}{2u+1} \left[\operatorname{Im} \rho(p; -\omega; \omega)_{\alpha\alpha} \psi \psi_0(p) \right. \\ & \left. + 2 \sum_{f=1}^u \operatorname{Im} \rho(p; -\omega; \omega)_{\alpha\alpha} \psi \psi_{2f-1}(p) \right] \end{aligned} \quad (\text{D.49})$$

$$+ 2 \sum_{f=1}^u \frac{1}{f} \operatorname{Im} \zeta(p; -\omega; \omega)_{\alpha\alpha} \psi_{2f-1}(p)]$$

$$\operatorname{Re} \eta_{\alpha(\beta\gamma)\beta\delta} = \frac{1}{2u+1} \left[\operatorname{Re} \eta(p; -\omega; -\omega, \omega)_{\alpha(\beta\gamma)\beta\delta} \psi_{2u}(p) \right. \\ \left. + 2 \sum_{f=1}^u \operatorname{Re} \eta(p; -\omega; -\omega, \omega)_{\alpha(\beta\gamma)\beta\delta} \psi_{2f-1}(p) \right]$$

a $\operatorname{Re} \sigma_{\alpha\alpha\beta\beta}$ i $\operatorname{Re} \sigma_{\alpha\beta\alpha\beta}$ określa (D.46) ; $\operatorname{Im} \sigma_{\alpha\alpha\beta\beta}$ i $\operatorname{Im} \sigma_{\alpha\beta\alpha\beta}$ - (D.47).

Biorąc pod uwagę (D.38), (D.42), (D.44), (D.46-D.49) określające nieliniowe polaryzowalności molekuly w przypadku nieobecności jak również obecności degeneracji poziomów elektronowych, oraz (D.10) i (D.14-D.16) widać, że

$$\operatorname{Re} \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta} \quad , \quad \operatorname{Im} \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta} \quad , \quad \operatorname{Re} \eta_{\alpha(\beta\gamma)\delta\phi}$$

mają taką samą symetrię permutacyjną jak odpowiednio

$$e \chi_{eee}^{(1)(1,1,1)'}(p; -\omega; -\omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta} \quad , \quad e \chi_{mee}^{(1)(1,1,1)''}(p; -\omega; -\omega, \omega)_{\alpha\beta\gamma\delta}$$

$$e \chi_{eee}^{(1)(2,1,1)'}(p; -\omega; -\omega, \omega)_{\alpha(\beta\gamma)\delta\phi}$$

Symetrię tę można odczytać z (D.12), (D.19) i (D.20).

DODATEK II

W Dodatku I pokazaliśmy, że tensor $\text{Re } \delta_{\alpha\beta\gamma\delta}$ jest niezmienniczy względem przestawienia wskaźników α i β oraz γ i δ , a także przestawienia pary wskaźników $\alpha\beta$ i $\gamma\delta$. Drugi z tensorów $\text{Im } \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta}$, określający nieliniowy parametr molekularny χ_A^{NL} , jest niezmienniczy względem przestawienia wskaźników γ i δ , zaś $\text{Re } \eta_{\alpha(\beta\gamma)\delta\phi}$ jest symetryczny względem przestawienia wskaźników δ i ϕ oraz β i γ (β i γ odnoszą się do operatora elektrycznego momentu kwadrupolowego).

Chcąc określić parametry molekularne χ_R^{L} , χ_A^{L} , χ_R^{NL} , χ_R^{NL} i χ_A^{NL} dla molekuł o różnej symetrii należy znać postacie tensorów polaryzowalności $\text{Re } \delta_{\alpha\beta\gamma\delta}$, $\text{Im } \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta}$ i $\text{Re } \eta_{\alpha(\beta\gamma)\delta\phi}$. W tym celu, korzystając z /181, 185/, wyznaczono je dla 102 magnetycznych grup punktowych. Wyniki przedstawiono w tablicach 1-3. Natomiast parametry molekularne χ_R^{L} , χ_A^{L} , χ_R^{NL} , χ_R^{NL} i χ_A^{NL} dla tych grup zebrano w tablicy 4.

T a b l i c a 1. Postać i-tensora biegunowego czwartej rangi $Re \delta^{\alpha\beta\gamma\delta}$ dla 102 magnetycznych grup punktowych. Składowo tensor oznaczono tylko wskazanikami $\alpha\beta\gamma\delta$ ($\alpha, \beta, \gamma, \delta$ przyjmują wartości 1, 2 i 3); N i I oznaczają liczbę składowych odpo-wiednio niezzerowych i niezależnych

T a b l e 1. Fourth-rank polar i-tensor $Re \delta^{\alpha\beta\gamma\delta}$ for 102 magnetic point groups. The components of the nonlinear polariz-ability tensor $Re \delta^{\alpha\beta\gamma\delta}$ are denoted only by the subscripts $\alpha\beta\gamma\delta$, taking values 1, 2, 3 in the molecular frame of refer-ence. N and I denote the number of nonzero and independent components respectively. Sets of components recurring in various point groups are denoted by small latin letters

Magnetyczna grupa punktowa	N	I	Postać i-tensora $Re \delta^{\alpha\beta\gamma\delta}$
1, 1, $\bar{1}$	61	21	$a_1 = 1111, 2222, 3333, 1122=2211, 1133=3311, 2233=3322$ $1212=1221=2121=2112, 1313=1331=3131=3113$ $2323=2332=3232=3223$
			$b_1 = 1112=1121=1211=2111, 2221=2212=2122=2122$ $1233=2133=3312=3321$ $1323=1332=3123=3132=2313=2331=3213=3231$
			$c_1 = 1113=1131=1311=3111, 3331=3313=1333=3133$ $1322=3122=2213=2231$ $1232=1223=2132=2123=3212=2312=3221=2321$ $2223=2232=2322=3222, 3332=3323=3233=2333$ $2313=3211=1123=1132$ $2131=2113=1231=1213=3121=1321=3112=1312$
2, m, 2/m, $\bar{2}$, m, $\bar{2}$ /m, 2/m, $\bar{2}$ /m	41	13	a_1, b_1
222, mm2, mmm, $\bar{2}22, \bar{2}2m, 2, \bar{2}mm,$ $\bar{2}mm, mmm, mmm$	21	9	a_1
4, $\bar{4}$, 4/m, $\bar{4}$, $\bar{2}$, 4/m, 4/m, 4/m, $\bar{4}$ /m	29	7	d_1
422, $\bar{4}22, 422, 4mm, 4mm, 4mm,$ $\bar{4}2m, 42m, \bar{4}2m, 42m, 4/mmm,$ $4/mmm, 4/mmm, 4/mmm, 4/mmm,$ $4/mmm$	21	6	d_1
			$e_1 = 1112=1121=1211=2221=-2221=-2212=-2122=-1222$

