

Egyetemi doktori (Ph.D.) értekezés

Kis Zsolt

Nemklasszikus állapotok keltése és
tulajdonságaik vizsgálata

témavezető:

Dr. Janszky József

MTA Szilárdtestfizikai és Optikai Kutató Intézet



József Attila Tudományegyetem

Természettudományi Kar

Budapest, 1999

Tartalomjegyzék

Bevezetés	1
1. Egy-dimenziós, folytonos és diszkrét koherens állapot reprezentáció	5
1.1. Koherens állapot reprezentáció	5
1.2. Egy-dimenziós folytonos koherens állapot reprezentációk	14
1.3. Egy-dimenziós diszkrét koherens állapot reprezentációk	24
2. Kvázi-valószínűségeloszlás függvények lokális rekonstrukciója kaszkád optikai homodin méréssel	26
2.1. Kvantumállapot rekonstrukció alapjai	26
2.2. Kaszkád homodin mérés	35
3. Nemklasszikus rezgési állapotok keltése Franck-Condon átmenet során	44
3.1. Franck-Condon átmenet	44
3.1.1. Franck-Condon átmenet kétatomos molekulákban	44
3.1.2. Franck-Condon átmenet sokatomos molekulákban	52
3.2. Rezgési Schrödinger-macska állapotok keltése kétatomos molekulákban	55
3.3. Franck-Condon átmenet véges hosszúságú gerjesztő fényimpulzus hatása sokatomos molekulákban	58
3.4. Nemklasszikus rezgési állapotok sokatomos molekulákban	60
4. Csillag állapotok sokfotonos abszorpciós folyamatban	67
4.1. Nemlineáris optika	67
4.1.1. Nemlineáris optika - klasszikus tárgyalás	67
4.1.2. Nemlineáris optika - kvantummechanikai leírás	69
4.2. Sokfotonos abszorpció	74
4.3. Hatékony fényforrás sokfotonos abszorpciós folyamatokhoz	76
Összefoglalás	83
Az értekezés témájához kapcsolódó publikációk	85

Angol nyelvű összefoglalás	87
Köszönetnyilvánítás	91
Irodalom	92

Bevezetés

A kvantummechanika olyan fizikai világképet tár a fizikusok szeme elé, mely a makroszkópiusan megszokott világtól gyökeresen eltér. A kvantummechanika axiómái lerögzítik azt a matematikai megközelítést, ahogy a mikroszkópius világban a fizikai jelenségeket a tapasztalattal egyezően értelmezni lehet. A kvantummechanika alapjait a század első harminc évében rakták le. Az új elméleti modell sikeresen megmagyarázott olyan jelenségeket, amelyekkel szemben a klasszikus fizika eszköztára sikertelen maradt. Az elméleti modell felépítésénél elkerülhetetlenül be kellett vezetni olyan új fizikai fogalmakat, melyek létjogosultsága közvetlen megfigyeléssel akkor még nem volt igazolható, viszont az új fogalmak következetes alkalmazásával a kísérletekben megfigyelhető eredményekre vezettek az elméleti számítások. Néhány példát szeretnék csak kiemelni itt: az egyik alapvető szemléleti váltást a kvantummechanikai állapottér bevezetése jelentette, amelynek vektorai a fizikai rendszer egy állapotának felelnek meg. Az állapotvektorok tartalmazzák az összes megismerhető információt a rendszerről. A fizikai mennyiségek szerepét az állapottéren ható hermitikus, megfigyelhető operátorok vették át.

Az állapottérben megengedett művelet, hogy két állapotvektort összeadjunk egymással. Ez a kvantummechanikai szuperpozíció, melynek klasszikus analógiája nincs. Gondoljunk például Schrödinger szuperponált állapotban lévő macskájára, amely egyszerre élő és halott. A kvantummechanikai szuperpozíció közvetlen megfigyelésének egy lehetséges útját, kísérletileg ellenőrizhető körülmények között, a lézerek megjelenése tette lehetővé az 1960-as években. A lézerben jó közelítéssel koherens állapotban van a fény, amely a klasszikus elektromágneses tér kvantummechanikai megfelelője. A sugárzási tér két jól megkülönböztethető koherens állapotának szuperpozícióját tekinthetjük úgy, mint Schrödinger-macskája optikai analógiáját. Az optikai Schrödinger-macska számos nemklasszikus tulajdonsággal rendelkezik, így annak előállítása és nemklasszikusságának megfigyelése elvi jelentőségű probléma. A kvantummechanikai szuperpozíció által olyan állapotai alakulhatnak ki egy rendszernek, amely különleges tulajdonságai miatt jelentős. A kvantumoptikában a fény kvadratúra összenyomott állapota egy fontos példa erre, amelyben például az elektromos térhez rendelt

kvadratúra operátor szórása kisebb a vákuumállapotban felvett értéknél. A szuperpozíció mai alkalmazásaként megemlítjük, hogy a szuperponált állapotok szolgálták alapul a kvantumszámítógép elméleti modelljének kidolgozásához.

Több szabadsági fokú rendszerek szuperponált állapota összefonódott állapotot eredményezhet. Az összefonódott állapotok különös tulajdonságára Einstein, Podolsky és Rosen hívták fel a figyelmet híres dolgozatukban 1932-ben. Az összefonódott állapotok ma már fontos gyakorlati alkalmazást nyertek a kvantum-titkosításban és döntően hozzájárulnak a kvantum-teleportáció megvalósításához is.

A dolgozatomban a fenn bemutatott elemi kvantummechanikai jelenségek vizsgálatát tűztem ki célul néhány egyszerű fizikai rendszerben. Egyszerűsége azt értem, hogy a rendszerben lehetséges csak annyi szabadsági fokot figyelembe venni, amennyit a tanulmányozni kívánt jelenség megkövetel, másrészt a környezettel való kölcsönhatásai közül azok befolyásolják számottevően a rendszer állapotát, amelyek a vizsgált jelenség szempontjából fontosak. Továbbá célszerű olyan rendszert választani, amelynek kvantummechanikai modelljét analitikusan tudjuk kezelni, ami rávezethet a jelenség mélyebb megértésére. Az is fontos szempont lehet, hogy a rendszert ne csak matematikailag, hanem kísérletileg, méréssel is tanulmányozni tudjuk.

A harmonikus oszcillátor az egyik legegyszerűbb modell a kvantummechanikában. Egyszerűsége ellenére mégis számos fizikai rendszer igen jó közelítéssel leírható vele. Az oszcillátor modellel jellemzett rendszerek közös problémája a kvantumállapotok reprezentációja. Egy alkalmasan választott bázisban kifejtve a rendszer állapotvektorát bizonyos problémák megoldása lényegesen egyszerűsödik. Az első fejezetben egy-dimenziós koherens állapot reprezentációval foglalkozom. **Kidolgozok egy konstruktív eljárást a harmonikus oszcillátor tetszőleges állapota kifejtésére a fázistér valamely folytonos egy-dimenziós görbéje mentén [VI].** A módszer használatát több példán illusztrálom, s meghatározom a fázisoptimalizált állapot vagyis tengely menti folytonos koherens állapot reprezentációját, mely eddig ismeretlen volt az irodalomban. Megmutatom azt is, hogy az egy-dimenziós folytonos koherens állapot kifejtés kiindulási pontul szolgálhat egy állapot diszkrét koherens állapot reprezentációjának megtalálásához.

Az előző bekezdésben vázolt reprezentáció-elméleti problémával kísérleti szempont-

ból analóg egy rendszer kvantumállapotának mérés útján történő teljes meghatározása, amelyet kvantumállapot rekonstrukciónak neveznek. A második fejezetben egy új mérési elrendezést javasolok a fény kvantumállapotához rendelt kvázi-valószínűségeloszlás függvény rekonstruálására. A kaszkád homodin mérésben két jól ismert állapot-rekonstrukciós eljárás előnyeit ötvözőm, ami által az állapot s -paraméterezett kvázi-valószínűségeloszlás függvénye lokálisan rekonstruálható egy kísérleti szempontból is reális méréssel [VIII]. A módszer mellékeredménye, hogy megtaláltam a generátorfüggvényét azoknak a mintafüggvényeknek, amelyek a szimmetrikus homodin mérésben a sűrűségmátrix diagonális elemeit szolgáltatják Fock reprezentációban.

Nevezetes kvantumállapotok előállítása egy-egy fizikai rendszerben napjainkban fontos, aktuális probléma. A harmadik fejezetben nemklasszikus molekularezgési állapotok keltésével foglalkozom. Megmutatom azt, hogy egy kétatomos molekulában két rövid, transzformáció-limitált fényimpulzussal rezgési Schrödinger-macska állapotot lehet generálni [I,II,III]. Ilyenkor a molekula két nukleonjának a távolsága két különböző távolság szuperpozíciója. Meghatározom sokatomos molekulák rezgési állapotát, amely egy gyenge fényimpulzus hatására alakul ki Franck-Condon átmenet során [IV,V]. Kimutatom, hogy a gerjesztés hatására két rezgési módus összefonódott állapotba kerülhet, ha a normálrezgési frekvenciák aránya kifejezhető kis egész számok hányadosával.

A kvantummechanika alapvető kijelentéseinek kísérleti vizsgálatában a fény kiemelkedő helyet foglal el. Egyrészt számos eszköz áll rendelkezésre a fény kvantumállapotának manipulálására, másrészt több eljárást is kidolgoztak a kvantumállapota mérésére, amelyek közül a legfontosabbak alapgondolatát a második fejezetben ismertetem. A fény ugyanakkor arra is alkalmas, hogy atomi rendszerek kvantumállapotát kontrollálható módon befolyásoljuk illetve az állapotról információt szerezzünk. A negyedik fejezetben a fény egy speciális kvantumállapotának előállításával és az ilyen állapotú fény egy lehetséges felhasználási területével foglalkozom: megmutatom, hogy egy nemlineáris optikai kristályban, k -fotonos lekonverziós folyamatban kialakuló fény (csillag állapot) kiemelkedő hatékonysággal indukál sokfotonos abszorpciót [VII]. Kimutatom, hogy a csillag állapotú fény erősíthető parametrikus

erősítőben anélkül, hogy a sokfotonos abszorpcióban mutatott nagy hatékonysága jelentősen csökkenne. Ismertetek egy **kaszkád elrendezésű fényforrást, amelyben két 2-fotonos lekonverziós folyamat követi egymást, és a kialakuló csillag állapotról megmutatom, hogy ugyancsak kiemelkedő hatékonysággal vesz részt sokfotonos abszorpciós folyamatban.**

1. Egy-dimenziós, folytonos és diszkrét koherens állapot reprezentáció

Ebben a fejezetben egy konstruktív eljárást mutatok be, amellyel a harmonikus oszcillátor bármelyik $|\psi\rangle$ állapota kifejezhető koherens állapotok folytonos vagy diszkrét szuperpozíciójával a fázistér elvileg tetszőleges görbéje mentén. A 1.1 alfejezetben ismertetem a koherens állapot reprezentációval kapcsolatos alapfogalmakat és az eddig elért eredményeket. A 1.2 alfejezetben bemutatom a módszeremet, amellyel egy állapot Fock reprezentációja ismeretében meghatározható a folytonos kifejtési függvénye. Az eljárás használatát néhány példán keresztül illusztrálom. A 1.3 alfejezetben megmutatom, hogy egy állapot folytonos kifejtési függvénye ismeretében, hogyan lehet diszkrét koherens állapot reprezentációt konstruálni.

1.1. Koherens állapot reprezentáció

A kvantummechanikai problémákat matematikai szempontból különböző absztrakciós szinteken lehet megfogalmazni. A legtisztább, csak a kvantummechanika alapaxiómáira épülő absztrakt Hilbert tér a legmagasabb szint, ahol azonban elég szűkös matematikai eszköztár áll rendelkezésre akár egy probléma leírására, akár annak megoldására. Ezért nagy jelentőségű, hogy konkrét feladatokat nem az absztrakt Hilbert térben az absztrakt állapotvektorokkal és operátorokkal hanem egy alkalmas bázisban, a bázisvektorokra való vetítés útján nyert reprezentációban oldunk meg. Történeti szempontból érdemes megjegyezni, hogy a kvantummechanika dinamikai egyenletét két különböző alakban írta fel Schrödinger és Heisenberg, s csak később bizonyították be, hogy a két egyenlet egyenértékű, csak más reprezentációban van megadva ugyanaz az absztrakt Hilbert térbeli egyenlet. A kvantummechanika matematikai megalapozásának egyik fontos tétele, hogy bizonyos megszorítások mellett a vizsgált rendszer Hilbert terén ható bármelyik hermitikus operátor sajátfüggvény-rendszere bázist alkot, s így meghatároz egy reprezentációt. A teljesség igénye nélkül megnevezek három bázist, amelyeket széles körben használnak: a koordináta-operátor sajátvektorai, a Hamilton-operátor stacionáris állapotai, az impulzusmomentum-operátor sajátvektorai.

A kvantumoptikai számítások során előtérbe került egy olyan bázis, amely a szokásos bázisvektor-rendszerektől több szempontból is jelentősen különbözik, azonban annyira hatékonyan lehet használni a problémák megfogalmazása és megoldása során, hogy jelentősége felülmúlja a korábbi "klasszikus" bázisokét. Ez a bázis a harmonikus oszcillátor koherens állapotainak a halmaza [1]. A koherens állapot nevezetes tulajdonsága, hogy sajátállapota a harmonikus oszcillátor foton eltüntető operátorának:

$$\hat{a} | \alpha \rangle = \alpha | \alpha \rangle, \quad (1.1.1)$$

ahol α egy tetszőleges komplex szám. További nevezetes tulajdonága, hogy koherens állapotban az $\hat{x}$ és $\hat{y}$ kvadratúra operátorok (a harmonikus oszcillátor dimenzióatlanított koordináta- és impulzus-operátorai) szórása egyenlő egymással, a szórások időfüggetlenek és minimalizálják a Heisenberg féle határozatlansági összefüggést:

$$\begin{aligned} \hat{x} &= \frac{\hat{a} + \hat{a}^\dagger}{2}, & \hat{y} &= i \frac{\hat{a}^\dagger - \hat{a}}{2}, \\ \Delta \hat{x} &= \frac{1}{2}, & \Delta \hat{y} &= \frac{1}{2}, \\ \Delta \hat{x} \Delta \hat{y} &= \frac{1}{4}. \end{aligned} \quad (1.1.2)$$

Koherens állapotban az $\hat{x}$ és $\hat{y}$ operátorok várhatóértéke:

$$\langle \alpha | \hat{x} | \alpha \rangle = \text{Re}\{\alpha\}, \quad \langle \alpha | \hat{y} | \alpha \rangle = \text{Im}\{\alpha\}. \quad (1.1.3)$$

A fenti képlet alapján a koherens állapot α paraméterének igen szemléletes jelentése van: a valós része megadja a hely, a képzetes része pedig az impulzus oprátor várhatóértékét. A koherens állapotok terét fázistérnek is nevezik. Egy koherens állapot egy vektor a fázistérben, amely az origóból az α pontba mutat, s a szabad időfejlődés során a vektor az origó körül forog állandó szögsebességgel. Ezen tulajdonságok miatt, a koherens állapotot a harmonikus oszcillátor tiszta, klasszikus állapotának is szokták tekinteni, s viszonyítási alapként szolgál egy állapot nemklasszikusságának mértékénél [41]. A koherens állapot a harmonikus oszcillátor Hamilton-operátorának sajátállapotai szerint kifejtve:

$$| \alpha \rangle = e^{-|\alpha|^2/2} \sum_{n=0}^{\infty} \frac{\alpha^n}{\sqrt{n!}} | n \rangle, \quad (1.1.4)$$

ahol az $|n\rangle$ állapotot energia sajátállapotnak vagy Fock állapotnak nevezik. A koherens állapotok bázisként azért használhatók, mert bár nem ortogonálisak egymásra, a teljességi relációt mégis egy igen egyszerű formában elégítik ki:

$$\hat{I} = \frac{1}{\pi} \int d^2\alpha |\alpha\rangle\langle\alpha|, \quad (1.1.5)$$

ahol az integrálást a teljes komplex síkon kell elvégezni. Egy $|f\rangle$ állapotvektort a koherens állapotok halmazán vett folytonos szuperpozíció segítségével ki lehet fejteni [1]:

$$|f\rangle = \frac{1}{\pi} \int d^2\alpha f(\alpha^*) e^{-|\alpha|^2/2} |\alpha\rangle, \quad f(\alpha^*) = e^{|\alpha|^2/2} \langle\alpha|f\rangle. \quad (1.1.6)$$

Koherens állapotokkal egy kevert állapotban levő rendszer sűrűségoperátora is közvetlenül megadható, ez az úgynevezett R reprezentáció:

$$\hat{\rho} = \frac{1}{\pi^2} \int d^2\alpha d^2\beta R(\alpha^*, \beta) e^{-|\alpha|^2/2 - |\beta|^2/2} |\alpha\rangle\langle\beta|, \\ R(\alpha^*, \beta) = e^{|\alpha|^2/2 + |\beta|^2/2} \langle\alpha|\hat{\rho}|\beta\rangle. \quad (1.1.7)$$

A kvantumoptikában igen fontos szerepe van operátorok rendezett szorzatai kiértékelésének. Ezt a területet röviden operátor rendezésnek nevezik [2]. A $\hat{a}^{\dagger k} \hat{a}^l$ egy normál rendezett szorzat. Antinormál rendezés során addig kell cserélgetni a keltő és eltüntető operátorokat, amíg a keltő operátor hatványai mind a jobboldalra, az eltüntető operátor hatványai mind a baloldalra kerülnek. A szimmetrikusan rendezett alak pedig a k darab keltő és l darab eltüntető operátor minden lehetséges sorrendjét tartalmazza. Példaképpen tekintsük azt az esetet, amikor 2 keltő és 3 eltüntető oprátorunk van:

$$\begin{aligned} \text{Normál rendezett :} & \quad \hat{a}^{\dagger 2} \hat{a}^3 \\ \text{Antinormál rendezett :} & \quad \hat{a}^3 \hat{a}^{\dagger 2} \\ \text{Szimmetrikusan rendezett :} & \quad \frac{1}{10} (\hat{a}^{\dagger 2} \hat{a}^3 + \hat{a}^3 \hat{a}^{\dagger 2} + \hat{a}^{\dagger} \hat{a}^3 \hat{a}^{\dagger} + \hat{a} \hat{a}^{\dagger 2} \hat{a}^2 + \hat{a}^2 \hat{a}^{\dagger 2} \hat{a} + \\ & \quad \hat{a} \hat{a}^{\dagger} \hat{a} \hat{a}^{\dagger} \hat{a} + \hat{a}^{\dagger} \hat{a} \hat{a}^{\dagger} \hat{a}^2 + \hat{a}^2 \hat{a}^{\dagger} \hat{a} \hat{a}^{\dagger} + \hat{a} \hat{a}^{\dagger} \hat{a}^2 \hat{a}^{\dagger} + \hat{a}^{\dagger} \hat{a}^2 \hat{a}^{\dagger} \hat{a}). \end{aligned} \quad (1.1.8)$$

A rendezés során a fenti rendezett szorzatokhoz hozzárendelünk egy-egy komplex változós függvényt. A fenti példában, mivel mindegyik kifejezés megfelelően rendezett alakú, ezért mindhárom esetben a $\alpha^{*2} \alpha^3$ szorzat a komplex függvény. A normál rendezéshez tartozó komplex függvényt a koherens állapotok segítségével igen egyszerűen

meg lehet kapni: legyen $\hat{A} = \hat{A}(\hat{a}, \hat{a}^\dagger)$ egy lineáris operátor a harmonikus oszcillátor Hilbert tere fölött. Az $\hat{A}$ operátor normál rendezett alakjához tartozó komplex függvény a

$$A^N(\alpha, \alpha^*) = \langle \alpha | \hat{A} | \alpha \rangle \quad (1.1.9)$$

várhatóértékkel számítható ki. Az $\hat{A}$ operátor normál rendezett alakját ezután úgy kaphatjuk meg, hogy az $A^N(\alpha, \alpha^*)$ függvényben, amelyről feltesszük, hogy kifejezhető $\alpha^{*k} \alpha^l$ hatványok Taylor sorával, minden $\alpha^{*k} \alpha^l$ komplex szám szorzatot kicserélünk $\hat{a}^{\dagger k} \hat{a}^l$ operátor szorzatra

$$\begin{aligned} \hat{A}(\hat{a}, \hat{a}^\dagger) &\rightarrow A^N(\alpha, \alpha^*) = \langle \alpha | \hat{A} | \alpha \rangle = \sum_{k,l=0}^{\infty} A_{k,l}^N \alpha^{*k} \alpha^l \\ A^N(\alpha, \alpha^*) &\rightarrow \hat{A} = \hat{A}^N(\hat{a}, \hat{a}^\dagger) = \sum_{k,l=0}^{\infty} A_{k,l}^N \hat{a}^{\dagger k} \hat{a}^l. \end{aligned} \quad (1.1.10)$$

Tegyük fel, hogy a harmonikus oszcillátor sűrűségoperátora kifejezhető a következő integrállal:

$$\hat{\rho} = \int d^2\alpha P(\alpha) | \alpha \rangle \langle \alpha |. \quad (1.1.11)$$

$P(\alpha)$ függvényt a sűrűségoperátor P -reprezentációja [25]. Most számítsuk ki az $\hat{A}$ operátor várhatóértékét a P -reprezentáció felhasználásával:

$$\begin{aligned} \text{tr}\{\hat{\rho}\hat{A}\} &= \int d^2\alpha P(\alpha) \text{tr}\{| \alpha \rangle \langle \alpha | \hat{A}\} = \int d^2\alpha P(\alpha) \langle \alpha | \hat{A} | \alpha \rangle \\ &= \int d^2\alpha P(\alpha) A^N(\alpha, \alpha^*). \end{aligned} \quad (1.1.12)$$

A képletből látszik egy másik igen fontos alkalmazási területe egy operátor normál rendezett alakjához rendelt komplex függvénynek: segítségével a kvantummechanikai várhatóértékek kiszámítása komplex függvények integrálására vezethető vissza. Azt is be lehet látni, hogy a sűrűségoperátorhoz rendelt $P(\alpha)$ függvény a sűrűségoperátor antinormál rendezett alakját adja meg:

$$\begin{aligned} P(\alpha) &= \sum_{m,n} \varrho_{m,n}^A \alpha^m \alpha^{*n}, \\ \hat{\rho} = \hat{\rho}^A &= \sum_{m,n} \varrho_{m,n}^A \hat{a}^m \hat{a}^{\dagger n}. \end{aligned} \quad (1.1.13)$$

A (1.1.12) és (1.1.13) egyenletek összevetéséből kitűnik, hogy egy operátor kvantummechanikai várhatóértékének kiszámításánál a sűrűségoperátor antinormál rendezéséhez tartozó komplex függvényt kell integrálni az operátor normál rendezett alakjához rendelt komplex függvénnyel. Azonban a kétféle rendezést fel is cserélhetjük. Ha pedig az operátor szimmetrikus rendezéséhez tartozó komplex függvényt választjuk, akkor a sűrűségoperátornak is a szimmetrikus rendezett alakját kell használni a (1.1.12) képletben. A sűrűségoperátor normál rendezett alakjához rendelt komplex függvényt $Q(\alpha)$ függvénynek, az antinormál rendezetthez tartozót $P(\alpha)$ függvénynek, a szimmetrikusan rendezett alakhoz tartozót pedig $W(\alpha)$ Wigner függvénynek nevezik [26, 27]. Ezekkel a függvényekkel a klasszikus fázistérbeli eloszlásfüggvényhez hasonló módon lehet várhatóértékeket kiszámítani a kvantummechanika keretén belül, ezért kvantummechanikai kvázi-valószínűségeloszlás függvényeknek is nevezik őket. Azért nem tekinthetők hagyományos értelemben vett eloszlásfüggvényeknek, mert lehetnek negatív tartományaik, sőt nem is mindig léteznek függvény értelemben. Az utóbbi megállapítás különösen igaz a $P(\alpha)$ függvényre, amely már a klasszikusnak tekintett koherens állapot esetében is a Dirac δ disztribúció. Kvázi-valószínűségeloszlás függvényeket nemcsak harmonikus oszcillátor keltő és eltüntető operátorainak rendezésével kapcsolatban lehet definiálni, hanem a kanonikusan konjugált koordináta és impulzusoperátorok rendezett szorzataihoz is hozzárendelhetők. A Wigner eloszlásfüggvény a sugárzási tér leírásán túl, atomi állapotok és fény-anyag kölcsönhatás fázistérbeli jellemzésére is hasznos eszköznek bizonyult [3, 4, 5]. Végül megjegyezzük, hogy mindhárom kvázi-valószínűségeloszlás függvényre fel lehet írni egy-egy dinamikai egyenletet, amely ekvivalens a sűrűségoperátor időfejlődését meghatározó von Neumann egyenlettel. Ennek alapján beláthatjuk, hogy a kvázi-valószínűségeloszlás függvények és az operátorok különböző rendezett alakjaihoz rendelt komplex függvények lehetővé teszik, hogy a kvantummechanikát a klasszikus mechanikához hasonlóan a kvantummechanikai fázistérben tárgyalhassuk. A harmonikus oszcillátor koherens állapotai pedig nagy segítséget jelentenek az oszcillátor Hilbert terén ható operátorok rendezése során fellépő függvények meghatározásánál.

A (1.1.5) egyenlet a koherens állapotok teljességét fejezi ki. Azonban a koherens állapotok egész komplex síkon értelmezett halmaza túlteljes rendszert alkot. Neumann

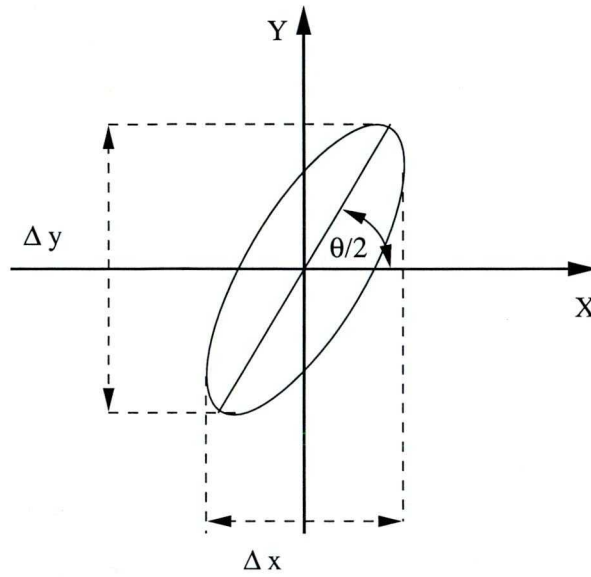
János bebizonyította, hogy ha a komplex síkon kiválasztunk egy szabályos rácsot, amelynek elemi cellája π területű, akkor az így definiált megszámlálhatóan végtelen sok elemű halmaz épp teljes rendszert alkot. Ha az elemi cella területe nagyobb mint π akkor a halmaz nem teljes, ha pedig kisebb, akkor túlteljes [6].

Cahill tétele még ennél is többet állít: ha a komplex síkon van egy tetszőleges $\{\alpha_n\}_{n \in \mathbb{N}}$ Cauchy sorozatunk, akkor a $\{|\alpha_n\rangle\}_{n \in \mathbb{N}}$ koherens állapot halmaz teljes rendszert alkot, azaz a harmonikus oszcillátor Hilbert terének a nullvektora az egyetlen vektor, amely valamennyi $|\alpha_n\rangle$ bázisvektorra ortogonális [7]. Azonban nem sikerült általánosan teljességi relációt találni egy-egy ilyen halmazra, s ezért nincs általános konstruktív eljárás egy állapot kifejtésére a Cahill féle bázisokban.

Janszky és Vinogradov megmutatták, hogy koherens állapotok páros függvény szerinti folytonos szuperpozíciója a komplex sík valós tengelye mentén kvadratúra-összenyomott (squeezed) állapotra vezet [8]. A kvadratúra-összenyomottság azt jelenti, hogy a (1.1.2) egyenletben az $\hat{x}$ vagy $\hat{y}$ operátor szórása kisebb a vákuum határértéknél, $1/2$ -nél [9, 10, 11]. A fázistérben az állapotot meghatározó α pont köré egy ellipszist lehet rajzolni, amely a részecske fázistérbeli helyének bizonytalanságát fejezi ki. Koherens vagy vákuum állapot esetén az ellipszis helyett egy $1/2$ sugarú körünk van. A 1. ábrán egy $|\zeta\rangle$ kvadratúra-összenyomott vákuum állapot fázistérbeli eloszlását ábrázoltuk, mely egy $\zeta = re^{i\theta}$ komplex paraméterrel jellemezhető. Az $1/2 \exp(-r)$ és $1/2 \exp(r)$ mennyiségek a fázistérbeli bizonytalanságot megadó ellipszis kis- és nagytengelye. A $\theta/2$ szög pedig az ellipszis nagytengelyének iránya az X tengelyhez képest. Visszatérve az egyenes menti szuperpozícióra, ha eloszlásfüggvényként Gauss-függvényt válasszunk, akkor az ideális, kvadratúra-összenyomott vákuum állapotot kapjuk [8]:

$$|\zeta\rangle = \hat{S}(\zeta) |0\rangle = \frac{\sqrt{1+\gamma}}{\sqrt{\pi\gamma}} \int_{-\infty}^{\infty} dx e^{-x^2/\gamma} |x\rangle, \\ \gamma = \frac{2\nu}{\mu - \nu}, \quad \mu = \cosh r, \quad \nu = \sinh r, \quad (1.1.14)$$

ahol $\hat{S}(\zeta) = \exp(\frac{1}{2}\zeta\hat{a}^{\dagger 2} - \frac{1}{2}\zeta^*\hat{a}^2)$ a squeezing-operátor (a $\zeta = re^{i\theta}$ paraméter kapcsolatát az összenyomott vákuum állapot hely és impulzus eloszlásával a fázistérben már láttuk).