T a b l i c a 2. Postać i-tensora osiowego czwartej rangi $Im \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta}$ dla 102 magnetycznych grup punktowych. Składowe ten-
sora oznaczono tylko wskaźnikami $\alpha\beta\gamma\delta$ ($\alpha, \beta, \gamma, \delta$ przyjmują wartości 1, 2 i 3); N i I oznaczają liczbę składowych od-
powiednio niezerowych i niezależnych

T a b l e 2. Fourth-rank axial i-tensor $Im \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta}$ for 102 magnetic point groups. The components of the nonlinear polaris-
ability tensor $Im \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta}$ are denoted only by the subscripts $\alpha\beta\gamma\delta$, taking values 1, 2, 3 in the molecular frame of refer-
ence. N and I denote the number of nonzero and independent components respectively. Sets of components recurring in various
point groups are denoted by small latin letters

Magnetyczna grupa punktowa	N	I	Postać i-tensora $Im \sigma_{\alpha\beta\gamma\delta}$
1	81	54	$a_2 = 1111, 2222, 3333, 1122, 2211, 1133, 3311, 2233, 3322, 1212, 1221, 1313, 1331$ $2323, 2332, 2121, 2112, 3131, 3113, 3232, 3223$ $b_2 = 1112, 1121, 1211, 2221, 2212, 1222, 2122, 1233, 2133, 3312, 3321$ $1323, 1332, 3123, 3132, 2313, 2331, 3213, 3231$ $c_2 = 1113, 1131, 1311, 3311, 3331, 3313, 1333, 1322, 3122, 2213, 2231,$ $1232, 1223, 2132, 2123, 3212, 3221, 2312, 2321, 2223, 2232, 2322, 3222,$ $3332, 3323, 2333, 3233, 2311, 3211, 1123, 1132, 2131, 2113, 1231, 1213$
2, 2	44	28	a_2, b_2
m, \bar{m}	40	26	c_2
222, $\bar{2}2\bar{2}$	21	15	a_2
mm2, $\bar{m}m\bar{2}, 2mm$	20	13	b_2
4, $\bar{4}$	39	14	$d_2 = 1111, 2222, 3333, 1122, 2211, 1133, 2233, 3311, 3322, 1212, 1221, 2121, 2112$ $1313, 1331, 2323, 2332, 3131, 3113, 3232, 3223$ $e_2 = 1112, 1121, 2221, 2212, 1222, 1212, 1211, 2122, 2112, 1222, 2133, 2113$ $1323, 1332, 2313, 2331, 3213, 3231$
$\bar{4}, \bar{4}$	40	14	$f_2 = 1111, 2222, 1122, 2211, 1133, 2233, 3311, 3322, 1212, 1221, 2121, 2112$ $1313, 1331, 2323, 2332, 3131, 3113, 3232, 3223$ $g_2 = 1112, 1121, 2221, 2212, 1222, 1212, 2122, 2112, 1222, 2133, 2113, 1233, 1213$ $1323, 1332, 2313, 2331, 3213, 3231$

4, 2, 422, 422	21	8	d_2	
4, 402, 4, 402	18	6	e_2	
4, 2, 4, 2, 4, 2, 4, 2	20	7	f_2	
3	71	18	h_2	$h_2 = 1111=2222=1122+2, 1212, 1122=2211, 1133=2233, 3311=3322$ $1212=1221=2112, 3333, 1313=1331=2323=2332, 3131=3113=3232=3223$ $1_2 = 1112=1121=-2221=-2212=-1/2(1211+2111), 1211=-2122, 2111=-1222$ $1233=-2133, 1323=1332=-2313=-2331, 3123=3132=-3213=-3231$ $j_2 = 1113=1131=-1223=-1232=-2123=-2132=-2213=-2231, 1311=-1322=-2312=-2321$ $3111=-3122=-3212=-3221$ $k_2 = 2223=2232=-2113=-2131=-1213=-1231=-1123=-1132$ $3222=-2311=-1321=-1312, 3222=2311=-3121=-3112$
32, 32	37	10	h_2, j_2	
32, 32	34	8	i_2, k_2	
6, 00, 6	39	12	h_2, i_2	
6, 6	32	6	j_2, k_2	
622, 622, 622	21	7	h_2	
6, 00, 00, 6, 00, 00, 00, 00	18	5	i_2	
6, 02, 6, 02, 6, 02	16	3	k_2	
23	21	5	l_2	$l_2 = 1111=2222=3333, 1122=2233=3311, 2211=1133=3322$ $1212=2323=3131=1221=2332=3113, 2121=3232=1313=2112=3223=1331$
432, 432	21	3	m_2	$m_2 = 1111=2222=3333, 1122=2233=3311=2211=3322=1133$ $1212=2323=3131=1221=2332=3113=2121=3232=1313=2112=3223=1331$

$\bar{4}3m, \bar{2}3m$ 18 2 $O_2 = 1122=2233=3311=-2211=-3322=-1133$
 $1212=2323=3131=1221=2332=3113=-2121=-3232=-1313=-2112=-3223=-1331$

γ, κ 21 2 m_2 plus warunek: $1111=2222=3333=1122+2.1212$

Jie pozostalych magnetycznych grup punktowych:

- $2/m, mmm, 4/m, 4/mmm, \bar{3}, \bar{3}m, 6/m, 6/mmm, m3, m3m, 6/m, 6/m, 2/m, 2/m, \bar{2}/m,$
- $\bar{m}m\bar{m}, mmm, \bar{4}/m,$
- $6/m, 6/m,$

wszystkie skiadowe zeruja sie

T a b l i c a 3. Postać i-tensora biegunowego piątej rangi $\mathcal{R}_\alpha(\beta\gamma\delta\epsilon)$ dla 102 magnetycznych grup punktowych. Składowe tensora oznaczono tylko wskaźnikami $\alpha\beta\gamma\delta\epsilon$ ($\alpha, \beta, \gamma, \delta, \epsilon$ przyjmują wartości 1, 2 i 3). N i I oznaczają liczbę składowych odpowiednio niezależnych i niezależnych

T a b l e 3. Fifth-rank polar i-tensor $\mathcal{R}_\alpha(\beta\gamma\delta\epsilon)$ for 102 magnetic point groups. The components of the nonlinear polarizability tensor $\mathcal{R}_\alpha(\beta\gamma\delta\epsilon)$ are denoted only by the subscripts $\alpha\beta\gamma\delta\epsilon$, taking values 1, 2, 3 in the molecular frame of reference. N and I denote the number of nonzero and independent components respectively. Sets of components recurring in various point groups are denoted by small Latin letters

	N	I	Postać i-tensora $\mathcal{R}_\alpha(\beta\gamma\delta\epsilon)$
1	243	108	$a_3 = 11123=11132, 11312=11321=13112=13121, 31112=31121, 11213=11231=12113=12131, 12311=13211, 31211=32111$ $21113=21131, 21311=23111$ $22213=22231, 22321=22312=23221=23212, 32221=32212$ $22123=22132=21223=21232, 21322=23122, 32122=31222$ $12223=12232, 12322=13222$ $33312=33321, 33132=33123=31332=31323, 31233=32133$ $32331=32313=33231=33213, 13332=13323, 13233=12333$ $23331=23313, 23133=21333$
			$b_3 = 33333, 11113=11131, 11311=13111, 31111, 32222$ $22223=22232, 22322=23222, 11223=11232=12123=12132$ $11322=13122, 31122, 22113=22131=21213=21231$ $22311=23211, 32211, 12312=12321=13212=13221$ $12213=12231, 31212=31221=32112=32121, 21123=21132$ $23121=23112=21321=21312$ $11333=13133, 13313=13331, 33311, 31133$ $31313=31331=33113=33131, 22333=23233, 23323=23332$ $33322, 32233, 32323=32332=33223=33232$
			$c_3 = 11111, 22222, 11112=11121, 11211=12111, 21111$ $22211=22212, 22122=21222, 12222, 33331=33313$ $33133=31333, 13333, 33332=33323, 33233=32333$ $23333, 11332=11323=13132=13123, 11233=12133, 21133$ $13213=13231=12313=12331, 32311=33211, 23311$ $21313=21331=23113=23131, 31132=31123$ $31312=31321=33112=33121, 13312=13321$ $31231=31213=32131=32113$ $22331=22313=23213=23213, 22133=21233, 12233$ $23123=23132=21323=21332, 31322=33122, 13322$ $12323=12332=13223=13232, 32231=32213$ $32321=32312=33221=33212, 23321=23312$

c.d. Tabl.3

\bar{u}, \bar{u}	122	e_3	56	e_3	122	<p>3123=3812=31232=31223 11222=12122, 12212=12221, 21221=21212=2212=22112 21122, 22211, 22111=21211, 21121=21112 11212=12121=11212=11221, 12211, 11122 31111=31111, 31113=31113, 13113=11313=11331, 13311, 11133 33222=32322, 32232=32223, 23223=23232=22332, 23322, 22233</p>
$\bar{2}, \bar{2}$	121	e_3, b_3	52	e_3, b_3	121	<p>$d_3 =$ 11123=11132=-22213=-22231, 31112=31121=-32221=-32212 11312=11321=13112=13121=-22321=-22312=-23221=-23212 11231=11231=12113=12131=-22123=-22132=-21223=-21232 12311=13211=-21322=-23122, 31211=32111=-32122=-31222 21113=21131=-12223=-12232, 21311=23111=-12322=-13222 12333=13233=-21333=-23133, 13323=13332=-23313=-23331 31323=31332=33123=33132=-32313=-32331=-33213=-33231</p>
222, $\bar{2}22$	60	e_3	24	e_3	60	<p>$e_3 =$ 33333, 11113=11131=22223=22232, 11311=13111=22322=23222 31111=32222, 11322=13122=22311=23211 12123=12321=11223=11232=21213=22113=22113=22131 12312=12321=13212=13221=21321=21312=23121=23112 31212=31221=32112=32121, 12213=12231=21123=21132, 11533=13133=22333=23233, 13313=13331=23323=23332 31313=31331=33113=33131=32323=32332=33223=33232 31133=32233, 33311=33322</p>
$\bar{4}, \bar{4}$	117	d_3	26	d_3	117	<p>$f_3 =$ 11123=11132=22213=22231, 31112=31121=32221=32212 11312=11321=13112=13121=22321=22312=23221=23212 11231=11231=12113=12131=22123=22132=21223=21232 12311=13211=21322=23122, 31211=32111=32122=31222 21113=21131=12223=12232, 21311=23111=12322=13222 12333=13233=21333=23133, 13323=13332=23313=23331 31323=31332=33123=33132=32313=32331=33213=33231</p>
$\bar{4}, \bar{4}$	116	f_3	26	f_3	116	<p>11312=11321=13112=13121=22321=22312=23221=23212 11231=11231=12113=12131=22123=22132=21223=21232 12311=13211=21322=23122, 31211=32111=32122=31222 21113=21131=12223=12232, 21311=23111=12322=13222 12333=13233=21333=23133, 13323=13332=23313=23331 31323=31332=33123=33132=32313=32331=33213=33231</p>