1. ábra: A kvadratúra-összenyomott (squeezed) vákuum állapot bizonytalansági ellipszise a fázistérben.

A kvadratúra-operátorok szórása a γ paraméterrel kifejezve:

$$\Delta \hat{x} = \frac{\sqrt{1+\gamma}}{2}, \quad \Delta \hat{y} = \frac{1}{2\sqrt{1+\gamma}}. \quad (1.1.15)$$

A fenti, egy-dimenziós koherens állapot szuperpozíció jelentősége az, hogy ugyan csak egy speciális állapotosztály esetében, de sikerült a koherens állapotok egy részhalmazán kifejteni állapotokat a (1.1.6) teljes halmazon értelmezett kifejtés helyett, ráadásul most egyértelműen tudjuk, hogy a súlyfüggvény paramétereinek megváltoztatása milyen kvantumállapotra vezet.

Az egy-dimenziós reprezentációk területén továbblépést jelentett Ádám, Földesi, Janszky eredménye [12], akik kimutatták, hogy a harmonikus oszcillátor energia-operátorának kvadratúra-összenyomott sajátállapotai ugyancsak kifejthetők koherens állapotok szuperpozíciójával a fázistér valós tengelye mentén:

$$|H_n\rangle = \hat{S}(\zeta) |n\rangle = \mathcal{N}_n \int_{-\infty}^{\infty} dx H_n(ax) e^{-x^2/\gamma} |x\rangle, \quad (1.1.16)$$

$$\mathcal{N}_n = \sqrt{\frac{(2+\gamma)^n \sqrt{1+\gamma}}{2^n \pi n! (n+1) \gamma}}, \quad a = \sqrt{\frac{2(1+\gamma)}{\gamma(2+\gamma)}},$$

ahol $H_n(x)$ az n -edik Hermite polinom. A $\{|H_n\rangle\}_{n \in \mathbb{N}}$ halmaz ortonormált bázis, mivel egy ortonormált bázis unitér transzformáltja. A harmonikus oszcillátor tetszőleges $|\psi\rangle$

állapota kifejthető a $\{|H_n\rangle\}_{n \in \mathbb{N}}$ bázisban:

$$|\psi\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} h_n |H_n\rangle, \quad h_n = \langle H_n | \psi \rangle. \quad (1.1.17)$$

A fenti kifejtés egyúttal konstruktív módszert kínál egy tetszőleges állapot valós tengely menti koherens állapot szuperpozíció súlyfüggvényének a megtalálására. Tegyük fel, hogy $|\psi\rangle$ előállítható a következő szuperpozícióval:

$$|\psi\rangle = \int_{-\infty}^{\infty} dx F(x) |x\rangle. \quad (1.1.18)$$

Kérdés: hogyan lehet megkapni az $F(x)$ súlyfüggvényt? A válasz a (1.1.16, 1.1.17) képletek alapján így hangzik: fejtjük ki az állapotot a $\{|H_n\rangle\}_{n \in \mathbb{N}}$ bázisban. A h_n együtthatók ismeretében képezzük a

$$F(x) = \sum_{n=0}^{\infty} h_n \mathcal{N}_n H_n(x) e^{-x^2/\gamma} \quad (1.1.19)$$

összeget, amely épp a keresett eloszlásfüggvény. A (1.1.19) egyenletben kapott kifejtési függvénnyel kapcsolatban két probléma is felmerül: a formula gyakorlati alkalmazhatóságát megnehezíti az, hogy a h_n együtthatók kiszámításához meg kell határoznunk a $\hat{S}(\zeta)$ squeezing-operátor hatását vagy a kifejtendő $|\psi\rangle$ állapotra, vagy az $|n\rangle$ energia sajátállapotokra, vagy kiszámítani a

$$h_n = \mathcal{N}_n \int_{-\infty}^{\infty} dx H_n(ax) e^{-x^2/\gamma} \langle x | \psi \rangle \quad (1.1.20)$$

integrált. Általában ezek egyike sem túl egyszerű feladat. A másik egy elvi jelentőségű kérdés: vajon csak a fázistér teljes valós egyenese mentén lehet kifejtteni egy állapotot, vagy elég egy rövidebb szakasz is? Cahill tétele alapján a komplex síkon bármilyen kis szakasz vagy görbe alkalmas arra, hogy rajta koherens állapotok szerint kifejtsünk egy tetszőleges állapotot, ezért fennáll a lehetőség, hogy más görbékre is találjunk konstruktív kifejtési eljárást.

A fázistérbeli egy-dimenziós reprezentációk kidolgozásának nemcsak elvi, hanem gyakorlati jelentősége is van. Vannak olyan kísérletek, amelyekben egy harmonikus oszcillátor modellel leírható rendszer kvantumállapota valamely külső térrel való kölcsönhatás következtében koherens állapotok folytonos vagy diszkrét szuperpozíciójaként áll elő. Példaképpen megemlítjük, hogy Wallentowitz és munkatársai kidolgoztak

egy eljárást, amellyel ioncsapdában a csapdázott ion rezgési állapotát koherens állapotok diszkrét szuperpozíciójaként tudják előállítani a fázistér valós tengelye mentén [13]. Egy másik terület a kétatomos molekulák, amelyekben egy rövid fényimpulzussal kiváltott Franck-Condon átmenet leírásánál egy olyan egyenletet kapunk a kialakuló rezgési állapotvektorra, amely koherens állapotok folytonos, kör menti szuperpozícióját tartalmazza (lásd a 3.1.1 alfejezetet).

1.2. Egy-dimenziós folytonos koherens állapot reprezentációk

Az előző fejezetben megmutattuk, hogy a koherens állapotok túlteljes rendszert alkotnak, s ezért elvileg egy részhalmazuk is használható bázisként. Most levezetünk egy módszert, amellyel a fázistér elvileg tetszőleges Γ görbéje mentén vett folytonos vagy diszkrét koherens állapot szuperpozícióval meg lehet adni az állapotot. Induljunk ki a (1.1.18) egyenlet kicsit módosított változatából:

$$|\psi\rangle = \int_{\Gamma} dz F(z) |z\rangle. \quad (1.2.1)$$

A koherens állapot (1.1.4) Fock állapotok szerinti kifejtésében az összegzést vágjuk le egy tetszőlegesen nagy, de véges N értéknél, s ezt a közelítő koherens állapotot helyettesítsük be a (1.2.1) egyenletbe:

$$|\psi\rangle = \sum_{n=0}^N \int_{\Gamma} dz G(z) \frac{z^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle, \quad (1.2.2)$$

$$G(z) = \mathcal{N}_N(z) F(z), \quad \mathcal{N}_N(z) = \left\{ \sum_{n=0}^N \frac{|z|^{2n}}{n!} \right\}^{-1/2}.$$

A Fock bázis csonkolására azért van szükség, hogy az integrálás és összegzés műveletet biztosan fel tudjuk cserélni. Ez egyúttal megkötést jelent a kifejthető állapotokra is: az állapotnak merőlegesnek kell lennie az N -nél nagyobb indexű Fock állapotokra. Ez a fajta csonkolt Hilbert téren való kifejtés nem ismeretlen a kvantumoptikában, gondoljunk a Pegg-Barnett féle fázis-operátor formalizmusra [16].

Tegyük fel, hogy ismert a $|\psi\rangle$ állapot reprezentációja Fock bázisban:

$$|\psi\rangle = \sum_{n=0}^N c_n |n\rangle. \quad (1.2.3)$$

A (1.2.2) és (1.2.3) egyenleteket összehasonlítva látszik, hogy a (1.2.2) egyenletben szereplő integráloknak és a megfelelő Fock kifejtési együtthatóknak meg kell egyezniük egymással:

$$\tilde{c}_n = \sqrt{n!} c_n = \int_{\Gamma} dz G(z) z^n, \quad n=0 \dots N. \quad (1.2.4)$$

Az egyenlet jobboldán álló z^n polinomok bázist alkotnak a legfeljebb N -ed fokú polinomok terében. Ez a bázis nem ortogonális, de ortogonalizálható a Schmidt-féle

ortogonalizációs eljárással [14]. Tegyük fel, hogy választunk egy $w(z)$ súlyfüggvényt, amire a polinomok ortogonálisak, s a z^n polinomok ortogonalizálása után kapjuk a $\{P_n(z)\}_{n=1\dots N}$ ortonormált polinomrendszert, mely az ortogonáltsági relációt a következő alakban elégíti ki:

$$\int_{\Gamma} dz P_n(z) P_m(z) w(z) = \delta_{nm}. \quad (1.2.5)$$

A z^n és $P_n(z)$ polinomok között fennáll a

$$\begin{pmatrix} P_0(z) \\ P_1(z) \\ \vdots \\ P_N(z) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} P_{0,0} & 0 & \dots & 0 \\ P_{1,0} & P_{1,1} & \dots & 0 \\ \vdots & \vdots & & \vdots \\ P_{N,0} & P_{N,1} & \dots & P_{N,N} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} z^0 \\ z^1 \\ \vdots \\ z^N \end{pmatrix} \quad (1.2.6)$$

összefüggés. Az egyenlet jobboldalán álló mátrixot a $P_n(z)$ polinomok együtthatóiból képezzük. Mivel egy alsó háromszög mátrix, ezért determinánsa egyenlő a főátlóbeli elemek szorzatával, ami garantáltan nem nulla, azaz a mátrix invertálható. A (1.2.6) egyenlet baloldalán álló vektort jelöljük $\mathbf{P}(z)$ -vel, a jobboldali z^n polinomokból álló vektort $\mathbf{z}$ -vel, az együttható mátrixot pedig $\mathbf{P}$ -vel. E jelölésekkel a (1.2.6) egyenlet inverze:

$$\mathbf{z} = \mathbf{P}^{-1} \mathbf{P}(z). \quad (1.2.7)$$

A (1.2.7) egyenletben z^n polinomot egy ortonormált polinomrendszer tagjaival fejeztük ki. Ha ezt behelyettesítjük a (1.2.4) egyenletbe, akkor a

$$\tilde{K}_n = \int_{\Gamma} dz K(z) P_n(z) w(z), \quad K(z) = \frac{G(z)}{w(z)}, \quad n = 0 \dots N. \quad (1.2.8)$$

integrálokat kell elvégeznünk, amelyek approximációs együtthatókat szolgáltatnak a $K(z)$ függvény $\{P_n(z)\}_{n \in \mathbb{N}}$ polinomokkal való közelítő előállításához. Ebben a lépésben látszólag impliciten feltételezzük, hogy az első N polinommal jól közelíthető a $K(z)$ függvény, azonban a $K(z)$ -ről előzetesen nem tudunk semmit. Majd látni fogjuk, hogy $K(z)$ függvényt épp ezek a $\tilde{K}_n$ együtthatók határozzák meg. A (1.2.4) egyenletet átírjuk a (1.2.7) és (1.2.8) egyenletek segítségével, vektor és mátrix jelölést használva:

$$\tilde{\mathbf{c}} = \mathbf{P}^{-1} \tilde{\mathbf{K}}. \quad (1.2.9)$$

Az egyenletet invertálva, elvégezzük $K(z)$ polinom-approximációját:

$$K(z) = \mathbf{P}(z) \mathbf{P} \tilde{\mathbf{c}}. \quad (1.2.10)$$

Figyelembe véve $K(z)$ és $G(z)$ definícióját, megkapjuk a keresett $F(z)$ súlyfüggvényt:

$$F(z) = w(z) \mathcal{N}_N^{-1}(z) \mathbf{P}(z) \mathbf{P} \tilde{\mathbf{c}}. \quad (1.2.11)$$

Az (1.2.11) egyenlet jobboldalán a $w(z)$, $\mathcal{N}_N(z)$, $\mathbf{P}(z)$, $\mathbf{P}$ mennyiségek függetlenek a $\tilde{\mathbf{c}}$ vektorral meghatározott állapottól, s így rögzítve a Γ halmazt és a csonkolt Fock tér $N + 1$ dimenzióját, előre kiszámíthatók.

Szót kell még ejtenünk arról, hogy a (1.2.11) egyenlet által meghatározott $F(z)$ súlyfüggvény mikor létezik függvény és mikor csak disztribúció értelemben. Ez nyilvánvalóan függ a választott polinomrendszertől és a reprezentálandó állapot Fock kifejtési együtthatóitól is. Általában azt mondhatjuk, ha a (1.2.11) egyenletben az N növelésével konvergens függvényt sorozatot kapunk, akkor az $F(z)$ függvény, ha a függvényt sorozat divergens, akkor $F(z)$ csak disztribúció értelemben létezik, legalábbis e módszert használva.

Mindezidáig nem konkretizáltuk, milyen Γ halmazokon és milyen polinomrendszerekkel állítjuk elő $F(z)$ súlyfüggvényt. A 1. táblázatban összefoglaltunk néhány nevezetes polinomot, amelyek a valós számegyenes részhalmazain vannak értelmezve, és kiindulásként szolgálhatnak az $F(z)$ súlyfüggvény (1.2.11) előállításában. Amennyiben sikerül találni egy polinomrendszert, amely nem a valós számegyenes valamely részhalmazán értelmezett, úgy a bemutatott módszer természetesen arra is alkalmazható.

A módszer használatának illusztrálására határozzuk meg egy valós tengelyen fekvő $|x_0\rangle$ koherens állapot $F(x)$ súlyfüggvényét. A koherens állapot (1.1.4) Fock kifejtési együtthatóiból kapjuk a $\tilde{\mathbf{c}}$ vektor elemeit:

$$\tilde{c}_n = e^{-x_0^2/2} x_0^n. \quad (1.2.12)$$

A 1. táblázatból bármelyik polinomot választhatjuk, jelöljük ezt $P_n(x)$ -szel. A polinom értelmezési tartománya legyen az $[a, b]$ intervallum, a súlyfüggvényt jelöljük $w(x)$ -szel. Ekkor $F(x)$ függvényre a (1.2.6) felhasználásával kapjuk:

$$F(x) = w(x) \mathcal{N}_N^{-1}(x) e^{-x_0^2/2} \mathbf{P}(x) \mathbf{P}(x_0). \quad (1.2.13)$$

Polinom	Intervallum	$w(x)$ súlyfüggvény	s_n
Chebyshev I. $T_n(x)$	$[-1, 1]$	$(1 - x^2)^{-1/2}$	$\begin{cases} \pi/2 & n \neq 0 \\ \pi & n = 0 \end{cases}$
Chebyshev II. $U_n(x)$	$[-1, 1]$	$(1 - x^2)^{1/2}$	$\pi/2$
Legendre $P_n(x)$	$[-1, 1]$	1	$2/(2n + 1)$
Laguerre $L_n(x)$	$[0, \infty]$	e^{-x}	1
Hermite $H_n(x)$	$[-\infty, \infty]$	$e^{-x^2/2}$	$\pi^{1/2} n! 2^n$

1. táblázat: Néhány polinomrendszer, amelyekkel $F(x)$ előállítható a valós számegyenesen. $\int dx w(x) P_n^2(x) = s_n$ amivel még le kell normálni a polinomokat a (1.2.11) képletben.

A (1.2.13) kifejezés az $N \rightarrow \infty$ határesetben a $\{P_n(x)\}_{n \in \mathbb{N}}$ polinomhalmaz teljességi relációja, ha x_0 benne van a polinomok értelmezési tartományában. Ekkor (1.2.13) képletben $F(x) = \delta(x - x_0)$. Ez az eredmény összhangban van előzetes várakozásunkkal, hiszen

$$|x_0\rangle = \int_a^b dx \delta(x - x_0) |x\rangle, \quad x_0 \in [a, b]. \quad (1.2.14)$$

Konkréten, ha a Hermite polinomokat választjuk teljes rendszerként, akkor $[a, b] = [-\infty, \infty]$ és $w(x) = e^{-x^2}$. Behelyettesítve a (1.2.13) egyenletbe:

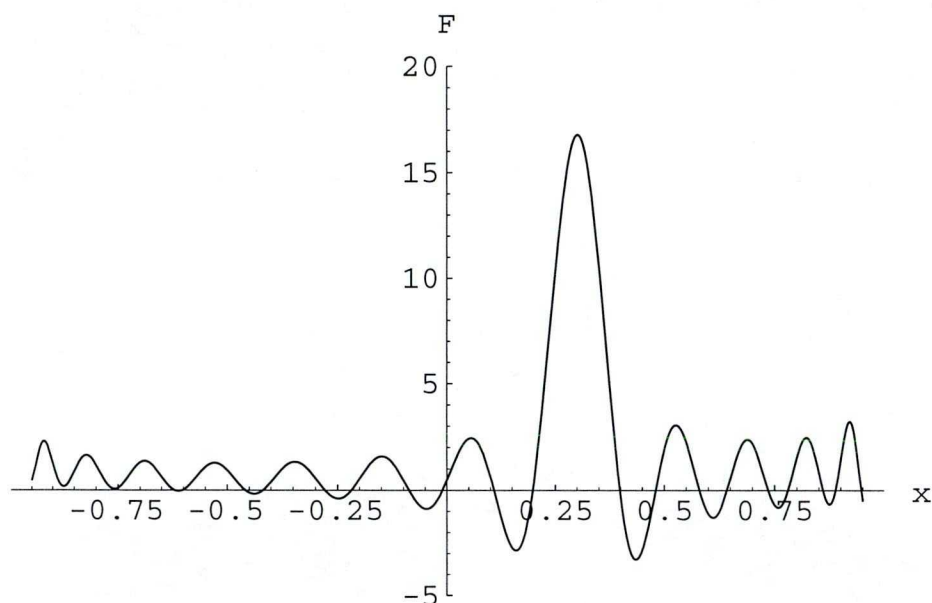
$$F(x) = e^{-x^2/2 - x_0^2/2} \lim_{N \rightarrow \infty} \sum_{n=0}^N \frac{1}{\sqrt{\pi} 2^n n!} H_n(x) H_n(x_0) = \delta(x - x_0), \quad x \in [-\infty, \infty]. \quad (1.2.15)$$

Egy másik választási lehetőség a Chebyshev I. polinomok, melyek a $x \in [-1, 1]$ szakaszon értelmezettek, a súlyfüggvényük $(1 - x^2)^{-1/2}$. Az (1.2.13) egyenlet ekkor

$$F(x) = \frac{e^{x^2/2 - x_0^2/2}}{(1 - x^2)^{1/2}} \sum_{n=0}^N T_n(x) T_n(x_0), \quad x \in [-1, 1]. \quad (1.2.16)$$

A 2. ábrán $N = 30$ -ig adtuk össze a Chebyshev polinomokat. A függvény grafikonján jól látható egy kiemelkedő csúcs. A 3. ábrán $N = 120$ Chebyshev polinomot összegeztünk. Itt már jó közelítéssel Dirac δ eloszlásnak tekinthető az $F(x)$ súlyfüggvény.

Ha x_0 a polinom értelmezési tartományán kívül esik, akkor a $N \rightarrow \infty$ határesetben $F(x)$ általában nem konvergens, s egy reguláris disztribúciót kapunk. Ezen azt



2. ábra: $A | 0.3 \rangle$ koherens állapot egy-dimenziós reprezentációs függvénye a $[-1, 1]$ intervallumon Chebyshev I. polinomok szerint kifejtve, $N = 30$. Bár a függvény még nem egy éles Dirac δ , de a csonkolt koherens állapotot pontosan visszaadja.

értjük, hogy $F(x)$ minden véges N értékre függvény értelemben létezik, s az $N \rightarrow \infty$ határesetben pedig a függvénysor határértéke már nem függvény. Gondoljunk például arra, hogy a $(\pi^{1/2}\sigma)^{-1} \exp(-x^2/\sigma)$ Gauss-függvény a $\sigma \rightarrow 0$ határesetben a Dirac δ disztribúcióhoz tart. Azonban $F(x)$ ilyenkor is előállítja a kiindulási $|x_0\rangle$ koherens állapotot. Ennek belátására a (1.2.13) kifejezést helyettesítsük be a (1.2.1) képletbe. Felhasználva a koherens állapot Fock állapotok szerinti (1.1.4) kifejtését a

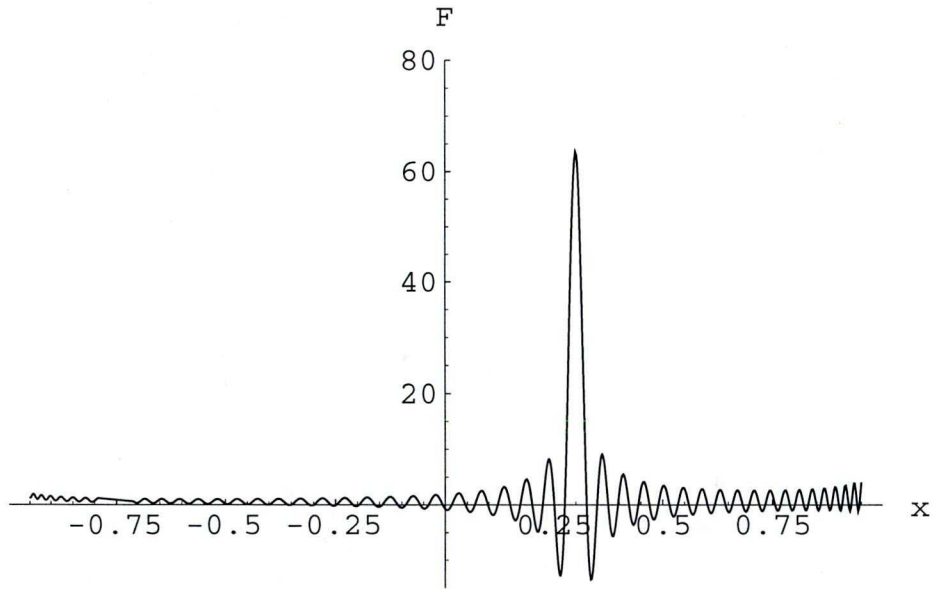
$$e^{-x_0^2/2} \int_a^b dx w(x) \mathcal{N}_N^{-1}(x) \mathbf{P}(x) \mathbf{P}(x_0) \mathcal{N}_N(x) \sum_{n=0}^N \frac{x^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle. \quad (1.2.17)$$

integrálra jutunk. Figyeljük meg, hogy $\mathcal{N}_N(x)$ kiesik. A (1.2.7) egyenlet segítségével x^n kifejezhető a $P_l(x)$ polinomokkal:

$$e^{-x_0^2/2} \int_a^b dx w(x) \sum_{m=0}^N P_m(x) P_m(x_0) \sum_{n=0}^N \frac{\sum_{l=0}^N (\mathbf{P}^{-1})_{n,l} P_l(x)}{\sqrt{n!}} |n\rangle, \quad (1.2.18)$$

amely az integrálás elvégzése után az

$$e^{-x_0^2/2} \sum_{m,n,l=0}^N \frac{1}{\sqrt{n!}} \delta_{m,l} P_m(x_0) (\mathbf{P}^{-1})_{n,l} |n\rangle, \quad (1.2.19)$$



3. ábra: Ugyanaz, mint a 2. ábra, de most $N = 120$. Ez a görbe már jó közelítéssel a Dirac δ disztribúció.

alakra egyszerűsödik. A (1.2.7) egyenlet ismételt alkalmazásával, némi átrendezés után kapjuk:

$$e^{-x_0^2/2} \sum_{n=0}^N \frac{x_0^n}{\sqrt{n!}} |n\rangle, \quad (1.2.20)$$

amely épp a kifejtteni kívánt, csonkolt koherens állapot.

Az $F(x)$ súlyfüggvény (1.2.11) kifejtésének egy másik szemléletes jelentést is adhatunk. Az egyszerűség kedvéért a kifejtéshez használt $\{P_l(x)\}$ polinomok legyenek valós számhalmazon értelmezettek. A $\mathbf{P}$ együtthatómátrix lk eleme előállítható a $P_l(y)$ polinom deriválásával:

$$P_{lk} = \frac{1}{k!} \frac{\partial^k}{\partial y^k} P_l(y) \Big|_{y=0}. \quad (1.2.21)$$

Ezt behelyettesítve a (1.2.11) képletbe kapjuk:

$$F(x) = \sum_{k=0}^N \frac{c_k}{\sqrt{k!}} \frac{\partial^k}{\partial y^k} \sum_{l=0}^N P_l(x) P_l(y) \Big|_{y=0} w(x) \mathcal{N}_N^{-1}(x), \quad (1.2.22)$$

ahol figyelembe vettük $\tilde{c}$ definícióját. Az $N \rightarrow \infty$ határátmenetben a $\{P_l(x)\}$ polino-

mok teljességi relációját kihasználva a (1.2.22) formula az

$$F(x) = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{c_k}{\sqrt{k!}} \frac{\partial^k}{\partial y^k} \delta(y-x) \Big|_{y=0} \mathcal{N}^{-1}(x) \quad (1.2.23)$$

alakot ölti. Helyettesítsük be ezt a kifejezést az egy-dimenziós kifejtést definiáló (1.2.1) egyenletbe:

$$|\psi\rangle = \int_a^b dx \sum_{k=0}^{\infty} \frac{c_k}{\sqrt{k!}} \frac{\partial^k}{\partial y^k} \delta(y-x) \mathcal{N}^{-1}(x) |x\rangle \Big|_{y=0}. \quad (1.2.24)$$

A $\mathcal{N}^{-1}(x) |x\rangle$ vektor a normálatlan koherens állapot, amelyet Bargman állapotnak is neveznek:

$$||x\rangle \stackrel{\text{def}}{=} \sum_{l=0}^{\infty} \frac{x^l}{\sqrt{l!}} |l\rangle. \quad (1.2.25)$$

A (1.2.24) egyenletben elvégezzük az integrálást, figyelembe véve a (1.2.25) definíciót:

$$|\psi\rangle = \sum_{k=0}^{\infty} \frac{c_k}{\sqrt{k!}} \frac{\partial^k}{\partial y^k} ||y\rangle \Big|_{y=0}. \quad (1.2.26)$$

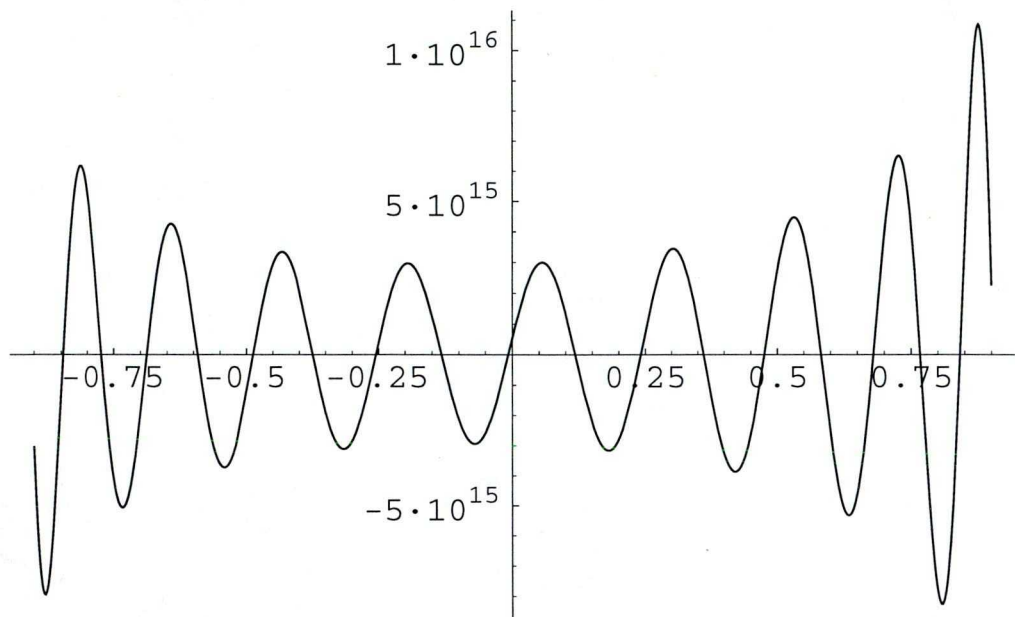
Az eredmény triviális, ugyanakkor az az út, ahogy eljutottunk hozzá jól mutatja az $F(x)$ függvény kapcsolatát a kifejtendő állapottal. A kifejezést tekinthetjük egy reprezentációnak a $\{||\alpha\rangle\}$ normálatlan koherens állapotok origó körüli nyílt halmazán. Ebből a szempontból a (1.2.26) egyenlet megadja a kapcsolatot a kifejtetni kívánt állapot Fock reprezentációja és normálatlan koherens állapot reprezentációja között.