g_3				$11113=11131=-22232, 11311=13111=-22322=-23222$ $31111=-32222, 11322=13122=-22311=-23211$ $12123=12132=11232=-11213=-21231=-22113=-22131$ $12312=12321=13212=13221=-21321=-23122=-23112$ $12213=12231=-21123=-21132, 31122=-32211$ $11333=13133=-22333=-23233, 13313=13313=-23332$ $31313=31331=33113=33131=-32322=-33223=-33232$ $31133=-32233, 33311=-33322$
	$422, \sqrt{422}, 422$	56	11	d_3
	$4m, \sqrt{4m}, 4m$	61	15	e_3
	$\sqrt{42m}, \sqrt{42m}, \sqrt{42m}, \sqrt{42m}$	60	13	f_3
3		229	36	h_3
				$11123=11132=-22213=-22231=-211213$ $11312=11321=13112=13121=-22321=-23312=-23221=-23212=-1/2(12311+21311)$ $11213=11231=12113=12131=-22123=-21322=-21223$ $21113=21131=-12223=-12232, 12311=13211=-21322=-23122$ $24311=23111=-12322=-13222$ $31112=31121=32221=32212=-31211=-32111=32122=31222$ $12333=13233=-21333=-23133, 13323=13323=-23313=-23331$ $31323=31332=33123=33132=32313=-32331=-33213=-33231$ $11133=-12233=-21233=-22133, 13311=-13322=-23312=-23321$ $11313=11331=13113=13131=-12323=-21323=-22313$ $=-12332=-21332=-22331=-13223=-23123=-23213$ $=-13232=-23132=-23231$ $31113=31113=-31232=-32132=-32231=-32213=-32213=-31223$ $31311=33111=-31322=-32312=-32321=-33122=-33212=-33221$ $11111=-2/3(22221+22122+1/2.12222)$ $11122=2/3(2.22221+22122-1/2.12222)$ $11212=11221=12112=12121=1/3(22221+22122-12222)$ $12211=1/3(-2.22221+4.22122-12222)$ $21112=21121=2/3(1/2.22221-22122+12222)$ $21211=22111=2/3(-22221+1/2.22122+12222)$ $12222, 22221=22212, 22122=21222$

$j_3 = 33333$
 $11333=13133=22333=23233, 13313=13313=23332=23332$
 $31313=31313=33113=33113=32323=32323=33223=33223$
 $31133=32233, 33311=33322$
 $11113=11131=22223=22232=2.11223+12213$
 $11311=13111=22322=23222=13222+2.12312$
 $31111=32222=31122+2.31212$
 $11223=11232=12123=12132=22113=22113=21213=21231$
 $12213=12231=21123=21132, 11322=13122=22311=23211$
 $12312=12321=13212=13221=21321=21312=23112, 31122=32211$
 $31212=31221=32112=32121$

$k_3 = 22233=21133=12133=11233, 23322=23311=13321=13312$
 $22332=22323=23232=23223=-21331=-13332=-21313=-12313$
 $=-11323=-23131=-13231=-13132=-23113=-13213=-13123$
 $32232=32223=-32131=-31231=-31132=-32113=-31213=-31123$
 $33222=-2/3(11112+11211+1/2.21111)$
 $22211=1/3(4.11112-2.11211-21111)$
 $22121=22112=21221=21212=1/3(11112+11211-21111)$
 $12221=12212=1/3(11112-2.11211+2.21111)$
 $12122=11222=2/3(-11112+1/2.11211+2.21111)$
 $11112=11121, 11211=12111, 21111$

$32, 32$	112	16	h_3, i_3
$3m, 3m$	117	20	j_3, k_3
$6, \infty, \underline{6}$	117	20	h_3, j_3
$\underline{6}, \underline{6}$	112	16	i_3, k_3
$622, \underline{622}, \underline{622}$	56	8	h_3
$\underline{6m}, \underline{6m}, \underline{6m}, \underline{6m}, \underline{6m}$	61	12	j_3
$\underline{6m}, \underline{6m}, \underline{6m}, \underline{6m}, \underline{6m}$	56	8	i_3

gdzie wprowadzono następujące oznaczenia:

$$\chi_R^L = \frac{N}{3} \operatorname{Re} (\alpha_{11} + \alpha_{22} + \alpha_{33})$$

$$\chi_A^L = -\frac{1Nk_z}{3\omega} \operatorname{Im} (\varrho_{11} + \varrho_{22} + \varrho_{33})$$

$$a_1 = \frac{N}{3} \operatorname{Re} (2\alpha_{11} + \alpha_{33})$$

$$a_2 = N \operatorname{Re} \alpha_{11}$$

$$b_1 = -\frac{1Nk_z}{3\omega} \operatorname{Im} (2\varrho_{11} + \varrho_{33})$$

$$b_2 = -\frac{1Nk_z}{\omega} \operatorname{Im} \varrho_{11}$$

$$\chi_R^{NL} = \frac{2N}{15} \operatorname{Re} \left\{ \delta_{1111} + \delta_{2222} + \delta_{3333} - \delta_{1122} - \delta_{1133} - \delta_{2233} \right. \\ \left. + 3 [\delta_{1212} + \delta_{1313} + \delta_{2323}] \right\}$$

$$c_1 = \frac{2N}{15} \operatorname{Re} \left\{ 2\delta_{1111} + \delta_{3333} - \delta_{1122} - 2\delta_{1133} + 3[\delta_{1212} + 2\delta_{1313}] \right\}$$

$$c_2 = \frac{2N}{15} \operatorname{Re} \left\{ \delta_{3333} + \delta_{1122} - 2\delta_{1133} + 7\delta_{1212} + 6\delta_{1313} \right\}$$

$$c_3 = \frac{2N}{5} \operatorname{Re} \left\{ \delta_{1111} - \delta_{1122} + 3\delta_{1212} \right\}$$

$$c_4 = 2N \operatorname{Re} \delta_{1212}$$

$$\chi_R^{NL} = \frac{2N}{15} \operatorname{Re} \left\{ 2[\delta_{1111} + \delta_{2222} + \delta_{3333}] + 3[\delta_{1122} + \delta_{1133} + \delta_{2233}] \right. \\ \left. + \delta_{1212} + \delta_{1313} + \delta_{2323} \right\}$$

$$d_1 = \frac{2N}{15} \operatorname{Re} \left\{ 2[2\delta_{1111} + \delta_{3333}] + 3[\delta_{1122} + 2\delta_{1133}] + \delta_{1212} + 2\delta_{1313} \right\}$$

$$d_2 = \frac{2N}{15} \operatorname{Re} \left\{ 2\delta_{3333} + 9\delta_{1212} + 2\delta_{1313} + 7\delta_{1122} + 6\delta_{1133} \right\}$$

$$d_3 = \frac{2N}{5} \operatorname{Re} \left\{ 2\delta_{1111} + 3\delta_{1122} + \delta_{1212} \right\}$$

$$d_4 = 2N \operatorname{Re} \left\{ \sigma_{1122} + \sigma_{1212} \right\}$$

$$\begin{aligned} \chi_A^{NL} = -\frac{14Nk}{15} \left\{ \frac{1}{\omega} \operatorname{Im} \left[-2(\sigma_{1111} + \sigma_{2222} + \sigma_{3333}) \right. \right. \\ \left. \left. + \sigma_{1122} + \sigma_{1133} + \sigma_{2233} + \sigma_{2211} + \sigma_{3311} + \sigma_{3322} \right. \right. \\ \left. \left. - 3(\sigma_{1212} + \sigma_{1313} + \sigma_{2323} + \sigma_{2121} + \sigma_{3131} + \sigma_{3232}) \right] \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} -\frac{1}{3} \operatorname{Re} \left[\eta_1(23)33 - \eta_1(32)22 + \eta_2(31)11 \right. \\ \left. - \eta_2(13)33 + \eta_3(12)22 - \eta_3(21)11 \right. \\ \left. + \eta_3(31)23 - \eta_2(21)23 + \eta_1(12)31 \right. \\ \left. - \eta_3(32)31 + \eta_2(23)12 - \eta_1(13)12 \right. \\ \left. - \eta_1(13)32 + \eta_1(22)23 - \eta_2(11)13 \right. \\ \left. + \eta_2(33)31 - \eta_3(22)21 + \eta_3(11)12 \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} e_1 = -\frac{18Nk}{15} \left\{ \frac{1}{\omega} \operatorname{Im} \left[-2\sigma_{1111} - \sigma_{3333} + \sigma_{1122} + \sigma_{1133} + \sigma_{3311} \right. \right. \\ \left. \left. - 3(\sigma_{1212} + \sigma_{1313} + \sigma_{3131}) \right] \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} -\frac{1}{3} \operatorname{Re} \left[\eta_1(23)33 + \eta_2(31)11 + \eta_3(12)22 \right. \\ \left. + \eta_3(31)23 + \eta_1(12)31 + \eta_2(23)12 \right. \\ \left. + \eta_1(22)23 + \eta_2(33)31 + \eta_3(11)12 \right] \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} e_2 = \frac{18Nk}{15} \left\{ \frac{1}{\omega} \operatorname{Im} \left[-\sigma_{3333} - \sigma_{1122} + \sigma_{1133} + \sigma_{3311} - 7\sigma_{1212} \right. \right. \\ \left. \left. - 3(\sigma_{1313} + \sigma_{3131}) \right] \right\} \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} -\frac{1}{3} \operatorname{Re} \left[\eta_1(23)33 + \eta_2(31)11 + 2\eta_3(12)22 + \eta_3(31)23 \right. \\ \left. + \eta_1(12)31 + \eta_2(23)12 + \eta_1(22)23 + \eta_2(33)31 \right] \end{aligned}$$

$$e_3 = -\frac{i4Nk_z}{5} \left\{ \frac{1}{\omega} \operatorname{Im} [-2\sigma_{1111} + \sigma_{1122} + \sigma_{2211} - 3(\sigma_{1212} + \sigma_{2121})] \right. \\ \left. - \frac{1}{3} \operatorname{Re} [\eta_1(23)33 - \eta_1(32)22 + \eta_3(31)23 \right. \\ \left. - \eta_2(21)23 - \eta_1(33)32 + \eta_1(22)23] \right\}$$

$$e_4 = -\frac{i8Nk_z}{5} \left\{ \frac{1}{\omega} \operatorname{Im} [-\sigma_{1111} + \sigma_{1122} - 3\sigma_{1212}] \right. \\ \left. - \frac{1}{3} \operatorname{Re} [\eta_1(23)33 + \eta_3(31)23 + \eta_1(22)23] \right\}$$

$$e_5 = i8Nk_z \left\{ \frac{1}{\omega} \operatorname{Im} \sigma_{1212} + \frac{1}{6} \operatorname{Re} \eta_1(23)33 \right\}$$

LITERATURA

1. Glauber, R.J., Quantum Optics and Electronics (Eds. C.De Witt et al.) (Gordon and Breach, New York) 1965, p.63.
2. Mandel, L., Wolf, E., Rev. Mod. Phys. 37, 231 (1965).
3. Klauder, J.R., Sudarshan E.C.G., Fundamentals of Quantum Optics (Benjamin, New York) 1968.
4. Peřina, J., Coherence of Light (Reidel, Dordrecht) 1985.
5. Cresser, J.D., Physics Reports 94, 47 (1983).
6. Kimble, H.J., Dagonais, M., Mandel, L., Phys. Rev. Lett. 39, 691 (1977).
7. Cresser, J.D., Hęger, J., Louchs, G., Rateike, M., Walther, H., Topics in Current Physics (Springer, Berlin) 1982, Vol.27.
8. Wagner, J., Kurcowski, P., Martienssen, E., Z. Physik B33, 391 (1979).
9. Walls, D.F., Nature 280, 451 (1979); 306, 141 (1983).
10. Schubert, M., Wilhelm, B., Progress in Optics 17, 163 (1980).
- 11a. Peřina, J., Progress in Optics 18, 127 (1980).
- 11b. Peřina, J., Quantum Statistics of Linear and Nonlinear Optical Phenomena (Reidel, Dordrecht) 1984.
12. Loudon, R., Rep. Progress Phys. 43, 913 (1980).
13. Kozierowski, M., Kvantovaja Elektronika (Moskva) 8, 1157 (1981).
- 14a. Kielich, S., Rola statystycznych własności światła w liniowych i nieliniowych zjawiskach optycznych (UAM, Poznań) 1981.
- 14b. Kielich, S., Molekularna nieliniowa Optika (Izd. Nauka, Moskva) 1981.
15. Paul, F., Rev. Mod. Phys. 54, 1061 (1982).
16. Kielich, S., Tanaś, R., Invited lecture "On squeezed states and photon correlations in nonlinear optical phenomena". Proc. European Optical Conference 1983 - Rydzyna, Poland, 30 May - 4 June, 1983, pp.5-16.
17. Stoler, D., Phys. Rev. Lett. 33, 1397 (1974).
18. Milburn, H., Walls, D.F., Optics Comm. 39, 401 (1981); Phys. Rev. A27, 342 (1983).
19. Wódkiewicz, K., Zubairy, M.S., Phys. Rev. A27, 2003 (1983).
20. Lane, A., Tombesi, P., Carmichael, H.J., Walls, D.F., Optics Comm. 48, 155 (1984).
21. Walls, D.F., Zoller, P., Phys. Rev. Lett. 47, 709 (1981).
22. Mandel, L., Phys. Rev. Lett. 48, 136 (1982).
23. Ficek, Z., Tanaś, R., Kielich S., Optics Comm. 46, 23 (1983); Coherence and Quantum Optics V (Eds. L.Mandel, E.Wolf) (Plenum, New York) 1984, p.621.