Példaképpen ismét tekintsük a koherens állapotot. A (1.1.4) Fock együtthatókat behelyettesítve a (1.2.26) egyenletbe kapjuk:

$$\begin{aligned} |\psi\rangle &= e^{-|\alpha|^2/2} \sum_{k=0}^{\infty} \frac{\alpha^k}{k!} \frac{\partial^k}{\partial y^k} ||y\rangle \Big|_{y=0} = e^{-|\alpha|^2/2} \exp\left(\alpha \frac{\partial}{\partial y}\right) ||y\rangle \Big|_{y=0} \\ &= e^{-|\alpha|^2/2} ||\alpha\rangle = |\alpha\rangle. \end{aligned} \quad (1.2.27)$$

Általában mindig ilyen “szép” eredményre jutunk, ha a (1.2.26) képletben az összegzést analitikusan, zárt alakban el tudjuk végezni. Ha a kifejtendő állapot véges sok koherens állapot szuperpozíciója, akkor ez mindig sikerülni fog. Érdekességgéppen tekintsük az optikai Schrödinger-macska állapotokat:

$$\begin{aligned} \mathcal{M}_+(|\alpha\rangle + |-\alpha\rangle) &= 2\mathcal{M}_+ \cosh\left(\alpha \frac{\partial}{\partial y}\right) ||y\rangle \Big|_{y=0} \\ \mathcal{M}_-(|\alpha\rangle - |-\alpha\rangle) &= 2\mathcal{M}_- \sinh\left(\alpha \frac{\partial}{\partial y}\right) ||y\rangle \Big|_{y=0} \end{aligned} \quad (1.2.28)$$



4. ábra: A fázisoptimalizált állapot egy-dimenziós koherens állapot reprezentációja Chebyshev polinomok szerint kifejtve.

Utolsó példánkban meghatározzuk az egy-dimenziós, folytonos koherens állapot reprezentációját a Summy-Pegg féle fázisoptimalizált állapotnak [15], amely eddig ismeretlen volt az irodalomban. A fázisoptimalizált állapot nevezetes tulajdonsága, hogy fázisszórása minimális a Pegg-Barnett féle fázis-operátor formalizmusban [16]. A fázis-operátor definíciója:

$$\hat{\phi}_\theta = \sum_{m=0}^s \theta_m |\theta_m\rangle \langle \theta_m|, \quad (1.2.29)$$

ahol $\{|\theta_m\rangle\}$ a fázis sajátállapotok:

$$|\theta_m\rangle = \frac{1}{\sqrt{1+s}} \sum_{n=0}^s \exp(in\theta_m) |n\rangle, \quad (1.2.30)$$

a θ_m sajátértékek pedig:

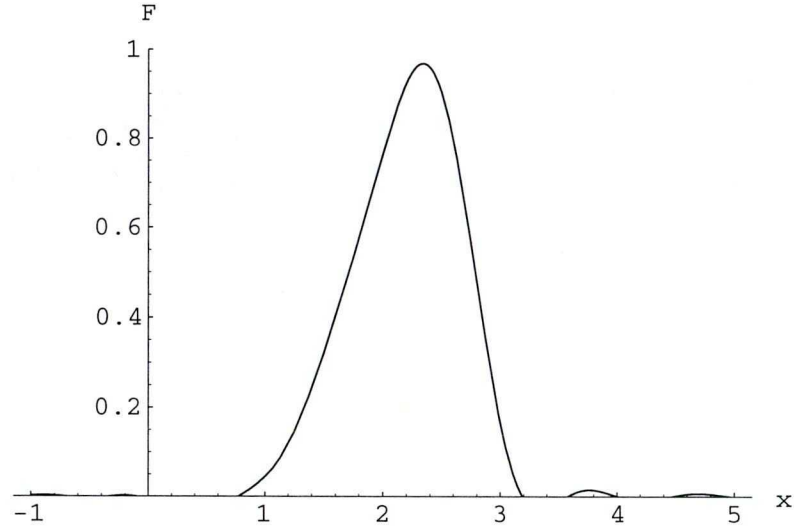
$$\theta_m = \theta_0 + \frac{2m\pi}{s+1}, \quad m = 0, 1, 2, \dots, s. \quad (1.2.31)$$

A fázis-operátor várhatóértéke egy adott állapotban függ a θ_m referencia fázistól, de szórása nem. A fázis-operátor tehát itt is egy csonkolt Hilbert téren van definiálva. Minden várhatóértéket úgy kell meghatározni, hogy előbb véges s értékkel számolunk, majd vesszük az $s \rightarrow \infty$ határátmenetet.

A fázisoptimalizált állapot Fock kifejtési sora [15]:

$$|\psi\rangle = \mathcal{N} \sum_{k=0}^{\infty} \text{Ai}(a[k+b] + b_0) |k\rangle = \sum_{k=0}^N b_k |k\rangle, \quad (1.2.32)$$

ahol $\text{Ai}(x)$ az Airy függvény [17], $b_0 = -2.3381$ az Airy függvény első nullahelye. A konkrét példában $a = 0.271$ és $b = 0.86$. A fotonszám-operátor várhatóértéke $\langle \hat{n} \rangle = 4.86$, a fázis-operátor szórása $\Delta \hat{\phi} = 0.0574$. Helyettesítsük be a (1.2.11) egyenletbe



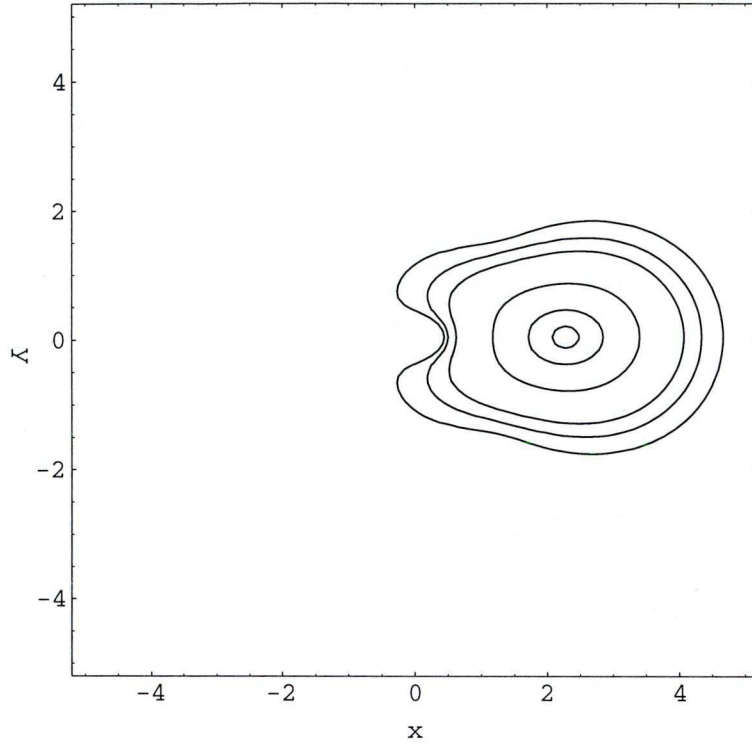
5. ábra: A fázisoptimalizált állapot egy-dimenziós koherens állapot reprezentációja Hermite polinomok szerint kifejtve.

a fázisoptimalizált állapot (1.2.32) Fock együtthatóit. Ha a Chebyshev polinomokat választjuk polinomrendszerként, $F(x)$ függvényre a

$$F(x) = \frac{e^{x^2/2}}{(1-x^2)^{1/2}} \sum_{n,k=0}^N T_n(x) T_{nk} \sqrt{k!} b_k, \quad x \in [-1, 1] \quad (1.2.33)$$

kifejezés adódik. A függvény grafikonját a 4. ábra mutatjuk be, amely az első 25 Fock együttható figyelembevételével született. Az oszcillációk hatalmasak, ami arra vall, hogy a $[-1, 1]$ szakaszon csak disztribúció értelemben tudjuk előállítani a (1.2.32) állapotot.

Amennyiben Hermite polinomokkal fejtjük ki a fázisoptimalizált állapot $F(x)$ súly-



6. ábra: A fázisoptimalizált állapot Wigner eloszlásfüggvénye.

függvényét a

$$F(x) = e^{-x^2/2} \sum_{n,k=0}^N \frac{1}{\sqrt{\pi} 2^n n!} H_n(x) H_{nk} \sqrt{k!} b_k, \quad x \in [-\infty, \infty] \quad (1.2.34)$$

képletet kapjuk. Az $e^{-x^2/2}$ szorzófaktor a szumma előtt gyorsan lecseng $|x|$ növekedésével, ezért van rá esély, hogy mind véges, mind $|x| \rightarrow \infty$ a határesetben a (1.2.34) súlyfüggvény véges határértékhez tart N növelésével. A függvényt az 5. ábrán mutatjuk be, ahol $N = 35$ Fock együtthatót összegeztünk. Jól megfigyelhető, hogy a súlyfüggvény nem nyúlik át az origón, hanem csak a pozitív félegyenesen különbözik nullától. Az origótól távolodva lassan növekszik, majd nullára csökken. Ez azt sugallja, hogy a Summy-Pegg féle fázisoptimalizált állapot Wigner eloszlásfüggvényének képe a fázistérben csepp alakú. A 6. ábra igazolja ezt a feltételezést, azonban a csepp csak nagyon kicsit elnyúlt.

1.3. Egy-dimenziós diszkrét koherens állapot reprezentációk

Most megmutatom azt, hogy egy állapot egy-dimenziós folytonos koherens reprezentációs függvény ismerete alapján az állapot koherens állapotok szerinti diszkrét reprezentációját hogyan tudjuk megtalálni. Mindenekelőtt tisztáznunk kell, mit értünk pontosan diszkrét koherens állapot reprezentáció alatt. Neumann és Cahill tétele is koherens állapotok megszámlálhatóan végtelen sok elemű halmazának a teljességét mondja ki. A tapasztalat azonban azt mutatja, hogy sok esetben már egy csonkolt Neumann rács, vagy a Cahill féle bázis néhány elemének lineáris kombinációjával is nagyon jól közelíthető a kifejtési kívánt állapot. Az irodalomban, amikor egy állapotot néhány koherens állapot szuperpozíciójával közelítenek, s a szuperpozíciós együtthatókat numerikusan, optimalizációval határozzák meg, a diszkretizáció utóbbi esete valósul meg [18, 19, 20].

Mi egy másik utat javasolunk azokra az esetekre, amikor $F(x)$ valós számokon értelmezett, sima függvény, azaz a (1.2.11) képletben az $N \rightarrow \infty$ határesetben $F(x)$ az értelmezési tartománya minden pontjában függvény értelemben létezik. A diszkrét koherens állapot reprezentáció meghatározásának az az alapja, hogy a (1.2.1) egyenletben szereplő integrált numerikusan közelítjük a (1.2.11) képletben megadott $F(x)$ súlyfüggvény felhasználásával. Induljunk ki a (1.2.4) képletből, amely kapcsolatot teremt az állapot $F(x)$ folytonos koherens állapot reprezentáció súlyfüggvénye és a c_l Fock kifejtési együtthatói között. Helyettesítsük be $G(x)$ helyére a polinom kifejtését:

$$c_l = \int_a^b dx w(x) B_l(x), \quad B_l(x) = \frac{1}{\sqrt{l!}} \mathbf{P}(x) \mathbf{P} \tilde{\mathbf{c}} x^l, \quad l = 0 \dots N. \quad (1.3.1)$$

$B_l(x)$ általában komplex függvény, de mivel valós polinomokkal fejtettünk ki, ezért a képzetes része csak a $\tilde{\mathbf{c}}$ vektor képzetes részéből származik. A (1.3.1) egyenletben az integrált a Gauss kvadratura módszerrel tudjuk numerikusan kiszámítani [17]:

$$c_l = \int_a^b dx w(x) B_l(x) = \sum_{i=0}^n w_i B_l(x_i) + R_l^{(n)} = a_l^{(n)} + R_l^{(n)}, \quad (1.3.2)$$

ahol a $\{w_i\}$ súlyokat az $\{x_i\}$ pontokat és a $R_l^{(n)}$ hibakorlátokat a 1. táblázatban megadott intervallumokhoz és integrálási súlyfüggvényekhez a 2. táblázatban közöljük. Az egyenlet jobboldalán álló $a_l^{(n)}$ számok az $n + 1$ pontos diszkretizációval közelített Fock együtthatók, amelyek hibája $R_l^{(n)}$.

Polinom	Intervallum	w_i	x_i	$R^{(n)}$
Chebyshev I. $T_n(x)$	$[-1, 1]$	$\frac{\pi}{n}$	$\cos \frac{(2i-1)\pi}{2n}$	$\frac{\pi}{(2n)!2^{2n-1}} f^{(2n)}(\xi)^\dagger$
Chebyshev II. $U_n(x)$	$[-1, 1]$	$\frac{\pi}{n+1} \sin^2 \frac{i}{n+1} \pi$	$\cos \frac{i}{n+1} \pi$	$\frac{\pi}{(2n)!2^{2n+1}} f^{(2n)}(\xi)^\dagger$
Legendre $P_n(x)$	$[-1, 1]$	$\frac{2}{(1-x_i^2)[P'_n(x_i)]^2}$	$P_n(x_i) = 0^\dagger$	$\frac{2^{2n+1}(n!)^4}{(2n+1)[(2n)!]^3} f^{(2n)}(\xi)^\dagger$
Laguerre $L_n(x)$	$[0, \infty]$	$\frac{(n!)^2 x_i}{(n+1)^2 [L_{n+1}(x_i)]^2}$	$L_n(x_i) = 0^\dagger$	$\frac{(n!)^2}{(2n)!} f^{(2n)}(\xi)^\dagger$
Hermite $H_n(x)$	$[-\infty, \infty]$	$\frac{2^{n-1} n! \sqrt{\pi}}{n^2 [H_{n-1}(x_i)]^2}$	$H_n(x_i) = 0^\dagger$	$\frac{n! \sqrt{\pi}}{2^n (2n)!} f^{(2n)}(\xi)^\dagger$

2. táblázat: $A \int_a^b dx w(x) f(x) = \sum_{i=0}^n w_i f(x_i) + R^{(n)}(\xi)$ Gauss kvadratúra integrál w_i súlyai, x_i pontjai és $R^{(n)}$ hibakorlátjai különböző polinom rendszerek esetén.

† : x_i a $Q_n(x)$ polinom i -edik nullahelye.

‡ : $f^{(2n)}(\xi)$ az $f(x)$ függvény $2n$ -edik deriváltja azon a helyen, ahol az integrálformulában az egyenlőség teljesül.

A kifejtteni kívánt $|\psi\rangle$ állapot ennek alapján a

$$|\psi\rangle \approx |\psi_{diszk}\rangle = \sum_{i=0}^n w_i \mathcal{N}(x_i)^{-1} \mathbf{P}(x_i) \mathbf{P}\tilde{\mathbf{c}} |x_i\rangle \quad (1.3.3)$$

diszkrét koherens állapot szuperpozícióval állítható elő. A közelítés pontosságát számszerűen úgy tudjuk megbecsülni, hogy meghatározzuk a diszkretizáció útján nyert (1.3.3) állapot normájának egytől való eltérését. A (1.3.1) és (1.3.2) egyenletek felhasználásával:

$$1 = \sum_{l=0}^N |c_l|^2 = \sum_{l=0}^N \left| a_l^{(n)} + R_l^{(n)} \right|^2 = \sum_{l=0}^N \left[\left| a_l^{(n)} \right|^2 + a_l^{(n)*} R_l^{(n)} + a_l^{(n)} R_l^{(n)*} + \left| R_l^{(n)} \right|^2 \right]. \quad (1.3.4)$$

A jobboldali összeg első tagja a (1.3.3) diszkrét reprezentáció normája, a további tagok a Gauss integrálás hibájából származnak. Ha valamennyi $R_l^{(n)}$ hibakorlát abszolútértéke felülről becsülhető egy ϵ számmal, akkor

$$|1 - \langle \psi_{diszk} | \psi_{diszk} \rangle| \leq \sum_{l=0}^N \left[2\text{Re} \left(a_l^{(n)} \right) \epsilon + \epsilon^2 \right] \leq (N+1) (2\kappa\epsilon + \epsilon^2), \quad (1.3.5)$$

ahol $\kappa = \max[\text{Re}(a_l^{(n)})]$, $l = 0..N$. A (1.3.5) egyenlet jobboldala eltűnik, ha a Gauss integrálok hibája nullához tart. Ez egyúttal azt jelenti, hogy a $|\psi\rangle$ állapotot "pontosan" állítja elő a (1.3.3) diszkrét koherens állapot reprezentáció.

2. Kvázi-valószínűségeloszlás függvények lokális rekonstrukciója kaszkád optikai homodin méréssel

Ebben a fejezetben két ismert állapot-rekonstrukciós eljárást kapcsolok össze, amely egy kísérleti szempontból is realizisztikus mérési elrendezést ad kvázi-valószínűségeloszlás függvények lokális rekonstruálására. A 2.1 szakaszban ismertetem a homodin mérésen alapuló állapot-rekonstrukció alapjait. A 2.2 alfejezetben bemutatom a kaszkád homodin mérési elrendezést.

2.1. Kvantumállapot rekonstrukció alapjai

A kvantummechanika axiómái szerint egy rendszer kvantummechanikai állapotát az állapotvektora teljesen meghatározza. A rendszeren végrehajtott tetszőleges mérés kimenetelét a kvantummechanika számolási szabályainak alkalmazásával az állapotvektorból ki lehet számítani. Érdekes volna, hogyha méréseket végezve nagyszámú, azonosan preparált rendszeren, meg tudnánk határozni a rendszerek kvantumállapotát. Ezt a problémát először Pauli vetette fel 1933-ban [21]. A kérdése pontosabban így hangzik: ha ismerjük egy részecske hely $|\psi(x)|^2$ és impulzus $|\phi(p)|^2$ eloszlását, ebből egyértelműen helyreállítható-e a részecske állapotvektora? A válasz az, hogy általában nem. Például ha a hullámfüggvény adott paritású, akkor csak a hely és impulzus eloszlás mérésével nem lehet különbséget tenni a hullámfüggvény és konjugáltja között.

Az áttörést K. Vogel és H. Risken eredménye hozta meg 1989-ben [22]. Bebizonyították azt, hogy fény esetében a fázisforgatott kvadratúra-operátor $[\hat{a}^\dagger \exp(i\theta) + \hat{a} \exp(-i\theta)]/2$ eloszlása kifejezhető kvázi-valószínűségeloszlás függvényekkel, mint például P , Q és Wigner, és megfordítva, ha a fázisforgatott kvadratúra-operátor eloszlása ismert minden θ értékre a $0 \leq \theta \leq \pi$ intervallumon, akkor a kvázi-valószínűségeloszlás függvények megkaphatók. Röviden tekintsük át gondolatmenetüket. Az s -parametrizált karakterisztikus függvény Cahill féle definíciója [23]:

$$\chi(u, v; s) = \text{Tr}\{\exp[-iu\hat{q} - iv\hat{p} + s(u^2 + v^2)/4] \hat{\rho}\}. \quad (2.1.1)$$

Az eloszlásfüggvény a karakterisztikus függvény inverz Fourier transzformáltja:

$$W(q, p; s) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} du dv \chi(u, v; s) e^{i(uq+vp)}. \quad (2.1.2)$$

A $W(q, p; 1)$ a Glauber-Sudarshan féle P függvény [24, 25], a $W(q, p; 0)$ a Wigner függvény [26, 27] amelyet Wigner Jenő 1932-ben fedezett fel mint a klasszikus fázis-térbeli eloszlásfüggvény kvantummechanikai analógiáját, nagyon általános szimmetria megfontolások alapján. Az ő eredeti definíciója:

$$W(q, p) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx \exp(ipx) \left\langle q - \frac{x}{2} \mid \hat{\rho} \mid q + \frac{x}{2} \right\rangle. \quad (2.1.3)$$

Végül $W(q, p; -1) = \langle \alpha \mid \hat{\rho} \mid \alpha \rangle / \pi$ a Q vagy Husimi függvény. A kvázi-valószínűségeloszlás függvényekről egy alaposabb bevezető a 1.1 alfejezetben található.

Vogel és Risken módszere alapjául az az észrevétel szolgált, hogy a fázisforgatott kvadratúra-operátor eloszlásának a Fourier transzformáltja egyenlő az $s = 0$ karakterisztikus függvénnyel. A fázisforgatott kvadratúra-operátor eloszlását a

$$w(q, \theta) = \langle q_\theta \mid \hat{\rho} \mid q_\theta \rangle = \langle q \mid \hat{U}(\theta) \hat{\rho} \hat{U}^\dagger(\theta) \mid q \rangle \quad (2.1.4)$$

kifejezés adja meg, ahol $\hat{U}(\theta) = \exp(-i\hat{n}\theta)$ a fázistolás-operátora. A $w(q, \theta)$ eloszlás Fourier transzformáltja:

$$\begin{aligned} \tilde{w}(\eta, \theta) &= \int_{-\infty}^{\infty} dq \langle q \mid \hat{U}(\theta) \hat{\rho} \hat{U}^\dagger(\theta) \mid q \rangle \exp(-i\eta q) \\ &= \int_{-\infty}^{\infty} dq \langle q \mid \hat{U}(\theta) \hat{\rho} \hat{U}^\dagger(\theta) \exp(-i\eta \hat{q}) \mid q \rangle \\ &= \text{Tr}\{\hat{U}(\theta) \hat{\rho} \hat{U}^\dagger(\theta) \exp(-i\eta \hat{q})\} \\ &= \text{Tr}\{\hat{\rho} \hat{U}^\dagger(\theta) \exp(-i\eta \hat{q}) \hat{U}(\theta)\} \\ &= \text{Tr}\{\hat{\rho} \exp(-i\eta [\hat{q} \cos \theta + \hat{p} \sin \theta])\} \\ &= \chi(\eta \cos \theta, \eta \sin \theta; 0). \end{aligned} \quad (2.1.5)$$

A (2.1.1) definíció felhasználásával a (2.1.5) összefüggés kiterjeszthető valamennyi s -parametrizált karakterisztikus függvényre:

$$\chi(\eta \cos \theta, \eta \sin \theta; s) = \tilde{w}(\eta, \theta) e^{s\eta^2/4}. \quad (2.1.6)$$

Behelyettesítve ezt a kifejezést az s -parametrizált eloszlásfüggvényt definiáló (2.1.2) egyenletbe, polár koordináta rendszer bevezetése után és a (2.1.5) egyenlet figyelembe vételével megkapjuk a keresett összefüggést:

$$W(q, p; s) = \frac{1}{(2\pi)^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\pi} \int_{-\infty}^{\infty} dx d\theta d\eta w(x, \theta) |\eta| \exp(i\eta [q \cos \theta + p \sin \theta - x] + s\eta^2/4). \quad (2.1.7)$$

A (2.1.2) egyenlet inverz Fourier transzformáltját véve a (2.1.5) és (2.1.6) egyenletek felhasználásával és az integrálási változók cseréjével jutunk a $w(q, \theta)$ fázisforgatott kvadratúra-eloszlás kifejezésére:

$$w(q, \theta) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} du dv d\eta W(u \cos \theta - v \sin \theta, u \sin \theta + v \cos \theta; s) \times \exp(-s\eta^2/4 + i\eta [q - u]). \quad (2.1.8)$$

Amennyiben $s > 0$ az η szerinti integrálás elvégezhető:

$$w(q, \theta) = \frac{1}{\sqrt{\pi s}} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} du dv W(u \cos \theta - v \sin \theta, u \sin \theta + v \cos \theta; s) \exp[-(q - u)^2/s]. \quad (2.1.9)$$

Az $s \rightarrow 0$ határátmenetben, azaz ha a Wigner függvényt transzformáljuk, (2.1.9) az egyszerűbb

$$w(q, \theta) = \int_{-\infty}^{\infty} dv W(q \cos \theta - v \sin \theta, q \sin \theta + v \cos \theta; 0) \quad (2.1.10)$$

alakot ölti. Ennek az eredménynek igen szemléletes tartalma van: a fázisforgatott kvadratúra-operátor eloszlása a Wigner függvény vetülete a fázistérben egy θ irányú felületre.

Térjünk most vissza a (2.1.7) képletre. Vezessük be a

$$K_s(x) = \frac{1}{2} \int_{-\infty}^{\infty} d\eta |\eta| \exp(i\eta x + s\eta^2/4) \quad (2.1.11)$$

jelölést, amit kernel-függvénynek nevezünk. Ennek felhasználásával (2.1.7) átírható a

$$W(q, p; s) = \frac{1}{2\pi^2} \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\pi} dx d\theta w(x, \theta) K_s(q \cos \theta + p \sin \theta - x) \quad (2.1.12)$$

alakra. Ha $s > 0$ akkor az integrál divergens és a kifejezés értelmetlen. Az $s \rightarrow -0$ határesetben az integrál általánosított függvény értelemben létezik, amelyet azonban

regularizálni lehet. Eredményül kapjuk a (2.1.10) transzformáció inverzét, melyet inverz Radon transzformációnak neveznek:

$$W(q, p) = -\frac{\mathcal{P}}{2\pi^2} \int_0^\pi \int_{-\infty}^\infty d\theta dx \frac{w(x, \theta)}{(q \cos \theta + p \sin \theta - x)^2}, \quad (2.1.13)$$

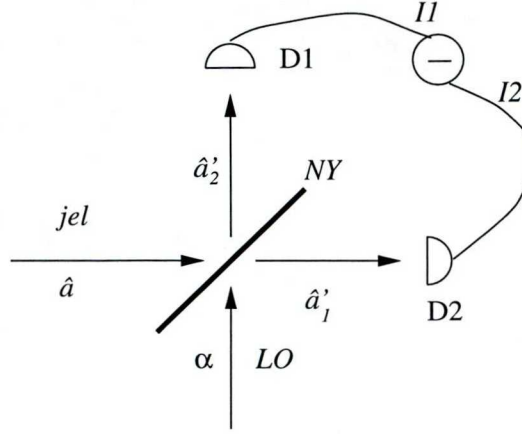
ahol $\mathcal{P}$ a Cauchy-féle főérték integrált jelöli. A (2.1.13) képletben szereplő transzformációt J. Radon publikálta először 1917-ben [28]. A transzformációt újra felfedezték az 1960-as években és az orvosi tomográfiában alkalmazták. A bemutatott rekonstrukciós eljárás analóg az orvosi alkalmazással, ezért kvantumállapot tomográfiának is nevezik. Megjegyezzük, hogy a numerikus implementáció során a (2.1.11) kernel képletben csak egy véges frekvenciáig Fourier transzformálnak, és az origó környezetében pedig hatványsorral közelítik $K_0(x)$ függvényt.

Amennyiben $s < 0$ a (2.1.11) alatti integrál konvergencia és a $K_s(x)$ kernel függvény értelemben létezik. Az integrált elvégezve kapjuk:

$$K_s(x) = \frac{2}{s} \left[1 - \sqrt{\frac{\pi}{s}} x \exp(-x^2/s) \operatorname{erfi} \frac{x}{\sqrt{s}} \right], \quad s < 0, \quad (2.1.14)$$

ahol $\operatorname{erfi}(x) = 2\pi^{-1/2} \int_0^x dt \exp(t^2)$ a képzetes hibafüggvény. A (2.1.12) rekonstrukciós formula tartalma ez alapján úgy fogalmazható meg, hogy a fázistérbeli fázisforgatott kvadratúra-operátor eloszlásainak az ismeretében az adatokat egy alkalmasan választott $K_s(x)$ kernel-függvénnyel konvolválva az $s \leq 0$ paraméterű kvázi-valószínűségeloszlás függvények rekonstruálhatók. Az állapot rekonstrukciónak ezt a módját “*filtered back-projection*” algoritmusnak nevezik az irodalomban.

A Vogel és Risken által javasolt rekonstrukciós eljárást először Smithey, Beck, Raimon, és Faridani valósította meg kísérletileg 1993-ban [29]. Kísérletükben a vákuum és a kvadratúra összenyomott vákuum állapotú fény Wigner függvényét rekonstruálták a fázisforgatott kvadratúra-operátor eloszlásfüggvényének mérési adataiból az inverz Radon transzformáció alkalmazásával. A kísérleti elrendezésük elvi sémáját a 7. ábrán mutatjuk be. A mérésük során az úgynevezett szimmetrikus homodin mérés [30, 31] elvét használták a kvadratúra-operátor eloszlásának meghatározása érdekében. A féligáteresztő tükör egyik bemenetére érkezik a mérendő jel, a másikra az úgynevezett lokális oszcillátor mező, amelynek frekvenciája azonos a jel frekvenciájával, fázisa pedig a jel fázisához képest pontosan hangolható. A lokális oszcillátor mező nagy intenzitású a jelhez képest, egyrészt azért, hogy fázisa minél határozottabb legyen, másrészt



7. ábra: A szimmetrikus homodin mérés elvi elrendezése. A jel és LO mezőket az NY nyalábosztó térben fedésbe hozza. A két detektor fotoáramának a különbsége arányos a jel fázisforgatott kvadratúra-eloszlásával.

azért, hogy klasszikusan lehessen kezelni. A nyalábosztó tükör után a jel és a lokális oszcillátor mező szuperponálódik egymással és a két kimeneten a fény amplitúdóját a

$$\hat{a}'_1 = 2^{-1/2}(\hat{a} - \alpha_{LO}), \quad \hat{a}'_2 = 2^{-1/2}(\hat{a} + \alpha_{LO}) \quad (2.1.15)$$

módus operátorok írják le. $\hat{a}$ a bemenő jel eltüntető módus operátora, α_{LO} a lokális oszcillátor mező amplitúdója. A detektorokról feltételezzük, hogy a megjelenő fotoáram arányos az őket érő fény fotonszámával, amelyeket a

$$\hat{n}'_1 = \hat{a}'_1{}^\dagger \hat{a}'_1, \quad \hat{n}'_2 = \hat{a}'_2{}^\dagger \hat{a}'_2. \quad (2.1.16)$$

összefüggések adnak meg. A két fotoáram különbsége így arányos lesz a fotonszámok különbségével:

$$\hat{n}'_{21} = \hat{n}'_2 - \hat{n}'_1 = \alpha_{LO}^* \hat{a} + \alpha_{LO} \hat{a}^\dagger = \sqrt{2} |\alpha_{LO}| \hat{q}(\theta), \quad (2.1.17)$$

ahol $\hat{q}(\theta)$ épp a mérni kívánt fázisforgatott kvadratúra-operátor. Ennek a kísérleti elrendezésnek nagy előnye, hogy igen kis intenzitású jel mérésére is alkalmas, mert az erős lokális oszcillátor mező felerősíti a detektorokhoz érkező jelet. Az alkalmazott fotodiódák kvantum-hatásfoka közel 100% lehet [32].