24. Arnoldus, H.F., Nienhuis, G., *Optica Acta* 30, 1583 (1983).
25. Loudon, R., *Optics Comm.* 49, 24 (1984).
26. Ficek, Z., Tanaś, R., Kielich, S., *Phys. Rev.* A29, 2004 (1984).
27. Yuen, H.P., Shapiro, J.H., *Opt. Lett.* 4, 334 (1979).
28. Peřina, J., Peřinova, V., Sibilica, C., Bertolotti, M., *Optics Comm.* 49, 285 (1984).
29. Mandel, L., *Optics Comm.* 42, 437 (1982).
30. Kozierowski, M., Kielich, S., *Phys. Lett.* A94, 213 (1983).
31. Kozierowski, M., Kielich, S., Tanaś, R., *Coherence and Quantum Optics V* (Eds. L.Mandel, E.Wolf) (Plenum Press, New York) 1984, p.71.
32. Liugiato, L.A., Strini, G., De Martini, F., *Optics Lett.* 8, 256 (1983).
33. Friberg, S., Mandel, L., *Optics Comm.* 48, 439 (1984).
34. Tanaś, R., Kielich, S., (a) *Optics Comm.* 42, 351 (1983); (b) *Optica Acta* 31, 81 (1984).
35. Tanaś, R., *Coherence and Quantum Optics V*, (Eds. L.Mandel, E.Wolf) (Plenum Press, New York) 1984, p.645.
36. Zubairy, M.S., Razmi, M.S.K., Iqbal, S., Idress, M., *Phys. Lett.* A98, 168 (1983).
37. Loudon, R., *Optics Comm.* 49, 67 (1984).
38. Peřina, J., Peřinova, V., Kodousek, J., *Optics Comm.* 49, 210 (1984).
39. Ficek, Z., Tanaś, R., Kielich, S., *Proc. Int. Quantum Electronics Conf.*, Anaheim, CA, U.S.A., 18-21 June, 1984; *Acta Phys. Polon.* A67, 583 (1985).
- 40a. Yuen, H.P., Chan, V.W.S., *Opt. Lett.* 8, 177 (1983).
- 40b. Abbas, G.L., Chan, V.W.S., Yee, T.K., *Opt. Lett.* 8, 419 (1983).
41. Short, R., Mandel, L., *Phys. Rev. Lett.* 51, 384 (1983); Schumaker, B.L., *Opt. Lett.* 9, 189 (1984).
42. Fiutak, J., *Canad. J. Phys.* 41, 12 (1963).
43. Kielich, S., *Proc. Phys. Soc.* 86, 709 (1965); *Physica* 32, 385 (1966).
44. Shen, Y.R., *Phys. Rev.* 155, 921 (1967).
45. Kielich, S., *Acta Phys. Polon.* 28, 459 (1965); 30, 851 (1966).
46. Pershan, P.S., *Phys. Rev.* 130, 919 (1963).
47. Kielich, S., Zawodny, R., *Optics Comm.* 15, 267 (1975).
48. Atkins, P.W., Wilson, A.D., *Mol. Phys.* 24, 33 (1972).
49. Ritze, H.H., *Z. Phys.* B39, 353 (1980).
50. Maker, P.D., Terhune, R.W., Savage, C.M., *Phys. Rev. Lett.* 12, 57 (1964).
51. Kielich, S., *Opto-Electronics* 1, 75 (1969).
52. Ritze, H.H., Bandilla, A., *Optics Comm.* 30, 125 (1979).
53. Zheludev, N.I., Petrenko, A.D., Swirko, Yu.P., Filipova, G.S., *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz.* 48, 603 (1984); Petrenko, A.D., Zheludev, N.I., *Optica Acta* 31, 1177 (1984).
54. Kielich, S., Tanaś, R., *Izv. Akad. Nauk SSSR, Ser. Fiz.* 48, 518 (1984).
55. Akhmanov, S.A., Zheludev, N.I., *Proc. 3rd Int. School on Condensed Matter Physics "Non-linear Phenomena in Solid State Physics"*, Varna, 1984.
56. Arakelian, S.M., Czilingarian, J.S., *Nieliniejnaja Optika Židklich* Kristalov (Izd. Nauka, Moskva) 1984.
57. Agarwal, G.S., *Phys. Rev.* A1, 1445 (1970).