Az s -paraméterezett kvázi-valószínűségeloszlás függvény ismeretében egy lineáris

integrál-transzformáció segítségével meg lehet kapni a sűrűségmátrix elemeit is:

$$\langle a' | \hat{\rho} | a \rangle = \text{Tr}\{\hat{\rho} | a \rangle \langle a' | \} = 2\pi \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} dq dp W(q, p; s) W_{a'a}(q, p; -s), \quad (2.1.18)$$

ahol $W_{a'a}(q, p; -s)$ a $| a' \rangle \langle a |$ projector Wigner transzformáltja (2.1.3). Mivel a mért kvadratúra-eloszlásokból ugyancsak lineáris transzformációval nyerjük a Wigner függvényt, ezért léteznie kell egy lineáris leképezésnek amely a mért kvadratúra-eloszlásokból közvetlenül megadja a sűrűségmátrix elemeit:

$$\varrho_{a'a} = \langle a' | \hat{\rho} | a \rangle = \int_{-\infty}^{\infty} \int_0^{\pi} dq d\theta w(q, \theta) F_{a'a}(q, \theta), \quad (2.1.19)$$

ahol $\{| a \rangle\}$ egy tetszőleges bázis [33, 34]. A (2.1.19) formula a mérés kiértékelése szempontjából jelent újat. Az $F_{a'a}(q, \theta)$ minta-függvények már a mérés elvégzése előtt kiszámíthatók valamennyi megkövetelt q és θ , valamint a és a' paraméter értékekre. A mérés során a minta-függvényeket statisztikusan átlagolják a mért gyakoriságokkal:

$$\varrho_{a'a} = \langle \langle F_{a'a}(q, \theta) \rangle \rangle_{q, \theta}, \quad (2.1.20)$$

ahol a $\langle \cdot \rangle_{\alpha}$ zárójel a statisztikus átlagolást jelenti. Fock bázisban a minta-függvényekre egy igen egyszerű kifejezés kapható [35, 36, 37]:

$$F_{mn}(q, \theta) = \frac{1}{\pi} f_{mn}(q) \exp[i(m - n)\theta], \quad (2.1.21)$$

ahol $f_{mn}(q)$ az amplitúdó minta-függvény:

$$f_{mn}(q) = -\mathcal{P} \int_{-\infty}^{\infty} dx \frac{\psi_m(x) \psi_n(x)}{(q - x)^2} = \frac{\partial}{\partial q} [\psi_m(q) \varphi_n(q)]. \quad (2.1.22)$$

$\psi_m(x)$ a harmonikus oszcillátor reguláris, $\varphi_n(x)$ a harmonikus oszcillátor irreguláris megoldása, melyek a harmonikus oszcillátor m -edik és n -edik sajátértékéhez tartoznak. Az irreguláris hullámfüggvények ugyancsak megoldásai a Schrödinger egyenletnek, azonban négyzetesen nem integrálhatók. Az irreguláris hullámfüggvények úgy kaphatók meg, hogy a nulla sajátértékhez tartozó expliciten kiszámolható

$$\varphi_0(q) = \pi^{3/4} \exp\left(-\frac{q^2}{2}\right) \text{erfi}(q), \quad (2.1.23)$$

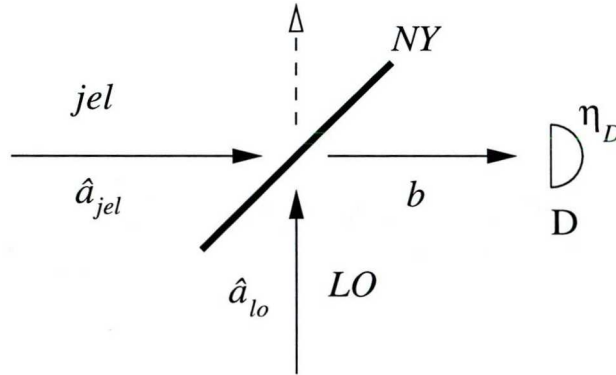
és a magasabb indexűeket az $\hat{a}^\dagger$ foton keltő operátor ismételt alkalmazásával nyerjük:

$$\varphi_n(q) = \frac{\hat{a}^{\dagger n}}{\sqrt{n!}} \varphi_0(q). \quad (2.1.24)$$

A (2.1.19) összefüggés alapján, a minta-függvények (2.1.21) kifejezését felhasználva, a sűrűségmátrix elemeinek rekonstruálására Fock bázisban a

$$\varrho_{mn} = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\pi}^{\pi} dq d\theta w(q, \theta) f_{mn}(q) \exp[i(m - n)\theta] \quad (2.1.25)$$

képletet kapjuk.



8. ábra: Az aszimmetrikus homodin mérés elvi elrendezése. A jel és LO mezőket az NY nyalábosztó térben fedésbe hozza. A detektor méri a szuperponált mező fotonstatisztikáját.

Az eddig ismerttetett rekonstrukciós eljárások mind a kvázi-valószínűségeloszlás függvények mind a sűrűségmátrix esetében az objektumot egységes egészként állítja elő. Nincs lehetőség arra, hogy egy kvázi-valószínűségeloszlás függvény fontosabb területeit pontosabban kapjuk meg, míg a kevésbé lényegeseket csak kisebb pontossággal, amely kevesebb adatgyűjtést és így gyorsabb mérést jelentene. Wallentowitz és Vogel kidolgozott egy aszimmetrikus homodin mérési elrendezést, amely a kvázi-valószínűségeloszlás függvényeket lokálisan, pontról pontra rekonstruálja [38]. A mérés elvi sémáját a 8. ábrán mutatjuk be. A mérendő jelet és a lokális oszcillátor mezőt a nyalábosztó szuperponálja, amelyet a fotodetektorok η_D kvantum-hatásfokkal mérnek. A lokális oszcillátorról most nem tételezzük fel, hogy nagy intenzitású, s így kvantumosan kezeljük azt is. A szuperponált mező amplitúdója:

$$\begin{aligned} \hat{b} &= T\hat{a}_{jel} + R\hat{a}_{lo}, \\ |R|^2 + |T|^2 &= 1, \quad \arg(T) - \arg(R) = \pm \frac{\pi}{2}, \end{aligned} \quad (2.1.26)$$

ahol $\hat{a}_{jel}$, $\hat{a}_{lo}$, $\hat{b}$ a mérendő jel, a lokális oszcillátor és a szuperponált mező eltüntető

operátorai. A fotodetektort érő mező fotonszámát a

$$\hat{b}^\dagger \hat{b} = |T|^2 \left(\hat{a}_{jel} + \frac{R}{T} \hat{a}_{lo} \right)^\dagger \left(\hat{a}_{jel} + \frac{R}{T} \hat{a}_{lo} \right) \quad (2.1.27)$$

operátor határozza meg. Annak a p_n valószínűségét, hogy a η_D kvantum-hatásfokú fotodetektor n fotont detektál a

$$p_n = \left\langle : \frac{(\eta_D \hat{b}^\dagger \hat{b})^n}{n!} e^{-\eta_D \hat{b}^\dagger \hat{b}} : \right\rangle. \quad (2.1.28)$$

képlet adja meg [40, 41, 42]. A $::$ szimbólum a normál rendezést jelenti, például $:(\hat{a}^\dagger \hat{a})^k := \hat{a}^{\dagger k} \hat{a}^k$. Ha a lokális oszcillátor mező $|\beta\rangle$ koherens állapotban van, akkor a (2.1.28) képletben, a normál rendezést kihasználva, a lokális oszcillátor mezőre átlagolás után, az n foton detektálásának valószínűségére a következő formulát kapjuk:

$$p_n(\varepsilon\beta; \eta) = \left\langle : \frac{[\eta \hat{N}(\varepsilon\beta)]^n}{n!} e^{-\eta \hat{N}(\varepsilon\beta)} : \right\rangle, \quad (2.1.29)$$

ahol $\varepsilon = R/T$, és η a teljes detektálási hatásfok $\eta = \eta_D |T|^2$. Annak érdekében, hogy a teljes detektálási hatásfok minél nagyobb legyen $|T|^2 \approx 1$, amely magával vonja, hogy $\varepsilon \ll 1$. Az $\hat{N}(\varepsilon\beta)$ a mérendő jel eltolt fotonszám-operátora:

$$\hat{N}(\varepsilon\beta) = (\hat{a}_{jel} + \varepsilon\beta)^\dagger (\hat{a}_{jel} + \varepsilon\beta) = \hat{D}(\varepsilon\beta) \hat{a}_{jel}^\dagger \hat{a}_{jel} \hat{D}(\varepsilon\beta)^\dagger, \quad (2.1.30)$$

ahol $\hat{D}(\alpha) = \exp(\alpha \hat{a}^\dagger - \alpha^* \hat{a})$ a koherens eltolási-operátor. A mérés szemléletesen úgy interpretálható, hogy a mérendő jel amplitúdóját $\varepsilon\beta$ -val eltoljuk, majd megmérjük η teljes detektálási hatásfokkal a fotonstatisztikáját.

A rekonstruálási eljárás másik sarkalatos pontja az a felismerés, hogy az s -paraméterű kvázi-valószínűségeloszlás függvény az α helyen arányos a 0 beütésszám valószínűségével a (2.1.29) képletben, $\eta = 2/(1-s)$ teljes detektálási hatásfok mellett:

$$\begin{aligned} W(\alpha; s) &= \frac{2}{\pi(1-s)} \int d^2\gamma \exp\left(-\frac{2|\alpha - \gamma|^2}{1-s}\right) W(\gamma; 1) \\ &= \frac{2}{\pi(1-s)} \left\langle : \exp\left(-\frac{2}{1-s} \hat{N}(-\alpha)\right) : \right\rangle \\ &= \frac{2}{\pi(1-s)} p_0\left(-\alpha; \frac{2}{1-s}\right), \quad (\alpha = \varepsilon\beta), \end{aligned} \quad (2.1.31)$$

ahol $W(\gamma; 1)$ a mérendő jel P függvénye. Az összefüggés ebben a formájában nem igazán használható, mivel $s = 1 - 2/\eta$, amely negatív, szélsőértéke -1, azaz ideális detektor

esetén is csak a Q függvényt lehet rekonstruálni. Azonban ha nemcsak a 0 beütésszám valószínűségét vesszük figyelembe, hanem a teljes fotonstatisztikát, akkor lehetséges az $s > 1 - 2/\eta$ paraméterű kvázi-valószínűségeloszlás függvények rekonstrukciója is. A (2.1.31) képletben, az exponenst bővítve a $-\eta\hat{N}(-\alpha)$ operátorral, sorfejtés után kapjuk a

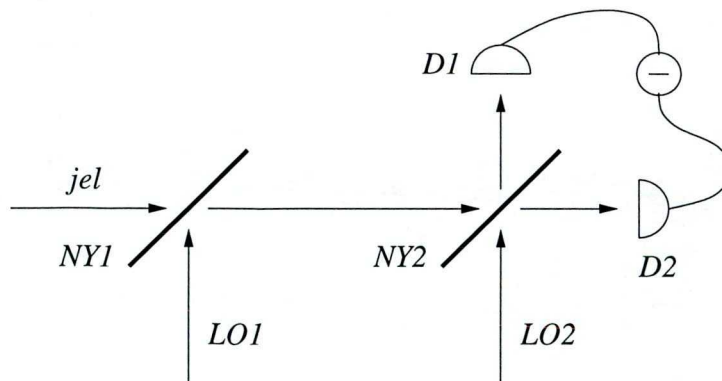
$$W(\alpha; s) = \frac{2}{\pi(1-s)} \sum_{n=0}^{\infty} \left(-\frac{2-\eta(1-s)}{\eta(1-s)} \right)^n p_n(-\alpha; \eta) \quad (2.1.32)$$

összefüggést. A (2.1.32) képlet elvileg lehetővé teszi adott η teljes detektálási hatásfok mellett bármelyik $-1 < s < 1$ paraméterű kvázi-valószínűségeloszlás függvény rekonstrukcióját. Annak érdekében, hogy a mérés során a p_n valószínűségekben megjelenő bizonytalanság ne összegződjön fel, a súlyok abszolútértékének egynél kisebbnek kell lenni. Ez a rekonstruálható eloszlásfüggvényekre az $s \leq 1 - 1/\eta$ megszorítást adja.

A mérési elv gyakorlati alkalmazásához nagy kvantum-hatásfokú detektorra van szükség, amely különbséget tud tenni különböző beérkező fotonszámok között. Egyes fotonok megkülönböztetésére alkalmas eszköz például a fotomultiplier, amelynek a kvantum-hatásfoka nem túl magas. Ehelyett sokcsatornás detektort lehetne használni, azonban kísérletileg ezt még nem realizálták [43].

2.2. Kaskád homodin mérés

Az előző alfejezetben bemutattuk a szimmetrikus és aszimmetrikus homodin mérésen alapuló állapotrekonstrukció elvét. Az aszimmetrikus elrendezés lehetővé teszi, hogy a mérendő állapothoz rendelt s -paraméterezett kvázi-valószínűségeloszlás függvényeket pontról pontra, lokálisan rekonstruáljuk. A módszer hátránya, hogy olyan fotodetektorra van szükség, amely nagy kvantum-hatásfokú és különbséget tud tenni n és $n + 1$ foton között is. A probléma egy lehetséges megoldását a 9. ábrán mutatjuk be. Egy aszimmetrikus és egy szimmetrikus homodin mérőeszköz van kaskád-ban elhelyezve. Az aszimmetrikus homodin mérés lokálisan rekonstruálja a mérendő mező kvázi-valószínűségeloszlás függvényét úgy, hogy a szimmetrikus homodin mérés véletlen-fázis módszerrel méri az aszimmetrikus homodin mérésben eltolt rekonstruálható mező fotonstatisztikáját. Az $NY1$ nyalábosztó szuperponálja a mérendő mezőt az $LO1$ lokális oszcillátor mezővel, amely $|\beta\rangle$ koherens állapotban van. A nyalábosztó T transzmissziós együtthatója közel egységnyi. A nyalábosztó után a mérendő mező $\varepsilon\beta$ értékkel el van tolva a fázistérben, ahol $\varepsilon = R/T \ll 1$. Az eltolt jelet ezután az $NY2$ 50% : 50% nyalábosztó összekeveri az $LO2$ lokális oszcillátor mezővel, amely fázisa véletlenszerűen változik és az amplitúdója erős a jel amplitúdójához képest. A $D1$ és $D2$ detektorok az $NY2$ nyalábosztó kimenetein megjelenő mezők fotonszám különbségét mérik η_D hatásfokkal.



9. ábra: A kaskád homodin mérés elvi elrendezése.

A (2.1.32) képlet megadja az eltolt mérendő mező foton-beütésszám statisztikája és az s -paraméterezett kvázi-valószínűségeloszlás függvénye közötti összefüggést. Egy

mező foton-beütésszám statisztikájának mérése legpontosabban szimmetrikus homodin méréssel valósítható meg úgy, hogy a lokális oszcillátor mező fázisa véletlenszerűen változik [44]. Az eljárás elve röviden a következő: ha egy szimmetrikus homodin mérésben a lokális oszcillátor mező fázisa véletlenszerűen változik a jel fázisához képest, az egyenértékű azzal, hogy nem a jel fázisforgatott kvadratúra-eloszlását mérjük meg, hanem annak átlagát a $0 \leq \theta \leq 2\pi$ intervallumon. Ez matematikailag azt jelenti, hogy a fázisforgatott kvadratúra-eloszlás (2.1.4) képletében a fázisszögre átlagolni kell:

$$w(q) = \frac{1}{2\pi} \int_{-\pi}^{\pi} d\theta w(q, \theta). \quad (2.2.1)$$

A (2.1.25) rekonstrukciós formulát felhasználva nyerjük a mért jel fotonstatisztikáját:

$$p_n = \int_{-\infty}^{\infty} dq w(q) f_{nn}(q). \quad (2.2.2)$$

A mérés során az egyes p_n valószínűségeket úgy kapjuk meg, hogy az $f_{nn}(q)$ amplitúdó minta-függvényeket statisztikusan átlagoljuk a véletlenszerűen változó fázisú lokális oszcillátorral mért kvadratúra-eloszlásokkal. Ezzel megoldottuk a kitűzött problémát, azaz meg tudjuk határozni a fotonstatisztikáját az aszimmetrikus homodin mérőberendezésből származó szuperponált mezőnek. Azonban egy kis trükk segítségével egy lényegesen egyszerűbb, új rekonstrukciós sémát kaphatunk.

Alkalmazzuk a (2.2.2) összefüggést az eltolt és $\eta = |T|^2 \eta_D$ hatásfokkal mért jel radiális kvadratúra eloszlására:

$$p_n(\alpha; \eta) = \int_{-\infty}^{\infty} dq w(q; \alpha, \eta) f_{nn}(q). \quad (2.2.3)$$

A (2.1.32) képletbe behelyettesítve a (2.2.3) összefüggést egy formális kifejezést kapunk a $W(\alpha; s)$ kvázi-valószínűségeloszlás függvény lokális mintavételezésére a mért $w(q; \alpha, \eta)$ adatokból:

$$W(\alpha; s) = \int_{-\infty}^{\infty} dx S(x; s, \eta) w(x; -\alpha, \eta). \quad (2.2.4)$$

Az $S(x; s, \eta)$ általános mintavételező függvényt az amplitúdó minta-függvények végtelen sorával definiáljuk:

$$S(x; s, \eta) = \frac{2}{\pi(1-s)} \sum_{n=0}^{\infty} [-\xi(s, \eta)]^n f_{nn}(x). \quad (2.2.5)$$

A képletben bevezettük a $\xi(s, \eta)$ jelölést:

$$\xi(s, \eta) = \frac{2 - \eta(1 - s)}{\eta(1 - s)}. \quad (2.2.6)$$

Az $S(x; s, \eta)$ általános mintavételező függvény független az eltolás α paraméterétől, ezért a fázistér minden pontjában ugyanazt a függvényt lehet alkalmazni a kváziválószínűségeloszlás függvény rekonstrukciójára. Azt az információt, hogy az eloszlásfüggvényt melyik pontban mérjük a $w(x; -\alpha, \eta)$ eltolt kvadratúra-operátor tartalmazza, amelyben az α paraméter értékét a mérést végző fizikus a kísérleti berendezésen állítja be. A mérés során a mért adatokkal statisztikusan átlagolni kell az $S(x; s, \eta)$ függvényt, hasonlóan a sűrűségmátrix rekonstrukciójához. Az utóbbi esetben azonban a különböző ϱ_{nm} elemek meghatározásához más és más $F_{nm}(q, \theta)$ minta-függvényre van szükség, amely az indexek növelésével egyre jobban oszcillál. Ez a mérés szempontjából azt jelenti, hogy egyre több cellára kell osztani a q radiális paramétert a $w(q, \theta)$ eloszlások meghatározásánál, hogy a gyors oszcillációkat megfelelően feloldjuk [45].

A (2.2.5) összegben az egyre magasabb indexű $f_{nn}(x)$ amplitúdó minta-függvények növekvő oszcillációi miatt a képlet numerikus kiértékelése nehéz feladat. Most megmutatjuk azt, hogy az összegzést analitikusan el lehet végezni, és eredményül azt kapjuk, hogy az $S(x; s, \eta)$ általános mintavételező függvény kifejezhető az $f_{00}(x)$ amplitúdó minta-függvény átskálázásával. Az $f_{nn}(x)$ függvények korlátosak, ezért ha $\xi < 1$ akkor az összegnek van határértéke. Induljunk ki az amplitúdó minta-függvények (2.1.22) definíciójából:

$$f_{nn}(q) = \frac{\partial}{\partial q} [\psi_n(q) \varphi_n(q)]. \quad (2.2.7)$$

A harmonikus oszcillátor reguláris és irreguláris hullámfüggvénye is kielégíti a

$$\begin{aligned} \sqrt{2(n+1)}\chi_{n+1} &= q\chi_n - \sqrt{n}\chi_{n-1}, & \chi_n &= \psi_n, \varphi_n \\ \chi'_n &= q\chi_n - \sqrt{2(n+1)}\chi_{n+1} \end{aligned} \quad (2.2.8)$$

rekurziós összefüggéseket. A (2.2.8) képletek felhasználásával a (2.2.7) kifejezésben el lehet tüntetni a deriválást:

$$f_{nn} = 2q\psi_n\varphi_n - \sqrt{2(n+1)}(\psi_{n+1}\varphi_n + \psi_n\varphi_{n+1}). \quad (2.2.9)$$

Az $f_{n+1,n+1}$ is kifejezhető a fenti módon:

$$f_{n+1,n+1} = -2q \psi_{n+1} \varphi_{n+1} + \sqrt{2(n+1)} (\psi_{n+1} \varphi_n + \psi_n \varphi_{n+1}). \quad (2.2.10)$$

A (2.2.9) és (2.2.10) képleteket összeadva jutunk az összegzés alapjául szolgáló

$$f_{nn} + f_{n+1,n+1} = 2q(\psi_n \varphi_n - \psi_{n+1} \varphi_{n+1}) \quad (2.2.11)$$

formulára. Adjuk össze alternáló előjelekkel a (2.2.11) képlet mindkét oldalát $n = 0$ -tól $n = l - 1$ -ig. Az egyenlet baloldalán kapjuk:

$$\begin{aligned} & (f_{00} + f_{11}) + (-1)(f_{11} + f_{22}) + (-1)^2(f_{22} + f_{33}) + \dots + (-1)^{l-1}(f_{l-1,l-1} + f_u) \\ & = f_{00} - (-1)^l f_u. \end{aligned} \quad (2.2.12)$$

A jobboldal:

$$\begin{aligned} & 2q\{(\psi_0 \varphi_0 - \psi_1 \varphi_1) + (-1)(\psi_1 \varphi_1 - \psi_2 \varphi_2) + (-1)^2(\psi_2 \varphi_2 - \psi_3 \varphi_3) + \dots \\ & \quad + (-1)^{l-1}(\psi_{l-1} \varphi_{l-1} - \psi_l \varphi_l)\} \\ & = 2q \left\{ 2 \sum_{n=1}^l (-1)^n \psi_n \varphi_n + \psi_0 \varphi_0 - (-1)^l \psi_l \varphi_l \right\} \end{aligned} \quad (2.2.13)$$

A jobb- és baloldalt egyenlővé téve, kis átrendezés után a

$$(-1)^l f_u = f_{00} - 2q \left\{ 2 \sum_{n=1}^l (-1)^n \psi_n \varphi_n + \psi_0 \varphi_0 - (-1)^l \psi_l \varphi_l \right\} \quad (2.2.14)$$

eredményre jutunk. Szorozzuk meg a (2.2.14) képlet mindkét oldalát ξ^l -el, és összegezzünk $l = 1$ -től $l = N$ -ig:

$$\sum_{l=1}^N (-\xi)^l f_u = \sum_{l=1}^N \xi^l f_{00} - 2q \left\{ 2 \sum_{l=1}^N \xi^l \sum_{n=1}^l (-1)^n \psi_n \varphi_n + \sum_{l=1}^N \xi^l \psi_0 \varphi_0 - \sum_{l=1}^N (-\xi)^l \psi_l \varphi_l \right\} \quad (2.2.15)$$

Az egyenlet mindkét oldalához hozzáadunk f_{00} -át, majd alkalmazzuk a geometriai sor ismert összegképletét:

$$\xi^l + \xi^{l+1} + \dots + \xi^N = \frac{\xi^l - \xi^{N+1}}{1 - \xi}. \quad (2.2.16)$$

A (2.2.15) egyenletben elvégezzük az összegzéseket a (2.2.16) kifejezés alapján:

$$\sum_{l=0}^N (-\xi)^l f_l = \frac{1 - \xi^{N+1}}{1 - \xi} f_{00} - 2q \left\{ 2 \sum_{l=1}^N \xi^l \sum_{n=1}^l (-1)^n \psi_n \varphi_n + \frac{\xi - \xi^{N+1}}{1 - \xi} \psi_0 \varphi_0 - \sum_{l=1}^N (-\xi)^l \psi_l \varphi_l \right\} \quad (2.2.17)$$

A (2.2.17) képlet jobboldalán, a második tagban cseréljük fel az l -re és n -re való összegzés sorrendjét:

$$\begin{aligned} \sum_{l=1}^N \xi^l \sum_{n=1}^l (-1)^n \psi_n \varphi_n &= \sum_{n=1}^N (-1)^n \psi_n \varphi_n \sum_{l=n}^N \xi^l = \sum_{n=1}^N (-1)^n \psi_n \varphi_n \frac{\xi^n - \xi^{N+1}}{1 - \xi} \\ &= \frac{1}{1 - \xi} \left\{ \sum_{n=1}^N (-\xi)^n \psi_n \varphi_n - \xi^{N+1} \sum_{n=1}^N (-1)^n \psi_n \varphi_n \right\}. \end{aligned} \quad (2.2.18)$$

A (2.2.18) képletet helyettesítsük be a (2.2.17) egyenletbe:

$$\begin{aligned} \sum_{l=0}^N (-\xi)^l f_l &= \frac{1 - \xi^{N+1}}{1 - \xi} f_{00} - 2q \left\{ \frac{2}{1 - \xi} \sum_{n=1}^N (-\xi)^n \psi_n \varphi_n \right. \\ &\quad \left. - \frac{2\xi^{N+1}}{1 - \xi} \sum_{n=1}^N (-1)^n \psi_n \varphi_n + \frac{\xi - \xi^{N+1}}{1 - \xi} \psi_0 \varphi_0 - \sum_{l=1}^N (-\xi)^l \psi_l \varphi_l \right\}. \end{aligned} \quad (2.2.19)$$

A (2.2.19) egyenletben végrehajtjuk a lehetséges összevonásokat:

$$\begin{aligned} \sum_{l=0}^N (-\xi)^l f_l &= \frac{1 - \xi^{N+1}}{1 - \xi} f_{00} - 2q \left\{ \frac{1 + \xi}{1 - \xi} \sum_{n=0}^N (-\xi)^n \psi_n \varphi_n \right. \\ &\quad \left. + \frac{-1 + \xi^{N+1}}{1 - \xi} \psi_0 \varphi_0 - \frac{2\xi^{N+1}}{1 - \xi} \sum_{n=0}^N (-1)^n \psi_n \varphi_n \right\}. \end{aligned} \quad (2.2.20)$$

Most végezzük el a (2.2.20) képletben az $N \rightarrow \infty$ határátmenetet:

$$\begin{aligned} \sum_{l=0}^{\infty} (-\xi)^l f_l &= \frac{1}{1 - \xi} f_{00} - 2q \left\{ \frac{1 + \xi}{1 - \xi} \sum_{n=0}^{\infty} (-\xi)^n \psi_n \varphi_n \right. \\ &\quad \left. - \frac{1}{1 - \xi} \psi_0 \varphi_0 - \lim_{N \rightarrow \infty} \frac{2\xi^{N+1}}{1 - \xi} \sum_{n=0}^N (-1)^n \psi_n \varphi_n \right\}, \end{aligned} \quad (2.2.21)$$

ahol kihasználtuk azt, hogy $\xi < 1$. A reguláris és irreguláris hullámfüggvények aszimptotikus alakjának ismeretében belátható [45], hogy a jobboldal utolsó tagjában a szummát cN -nel becsülhetjük felülről. Mivel $\xi < 1$ a $\lim_{N \rightarrow \infty} N\xi^N$ határérték nullához tart, ezért ez a tag eltűnik. A határátmenet után végül a

$$\sum_{l=0}^{\infty} (-\xi)^l f_{ll} = -2q \frac{1+\xi}{1-\xi} \sum_{n=0}^{\infty} (-\xi)^n \psi_n \varphi_n + \frac{1}{1-\xi} (f_{00} + 2q\psi_0\varphi_0) \quad (2.2.22)$$

egyenletet kapjuk. Vegyük észre, hogy az egyenlet baloldalán álló szumma a jobboldalon levő szummának a deriváltja. Bevezetve a

$$M(q; \xi) = \sum_{n=0}^{\infty} (-\xi)^n \psi_n \varphi_n \quad (2.2.23)$$

jelölést, (2.2.22) egy közönséges differenciálegyenlet lesz:

$$\frac{\partial}{\partial q} M(q; \xi) = -2q \frac{1+\xi}{1-\xi} M(q; \xi) + \frac{1}{1-\xi} (f_{00} + 2q\psi_0\varphi_0). \quad (2.2.24)$$

A φ_0 irreguláris hullámfüggvény (2.1.23) definíciója felhasználásával a (2.2.24) egyenletben az inhomogén tagra kapjuk:

$$\begin{aligned} f_{00}(q) + 2q\psi_0(q)\varphi_0(q) &= \frac{\partial}{\partial q} \left\{ \pi^{3/4} e^{-q^2/2} \operatorname{erfi}(q) \pi^{-1/4} e^{-q^2/2} \right\} + 2q\pi^{1/2} e^{-q^2} \operatorname{erfi}(q) \\ &= \pi^{1/2} \left\{ -2qe^{-q^2} \operatorname{erfi}(q) + e^{-q^2} \operatorname{erfi}'(q) \right\} + 2q\pi^{1/2} e^{-q^2} \operatorname{erfi}(q) \\ &= \pi^{1/2} e^{-q^2} \frac{2}{\pi^{1/2}} e^{q^2} = 2. \end{aligned} \quad (2.2.25)$$

A (2.2.24) egyenlet megoldása:

$$M(q; \xi) = c(\xi) \exp \left(-\sqrt{\frac{1+\xi}{1-\xi}} q^2 \right) + \frac{2}{1-\xi} \exp \left(-\sqrt{\frac{1+\xi}{1-\xi}} q^2 \right) \int_0^q dq' \exp \left(\sqrt{\frac{1+\xi}{1-\xi}} q'^2 \right). \quad (2.2.26)$$

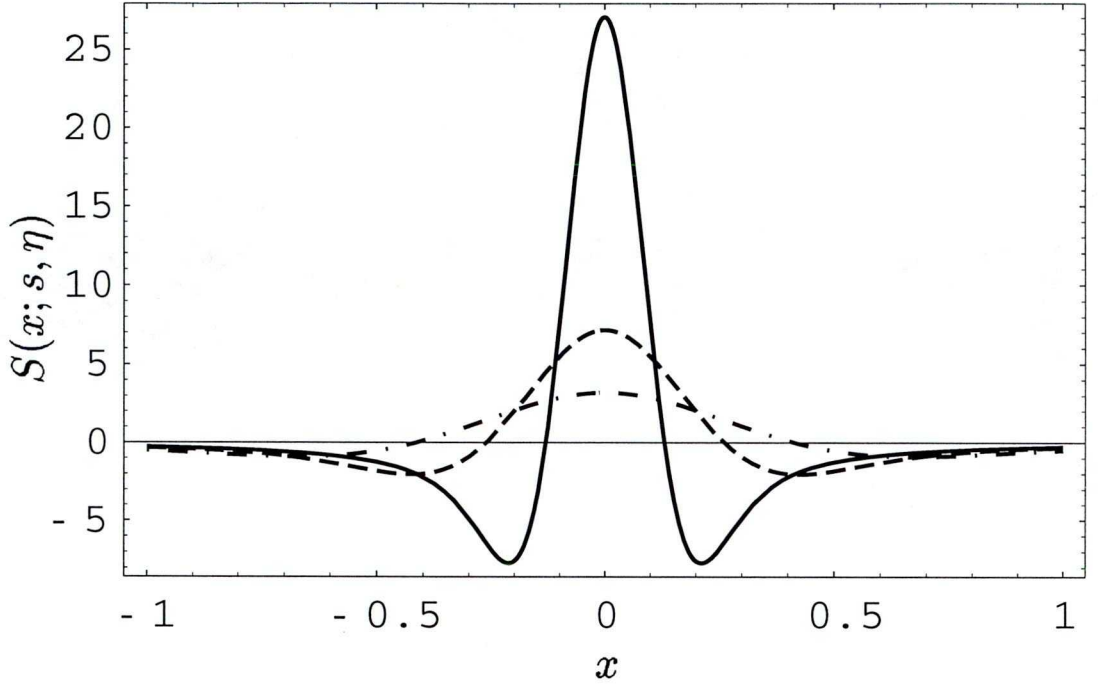
A $c(\xi)$ konstans az $M(0; \xi)$ kezdőfeltételből határozható meg. Mivel a $\psi_n(q)\varphi_n(q)$ szorzatban vagy a reguláris vagy az irreguláris hullámfüggvény egy páratlan függvény, ezért $q = 0$ -ban a szorzatfüggvény 0, és így $M(0; \xi) = 0$, amiből következik, hogy $c(\xi) = 0$. A (2.2.25) képletben az integrál kifejezhető a képzetes hibafüggvénnyel:

$$\begin{aligned} M(q; \xi) &= \frac{1}{1-\xi} \sqrt{\frac{1-\xi}{1+\xi}} \sqrt{\pi} \exp \left(-\sqrt{\frac{1+\xi}{1-\xi}} \frac{q^2}{2} \right) \operatorname{erfi} \left(\sqrt{\frac{1+\xi}{1-\xi}} q \right) \exp \left(-\sqrt{\frac{1+\xi}{1-\xi}} \frac{q^2}{2} \right) \\ &= \frac{1}{\sqrt{1-\xi^2}} \varphi_0 \left(\sqrt{\frac{1+\xi}{1-\xi}} q \right) \psi_0 \left(\sqrt{\frac{1+\xi}{1-\xi}} q \right). \end{aligned} \quad (2.2.27)$$

A keresett $\sum_l (-\xi)^l f_{ll}$ szumma a (2.2.27) képletben kapott $M(q; \xi)$ q változó szerinti deriváltja, ami viszont épp az átskálázott $f_{00}(q)$ minta-függvény. Így a (2.2.5) általános mintavételező függvényre, a ξ paraméter (2.2.6) definícióját figyelembe véve kapjuk:

$$S(q; s, \eta) = \frac{\eta}{\pi[\eta(1-s)-1]} f_{00}\left(\frac{q}{\sqrt{\eta(1-s)-1}}\right). \quad (2.2.28)$$

Ez az eredmény nagyon egyszerű, mert csak a nulladrendű amplitúdó minta-függvényt



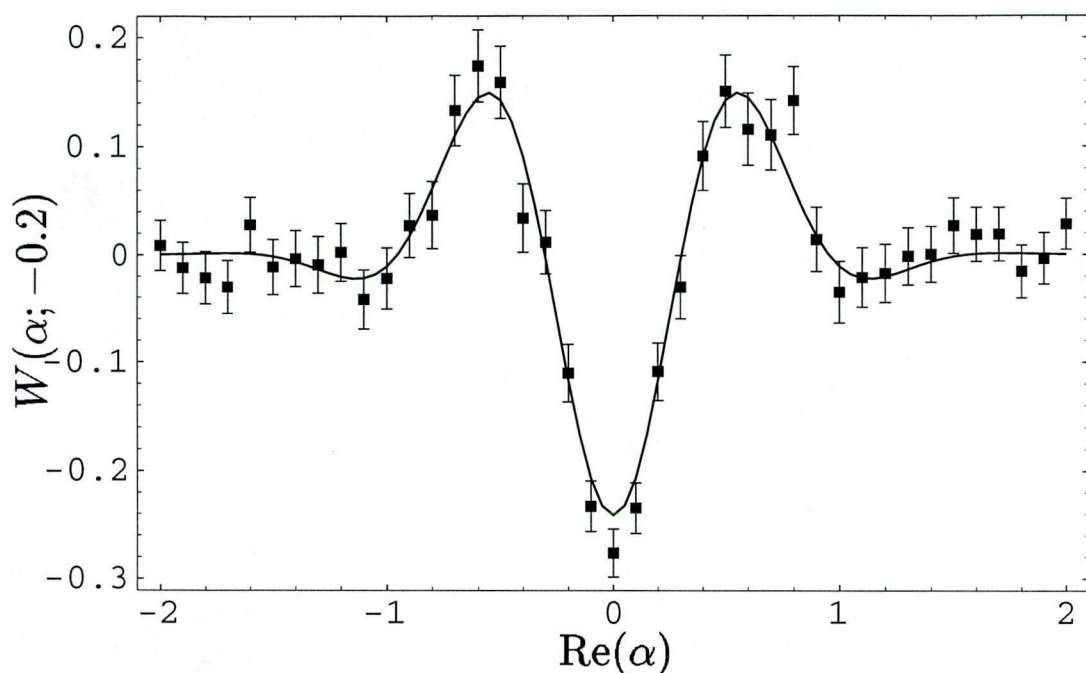
10. ábra: A mintavételező függvény az $s = -0.2$ paraméter és az $\eta = 0.85$ (folytonos), $\eta = 0.9$ (szaggatott), $\eta = 1.0$ (pontozott-szaggatott) teljes detektálási hatások értékeire.

tartalmazza, amely át van skálázva, hogy figyelembe vegyünk az η teljes detektálási hatásfokot és az s paramétert. Az $f_{00}(q)$ amplitúdó minta-függvény explicit alakja:

$$f_{00}(q) = 2 - 4qe^{-q^2} \int_0^q dt e^{t^2} = 2 - 4qF(q), \quad (2.2.29)$$

ahol $F(q)$ a Dawson integrál, amelyet numerikusan nagyon hatékonyan lehet kiértékelni [46]. Az $S(x; s, \eta)$ általános mintavételező függvény képét a különböző paraméter értékek mellett a 10. ábrán mutatjuk be.

A módszer használatának illusztrálására numerikusan szimuláljuk a kaskád rekonstrukciós kísérletet. A valós kísérletekben a kvadratúra-eloszlásokat 4000-5000 mérésből határozzák meg [44, 47, 48]. A szimulációban a $w(q; s, \eta)$ eloszlást 128 cellára



11. ábra: A $\beta = 1.5i$ paraméterű, páratlan Schrödinger-macska állapot $W(\alpha; -0.2)$ kvázi-valószínűségeloszlás függvényének a szimulált rekonstrukciója. Minden fázistér ponthoz a kvadratúra-eloszlások 5000 eseményből 128 cellában voltak mintavételezve. A folytonos vonal az eloszlásfüggvény elméleti kontúrja a valós tengely mentén, a fekete négyzetek a hibahatárokkal a szimulált mérésből rekonstruált értékek.

osztjuk úgy, hogy a lefedett q tartomány tartalmazza az eloszlás lényeges részét. A mért kvantumállapot a

$$|\alpha, -\rangle = \mathcal{N}\{|\alpha\rangle - |-\alpha\rangle\} \quad (2.2.30)$$

optikai Schrödinger-macska állapot. A szimulált kísérletben az $s = -0.2$ paraméterű kvázi-valószínűségeloszlás függvényt rekonstruáljuk $\eta = 0.9$ teljes detektálási hatásfok mellett, amely közel van a Wigner függvényhez. A 11. ábrán bemutatjuk a szimuláció eredményét. A kapott átlagértékek körül feltüntettük a mintavételezések statisztikus szórását is. Az eredmény a statisztikus bizonytalanságon belül jól egyezik az elméleti értékkel.

Végül megemlíjtük még a levezetésünk egy másik érdekes másodlagos eredményét: a számolás során meghatároztuk a $f_{nn}(q)$ amplitúdó minta-függvények generátor-függvényét. Ugyanis a (2.2.27) képlet alapján a $\xi \rightarrow -\xi$ változó csere után a $f_{nn}(q)$

amplitúdó minta-függvény előállítható a

$$f_{nn}(q) = \frac{1}{n!} \frac{\partial^n}{\partial \xi^n} \sum_{l=0}^{\infty} \xi^l f_l(q) = \frac{1}{n!} \frac{\partial^n}{\partial \xi^n} \frac{1}{\sqrt{1+\xi}} f_{00} \left(\sqrt{\frac{1-\xi}{1+\xi}} q \right) \Big|_{\xi=0} \quad (2.2.31)$$

alakban, azaz az átskálázott nulladik amplitúdó minta-függvény n -edik deriváltjaként.

3. Nemklasszikus rezgési állapotok keltése Franck-Condon átmenet során

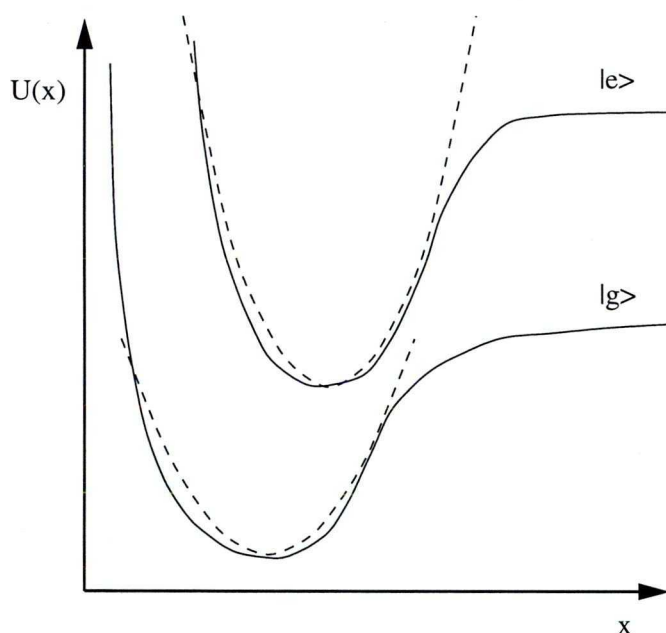
Ebben a fejezetben azt szeretném megmutatni, hogy két- és sokatomos molekulákban egy rövid, kis intenzitású transzformáció-limitált fényimpulzus Franck-Condon átmenet során milyen különleges, nemklasszikus rezgési állapotokat hozhat létre. A 3.1 alfejezetben röviden összefoglalom, hogy két- és sokatomos molekulák esetében a Franck-Condon átmenet hogyan tárgyalható matematikailag, és milyen érdekes rezgési állapotokat fedeztek fel korábban. A 3.2 alfejezetben megmutatom, hogy kétatomos molekulákban két egymást követő fényimpulzussal rezgési Schrödinger-macska állapotot lehet kelteni. A 3.3 alfejezetben ismertetem, hogy sokatomos molekulákban a Franck-Condon átmenet hogyan tárgyalható véges hosszúságú gerjesztő fényimpulzus esetén, a 3.4 alfejezetben elemzem a kialakuló rezgési állapotokat.

3.1. Franck-Condon átmenet

3.1.1. Franck-Condon átmenet kétatomos molekulákban

Egy kétatomos molekulában az atommagokat körülvevő elektronfelhő ellensúlyozni képes a pozitív töltésű magok Coulomb tasztítását és egy olyan effektív potenciált eredményez, amelyben a magoknak kötött állapotai vannak [49, 50]. Mivel a magok tömege legalább három nagyságrenddel nagyobb az elektronok tömegénél, a magok jóval lassabban mozognak, ezért lehetséges a magok és elektronok mozgásának szétválasztása. Ezt a leírást Born-Oppenheimer közelítésnek nevezik [51, 49]. A magok az effektív potenciálban, a közelítő megoldás érvényességének keretén belül, kis amplitúdójú rezgőmozgást végeznek. Alacsony gerjesztettségű rezgési állapotok esetében a potenciált közelíthetjük harmonikus potenciállal, s ekkor a magok mozgását leíró Schrödinger egyenletünk átmegy a harmonikus oszcillátor Schrödinger egyenletébe. A 12. ábrán vázoljuk egy molekula két elektronállapotához tartozó rezgési potenciálfelületeket, s a közelítő harmonikus potenciálokat. Az oszcilláció frekvenciája, ahogy arra korábban utaltunk, az elektronhéj kvantumállapotától erősen függ. Az elektronhéj különböző gerjesztett állapotaihoz más egyensúlyi magtávolság és más harmonikus erőállandó

tartozik [52]. Ez az alapja a molekulák rezgési állapota egy lehetséges külső befolyásolásának: megfelelően választott fényimpulzussal gerjesztve az elektronhéjat, a magok rezgési állapota előre meghatározott módon változtatható. Ezt a rezgési állapot változást is magával vonó elektronhéj gerjesztést Franck-Condon átmenetnek nevezik: pontosabban fogalmazva, Franck-Condon átmenet során az elektronhéj állapotának pillanatszerű megváltozását a jóval nehezebb magok nem tudják követni, s így a távolságuk nem változik meg az elektronátmenet alatt [53, 54, 49]. Azonban az a potenciál, amelyben mozognak megváltozik, s az új potenciálban már más rezgési állapotnak felel meg az elektronátmenet előtti rezgési állapotuk, 13. ábra. A molekulák rezgési állapota kontrollálható megfelelően választott frekvenciájú és borkológörbájű fényimpulzusokkal [55, 56], amely a szelektív lézerekémia alapja.



12. ábra: Egy molekula alap $|g\rangle$ és valamely gerjesztett $|e\rangle$ elektronállapotához tartozó rezgési potenciálfelületek az egyensúlyi magtávolság függvényében. Szaggatott vonallal jelöljük a közelítő harmonikus potenciálokat.

A gerjesztési folyamat általános analitikus tárgyalása komoly nehézségekbe ütközik még abban az esetben is, ha a magok rezgőmozgását meghatározó potenciált harmonikus potenciállal közelítjük az elektronhéj alap és gerjesztett állapotában.

A teljes rezgési állapotvektor egy kételemű oszlopvektorral adható meg:

$$|\psi(t)\rangle = \begin{pmatrix} |\psi_g(t)\rangle \\ |\psi_e(t)\rangle \end{pmatrix}, \quad (3.1.1)$$

ahol $|\psi_{g/e}(t)\rangle$ az alap/gerjesztett elektronállapothoz tartozó rezgési állapotvektor. Az alap és gerjesztett elektronállapot betöltési valószínűségeit a

$$P_{g/e}(t) = \langle \psi_{g/e}(t) | \psi_{g/e}(t) \rangle, \quad P_g(t) + P_e(t) = 1, \quad (3.1.2)$$

egyenletek határozzák meg. A két állapotvektor külön-külön nem normált, azonban normáik összege 1. Tegyük fel, hogy a molekula elektronhéját egy fényimpulzussal gerjesztjük. Ekkor a (3.1.1) állapotvektor időfejlődését az alábbi Schrödinger egyenlet írja le:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \begin{pmatrix} |\psi_g(t)\rangle \\ |\psi_e(t)\rangle \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \hat{H}_g & -\mu E(t) \\ -\mu E(t) & \hat{H}_e \end{pmatrix} \begin{pmatrix} |\psi_g(t)\rangle \\ |\psi_e(t)\rangle \end{pmatrix}, \quad (3.1.3)$$

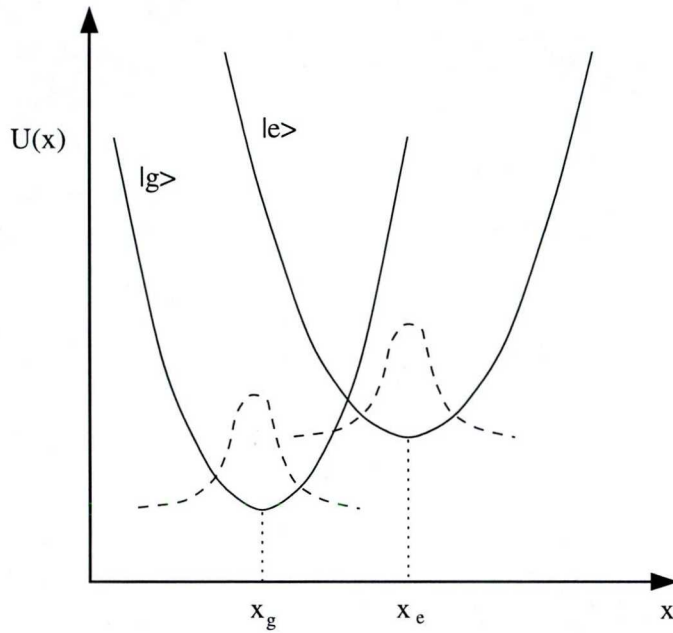
ahol μ a molekula elektromos dipólmomentumának mátrixeleme az alap és gerjesztett elektronállapotok között, $E(t)$ pedig a külső elektromos tér. $\hat{H}_{g/e}$ a rezgési állapotvektor időfejlődését meghatározó Hamilton-operátor az alap/gerjesztett elektronállapothoz tartozó rezgési potenciálfelületen:

$$\begin{aligned} \hat{H}_g &= \epsilon_g + \frac{\hat{p}^2}{2M} + \frac{1}{2}M\Omega_g^2(\hat{x} - d)^2, \\ \hat{H}_e &= \epsilon_e + \frac{\hat{p}^2}{2M} + \frac{1}{2}M\Omega_e^2\hat{x}^2. \end{aligned} \quad (3.1.4)$$

Az egyenletből látható, hogy a két potenciálfelület minimuma d távolsággal el van tolódva és a rezgési frekvenciák is különbözőek.

A továbbiakban feltételezzük, hogy $E(t)$ valamilyen véges hosszúságú fényimpulzust ír le. A (3.1.3) egyenletet az időfüggő perturbációs számítás módszerével lehet megoldani, sorfejtési paraméternek a $\mu E_{max}(t)/\hbar$ mennyiséget választva. Tegyük fel, hogy a molekula elektronhéja az impulzus érkezése előtt alapállapotban volt. Ez azt jelenti, hogy $|\psi_e(t)\rangle_{t \rightarrow -\infty} = 0$ és $\langle \psi_g(t) | \psi_g(t) \rangle_{t \rightarrow -\infty} = 1$. Ekkor a perturbációs számítás első rendjében a gerjesztett elektronállapothoz tartozó rezgési állapotvektort a

$$|\psi_e(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' e^{-i\hat{H}_e(t-t')/\hbar} \mu E(t') |\psi_g(t')\rangle \quad (3.1.5)$$



13. ábra: Egy molekula alap $|g\rangle$ és valamely gerjesztett $|e\rangle$ elektronállapotához tartozó rezgési potenciálfelületek meghatároznak egy-egy természetes koordináta-rendszert melyek kezdőpontja x_g és x_e . Az x_g pontból nézve az e potenciál alapállapota egy $d = |x_g - x_e|$ amplitúdóval oszcilláló hullámcsomag és viszont.

integrál adja meg. Az alapállapot rezgési állapotvektor csak a perturbációs számítás második rendjében változik meg

$$|\psi_g(t)\rangle = e^{-i\hat{H}_g t/\hbar} |\psi_g(0)\rangle - \frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' e^{-i\hat{H}_g(t-t')/\hbar} \mu E(t') |\psi_e(t')\rangle. \quad (3.1.6)$$

A fenti iterációs eljárást formálisan tetszőleges rendig folytatni lehet, azonban az integrálokat zárt alakban elvégezni mai ismeretek alapján nem lehetséges. Mi a továbbiakban olyan gerjesztési folyamatokat fogunk vizsgálni, ahol elegendő a perturbációs számítást első rendben elvégezni, a magasabb rendek járuléka elhanyagolható. Ez fizikailag azt jelenti, hogy az alkalmazott fényimpulzus kis amplitúdójú.

Most térjünk rá a (3.1.5) képlet kiértékelésére. Tegyük fel, hogy a molekula rezgési alapállapotban volt az impulzus érkezése előtt, azaz $|\psi(t \rightarrow -\infty)\rangle = |0\rangle_g$. Azonban az alap elektronállapothoz tartozó rezgési alapállapot nem sajátállapota a $\hat{H}_e$ operátornak. Keressük meg az összefüggést a $\hat{H}_e$ operátor sajátállapotai és a $|0\rangle_g$ állapot között. Ehhez elsőként diagonalizáljuk $\hat{H}_g$ operátort [57]. Fejezzük ki a $\hat{q}$ és $\hat{p}$ operá-

torokat a harmonikus oszcillátor fonon keltő és eltüntető operátoraival:

$$\hat{q} = \left[\frac{\hbar}{2M\Omega_e} \right]^{1/2} (\hat{a}^\dagger + \hat{a}), \quad \hat{p} = i \left[\frac{\hbar M\Omega_e}{2} \right]^{1/2} (\hat{a}^\dagger - \hat{a}). \quad (3.1.7)$$

Helyettesítsük be a kvadratúra operátorokat a (3.1.4) egyenletbe:

$$\begin{aligned} \hat{H}_g &= \epsilon_g + \hbar\Omega_g \left\{ \frac{1}{4} \left[\frac{\Omega_g}{\Omega_e} + \frac{\Omega_e}{\Omega_g} \right] (\hat{a}^\dagger \hat{a} + \hat{a} \hat{a}^\dagger) + \frac{1}{4} \left[\frac{\Omega_g}{\Omega_e} - \frac{\Omega_e}{\Omega_g} \right] (\hat{a}^\dagger \hat{a}^\dagger + \hat{a} \hat{a}) \right\} \\ &\quad - \frac{\hbar\Omega_g^2 d}{\Omega_e} \left[\frac{M\Omega_e}{2\hbar} \right]^{1/2} (\hat{a}^\dagger + \hat{a}) + \frac{1}{2} M\Omega_g^2 d^2, \\ \hat{H}_e &= \epsilon_e + \frac{1}{2} \hbar\Omega_e (\hat{a}^\dagger \hat{a} + \hat{a} \hat{a}^\dagger). \end{aligned} \quad (3.1.8)$$

A (3.1.8) egyenletben $\hat{H}_g$ diagonalizálható a

$$\begin{aligned} \hat{\Sigma} &= \hat{S}(\lambda) \hat{D}(g), \\ \hat{D}(g) &= \exp[g(\hat{a}^\dagger - \hat{a})], \quad g = d \left[\frac{M\Omega_g}{2\hbar} \right]^{1/2} \\ \hat{S}(\lambda) &= \exp \left[\frac{1}{2} \lambda (\hat{a}^2 - \hat{a}^{\dagger 2}) \right], \quad \lambda = \frac{1}{2} \ln(\Omega_g/\Omega_e), \end{aligned} \quad (3.1.9)$$

unitér transzformációval. Itt $\hat{D}(g)$ a koherens eltolás operátor, $\hat{S}(\lambda)$ pedig a squeezing operátor. Alkalmazzuk a $\hat{\Sigma}$ transzformációt a $\hat{H}_g$ operátorra a (3.1.8) egyenletben:

$$\hat{\Sigma}^\dagger \hat{H}_g \hat{\Sigma} = \epsilon_g + \frac{1}{2} \hbar\Omega_g (\hat{a}^\dagger \hat{a} + \hat{a} \hat{a}^\dagger). \quad (3.1.10)$$

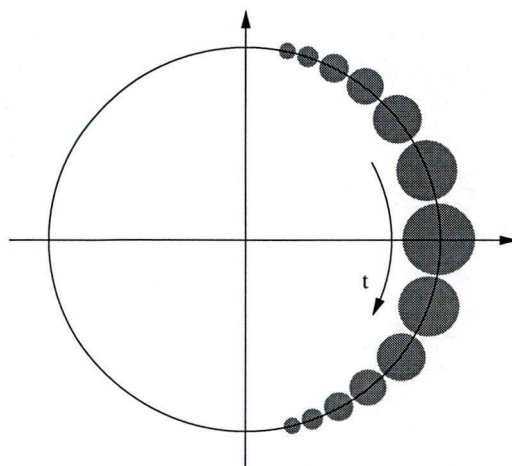
Ebből következik, hogy a $\hat{H}_e$ operátor alapállapota kifejezhető a $\hat{H}_g$ alapállapotával:

$$\hat{\Sigma} |0\rangle_e = |0\rangle_g. \quad (3.1.11)$$

Helyettesítsük be az alapállapoti Hamilton-operátor alapállapotának (3.1.11) kifejezését a (3.1.5) egyenletbe:

$$|\psi_e(t)\rangle = -\frac{i}{\hbar} \int_{-\infty}^t dt' e^{-i\hat{H}_e(t-t')/\hbar} \mu E(t') \hat{\Sigma} |0\rangle_e. \quad (3.1.12)$$

A 14. ábrán a (3.1.12) integrál tartalmát a gerjesztett potenciálfelülethez tartozó fázistérben szemléltetjük. Amikor a fényimpulzus elkezd gerjeszteni a molekulát, egy kis része a rezgési alapállapotnak megjelenik a gerjesztett potenciálfelületen, mint rezgési koherens állapot. Ahogy telik az idő ez tovább fordul a fázistérben, ugyanakkor az



14. ábra: A rezgési állapot kialakulása a fázistérben. A szürke körök sugara arányos a gerjesztő impulzus amplitúdójával.

impulzus folyamatosan “dob fel” újabb koherens állapotokat. Az eredmény koherens állapotok kör menti szuperpozíciója, amelyet a 1.1 szakaszban említettünk.