58. Chandra, N., Prakash, H., Phys. Rev. A1, 1696 (1970),
59. Tornau, N., Bach, A., Optics Comm. 11, 46 (1974).
60. Simaan, H.D., Loudon, R., J. Phys. A: Math. Gen. 8, 1140 (1975).
61. Carmichael, H.J., Walls, D.F., J. Phys. B9, 1199 (1976).
62. Kimble, H.J., Mandel, L., Phys. Rev. A13, 2123 (1976).
63. Stoliarov, A.D., Žurnal Prikladnoi Spektroskopii 25, 236 (1976).
64. Paul, H., Mohr, U., Brunner, W., Optics Comm. 17, 145 (1976).
65. Cohen-Tannoudji, C., Reynaud, S., J. Phys. B10, 345 (1977).
66. Kozierowski, M., Tanaś, R., Optics Comm. 21, 229 (1977).
67. Mostowski, J., Rzążewski, K., Phys. Lett. A66, 275 (1978).
68. Staudel, H., Richter, T., Ann. Physik 35, 122 (1978).
69. Dagenais, M., Mandel, L., Phys. Rev. A18, 2217 (1978).
70. Simaan, H.D., J. Phys. A: Math. Gen. 11, 1799 (1978).
71. Szlachetka, P., Kielich, S., Peřina, J., Peřinova, V., J. Phys. A12, 1921 (1979)
72. Peřinova, V., Peřina, J., Szlachetka, P., Kielich, S., Acta Phys. Polon. A56, 267
275 (1979).
73. Agarwal, G.S., Jha, S.S., Z. Physik B35, 391 (1979).
74. Ritze, H.H., Bandilla, A., Optics Comm. 30, 125 (1979).
75. Neumann, R., Haug, H., Optics Comm. 31, 267 (1979).
76. Susse, K.E., Vogel, W., Welsch, D.G., Wilhelmi, B., Optics Comm. 28, 389 (1979)
77. Tanaś, R., Kielich, S., Optics Comm. 30, 443 (1979).
78. Chmela, P., Acta Phys. Polon. A55, 945 (1979); Czech. J. Phys. B29, 129 (1979);
Opt. and Quant. Electr. 11, 103 (1979).
79. Peřina, J., Optica Acta 26, 821 (1979).
80. Szlachetka, P., Kielich, S., Peřina, J., Peřinova, V., Optica Acta 27, 1609
(1980).
81. Drummond, P.D., Gardiner, C.W., J. Phys. A: Math. Gen. 13, 2353 (1980).
82. Voigt, H., Bandilla, A., Ritze, H.H., Z. Physik. B36, 295 (1980),
83. Paul, H., Brunner, W., Optica Acta 27, 263 (1980).
84. Carusotto, S., Optica Acta 27, 1567 (1980).
85. Casagrande, F., Lugiato, L.A., Il Nuovo Cimento 55, 173 (1980).
86. Bandilla, A., Ritze, H.H., 32, 195 (1980),
87. Hildred, G.P., Optica Acta 27, 1621 (1980).
88. Zubairy, M.S., Yeh, J.J., Phys. Rev. A21, 1624 (1980).
89. Oliver, G., Bendjaballah, Ch., Phys. Rev. A22, 630 (1980).
90. Peřina, J., Optica Acta 28, 325, 1529 (1981).
91. Wiegand, M., Optics Comm. 36, 297 (1981).
92. Drummond, P.D., McNeil, K.J., Walls, D.F., Optica Acta 28, 211 (1981).
93. Chmela, P., Horák, R., Peřina, J., Optica Acta 28, 1209 (1981).
94. Paul, H., Brunner, W., Annalen der Physik 7, 89 (1981).
95. Tänzler, W., Schütte, F.J., Annalen der Physik 7, 73 (1981).
96. Wódkiewicz, K., J. Phys. B. At. Mol. Phys. 14, L529 (1981).
97. Carusotto, S., Physica A107, 509 (1981).
98. Schubert, M., Vogel, W., Optics Comm. 36, 164 (1981).
99. Sibilia, C., Bertolotti, M., Optica Acta 28, 503 (1981).

100. Kumar, S., Mehta, C.L., Agarwal, G.S., *Optics Comm.* 32, 197 (1981).
101. Srinivas, M.D., Davies, E.B., *Optica Acta* 28, 981 (1981).
102. Germey, K., Schütte, F.J., Tiebel, R., *Annalen der Physik* 7, 80 (1981)
103. Pieczonkova, A., *Optica Acta* 29, 1509 (1982).
104. Chmela, P., *Optical Quant. Electr.* 14, 425, 333 (1982).
105. Lugiato, L.A., Strini, G., *Optics Comm.* 41, 374, 447 (1982).
106. Klyshko, D.N., *ŽETF* 83, 1313 (1982).
107. Walls, D.F., Milburn, G.J., Carmichael, H.J., *Optica Acta* 29, 1179 (1982).
108. Becker, W., Scully, M.O., Zubairy, S., *Phys. Rev. Letters* 48, 475 (1982).
109. Lugiato, L.A., Strini, G., *Optics Comm.* 41, 67 (1982).
110. Chmela, P., *Optics Comm.* 42, 201 (1982).
111. Reis, F.G., Sharma, M.P., *Optics Comm.* 41, 341 (1982).
112. Kielich, S., *Progress in Optics* 20, 155 (1983).
113. Le Berre-Rousseau, M., Ressayre, E., Tallet, A., *Phys. Rev. Letters* 43, 1314 (1979).
114. Richter, T., *Optica Acta* 30, 1769 (1983).
115. Herzog, U., *Optica Acta* 30, 1781 (1983).
116. Orszag, M., Carrazana, P., Chuaqui, H., *Optica Acta* 30, 259 (1983).
117. Peřina, J., Peřinova, V., *Optica Acta* 30, 955 (1983).
118. Rajagopal, A.K., *Phys. Rev.* A27, 558 (1983).
119. Sibilía, C., Bertolotti, M., Peřinova, V., Peřina, J., Lukš, A., *Phys. Rev.* A28, 328 (1983).
120. Gardiner, C.W., Collett, M.J., *Phys. Rev.* A31, 3761 (1985).
121. Hong, C.K., Mandel, L., *Phys. Rev.* A32, 974 (1985).
122. Wolinsky, M., Carmichael, H.J., *Optics Comm.* 55, 138 (1985).
123. Jakeman, E., Walker, J.G., *Optics Comm.* 55, 219 (1985).
124. Hillery, M., *Phys. Lett.* A111, 409 (1985).
125. Yurke, B., *Phys. Rev.* A32, 300, 311 (1985).
126. Kask, P., Piksarv, P., Mets, U., *EuroBiophys. J.* 12, 163 (1985).
127. Walker, J.G., Jakeman, E., *Optica Acta* 32, 1303 (1985).
128. Slusher, R.E., Hollberg, L.W., Yurke, B., Mertz, J.C., Valley, J.F., *Phys. Rev. Letters* 55, 2409 (1985).
129. Becker, W., McIver, J.K., *Phys. Rev.* A27, 1030 (1983).
130. Peřina, J., Saleh, B.E.A., Teich, M.C., *Optics Comm.* 48, 212 (1983).
131. Teich, M.C., Saleh, E.A., Stoler, D., *Optics Comm.* 46, 244 (1983).
132. Gorbachev, V.N., Zanadvorov, P.N., *Optica i Spektroskopija* 49, 600 (1980).
133. Schenzle, A., Graham, R., *Phys. Letters* A98, 319 (1983).
134. Singh, S., *Optics Comm.* 44, 254 (1983).
135. Wódkiewicz, K., *Optics Comm.* 51, 198 (1984).
136. Carmichael, H.J., Milburn, G.J., Walls, D.F., *J. Phys. A: Math. Gen.* 17, 469 (1984).
137. Reynaud, S., Heidmann, A., *Optics Comm.* 50, 271 (1984).
138. Scharf, G., Walls, D.F., *Optics Comm.* 50, 245 (1984).
139. Kodousek, J., Peřina, J., *Optics Comm.* 50, 411 (1984).
140. Peřinova, V., Tiebel, R., *Optics Comm.* 50, 401 (1984).