Most néhány példán keresztül bemutatjuk, hogy a gerjesztő fényimpulzus speciális megválasztása hogyan befolyásolja a gerjesztett potenciálfelülethez tartozó rezgési állapot kialakulását. Első példánkban a gerjesztő elektromos tér egy a magok rezgési periódusidejéhez képest nagyon rövid lefutású fényimpulzus. Ezt matematikailag egy Dirac féle $\delta(t)$ függvénnyel lehet leírni: $E(t) = E_0\delta(t)$. Az $E(t)$ függvényt behelyettesítve a (3.1.5) egyenletbe a gerjesztett elektronállapothoz tartozó rezgési állapotvektorra a következő kifejezést kapjuk:

$$|\psi_e(t)\rangle = -\frac{i\mu E_0}{2\hbar} e^{-i\hat{H}_e t/\hbar} \hat{\Sigma} |0\rangle_e. \quad (3.1.13)$$

A legegyszerűbb esetben $\Omega_e = \Omega_g$ és $d = 0$, azaz $\hat{\Sigma} = \hat{I}$. Ez fizikailag azt jelenti, hogy sem az egyensúlyi magtávolság, sem a rezgési potenciálfelület alakja nem különbözik az alap és a gerjesztett elektronállapotban, az alapállapotú molekula alapállapotú rezgési hullámcsomagjának egy része a gerjesztett elektronállapothoz tartozó potenciálfelület alapállapotaként jelenik meg. Ha az elektronátmenet során a rezgési potenciálfelület minimuma eltolódik, de alakja nem változik meg, akkor $\hat{\Sigma} = \hat{D}(g)$. Mivel a g paraméterű eltolás operátor hatása az alapállapotra $|g\rangle$ koherens állapotot eredményez, a gerjesztett potenciálfelületen egy rezgési koherens állapot jelenik meg

a gyors gerjesztés hatására, amely ezután szabadon fejlődik, és alakváltozás nélkül oszcillál d amplitúdóval az $|e\rangle$ gerjesztett elektronállapothoz tartozó egyensúlyi magtávolság körül. Ha nemcsak az egyensúlyi magtávolság, de a potenciálfelület görbülete is megváltozik az elektronátmenet során, akkor a gerjesztett potenciálfelületen egy kvadratúra-összenyomott (squeezed) rezgési hullámcsomag alakul ki, amelynek szélessége a rezgési periódusidő kétszeresével oszcillál a szabad időfejlődés során [58].

Most térjünk át olyan gerjesztő fényimpulzus hatásának vizsgálatára, amelynek időtartama összemérhető a molekula rezgési periódusidejével. A gerjesztő elektromos tér legyen egy Gauss-görbe burkolójú, ω közepes frekvenciájú transzformáció-limitált fényimpulzus:

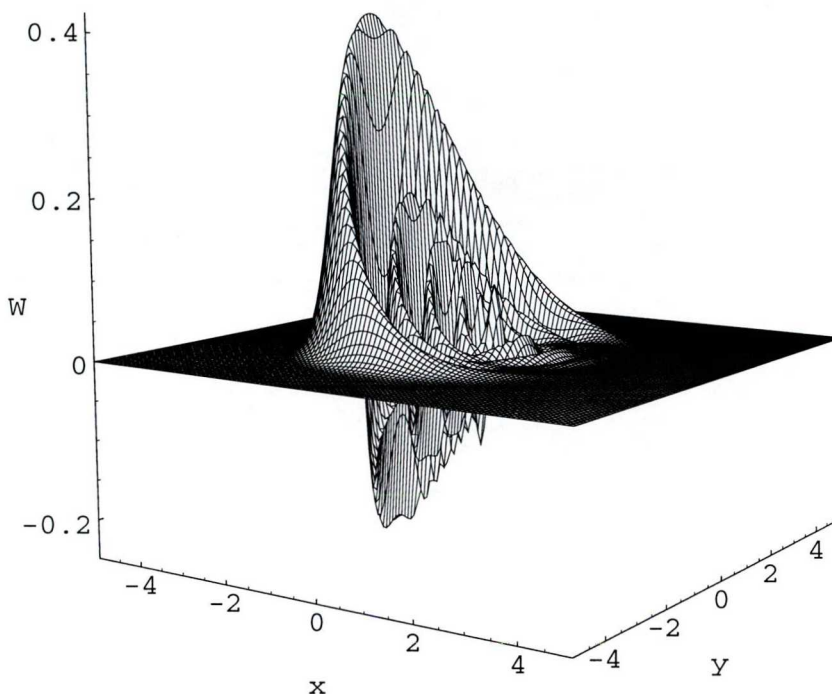
$$E(t) = E_0 e^{-u^2 t^2 / 2} \cos(\omega t). \quad (3.1.14)$$

Tegyük fel, hogy a molekula elektronhéja és rezgési állapota is alapállapotban volt az impulzus érkezése előtt. Az $E(t)$ függvényt behelyettesítve a (3.1.12) egyenletbe, figyelembe véve a pillanatszerű gerjesztést meghatározó (3.1.13) egyenletet is, kapjuk a hosszú lefutású gerjesztés hatására kialakuló rezgési állapotvektort gyenge elektromos tér közelítésben:

$$\begin{aligned} |\psi_e(t)\rangle &= -\frac{i\mu E_0}{\hbar u} \sqrt{\frac{\pi}{2}} e^{-i\hat{H}_e t/\hbar - (\hat{H}_e/\hbar - \gamma)^2 / 2u^2} \hat{\Sigma} |0\rangle_e, \\ \gamma &= \omega - \omega_{ge} - \Delta, \quad \Delta = \frac{1}{\hbar} M \Omega_g^2 d^2. \end{aligned} \quad (3.1.15)$$

Amennyiben az impulzus nagyon rövid, az u értéke nagyon nagy, és ezért a fenti egyenletben az exponenciálisban szereplő kvadratikus tag elhanyagolható. Ez megfelel az előző bekezdésekben tárgyalt rövid gerjesztő impulzus határesetnek. Ha az impulzus hossza összemérhető a rezgési periódusidővel, úgy a kvadratikus tag hatása is számottevővé válik, s ez nemklasszikus rezgési állapotok kialakulását eredményezi. A 15. ábrán egy ilyen állapotot mutatunk, amelyet egy körülbelül hatszor rövidebb impulzus keltett, mint a rezgési periódusidő. Ha az impulzus hossza többszöröse a rezgési periódusidőnek, akkor u értéke kicsi lesz, s a kvadratikus tag a kitevőben egy Dirac δ függvényhez fog közelíteni. Ez arra vezet, hogy ha a (3.1.15) egyenletben áttérünk energia sajátállapot reprezentációra, akkor a kifejtésében csak az a tag marad meg, amelynek n indexe közelítőleg kielégíti a $\gamma = (n + 1/2) \Omega_e$ egyenletet, azaz

egyetlen energia sajátállapot. A fenti eredményeket röviden összefoglalva azt mondhatjuk, hogy egy kétatomos molekulát transzformáció-limitált impulzussal gerjesztve, az impulzus hosszának függvényében, háromféle kimenetel lehetséges: (i) nagyon rövid gerjesztő impulzus esetén rezgési koherens állapot, vagy kvadratúra-összenyomott állapot; (ii) hosszú impulzus esetén rezgési energia sajátállapot; (iii) a rezgési periódusidővel összemérhető impulzus hatására pedig a kettő közötti amplitúdó-összenyomott állapot alakul ki.



15. ábra: Rezgési amplitúdó-összenyomott ("banán") állapot Wigner eloszlásfüggvénye, amely átmenetet képez a koherens és energia sajátállapot között. Az állapotot egy rezgési periódusidő hatoda hosszúságú impulzus keltette.

3.1.2. Franck-Condon átmenet sokatomos molekulákban

Egy N atomból álló molekulának $3N - 6$ rezgési szabadsági foka van, ha a molekula nem lineáris, és $3N - 5$ ha lineáris. Mi a továbbiakban egy sok rezgési szabadsági fokú molekulában kiválasztunk 2 rezgési szabadsági fokot, ugyanis a bemutatni kívánt jelenségek már itt is jelentkeznek és a további szabadsági fokok figyelembevétele csak a matematikai leírást nehezítik meg. A molekula alap elektronállapotához tartozó rezgési potenciálfelület két-dimenziós, azaz két normálkoordinátát lehet bevezetni, melyeket jelöljük az $\hat{x}_1, \hat{x}_2$ operátorok, a hozzájuk tartozó impulzusokat pedig a $\hat{p}_1, \hat{p}_2$ oprátorok. Ezekkel kifejezve a rezgési rendszer Hamilton-operátorát kapjuk:

$$\hat{H}_g = \frac{1}{2M}(\hat{p}_1^2 + \hat{p}_2^2) + \frac{1}{2}M(\Omega_1^2 \hat{x}_1^2 + \Omega_2^2 \hat{x}_2^2). \quad (3.1.16)$$

Most röviden összefoglaljuk, hogyan lehet meghatározni a molekula rezgési állapotát az elektronrendszer állapotának hirtelen megváltozása után. Általánosan azt lehet mondani, hogy egy gerjesztett $|e\rangle$ elektronállapotban mind az egyensúlyi magtávolság, mind az erőállandók, és még a potenciálfelület ekvipotenciális ellipsziseinek iránya is megváltozik. A gerjesztett elektronállapotban a (3.1.16) Hamilton-operátor helyett a

$$\hat{H}_e = \frac{1}{2M}(\hat{p}_1^2 + \hat{p}_2^2) + \frac{1}{2}M(u_{11}\hat{x}_1^2 + 2u_{12}\hat{x}_1\hat{x}_2 + u_{22}\hat{x}_2^2) + f_1\hat{x}_1 + f_2\hat{x}_2 \quad (3.1.17)$$

Hamilton-operátor határozza meg a rezgő rendszer időfejlődését. Ez nem diagonális, mivel a korábbi normálkoordináták már nem normálkoordinátái az új potenciálnak. Azonban megfelelő koordináta-transzformációval könnyen át lehet térni olyan változókra, amelyek diagonalizálják $\hat{H}_e$ Hamilton-operátort. A jelölések egyszerűsítése érdekében írjuk fel a (3.1.17) egyenletet vektor és mátrix jelölésben:

$$\hat{H}_e = \frac{1}{2M}\hat{\mathbf{p}}^2 + \frac{1}{2}M\hat{\mathbf{x}}\mathbf{U}\hat{\mathbf{x}} + \mathbf{f}\hat{\mathbf{x}}. \quad (3.1.18)$$

Vezessünk be új változókat a

$$\hat{\mathbf{x}}' = \mathbf{O}\hat{\mathbf{x}} + \mathbf{d}. \quad (3.1.19)$$

lineáris transzformáció segítségével [59, 60]. Az $\mathbf{O}$ mátrix tiszta forgatást ír le, a $\mathbf{d}$ vektor pedig a koordináta-rendszer kezdőpontjának az eltolását. Ez a két transzformáció

fizikailag megfelel a rezgési potenciálfelület elfordulásának és az egyensúlyi magtávolságok megváltozásának. Az új koordináta-rendszerben megadott változókat vesszővel jelöljük. Az $\mathbf{O}$ forgatási mátrixot definiáljuk a következő egyenlettel:

$$\mathbf{O} = \begin{pmatrix} \cos \chi & \sin \chi \\ -\sin \chi & \cos \chi \end{pmatrix}, \quad (3.1.20)$$

ahol

$$\cos \chi = \{1/2 + (u_{11} - u_{22})/u\}^{1/2}, \quad u = \{(u_{11} - u_{22})^2 + 4u_{12}^2\}^{1/2}. \quad (3.1.21)$$

A $\mathbf{d}$ vektornak és az $\mathbf{f}$ erőállandónak a kapcsolatát a $\mathbf{d} = \Lambda^{-1} \mathbf{S} \mathbf{f} / M$ egyenlettel lehet kifejezni, ahol $\Lambda = \text{diag}(\Omega_1'^2, \Omega_2'^2)$, Ω_i' az új normálkoordinátákhoz tartozó rezgési frekvenciák. Az új koordináta-rendszerben a (3.1.17) Hamilton-operátor diagonális

$$\hat{H}_e = \frac{1}{2M} \hat{\mathbf{p}}'^2 + \frac{1}{2} M \hat{\mathbf{x}}' \Lambda \hat{\mathbf{x}}' - H_0, \quad (3.1.22)$$

ahol $H_0 = M \mathbf{d} \Lambda \mathbf{d}$, az egyensúlyi magtávolság megváltozása következtében felhalmozódó rugalmas energia.

A (3.1.19) egyenletben definiált konfigurációs térbeli geometriai transzformációnak megfeleltethető egy Hilbert téren ható unitér transzformáció, amelyet $\hat{\Sigma}$ -val jelölünk [61]. Ez a transzformáció egyrészt összeköti az alap és gerjesztett potenciálfelülethez tartozó rezgési sajátvektorokat $|\mathbf{n}\rangle_g = \hat{\Sigma} |\mathbf{n}\rangle_e$, másrészt diagonalizálja a (3.1.17) Hamilton-operátort. A $\hat{\Sigma}$ transzformáció faktorizálható elemi Hilbert térbeli transzformációk szorzatára:

$$\hat{\Sigma} = \hat{D}(\mathbf{d}) \hat{S}^\dagger(\lambda') \hat{R}(\chi) \hat{S}(\lambda). \quad (3.1.23)$$

A $\hat{D}(\mathbf{d})$ operátor egy eltolás a fázistérben:

$$\hat{D}(\mathbf{d}) = \prod_{i=1,2} \exp \left(\frac{M \Omega_i'}{2\hbar} \right)^{1/2} d_i (\hat{a}_i^\dagger - \hat{a}_i), \quad (3.1.24)$$

ahol $\hat{a}_i$ az i -edik rezgési módushoz rendelt eltüntető operátor, $\mathbf{d}$ a normálkoordináta-rendszer kezdőpontjának eltolódása a (3.1.19) egyenletben. Az $\hat{S}(\lambda)$ transzformáció nyújtás a fázistérben, az úgynevezett squeezing-operátor:

$$\begin{aligned} \hat{S}(\lambda) &= \prod_{i=1,2} \exp \frac{1}{2} \lambda_i (\hat{a}_i^2 - \hat{a}_i^{\dagger 2}), \quad \lambda_i = \frac{1}{2} \ln \Omega_i \\ \hat{S}(\lambda') &= \prod_{i=1,2} \exp \frac{1}{2} \lambda_i' (\hat{a}_i^2 - \hat{a}_i^{\dagger 2}), \quad \lambda_i' = \frac{1}{2} \ln \Omega_i'. \end{aligned} \quad (3.1.25)$$

Végül az $\hat{R}(\chi)$ operátor forgatást ír le:

$$\hat{R}(\chi) = \exp \chi (\hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2 - \hat{a}_1 \hat{a}_2^\dagger). \quad (3.1.26)$$

A $\hat{\Sigma}$ operátor energia sajátállapotok közötti mátrixelemei megadják az alap és gerjesztett potenciálfelület sajátállapotainak az átfedését. Az átfedések abszolútérték négyzetei arányosak a pillanatszerű elektronátmenet során megfigyelhető spektrumvonalak relatív intenzitásával:

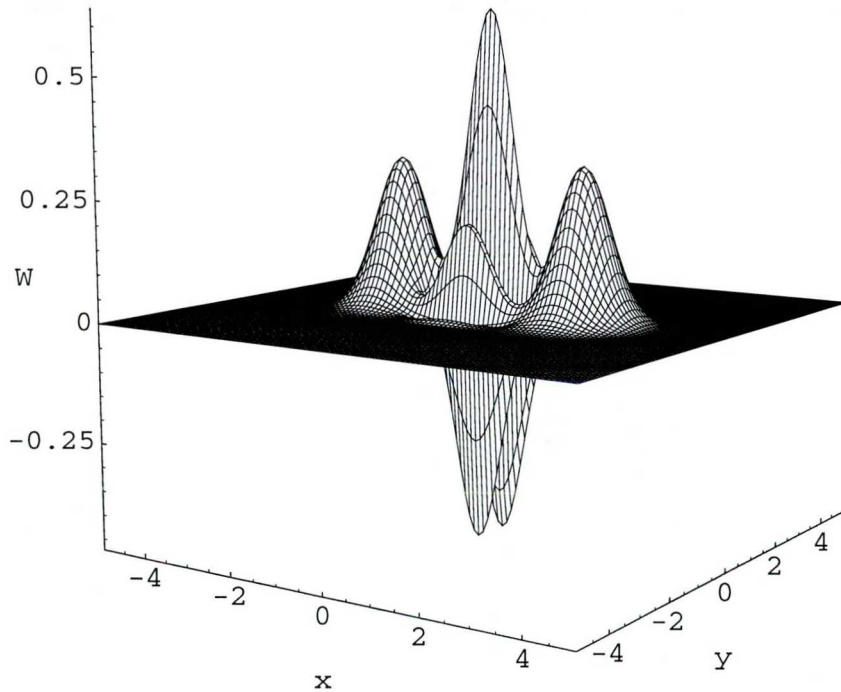
$$P_{\mathbf{n}'\mathbf{n}} = | {}_e \langle \mathbf{n}' | \hat{\Sigma} | \mathbf{n} \rangle_e |^2. \quad (3.1.27)$$

3.2. Rezgési Schrödinger-macska állapotok keltése kétatomos molekulákban

A (3.1.1) szakaszban bemutattuk, hogy egy Gauss-görbe burkolójú transzformáció limitált fényimpulzus milyen rezgési állapotokat indukál egy kétatomos molekulában Franck-Condon átmenet során. Vizsgáljuk meg mi történik, ha két impulzust alkalmazunk egymás után. A gerjesztő elektromos tér legyen két egymást T_1 idővel követő azonos Gauss-görbe burkolójú fényimpulzus:

$$E(t) = E_0 e^{-u^2[t+T_1/2]^2/2} \cos(\omega[t + T_1/2]) + E_0 e^{-u^2[t-T_1/2]^2/2} \cos(\omega[t - T_1/2] + \phi), \quad (3.2.1)$$

ahol ϕ az impulzusok fáziskülönbsége. A kialakuló rezgési állapotot a következő szu-

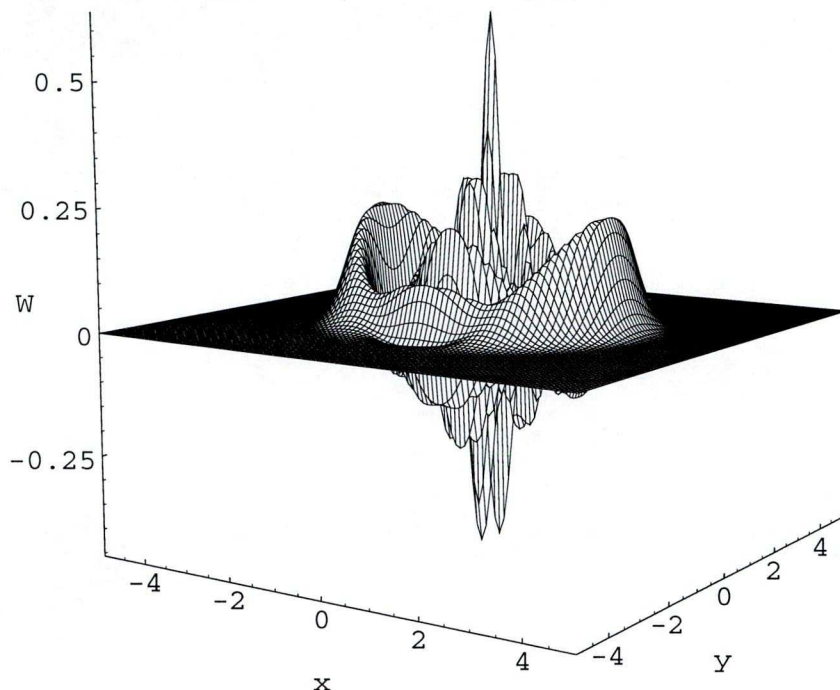


16. ábra: *Rezgési Schrödinger-macska állapot Wigner eloszlásfüggvénye, amelyet a rezgés periódusidejéhez képest igen rövid fényimpulzus pár indukált.*

perpozícióval tudjuk megadni:

$$\begin{aligned} |\{u, T_1, \phi\}\rangle &= e^{-i\omega_{ge}T_1/2} |u, t + T_1/2\rangle + e^{i\omega_{ge}T_1/2 - i\phi} |u, t - T_1/2\rangle. \\ |u, t\rangle &= -\frac{i\mu E_0}{2\hbar u} e^{-i\hat{H}_e t/\hbar - (\hat{H}_e/\hbar - \gamma)^2/2u^2} \hat{\Sigma} |0\rangle, \end{aligned} \quad (3.2.2)$$

Tegyük fel, hogy az impulzusokat elválasztó T_1 időkülönbség épp a rezgés T_e periódus-



17. ábra: *Rezgési Schrödinger-macska állapot Wigner eloszlásfüggvénye. A gerjesztő fényimpulzus pár hossza hatoda a molekularezgés periódusidejének.*

sidejének a fele. Amennyiben az impulzus nagyon rövid, $|u, t\rangle$ egy koherens állapot, ezért $|\{u, T_1, \phi\}\rangle$ két koherens állapot szuperpozíciója, amely a kvantumoptikából jól ismert optikai Schrödinger-macska állapot rezgési analógja. Az állapot tulajdonságait jól szemléltethetjük, ha ábrázoljuk a Wigner eloszlásfüggvényét. A 16. ábrán egy olyan rezgési Schrödinger-macska állapotot mutatunk be, amelyre $\tau = T_e/20\pi$ ($\tau = 1/u$ az impulzus hossza), $\gamma/\omega_e = 7$, a molekula alap és gerjesztett elektronállapotában a rezgési frekvenciák azonosak, viszont az egyensúlyi magtávolság eltolódik, ezért $|u, t\rangle = |g(t)\rangle$ koherens állapot, $g = 2$. Az ábrán épp a fordulópontokban van a két rezgési hullámcsomag. A Wigner eloszlásfüggvényben a Gauss harangok közötti interferencia az állapot nemklasszikusságát jelzi. A molekulát alkotó nukleonok távolságának most nincs határozott értéke, hanem a $|\langle x | \{u, T_1, \phi\} \rangle|^2$ eloszlással rendelkezik. A 17. ábra olyan rezgési állapot Wigner eloszlásfüggvényét mutatja, amely az előző példában választott fiktív molekulának a gerjesztésével született, azonban az impulzusok hossza most $\tau = T_1/2\pi$. Mivel az impulzusok hosszabbak, ezért itt nem két Gauss harang,

hanem két “banán” áll egymással szemben, s közöttük ismét határozott interferencia alakul ki.

A fenn bemutatott rezgési Schrödinger-macska állapotot nemcsak két-impulzusos gerjesztéssel lehet kelteni, hanem egyetlen csörpölt impulzus alkalmazásával is. Lineárisan csörpölt impulzusban az impulzus frekvenciája folyamatosan változik az idő múlásával:

$$E(t) = E_0 e^{-u^2 t^2 / 2} \cos([(w^2/2)t + \omega]t). \quad (3.2.3)$$

A molekularezgés periódikussága miatt egy $E(t_1)$ elektromos mező hatása a molekulára ugyanaz, mintha a $t_1 \pm nT$ időpillanatban alkalmaznánk, (T a rezgés periódusideje, n egész szám). Emiatt ha a csörpölt impulzus hossza több rezgési periódusidőt tesz ki, akkor a hatása egyenértékű egy $-T/2 < t < T/2$ időtartamú, effektív impulzus hatásával:

$$\tilde{E}(t) = E_0 \sum_{n=-\infty}^{\infty} e^{-u^2 [t+nT]^2 / 2} \cos([(w^2/2)(t+nT) + \omega](t+nT)), \quad -\frac{T}{2} < t < \frac{T}{2}. \quad (3.2.4)$$

Az effektív impulzus hosszának és a lineáris csörp paraméter értékének megfelelő megválasztásával az $\tilde{E}(t)$ effektív térerősség megfelelhet egyetlen impulzusnak, impulzus párnak, vagy impulzus sorozatnak. Így a lineárisan csörpölt impulzus kelthet rezgési amplitúdó-összenyomott állapotot, vagy Schrödinger-macska állapotot is.

A rezgési Schrödinger-macska generálása egy érdekes gondolatot vet fel. Tegyük fel, hogy a molekula kezdetben alapállapotban van, rezgési állapota az alap elektronállapothoz tartozó potenciálfelületen nyugvó rezgési alapállapot. Egy fényimpulzus egy taszító potenciálfelületre “dobja” a rezgési alapállapot egy részét. Az alap és gerjesztett potenciálfelületeken időben fejlődik a rezgési hullámcsomag, amely eredményeképpen a gerjesztett felületen mozgó rész egyre távolodik, azaz a kémiai kötés felbomlik. Ezzel egy olyan szuperpozíció jön létre, amelyben a kötött és disszociált molekula van szuperponált állapotban. Ez az állapot nagyon közel áll Schrödinger eredeti élő és halott állapotú macska szuperpozíciójához, az analógia miatt kémiai Schrödinger-macskának is nevezhetjük.

3.3. Franck-Condon átmenet véges hosszúságú gerjesztő fényimpulzus hatására sokatomos molekulákban

Ebben és a következő fejezetben megvizsgáljuk azt, hogy egy véges időtartamú, kis amplitúdójú fényimpulzus milyen rezgési állapotokat kelthet egy sokatomos molekulában az impulzus paramétereinek függvényében. Az impulzus legyen ismét egy Gauss-görbe burkolójú, transzformáció-limitált fényimpulzus:

$$E(t) = E_0 e^{-u^2 t^2 / 2} \cos(\omega t). \quad (3.3.1)$$

Feltételezzük, hogy az impulzus ω közepes frekvenciája a molekula elektronátmeneti frekvenciájának közelében van, továbbá u^{-1} hossza nagyobb annál, hogy az impulzus frekvenciaspektruma átfedjen más elektronátmenetekkel is. A fényimpulzus és a molekula elektronhéja kölcsönhatását a (3.1.3) csatolt egyenletrendszerrel írjuk le, behelyettesítve a megfelelő (3.1.16) és (3.1.17) Hamilton-operátorokat. A rezgési állapotvektorra kapott egyenletrendszer ugyanazzal a perturbatív módszerrel oldható meg, ahogy kétatomos molekulák esetében azt megmutattuk.

Tegyük fel, hogy egy nagyon rövid fényimpulzus érkezik az alapállapotú molekulához. Az elektronhéj, bizonyos valószínűséggel, a magok rezgési periódusidejének törtrésze alatt elnyel annyi energiát, amely fedezi valamely gerjesztett állapotba jutását, s ekközben egy kis valószínűséggel rezgési hullámcsomag jelenik meg a gerjesztett elektronhéjhoz tartozó rezgési potenciálfelületen. E potenciálfelületen a rezgő rendszer időfejlődését a

$$\hat{U}(t) = e^{-i\hat{H}_e t / \hbar} \hat{\Sigma} \quad (3.3.2)$$

időfejllesztő operátor írja le, amely tartalmazza az alapállapotú potenciálfelületről gerjesztett potenciálfelületre történő hirtelen váltást megadó $\hat{\Sigma}$ operátort is. Megjegyezzük, hogy bár a gerjesztett potenciálfelületen a normálrezgési módusok egymástól függetlenül rezegnek, azonban a fenti folyamatban valamennyi módus egy időpontban van gerjesztve.

A (3.3.1) gerjesztő impulzus esetén, amennyiben a molekula az impulzus érkezése előtt alap rezgési állapotban volt az alapállapotú elektronhéjhoz tartozó rezgési poten-

ciálfelületen, a gerjesztett potenciálfelületen a rezgési állapotát a

$$\begin{aligned} |\psi_e(t)\rangle &= -\frac{i\mu E_0}{\hbar u} \sqrt{\frac{\pi}{2}} e^{-i\hat{H}_e t/\hbar - (\hat{H}_e/\hbar - \gamma)^2/2u^2} \hat{\Sigma} |0\rangle_e, \\ \gamma &= \omega - \omega_{ge} - H_0/\hbar \end{aligned} \quad (3.3.3)$$

kifejezés adja meg. A γ paraméter jelentőségét majd akkor fogjuk tisztázni, amikor rátérünk a hosszú gerjesztő fényimpulzus határeset vizsgálatára. Most előre bocsátunk annyit, hogy ebben a határesetben, amelyet koherens hullám határesetnek is neveznek, γ megfelel annak az energiának, amelyet a gerjesztett potenciálfelületen kialakuló rezgési hullámcsomag tartalmaz, ugyanis a molekula által elnyelt $\hbar\omega$ foton energiának fedeznie kell az alap és gerjesztett állapotú elektronhøj energiakülönbséget ($\hbar\omega_{ge}$), és az egyensúlyi magtávolság megváltozásából származó rugalmas energiaváltozást (H_0). A fennmaradó energia a rezgő rendszer energiája a gerjesztett potenciálfelületen. A kétatomos molekulák esetében már rámutattunk arra, hogy a gerjesztett elektronállapot betöltési valószínűségének felső határát a $\mu E_0/\hbar u$ faktor abszolútérték négyzete adja meg, s közelítő számításunk pontosságának is ez szab határt: amíg a betöltési szám sokkal kisebb mint 1, addig a közelítésünk alkalmazható, és nem kell figyelembe vennünk az ellentétes irányú folyamatot.

3.4. Nemklasszikus rezgési állapotok sokatomos molekulákban

Most szisztematikusan áttekintjük, hogy a gerjesztő fényimpulzus paramétereinek és a molekula alap és gerjesztett állapotaihoz rendelt rezgési potenciálfelületek különbözőségének a függvényében milyen rezgési állapotok alakulhatnak ki a Franck-Condon átmenet során. Ehhez elsőként a (3.3.3) rezgési állapotvektort kifejtjük a $\hat{H}_e$ operátor sajátvektor rendszere szerint:

$$\begin{aligned} |\psi_e(t)\rangle &= \mathcal{N} \sum_{\mathbf{n}'} e^{-(\hat{H}'_e/\hbar - \gamma)^2/2u^2 - i\hat{H}'_e t/\hbar} |\mathbf{n}'\rangle_{ee} \langle \mathbf{n}' | \hat{\Sigma} | \mathbf{0} \rangle_e \\ &= \mathcal{N} \sum_{\mathbf{n}'} F_{\mathbf{n}'} e^{-(n'_1\Omega_1 + n'_2\Omega_2 - \gamma)^2/2u^2 - i(n'_1\Omega_1 + n'_2\Omega_2)t} |\mathbf{n}'\rangle_e, \end{aligned} \quad (3.4.1)$$

ahol $F_{\mathbf{n}'} = {}_e\langle \mathbf{n}' | \hat{\Sigma} | \mathbf{0} \rangle_e$. Amennyiben az impulzus u^{-1} hossza sokkal kisebb a rezgési periódusidőnél, a kvadratikusan tag járuléka a (3.4.1) állapotvektorban elhanyagolhatóan kicsi lesz. Ekkor a kialakuló rezgési állapot tulajdonságait az $F_{\mathbf{n}'}$ mátrixelemek határozzák meg. A tulajdonságok koordináta-reprezentációban sokkal könnyebben leolvashatóak, amelyet a (3.1.19) konfigurációs térbeli transzformációt megadó egyenlet és az alap elektronállapothoz tartozó rezgési alapállapot hullámfüggvényének felhasználásával számolhatunk ki:

$$\begin{aligned} \psi_e(\mathbf{x}') &= {}_e\langle \mathbf{x}' | \hat{\Sigma} | \mathbf{0} \rangle_e = \left(\frac{M^2\Omega_1\Omega_2}{\pi^2\hbar^2} \right)^{1/4} \exp \left(-\frac{1}{2} \mathbf{x}' L \mathbf{x}' + \mathbf{d} L \mathbf{x}' - \frac{1}{2} \mathbf{d} L \mathbf{d} \right) \\ L &= \frac{M}{\hbar} \begin{pmatrix} \Omega_1 \cos^2 \chi + \Omega_2 \sin^2 \chi & \frac{1}{2}(\Omega_2 - \Omega_1) \sin 2\chi \\ \frac{1}{2}(\Omega_2 - \Omega_1) \sin 2\chi & \Omega_2 \cos^2 \chi + \Omega_1 \sin^2 \chi \end{pmatrix}, \end{aligned} \quad (3.4.2)$$

ahol χ a (3.1.19) egyenletben definiált elfordulási szög, Ω_i az alapállapotú potenciálhoz rendelt normálrezgési frekvenciák. Az (3.4.2) hullámfüggvényből könnyen le lehet olvasni, hogy a kialakuló rezgési állapot általában egy összefonódott (entangled) rezgési állapot lesz. Ez azt jelenti, hogy például egy két-szabadsági fokú rendszerben bár a teljes rendszernek van állapotvektora, a részrendszereket csak sűrűségoperátorral lehet jellemezni, mert a két részrendszer tulajdonságai nem függetlenek egymástól.

Most megvizsgáljuk, hogy mi a feltétele annak, hogy rövid gerjesztő impulzus esetén a gerjesztett potenciálfelületen tiszta rezgési állapotok alakuljanak ki a független normálmódusokban. Ez akkor valósul meg, ha a (3.4.2) hullámfüggvény szeparálható

két hullámfüggvény szorzatára, az egyik csak x'_1 -től a másik csak x'_2 -től függ. Ennek az a feltétele, hogy az L mátrix diagonális legyen: az elfordulás szöge $\chi = l\pi/2$, $l = 0, \pm 1, \dots$ és/vagy az alap potenciálfelület forgásszimmetrikus, azaz $\Omega_1 = \Omega_2$.

A legegyszerűbb esetben $\mathbf{d} = \mathbf{0}$, $\chi = 0$, $\Omega_i = \Omega'_i$, azaz az alap és gerjesztett elektronállapothoz tartozó rezgési potenciálfelületek megegyeznek egymással, csak egy konstans energiakülönbség van közöttük, mely egyenlő az alap és gerjesztett elektronállapot energia különbségével. Egy valamivel összetettebb esetben, az egyensúlyi magtávolság megváltozik az elektronátmenet során, azaz $\mathbf{d} \neq \mathbf{0}$. Ekkor a rezgési hullámfüggvény a (3.4.2) hullámfüggvény speciális esete:

$$\psi_e(\mathbf{x}') = \left(\frac{M^2 \Omega_1 \Omega_2}{\pi^2 \hbar^2} \right)^{1/4} \exp \left(-\frac{M \Omega_1}{2\hbar} (x'_1 - d_1)^2 - \frac{M \Omega_2}{2\hbar} (x'_2 - d_2)^2 \right). \quad (3.4.3)$$

A fenti hullámfüggvény egy origóból kitolt harmonikus oszcillátor alapállapot a fázistérben. Ez az állapot koherens állapot, amennyiben a gerjesztett potenciálfelület normálrezgési frekvenciái megegyeznek az alapállapot normálrezgési frekvenciáival, $\Omega_i = \Omega'_i$. Az állapot nevezetes tulajdonságai, hogy mind a hely-, mind az impulzusoperátor szórása időfüggetlen, megegyezik az alapállapotban felvett szórás értékekkel, másrészt minimalizálja a Heisenberg féle határozatlansági relációt:

$$\begin{aligned} \Delta \hat{x}'_i(t) &= \sqrt{\frac{\hbar}{2M\Omega_i}}, & \Delta \hat{p}'_i(t) &= \sqrt{\frac{\hbar M \Omega_i}{2}}, \\ \Delta \hat{x}'_i \Delta \hat{p}'_i &= \frac{\hbar}{2}. \end{aligned} \quad (3.4.4)$$

Az időfüggetlen hely és impulzus szórás arra vezet, hogy a rezgési hullámcsomag megőrzi az alakját a gerjesztett potenciálfelületen miközben oszcillál.

Amennyiben az elektronátmenet során nemcsak az egyensúlyi magtávolság, de a normálrezgési módusok frekvenciái is megváltoznak, a (3.4.3) hullámfüggvény ugyan megadja a gerjesztett potenciálfelületen kialakuló hullámcsomagot, azonban nem koherens állapotot, hanem kvadratúra-összenyomott (squeezed) állapotot ír le. Ez annak köszönhető, hogy az alapállapotú rezgési potenciálfelület által meghatározott rezgési alapállapot hullámfüggvényének a szélessége nem felel meg a gerjesztett elektronállapothoz tartozó potenciálfelület alap rezgési állapota szélességének. A harmonikus oszcillátor kvadratúra-összenyomott állapotát az jellemzi, hogy vagy a hely- vagy az

impulzus-operátor szórása kisebb az alapállapoténál, természetesen a konjugált operátor szórásának a rovasára:

$$\Delta \hat{x}'_i < \sqrt{\frac{\hbar}{2M\Omega'_i}}, \quad \Delta \hat{p}'_i > \sqrt{\frac{\hbar M\Omega'_i}{2}}. \quad (3.4.5)$$

A hullámfüggvény szélessége most periodikusan változni fog, egy rezgési periódus alatt kétszer veszi fel a maximális illetve minimális értékét. A két független normálrezgési módusban természetesen egymástól független összenyomott állapotok alakulnak ki.

Általában a gerjesztett elektronállapotban a normálrezgési koordináta-rendszer iránya is megváltozik az alapállapotú elektronhéjhoz tartozó normálrezgési koordináta-rendszerhez viszonyítva, $\chi \neq 0$. Ekkor ha $\Omega_1 = \Omega_2 = \Omega$, a gerjesztett rezgési potenciálfelületen tiszta, kvadratúra-összenyomott állapotok alakulnak ki:

$$\psi_e(\mathbf{x}') = \left(\frac{M\Omega}{\pi\hbar} \right)^{1/2} \exp \left(-\frac{M\Omega}{2\hbar} (\mathbf{x}' - \mathbf{d})^2 \right), \quad (3.4.6)$$

mivel általában a normálrezgési frekvenciák különbözőek az alap és gerjesztett elektronállapotban, $\Omega'_i \neq \Omega$. Ez még abban a speciális esetben is igaz, ha az egyensúlyi magtávolság nem változik az elektronátmenet során. Ekkor kvadratúra-összenyomott alap rezgési állapot jön létre a gerjesztett potenciálfelületen.

Amennyiben $\Omega_1 \neq \Omega_2$ és $\chi \neq l\pi/2$, akkor a gerjesztett elektronállapothoz tartozó rezgési potenciálfelületen összefonódott rezgési állapot alakul ki függetlenül attól, hogy az egyensúlyi magtávolság hogyan változik az elektronátmenet során. A rezgő rendszer hullámfüggvényét az általános (3.4.2) képlet adja meg.

Az összefonódottság mértékének jellemzésére a Neumann János féle statisztikus entrópiát választottuk. Az entrópia definíciója:

$$S(\hat{\rho}) = -\text{Tr}(\hat{\rho} \ln \hat{\rho}). \quad (3.4.7)$$

Tegyük fel, hogy egy két szabadsági fokú, véges dimenziós rendszerünk van. A rendszer legyen egy tiszta $|\psi\rangle$ állapotban, a részrendszerek pedig összefonódott állapotban, azaz sűrűségoperátorral lehet jellemezni őket. Belátjuk azt, hogy a részrendszerek entrópiái mindig egyenlőek egymással. Ehhez felhasználjuk a Schmidt-féle felbontási tételt, amely azt állítja, hogy amennyiben egy korrelált, két szabadsági fokú kvantumrendszer

$|\psi\rangle$ tiszta állapotban van, mindig lehetséges találni olyan bázist, amelyben a rendszer sűrűségoperátora bi-ortogonális tagok összegeként fejezhető ki:

$$\hat{\rho} = |\psi\rangle\langle\psi| = \sum_{i,j} M_i M_j^* |u_i\rangle\langle u_j| \otimes |v_i\rangle\langle v_j|. \quad (3.4.8)$$

A részrendszerek sűrűségoperátora ebben a bázisban:

$$\hat{\rho}_1 = \sum_i |M_i|^2 |v_i\rangle\langle v_i|, \quad \hat{\rho}_2 = \sum_j |M_j|^2 |u_j\rangle\langle u_j|. \quad (3.4.9)$$

A két sűrűségoperátor sajátértékei megegyeznek egymással $w_i = |M_i|^2$, ezért a hozzájuk rendelt statisztikus entrópiák is egyenlőek:

$$S(\hat{\rho}_l) = - \sum_i w_i \ln w_i, \quad l = 1, 2. \quad (3.4.10)$$

A statisztikus entrópia jól ismert tulajdonsága, hogy akkor veszi fel maximális értékét, ha a w_i valószínűségek egyenlőek egymással. Ez viszont, ha a szóban forgó részrendszer egy korrelált rendszer egyik tagja, megfelel a maximális összefonódottságnak a két részrendszer között. Ha a részrendszerek korrelálatlanok, akkor a (3.4.8) képletben az összeg egyetlen tagból áll, és a részrendszerek (3.4.9) sűrűségoperátorai is egyetlen projektort tartalmaznak. Ekkor a (3.4.10) statisztikus entrópia 0. Összefoglalva, egy két szabadsági fokú kvantumrendszer részrendszereihez rendelt statisztikus entrópia 0, ha a részrendszerek korrelálatlanok és felveszi maximumát, ha a részrendszerek közötti összefonódottság maximális.

A rövid összefoglalás után visszatérünk a molekula összefonódott rezgési állapotának vizsgálatára. Az utolsóként megfontolt esetben a molekula alap elektronállapotához tartozó rezgési potenciálfelület ekvipotenciális felülete ellipszis alakú volt, és a normálkoordináta-rendszer elfordult a gerjesztés során. A kialakuló rezgési állapot egy összefonódott állapot. A 3. táblázatban az elfordulás χ szögének függvényében megadjuk az egyik rezgési módus kvantumállapotához rendelt statisztikus entrópiát. A táblázatból leolvasható, hogy nagyobb elfordulási szöghöz nagyobb entrópia érték tartozik, amely mélyebb összefonódottságot eredményez.

A továbbiakban a molekularezgések periódusidejével összemérhető hosszúságú gerjesztő fényimpulzusokkal fogunk foglalkozni. A (3.4.1) hullámfüggvény nem szeparálható két hullámfüggvény szorzatára, s az alap és gerjesztett elektronállapothoz tartozó

χ	3°	5°	8°	10°	12°	15°
S_i	0.0030	0.0075	0.0166	0.0241	0.0322	0.04545

3. táblázat: *Két rezgési szabadsági fokú molekula egyik rezgési módusához rendelt von Neumann féle statisztikus entrópia a normálkoordináta-rendszer elfordulásának a függvényében. A molekula alapállapotában $\Omega_1/\Omega_2 = 1.5$ és az egyensúlyi magtávolság nem változik az elektronátmenet során.*

rezgési potenciálfelületek geometriai viszonyától függetlenül összefonódott állapot alakul ki a véges hosszúságú gerjesztő fényimpulzus hatására. Példaképpen megvizsgálunk egy olyan esetet, amikor a nagyon rövid gerjesztés független rezgési állapotokra vezet a két normálmódusban. A nagyon rövid gerjesztés során kialakuló állapot legyen a (3.4.3) kétmódusú rezgési koherens állapot. A véges hosszúságú gerjesztő impulzus hatásának vizsgálata érdekében célszerű az állapotot energia sajátállapot reprezentációban felírni:

$$|\psi_{\text{coh}}\rangle = \sum_{\mathbf{n}'} F_{\mathbf{n}'} |n'_1 n'_2\rangle = e^{-g_1^2/2 - g_2^2/2} \sum_{n'_1, n'_2} \frac{g_1^{n'_1} g_2^{n'_2}}{\sqrt{n'_1! n'_2!}} |n'_1 n'_2\rangle, \quad (3.4.11)$$

ahol $F_{\mathbf{n}'}$ definíciója a (3.4.1) egyenlet után található, $g_i = (M\Omega'_i/2\hbar)d_i$. A (3.4.1) egyenletbe behelyettesítve a fenti állapotvektort kapjuk meg a véges gerjesztés hatására kialakuló állapotvektort. A 4. táblázatban az impulzus hosszának függvényében megadjuk az egyik rezgési módus kvantumállapotához rendelt statisztikus entrópiát. A táblázatból leolvasható, hogy hosszabb gerjesztő fényimpulzus mélyebb összefonódottságra vezet.

τ	0.05	0.1	0.2	0.5	1	10
S_i	8.9×10^{-5}	9.3×10^{-4}	8.9×10^{-3}	0.1	0.394	0.811

4. táblázat: *Két rezgési szabadsági fokú molekula egyik rezgési módusához rendelt von Neumann féle statisztikus entrópia a gerjesztő fényimpulzus $\tau = \Omega u^{-1}$ hosszának függvényében. A molekula alapállapotában $\Omega_1 = \Omega_2 = \Omega$ és a normálrezgési frekvenciák nem változnak az elektronátmenet során.*

Az összefonódottság abból származik, hogy a (3.4.1) egyenletben a Gauss levágás

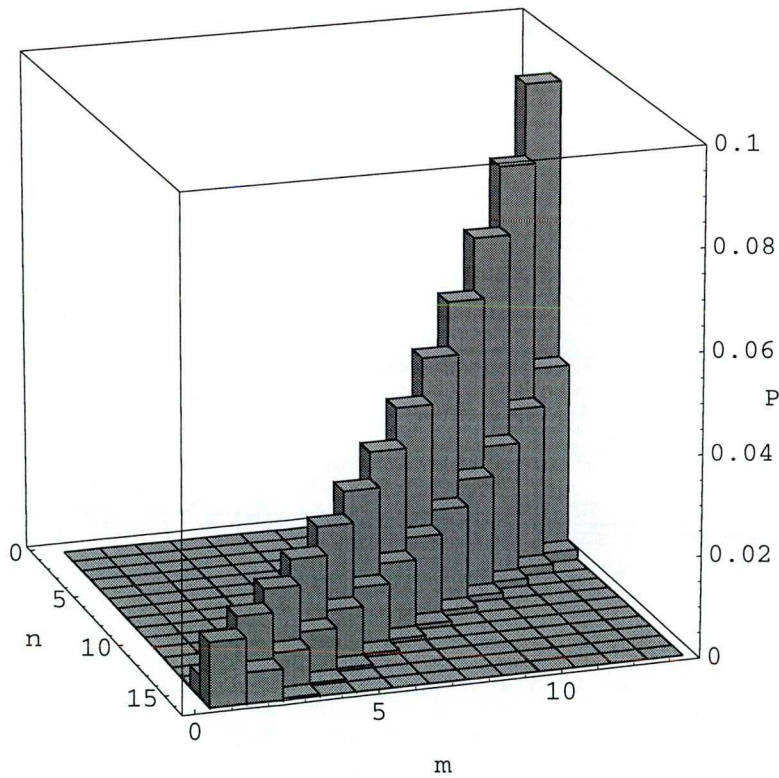
számos tag amplitúdóját közel nullára csökkenti. Ha a gerjesztő fényimpulzus nagyon hosszú (koherens hullám "CW" határérték), akkor a Gauss levágás közelítőleg Dirac δ függvény lesz, és csak azok a tagok maradnak meg, amelyek sorszáma kielégíti a

$$\gamma = n'_1 \Omega'_1 + n'_2 \Omega'_2 \quad (3.4.12)$$

egyenletet. Amennyiben Ω'_1/Ω'_2 hányados kifejezhető kis egész számok hányadosaként, a (3.4.12) egyenletnek több megoldása is van és összefonódott rezgési állapot alakul ki. Ha ez a feltétel nem teljesül és csak egy megoldás létezik, akkor a két rezgési módusban tiszta, korrelálatlan állapotok jönnek létre. A Gauss levágás a (3.4.11) kétmódusú koherens állapotot a

$$|\psi\rangle = \mathcal{N} \sum_{n'_1+n'_2=\gamma/\Omega'} \frac{g_1^{n'_1} g_2^{n'_2}}{\sqrt{n'_1! n'_2!}} |n'_1 n'_2\rangle \quad (3.4.13)$$

összefonódott állapottá transzformálja. Itt az egyszerűség kedvéért a két normálrezgési frekvenciát egyenlővé tettük egymással. A 18. ábrán olyan állapot fononstatisztikáját



18. ábra: Egy véges hosszúságú impulzussal keltett összefonódott állapot fononstatisztikája.

mutatjuk, amelynél a molekulában az egyensúlyi magtávolságok megváltozásai $g_1 = 1.1$ és $g_2 = 1.3$, $\gamma = 15/\omega$, a gerjesztő fényimpulzus hossza $u^{-1} = \sqrt{2}/\omega$. A grafikonon nagyon jól látható, hogy a két rezgési módusban a fononszámok összefüggnek.

A (3.4.13) rezgési állapotból a részleges spúr kiszámításával megkapható valamely módusához rendelt sűrűségoperátor:

$$\hat{\rho}_i = \sum_{n'_i=0}^N \binom{N}{n'_i} p_i^{n'_i} p_k^{N-n'_i} |n'_i\rangle \langle n'_i|, \quad i, k=1, 2 \quad k \neq i, \quad (3.4.14)$$

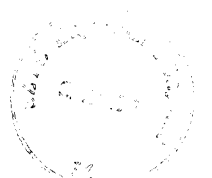
ahol $N = \gamma/\Omega'$ és

$$p_1 = \frac{g_1^2}{g_1^2 + g_2^2}, \quad p_2 = \frac{g_2^2}{g_1^2 + g_2^2}.$$

A (3.4.14) sűrűségoperátorhoz tartozó statisztikus entrópiát a

$$S(\hat{\rho}_i) = - \sum_{n'=0}^N w_{n'} \ln w_{n'}, \quad w_{n'} = \binom{N}{n'} p_i^{n'} p_k^{N-n'} \quad (3.4.15)$$

képlettel lehet kiszámítani. A 4. táblázatban az utolsó oszlopban álló, leghosszabb gerjesztő impulzushoz tartozó entrópia értékeket ezzel a képlettel is kiszámíthatjuk.



4. Csillag állapotok sokfotonos abszorpció folyamatban

Ebben a fejezetben nemlineáris optikai kristályban zajló k -fotonos lekonverzió folyamat során keletkező csillag állapotok hatékonyságát vizsgálom sokfotonos abszorpció folyamatban. A 4.1 alfejezetben röviden összefoglalom a nemlineáris optikából szükséges ismereteket. A 4.2 szakaszban a sokfotonos abszorpció alapjait mutatom be. A 4.3 alfejezetben megvizsgálom, hogy a csillag állapotú fényt hogyan lehet alkalmazni sokfotonos abszorpció folyamatokban.

4.1. Nemlineáris optika

4.1.1. Nemlineáris optika - klasszikus tárgyalás

Az elektromágneses tér terjedését dielektrikumban a Maxwell egyenletek írják le [62, 63]:

$$\begin{aligned}\nabla \times \mathbf{E}(\mathbf{r}, t) &= -\frac{\partial}{\partial t} \mathbf{B}(\mathbf{r}, t), \\ \nabla \times \mathbf{H}(\mathbf{r}, t) &= \frac{\partial}{\partial t} \mathbf{D}(\mathbf{r}, t), \\ \nabla \mathbf{B}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{0}, \\ \nabla \mathbf{D}(\mathbf{r}, t) &= \mathbf{0},\end{aligned}\tag{4.1.1}$$

melyeket még ki kell egészíteni az anyag polarizációját és elektromos eltolásvektorát összekötő egyenlettel:

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \mathbf{E} + \mathbf{P}.\tag{4.1.2}$$

Feltételezzük, hogy az anyag nem mágnesezhető, ezért

$$\mathbf{B} = \mu_0 \mathbf{H}.\tag{4.1.3}$$

A Maxwell egyenletekből levezethetünk egy másodrendű parciális differenciálegyenletet az elektromos térerősségre:

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} = -\frac{1}{\epsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}}{\partial t^2},\tag{4.1.4}$$

ahol $c^2 = 1/\varepsilon_0\mu_0$ a vákuumbeli fénysebesség. A dielektrikum polarizációjának elektromos térerősségtől való függését hatványsorral lehet kifejezni:

$$P_i = \varepsilon_0 \chi_{ij} E_j + 2d_{ijk} E_j E_k + 4\chi_{ijkl} E_j E_k E_l + \dots, \quad (4.1.5)$$

ahol χ_{ij} a lineáris, d_{ijk} a másodrendű, χ_{ijkl} a harmadrendű szuszceptibilitás tenzor. Ha az anyag kristályos szerkezetű, a dielektrikumot alkotó atom- illetve molekularács szimmetria tulajdonságai határozzák meg, hogy a szuszceptibilitás tenzorok mely elemei különbözhetnek nullától. Ha a kristályrács rendelkezik inverzió-szimmetriával, a d_{ijk} másodrendű szuszceptibilitás tenzor eltűnik. A (4.1.5) képletben a harmadrendű tag járuléka a kialakuló polarizációhoz általában több nagyságrenddel kisebb a másodrendű tag járulékánál az olyan anyagokban, ahol a kristályszimmetria mindkét tenzor létezését megengedi. A polarizáció (4.1.5) egyenlete egy lineáris és további nemlineáris tagokból áll: $\mathbf{P} = \mathbf{P}_L + \mathbf{P}_{NL}$. Helyettesítsük be ezt a kifejezést a (4.1.4) egyenletbe. Egy kis átrendezés után a

$$\nabla \times \nabla \times \mathbf{E} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2}{\partial t^2} (\mathbf{1} + \chi) \mathbf{E} = -\frac{1}{\varepsilon_0 c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{P}_{NL}}{\partial t^2}, \quad (4.1.6)$$

kifejezést kapjuk. Az egyenlet kiindulási pont a fényterjedés leírására anizotróp, nemlineáris dielektrikumokban. A megoldása során az elektromos térerősség vektort gyakran síkhullámnak tételezik fel: $\mathbf{E}(\mathbf{r}, t) = \mathbf{E}^{(\omega)} \exp(\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t)$. A lehetséges folyamatokat a lineáris és nemlineáris szuszceptibilitás tenzorok határozzák meg. Általánosan azt mondhatjuk, hogy a (4.1.6) egyenlet jobboldalán a nemlineáris polarizáció energiaáramlásra vezet a dielektrikumban egyszerre jelenlévő, különböző frekvenciájú elektromágneses mezők között. A folyamatokat az elektromos terek kezdőfeltételei alapján lehet csoportosítani. Tegyük fel, hogy a $\mathbf{P}_{NL}$ polarizációban a másodrendű tag járuléka dominál. Ekkor a három legfontosabb folyamat a következő: (1) másodharmonikus keltés, amely során a kristályban terjedő ω frekvenciájú hullám 2ω frekvenciájú hullámot kelt [64, 65]; (2) parametrikus oszcilláció, amikor egy intenzív ω_3 frekvenciájú fény egyszerre kelt ω_1 és ω_2 frekvenciájú hullámokat úgy, hogy $\omega_3 = \omega_1 + \omega_2$ [66]; (3) frekvencia fel-konverzió, amely során egy kis intenzitású, alacsony ω_1 frekvenciájú fény magasabb ω_3 frekvenciájú fénné transzformálódik azáltal, hogy a nemlineáris kristályban keveredik egy erős $\omega_2 = \omega_3 - \omega_1$ frekvenciájú fénnel [67].

4.1.2. Nemlineáris optika - kvantummechanikai leírás

A nemlineáris optikai folyamatok kvantummechanikai tárgyalása alapvetően abban tér el a klasszikus leírástól, hogy a folyamatban résztvevő hullámok közül azokat, amelyek kvantumossága várhatóan meghatározó lehet a folyamat során, kvantumosan kezeljük. Ilyen eset például, amikor a spontán parametrikus fluoreszcenciát vizsgáljuk.

Mielőtt rátérnénk a kvantummechanikai leírás ismertetésére, röviden összefoglaljuk a kvantált elektromágneses térrel kapcsolatos alapfogalmakat. Egy zárt térrészben a sugárzási tér egymástól független normálmódusokra bontható. Minden normálmódushoz egy harmonikus oszcillátor rendelhető, amely kanonikusan konjugált koordináta és impulzus változóival lehet kifejezni az elektromágneses tér elektromos térerősségét és mágneses indukcióját. A kvantummechanikai tárgyalás során ezeket az oszcillátorokat kvantáljuk. Legyen a kvantálási térfogat egy L élhosszúságú kocka. Periodikus határfeltételek előírása esetén, az elektromágneses tér és a mágneses indukció operátoraira a következő kifejezéseket kapjuk [2, 63]:

$$\begin{aligned}\hat{\mathbf{E}}(\mathbf{r}, t) &= i \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \left[\frac{\hbar \omega_k}{2\varepsilon L^3} \right]^{1/2} \mathbf{e}_{\mathbf{k}, \lambda} \left\{ \hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r} - i\omega_k t} - \hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda}^\dagger e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r} + i\omega_k t} \right\}, \\ \hat{\mathbf{B}}(\mathbf{r}, t) &= i \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \left[\frac{\hbar}{2\varepsilon L^3 \omega_k} \right]^{1/2} \mathbf{k} \times \mathbf{e}_{\mathbf{k}, \lambda} \left\{ \hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda} e^{i\mathbf{k}\mathbf{r} - i\omega_k t} - \hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda}^\dagger e^{-i\mathbf{k}\mathbf{r} + i\omega_k t} \right\},\end{aligned}\quad (4.1.7)$$

ahol $\varepsilon = \varepsilon_0(1 + \chi)$. A (4.1.7) kifejezésben a téroperátorok haladó síkhullámokat írnak le. Az elektromágneses tér Hamilton-operátorának a megkonstruálásához induljunk ki a klasszikus térenergia kifejezésből. Egy nem mágnesesizhető szigetelőben a sugárzási tér energiája [63]:

$$\mathcal{E} = \int_V dv \left(\frac{\varepsilon}{2} \mathbf{E}^2 + \frac{\mu_0}{2} \mathbf{H}^2 + \int \mathbf{P}_{NL} d\mathbf{E} \right). \quad (4.1.8)$$

Behelyettesítve az elektromágneses tér (4.1.7) operátorait, megkapjuk a kvantált elektromágneses tér Hamilton-operátorát dielektrikumban:

$$\hat{H} = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \hbar \omega_k \left(\hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda}^\dagger \hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda} + \frac{1}{2} \right) + \int_V dv \left[\frac{2}{3} d_{ijk} E_i E_j E_k + \chi_{ijkl} E_i E_j E_k E_l + \dots \right]. \quad (4.1.9)$$

A képlet jobboldalán, az anyag polarizációján végzett munkából származó járulékból nem jelöltük, hogy az elektromos mezők klasszikusak vagy kvantáltak. Egy konkrét

problémában egyes módusokat célszerű klasszikusan, másokat kvantumosan kezelni. A (4.1.9) Hamilton-operátorban az elektromágneses mező másodrendnél magasabb hatványai is megjelennek, ennek alapján beszélhetünk harmad-, negyed-, stb. rendű optikai folyamatokról.