141. Schubert, M., Vogel, W., Welch, D.G., *Optics Comm.* 52, 247 (1984).
142. Arnoldus, H.F., Nienhuis, G., *Optics Comm.* 48, 322 (1984).
143. Reid, M.D., Walls, D.F., *Optics Comm.* 50, 106 (1984).
144. Hillery, M., Zubairy, M.S., Wódkiewicz, K., *Phys. Letters* A103, 259 (1984).
145. Dixit, S.N., Georges, A.T., *Phys. Rev.* A29, 200 (1984).
146. Shapiro, H.J., Kumar, P., Maeda, M.W., *J. Optics Soc. Am.* B1, 517 (1984).
147. Levenson, M.D., *J. Optics Soc. Am.* B1, 525 (1984).
148. Schumacher, B.L., Gaves, C.M.J., *J. Opt. Soc. Am.* B1, 524 (1984).
149. Bertelletti, M., Sibilia, C., Peřina, J., Peřinova, V., *Phys. Rev.* A30, 1353 (1984).
150. Peřinova, V., Peřina, J., Lukas, A., Sibilia, C., Pertolotti, M., *Optica Acta* 31, 735 (1984).
151. Gordov, E.P., Tvorogov, S.D., *Metod Poluklassiczeskogo Predstavlenija Kvantovoj Teorii* (Izd. Nauka, Novosibirsk) 1984.
152. Yurke, B., *Phys. Rev.* A29, 408 (1984).
153. Kumar, P., Shapiro, J.H., Bondurant, R.S., *Optics Comm.* 50, 183 (1984).
154. Dattoli, G., Richetta, N., *Optics Comm.* 50, 165 (1984).
155. Hillery, M., O'Connell, R.F., Scully, M.O., Wigner, E.P., *Phys. Reports* 106, 121 (1984).
156. Ficek, Z., Tanař, R., Kielich, S., *J. Opt. Soc. Am.* B1, 882 (1984).
157. Collett, M.J., Walls, D.F., Zoller, P., *Optics Comm.* 52, 145 (1984).
158. Chmela, P., *Opt. Quant. Electr.* 16, 445, 495 (1984).
159. Gardiner, C.W., Savage, C.M., *Optics Comm.* 50, 173 (1984).
160. Collett, M.J., Gardiner, C.W., *Phys. Rev.* A30, 1386 (1984).
161. Lakshmi, P.A., Agarwal, G.S., *Phys. Rev.* A29, 2260 (1984).
162. Teich, M.C., Saleh, B.E.A., Peřina, J., *J. Opt. Soc. Am.* B1, 366 (1984).
163. Milburn, G.J., Walls, D.F., Levenson, M.D., *J. Opt. Soc. Am.* B1, 390 (1984).
164. Milburn, G.J., *Optica Acta* 31, 671 (1984).
165. Szlachetka, P., *Optica Acta* 31, 843 (1984).
166. Richter, T., *Optica Acta* 31, 1045 (1984).
167. Kielich, S., Kozierowski, M., Tanař, R., *Optica Acta* 32, 1023 (1985).
168. Loudon, R., Shepherd, T.J., *Optica Acta* 31, 1243 (1984).
169. Bondurant, R.S., Kumar, P., Shapiro, H.J., Maeda, M., *Phys. Rev.* A30, 343 (1984).
170. Yurke, B., Denker, J.S., *Phys. Rev.* A29, 1419 (1984).
171. Kumar, P., Shapiro, J.H., *Phys. Rev.* A30, 1568 (1984).
172. Santhanam, T.S., Satyanarayana, M.V., *Phys. Rev.* D30, 2251 (1984).
173. Hong, C.K., Mandel, L., *Phys. Rev. Lett.* 54, 323 (1985).
174. Heidmann, A., Raimond, J.M., Reynaud, S., *Phys. Rev. Lett.* 54, 326 (1985).
175. Hillery, M., *Phys. Rev.* A31, 338 (1985).
176. Kilin, S., Ya., *Optics Comm.* 53, 409 (1985).
177. Cares, C.M., Schumaker, B.L., *Phys. Rev.* A31, 3068 (1985).
178. Fajn, W.M., *Fotony i Nieliniėjnyje Sriedy* (Izd. Sovietskoje Radio, Moskva) 1972.
179. Kielich, S., *Acta Phys. Polon.* 29, 875 (1966); *Chem. Phys. Letters* 33, 79 (1975).

180. Zawodny, R., Drozdowicz, H., Wybrane zagadnienia z optyki nieliniowej (red. S.Kielich), Ser. Fizyka nr. 27 (UAM, Poznań) 1978, s.119.
181. Zawodny, R., Praca doktorska, Poznań 1977.
182. Bir, G.L., Pikus, G.E., Symetria i odkształcenia w półprzewodnikach (PWN, Warszawa) 1977.
183. Wigner, E., Teoriya Grup i jej Priloženija k Kvantovomechaniczeskoj Teorii Atomowych Spektrov (Izd. Inostrannoj Literatury, Moskva) 1961.
184. Davydov, A.S., Mechanika kwantowa (PWN, Warszawa) 1969.
185. Birss, R.R., Symmetry and Magnetism (North-Holland, Amsterdam) 1965.
186. Levenson, M.D., Shelby, R.M., Aspekt, A., Reid, M.D., Walls, D.F., Phys. Rev. A32, 1550 (1985).
187. Maeda, M.W., Kumar, P., Shapiro, J.H., Phys. Rev. A32, 3803 (1985).
188. Wu, L.A., Kimble, H.J., Hall, J.L., Wu, H., Phys. Rev. Lett. 57, 2520 (1986).

SPIS TREŚCI

Wstęp	3
Efektywny hamiltonian oddziaływania	5
Rozwiązanie równania ruchu dla operatorów pola.	9
Antygrupowanie fotonów.	15
Stany ściśnięte pola	20
Zakończenie	24
Dodatek I	26
Dodatek II	40
Literatura.	55