Elsőként vizsgáljuk meg három különböző mező kölcsönhatását, amelyek frekvenciájára teljesül, hogy

$$\omega_3 = \omega_1 + \omega_2. \quad (4.1.10)$$

A mezők kölcsönhatását a (4.1.9) Hamilton-operátor harmadrendű tagjával írjuk le:

$$\hat{H}' = \frac{2}{3}d \int_V dv \hat{E}^{(\omega_1)} \hat{E}^{(\omega_2)} E^{(\omega_3)}, \quad (4.1.11)$$

ahol a d effektív nemlináris együttható a d_{ijk} tenzor elemeinek lineáris kombinációja, amely függ a mezők terjedési irányától és a polarizációktól. A képletből leolvasható, hogy az ω_1 és ω_2 frekvenciájú mezőket kvantumosan, az ω_3 frekvenciájú mezőt klasszikusan kezeljük. Ezt az utóbbit ugyanis nagy intenzitásának tételezzük fel és pumpa mezőként szolgál a vizsgált folyamatban:

$$E^{(\omega_3)}(\mathbf{r}, t) = E_3 \cos(\mathbf{k}_3 \mathbf{r} - \omega_3 t). \quad (4.1.12)$$

A pumpa módusból energia áramlik a gyengébb ω_1 és ω_2 frekvenciájú módusokba. Ezt a tárgyalásmódot parametrikus közelítésnek nevezzük, amely magába foglalja még azt a feltevést is, hogy a pumpa nem gyengül a folyamat során. Az egyszerűség kedvéért tegyük fel, hogy a mezők azonos irányban terjednek. Behelyettesítve a (4.1.11) egyenletbe a mezők kifejezéseit, az integrálás elvégzése után a kölcsönhatási Hamilton-operátor:

$$\begin{aligned} \hat{H}' = -i \frac{d\hbar}{6L} \sqrt{\frac{\omega_1 \omega_2}{\epsilon_1 \epsilon_2}} E_3 \left(\zeta(\Delta k) \hat{a}_1 \hat{a}_2 - \zeta(\Delta k)^* \hat{a}_1^\dagger \hat{a}_2^\dagger \right), \\ \zeta(\Delta k) = \frac{(e^{i\Delta k L} - 1)}{\Delta k}, \end{aligned} \quad (4.1.13)$$

ahol $\Delta k = k_1 + k_2 - k_3$ a hullámvektorok nem illeszkedését jellemzi. A (4.1.11) kifejezésben a k_i hullámvektorok más előjellel vett lineáris kombinációi is megjelennek, amelyek azonban sokkal nagyobbak Δk -nál, ezért az integrálás elvégzése után a járulékok sokkal kisebbek a Δk -t tartalmazó tagokénál, s így elhagyjuk őket. A $\zeta(\Delta k)$

faktorról könnyű belátni, hogy egy $\sin(x)/x$ típusú kifejezés:

$$\zeta(\Delta k) = iLe^{-i\Delta kL/2} \frac{\sin(\Delta kL/2)}{\Delta kL/2}. \quad (4.1.14)$$

Ha $\Delta k \neq 0$ és a nemlineáris kristály L hosszát rosszul választjuk meg, a kölcsönhatási Hamilton-operátor akár el is tűnik. Ha a kristályban sikerül az elektromágneses mezőknek olyan terjedési irányt találni, hogy $\Delta k = 0$, akkor ezt fázis-illeszkedésnek nevezzük. Ekkor a (4.1.13) egyenlet helyett az egyszerűbb

$$\hat{H}' = \hbar\gamma \left(\hat{a}_1\hat{a}_2 + \hat{a}_1^\dagger\hat{a}_2^\dagger \right), \quad \gamma = \frac{d}{6} \sqrt{\frac{\omega_1\omega_2}{\varepsilon_1\varepsilon_2}} E_3 \quad (4.1.15)$$

kifejezést kapjuk. A (4.1.15) kölcsönhatási Hamilton-operátorral könnyen kifejezhetjük a rendszer időfejlesztő operátorát:

$$\hat{U}(t) = \exp \left(-i\gamma \left[\hat{a}_1\hat{a}_2 + \hat{a}_1^\dagger\hat{a}_2^\dagger \right] t \right). \quad (4.1.16)$$

A fenn röviden ismertetett tárgyalás az alapja az optikai parametrikus erősítő és parametrikus oszcillátor kvantummechanikai leírásának. A parametrikus erősítés során az ω_1 módusban a jel felerősödik a nemlineáris kristályban, miközben megjelenik az ω_2 frekvenciájú segéd mező, amely biztosítja az energia- és impulzusmegmaradást. A kvantummechanikai leírás lehetővé teszi, hogy ne csak a mezők amplitúdójának változását ismerjük meg, hanem a jel mező fotonstatisztikáját is [67, 68, 69, 70]. A fotonstatisztika vizsgálata vezetett a foton sűrűsödés, foton ritkulás (bunching és anti-bunching) jelenségének a felfedezéséhez [71, 72]. A parametrikus folyamatban korrelált fotonpárok keletkeznek [73, 74, 75]. E párok nagy jelentőségre tettek szert az utóbbi időben a Bell egyenlőtlenségek tesztelésénél és a kvantum-teleportáció kísérleti megvalósításában.

Az előző szakaszban ismertetett parametrikus folyamatnak egy fontos speciális esete, amikor a ω_1 és ω_2 frekvenciájú jel és segéd mezők azonosak. Ekkor a pumpa és jel mezők frekvenciáira teljesül, hogy $\omega_3 = 2\omega_1$. Szemléletesen azt mondhatjuk, hogy minden pumpa foton két jel fotonra hasad. A kölcsönhatási Hamilton-operátor:

$$\hat{H}' = -i \frac{d\hbar}{6L} \frac{\omega_1}{\varepsilon_1} E_3 \left(\zeta(\Delta k) \hat{a}_1^2 - \zeta(\Delta k)^* \hat{a}_1^{\dagger 2} \right), \quad (4.1.17)$$

nem tökéletes fázis-illeszkedés esetén, $\Delta k = 2k_1 - k_3$. Amennyiben $\Delta k = 0$, a kölcsönhatási Hamilton-operátor

$$\hat{H}' = \hbar\gamma \left(\hat{a}_1^2 + \hat{a}_1^{\dagger 2} \right), \quad \gamma = \frac{d\omega_1}{6\varepsilon_1} E_3 \quad (4.1.18)$$

alakú. A rendszer időfejlődését a

$$\hat{U}(t) = \exp \left(-i\gamma \left[\hat{a}_1^2 + \hat{a}_1^{\dagger 2} \right] t \right) \quad (4.1.19)$$

operátor adja meg. A (4.1.19) operátor a bevezetőben már formálisan definiált squeezing-operátor. Hatására az ω_1 módus vákuum állapotából kvadratúra-összenyomott vákuum állapot lesz [76, 77, 78, 79]. Ez volt az az állapot, amelynek Wigner eloszlásfüggvényét Smithey elsőként sikeresen rekonstruálta [29]. Másik jelentősége az, hogy elsőként ennek az állapotnak sikerült egy-dimenziós koherens állapot reprezentációját megtalálni, amelyről bővebben a 1.1 fejezetben írtunk.

Nagyon érdekes eredményre vezet az előző szakaszban tárgyalt squeezing folyamat magasabbrendű megfelelőinek a vizsgálata. Tekintsük azt a speciális esetet, amikor egy jel módus és egy pumpa módus van jelen a nemlineáris közegben, amelyek frekvenciái kielégítik a $\omega_2 = k\omega_1$ egyenletet. Kvantummechanikai szempontból ebben a folyamatban minden pumpa foton k darab jel fotonra hasad, ezért k -fotonos lekonverciónak is nevezik. Parametrikus közelítésben a kölcsönhatási Hamilton-operátor a harmadrendű folyamatnál bemutatott módon konstruálható meg. Fisher, Nieto és Sandberg megmutatták [80], hogy a (4.1.19) squeezing-operátor általánosításának

$$\hat{U}_k = \exp \left[z_k \hat{a}^{\dagger k} + R_l(\hat{a}^\dagger, \hat{a}) + z_k^* \hat{a}^k \right], \quad (4.1.20)$$

(ahol $R_l(\hat{a}^\dagger, \hat{a})$ egy legfeljebb $k - 1$ fokú polinomja a $\hat{a}$ és $\hat{a}^\dagger$ operátoroknak) vákuum mátrixeleme divergens $k > 2$ esetén, amiből azt a következtetést vonták le, hogy a $\hat{U}_k$ operátort a vákuum állapotra hattatva nem fizikai állapotok keletkeznek. A probléma egy lehetséges megoldását Braunstein és McLachlan javasolta [81], akik a Padé approximáció módszerét alkalmazva véges időtartamokra meghatározták az általánosított squeezing folyamatban keletkező állapot Q függvényét. A k -fotonos parametrikus lekonverzió során kialakuló "felrobbanó" megoldásokat többen is vizsgálták [82, 83]. Az állapot fázistérbeli képe egy k -ágú csillagra emlékeztet, ezért csillag állapotnak is nevezik.

A k -fotonos squeezing folyamatban a pumpa módust is kvantumosan kezelve vizsgálta Drobný és Jex a kialakuló mező fotonstatisztikáját [84]. Banaszek és Knight az állapot Wigner függvényében megjelenő kvantum interferenciát tanulmányozta. A 3-fotonos lekonverzió kísérleti megvalósíthatóságát Felbinger, Schiller és Mlynek vizsgálta [86]. Arra az eredményre jutottak, hogy még optikai rezonátor alkalmazása esetén is csak nagyon kis intenzitású csillag állapot előállítása lehetséges, a rendelkezésre álló nemlineáris kristályok felhasználásával.

4.2. Sokfotonos abszorpció

Sokfotonos folyamatokban az átmeneti valószínűség függését a sugárzási tér statisztikus tulajdonságaitól számos szerző vizsgálta a 60-as években [87, 88, 89, 90, 91, 92]. Az elektromágneses tér és egy hidrogénszerű atom közötti kölcsönhatást a

$$\hat{H}_I(t) = \frac{e}{m} \hat{\mathbf{p}}(t) \hat{\mathbf{A}}(\hat{\mathbf{r}}, t) \quad (4.2.1)$$

Hamilton-operátor írja le, ahol $\hat{\mathbf{A}}(\hat{\mathbf{r}}, t)$ a sugárzási tér vektorpotenciálja, e az elektrontöltés, m az elektrontömeg, $\hat{\mathbf{p}}(t)$ az elektron impulzus-operátora. Dipól közelítésben a vektorpotenciál helyfüggését elhanyagoljuk. A vektorpotenciál pozitív és negatív frekvenciájú komponensekre bontható:

$$\hat{\mathbf{A}}(\hat{\mathbf{r}}, t) \approx \hat{\mathbf{A}}(t) = \hat{\mathbf{A}}^{(+)}(t) + \hat{\mathbf{A}}^{(-)}(t), \quad (4.2.2)$$

ahol

$$\hat{\mathbf{A}}^{(+)}(t) = \sum_{\mathbf{k}, \lambda} \left[\frac{\hbar}{2\varepsilon_0 L^3 \omega_k} \right]^{1/2} \mathbf{e}_{\mathbf{k}, \lambda} \hat{a}_{\mathbf{k}, \lambda} e^{-i\omega_k t}. \quad (4.2.3)$$

Kölcsönhatási képből az időfejllesztő-operátor

$$\hat{U}_I(t) = \sum_{n=0}^{\infty} \hat{U}_I^{(n)}(t), \quad (4.2.4)$$

ahol

$$\hat{U}_I^{(n)}(t) = \left(-\frac{i}{\hbar} \right)^n \int_0^t dt_n \int_0^{t_n} dt_{n-1} \dots \int_0^{t_2} dt_1 \hat{H}_I(t_n) \hat{H}_I(t_{n-1}) \dots \hat{H}_I(t_1). \quad (4.2.5)$$

Ha csak a foton abszorpciós folyamatokat vesszük figyelembe, akkor az effektív kölcsönhatási Hamilton-operátor:

$$\hat{H}_{eff}(t) = \frac{e}{m} \hat{\mathbf{p}}(t) \hat{\mathbf{A}}^{(+)}(t). \quad (4.2.6)$$

Az n foton abszorpcióját leíró időfejllesztő-operátort úgy nyerjük, hogy a (4.2.5) egyenletbe behelyettesítjük a (4.2.6) kifejezést

$$\begin{aligned} \hat{U}_I^{(n)}(t) = & \left(-\frac{i}{\hbar} \right)^n \left(\frac{e}{m} \right)^n \int_0^t dt_n \int_0^{t_n} dt_{n-1} \dots \int_0^{t_2} dt_1 \hat{\mathbf{p}}(t_n) \hat{\mathbf{A}}^{(+)}(t_n) \\ & \times \hat{\mathbf{p}}(t_{n-1}) \hat{\mathbf{A}}^{(+)}(t_{n-1}) \dots \hat{\mathbf{p}}(t_1) \hat{\mathbf{A}}^{(+)}(t_1). \end{aligned} \quad (4.2.7)$$

Tegyük fel, hogy a sugárzási tér állapotát kezdetben a

$$\hat{\varrho}_F(0) = \sum_{i_F} \varrho_{ii} |i\rangle_F \langle i|_F \quad (4.2.8)$$

sűrűségoperátorral lehet jellemezni. Az n foton elnyelési valószínűség ekkor:

$$\begin{aligned} P^{(n)}(t) &= \sum_{i_F f_F} \varrho_{ii} \left| \langle f|_F \langle f|_A \hat{U}_I^{(n)}(t) | i\rangle_A | i\rangle_F \right|^2 \\ &= \text{Tr}_F \left\{ \hat{\varrho}_F \langle i|_A \hat{U}_I^{(n)\dagger}(t) | f\rangle_A \langle f|_A \hat{U}_I^{(n)}(t) | i\rangle_A \right\}, \end{aligned} \quad (4.2.9)$$

ahol $|i\rangle_A$ a kezdeti, $|f\rangle_A$ a végső atomi állapot. Vezessük be a

$$\Psi_{i_n \dots i_1}(t_n, \dots, t_1) = \left(\frac{e}{\hbar m} \right)^n \langle f|_A \hat{p}_{i_n}(t_n) \dots \hat{p}_{i_1}(t_1) | i\rangle_A \quad (4.2.10)$$

függvényt. Ennek felhasználásával (4.2.9) átírható a

$$\begin{aligned} P^{(n)}(t) &= \sum_{\{i_n\}, \{j_n\}} \int_0^t dt_n \int_0^{t_n} dt_{n-1} \dots \int_0^{t_2} dt_1 \int_0^t dt'_n \int_0^{t'_n} dt'_{n-1} \dots \int_0^{t'_2} dt'_1 \\ &\quad \times \text{Tr}_F \left\{ \hat{\varrho}_F \hat{A}_{i_n}^{(-)}(t'_n) \dots \hat{A}_{i_1}^{(-)}(t'_1) \hat{A}_{i_n}^{(+)}(t_n) \dots \hat{A}_{i_1}^{(-)}(t_1) \right\} \\ &\quad \times \Psi_{i_n \dots i_1}^*(t'_n, \dots, t'_1) \Psi_{i_n \dots i_1}(t_n, \dots, t_1) \end{aligned} \quad (4.2.11)$$

alakra. A képletben a trace kifejezés a mező (n, n) -ed rendű normál rendezett korrelációs-függvénye:

$$G_{i_n, \dots, i_1; j_n, \dots, j_1}^{(n, n)}(\{t'_n\}; \{t_n\}) = \text{Tr}_F \left\{ \hat{\varrho}_F \hat{A}_{i_n}^{(-)}(t'_n) \dots \hat{A}_{i_1}^{(-)}(t'_1) \hat{A}_{i_n}^{(+)}(t_n) \dots \hat{A}_{i_1}^{(-)}(t_1) \right\}. \quad (4.2.12)$$

Amennyiben a mező stacionárius, frekvencia spektruma egy szűk tartományra koncentrálódik, közepes ω_0 frekvenciája a rezonáns ω_A/n frekvencia közelében van, és a mező spektrális szélessége $\Delta\omega$ jóval kisebb az atom végállapota γ_f szélességénél, az időegységre eső átmeneti valószínűség:

$$W^{(n)} = G^{(n, n)}(\{0\}, \{0\}) |\Phi(\{\omega_0\})|^2 \frac{\gamma_f}{\frac{1}{4}\gamma_f^2 + (\omega_A - n\omega_0)^2}, \quad (4.2.13)$$

ahol $\Phi(\{\omega_0\})$ a (4.2.10) képletben definiált Ψ függvény Fourier transzformáltja. A képletből jól látható, hogy amennyiben a mező teljesíti a fenti feltételeket, az átmeneti valószínűséget egy adott atomban a mező (n, n) -ed rendű normál rendezett korrelációs-függvénye határozza meg.

4.3. Hatékony fényforrás sokfotonos abszorpciós folyamatokhoz

Az előző szakaszban láttuk, hogy az átmeneti valószínűség egy hidrogénszerű atom két energiaszintje között n -foton abszorpciója esetén, bizonyos feltételek teljesülése mellett, arányos a sugárzási tér (n, n) -ed rendű normál rendezett korrelációs-függvényével.

Vizsgáljuk meg, hogy egy nemlineáris kristályban, k -fotonos lekonverzió során keletkező fény (csillag állapot) milyen hatékonysággal vesz részt n -fotonos abszorpcióban. Ehhez meg kell határoznunk a csillag állapot (n, n) -ed rendű korrelációs-függvényét. A 4.1.2 szakaszban megmutattuk, hogy a $k > 2$ fotonos lekonverzió tárgyalása parametrikus közelítésben ellentmondásos eredményre vezet. Ezért mi mind a pumpa, mind a jel módust kvantumosan kezeljük. Induljunk ki a k -fotonos lekonverzió Hamilton-operátorából, tökéletes fázis-illeszkedést feltételezve:

$$\hat{H} = \hat{H}_0 + \hat{H}_I = (k\hbar\omega\hat{b}^\dagger\hat{b} + \hbar\omega\hat{a}^\dagger\hat{a}) + \hbar\gamma(\hat{b}\hat{a}^{\dagger k} + \hat{b}^\dagger\hat{a}^k), \quad (4.3.14)$$

ahol $\hat{a}$ és $\hat{b}$ a jel és pumpa módusok foton eltüntető operátorai, a γ nemlineáris konstans arányos a k -ad rendű szuszceptibilitás tenzor megfelelő elemeinek lineáris kombinációjával. A (4.3.14) Hamilton-operátor tulajdonságait részletesen elemezték a [71, 72] cikkekben. Mivel $\hat{H}_0$ és $\hat{H}_I$ operátorok felcserélhetők egymással, ezért mindkettő mozgásállandó. Ez lehetővé teszi, hogy a $\exp(-i\hat{H}_0 t/\hbar)$ faktort elhagyjuk az időfejlesztő operátorból. A kialakuló állapot:

$$|\psi(t)\rangle = \exp(-i\hbar\hat{H}_I t/\hbar) |\psi(0)\rangle. \quad (4.3.15)$$

Legyen a kezdeti állapot a pumpa módusban a $|\beta\rangle$ koherens állapot, a jel módusban pedig vákuum:

$$|\psi(0)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} b_n |0, n\rangle, \quad b_n = e^{-|\beta|^2/2} \frac{\beta^n}{\sqrt{n!}}. \quad (4.3.16)$$

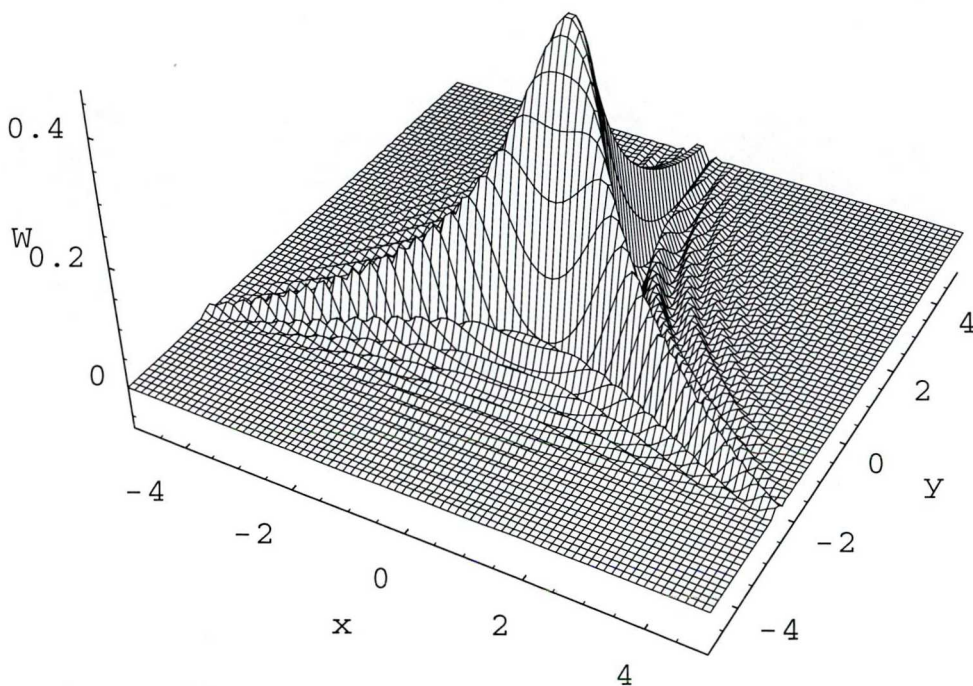
Ezzel a kezdőfeltétellel a (4.3.15) egyenlet:

$$|\psi(t)\rangle = \sum_{n=0}^{\infty} b_n \sum_{m=0}^n c_{nm}^{(k)}(t) |km, n-m\rangle, \quad (4.3.17)$$

ahol a $|km, n-m\rangle$ állapotban $n-m$ foton van a pumpa módusban és km foton a jel módusban. A $c_{nm}^{(k)}(t)$ együtthatók az időfejlesztő-operátor mátrixelemei:

$$c_{nm}^{(k)}(t) = \langle km, n-m | \exp(-i\hbar\hat{H}_I t/\hbar) | 0, n \rangle, \quad (4.3.18)$$

amelyeket numerikusan tudunk meghatározni a kölcsönhatási Hamilton-operátor diagonalizálásával [71, 72]. Mi konkrét példaképpen a 3-fotonos lekonverzió során keletkező fényt vizsgáltuk. A kiindulási állapotban a pumpa módban $|9\rangle$ koherens állapot volt. A 19. ábrán egy $\gamma t = 0.024$ ideig fejlődő állapot Wigner eloszlásfüggvényét mutatjuk be, amelynek fotonszám várhatóértéke 4. A példánkban szereplő



19. ábra: A Wigner eloszlásfüggvénye egy csillag állapotnak, amelyben a fotonszám várhatóértéke 4.

állapot (n, n) -ed rendű normál rendezett korrelációs-függvényét numerikusan tudjuk meghatározni Fock együtthatói felhasználásával. Hasonlítsuk össze a koherens, erősen összenyomott vákuum, termikus és háromágú csillag állapotok hatékonyságát 2- és 3-fotonos elnyelési folyamatokban. Az első három állapot esetében analitikusan

meghatározhatók a normál rendezett korrelációs-függvények [93]:

$$\begin{aligned} G_{coh}^{(n,n)} &= I^n, \\ G_{th}^{(n,n)} &= n! I^n, \\ G_{sq}^{(n,n)} &= (2n-1)!! I^n, \end{aligned} \quad (4.3.19)$$

ahol $I = G^{(1,1)} = \langle \hat{a}^\dagger \hat{a} \rangle$. Az 5. táblázatban a másod- és harmadrendű korrelációs-függvényeit tüntettük fel néhány intenzitás értékre a koherens, erősen összenyomott vákuum, termikus és háromágú-csillag állapotokra. Jól látható, hogy a csillag állapot jóval nagyobb valószínűséggel indukál 2-fotonos abszorpciót mint a másik három állapot. A 3-fotonos abszorpció során még ennél is nagyobb, több nagyságrendnyi a különbség.

A jelenség egy lehetséges szemléletes magyarázata a következő: a pumpa és jel módus $c_{nm}^{(k)}(t)$ fotonszám kifejtési együtthatóiból képezzünk sűrűségmátrixot. Kiátlagolva a pumpa módusra nyerjük a csillag állapot $\varrho_{ij}^{(cs)}$ sűrűségmátrixát. Ez a mátrix ritka, mert csak minden harmadik eleme nem nulla. Az n -fotonos abszorpció valószínűsége az állapot (n, n) -ed rendű korrelációs-függvényével arányos, amely jelen esetben:

$$G_{csillag}^{(n,n)} = \sum_{l=n}^{\infty} 3l(3l-1)\dots(3l-n+1) \varrho_{3l,3l}^{(cs)}. \quad (4.3.20)$$

A diagonális $\varrho_{3l,3l}^{(cs)}$ mátrixelemek nagyon lassan tartanak nullához, jóval lassabban mint a koherens vagy termikus állapot esetében, azaz a nagy fotonszámú állapotok is viszonylag nagy valószínűséggel vannak jelen a csillag állapotban. Ezért a (4.3.20) képletben az összegzés során számottevő súlyt kapnak a $3l(3l-1)\dots(3l-n+1)$ faktorok l nagy értéke esetén is, amely jelentősen megnöveli $G_{csillag}^{(n,n)}$ értékét.

A 4.1.2 szakaszban láttuk, hogy a 3-fotonos lekonverzióban csak nagyon kis intenzitású csillag állapotot lehet előállítani az ismert nemlineáris anyagokkal. Vizsgáljuk meg azt, hogy erősítés után az állapot sokfotonos abszorpciós tulajdonsága hogyan változik meg. A parametrikus erősítőt Heisenberg képpen a

$$\hat{c} = \sqrt{A} \hat{a} + \sqrt{A-1} \hat{b}^\dagger \quad (4.3.21)$$

egyenlettel lehet jellemezni, ahol $\hat{a}$ a bejövő jel foton eltüntető, $\hat{b}^\dagger$ a segéd mező foton keltő, $\hat{c}$ az erősített jel foton eltüntető operátorai. Az A erősítési tényező a parametrikus

	$G^{(2,2)}$	$G^{(3,3)}$
$G^{(1,1)} = 1.1$		
Koherens	1.2	1.3
Termikus	2.4	8
Squeezed	3.6	20
Csillag	55	8395
$G^{(1,1)} = 2.2$		
Koherens	4.8	10.6
Termikus	9.7	64
Squeezed	16	196
Csillag	191	33883
$G^{(1,1)} = 4.7$		
Koherens	22.5	104
Termikus	45	623
Squeezed	68	1557
Csillag	563	105625

5. táblázat: Normál rendezett korrelációs-függvények értékei néhány nevezetes állapotra, különböző $G^{(1,1)}$ fotonszám várhatóértékek mellett.

közelítés miatt arányos a pumpa mező amplitúdójával. A (4.3.21) képletben látható, hogy a jel és segéd mezők elkerülhetetlenül keverednek egymással az erősítőben, azaz az erősítési folyamat mindenképpen zajt visz az erősített jelbe. Egy nemklasszikus állapot "nemklasszikussága" általában nagyon érzékeny a környezeti zajokra, és már egész kis zaj hozzáadásával is eltűnik [94]. Megmutatjuk, hogy a csillag állapotnak az a tulajdonsága, hogy kiemelkedően nagy valószínűséggel indukál sokfotonos abszorpciót, nem romlik el az erősítés hatására. Ehhez kiszámítjuk, hogy a felerősített jel (n, n) -ed rendű korrelációs-függvénye hogyan függ a bemenő jel korrelációs-függvényeitől, feltételezve, hogy az erősítő bemenetén a segédmező vákuum állapotban van. A kimenő

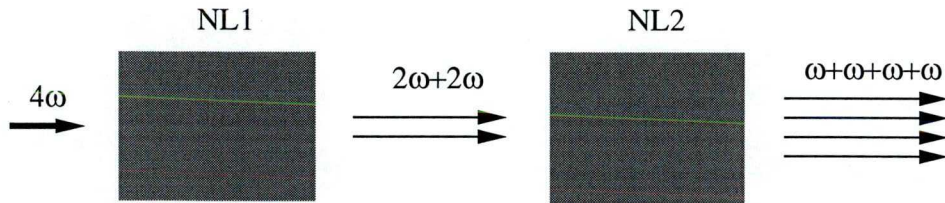
jel $G_{out}^{(n,n)}$ korrelációs-függvénye $n=2$ -re

$$G_{out}^{(2,2)} = A^2 G_{in}^{(2,2)} + 4A(A-1)G_{in}^{(1,1)} + 2(A-1)^2, \quad (4.3.22)$$

és $n=3$ esetén

$$G_{out}^{(3,3)} = A^3 G_{in}^{(3,3)} + 9A^2(A-1)G_{in}^{(2,2)} + 9A(A-1)^2 G_{in}^{(1,1)} + 6(A-1)^3. \quad (4.3.23)$$

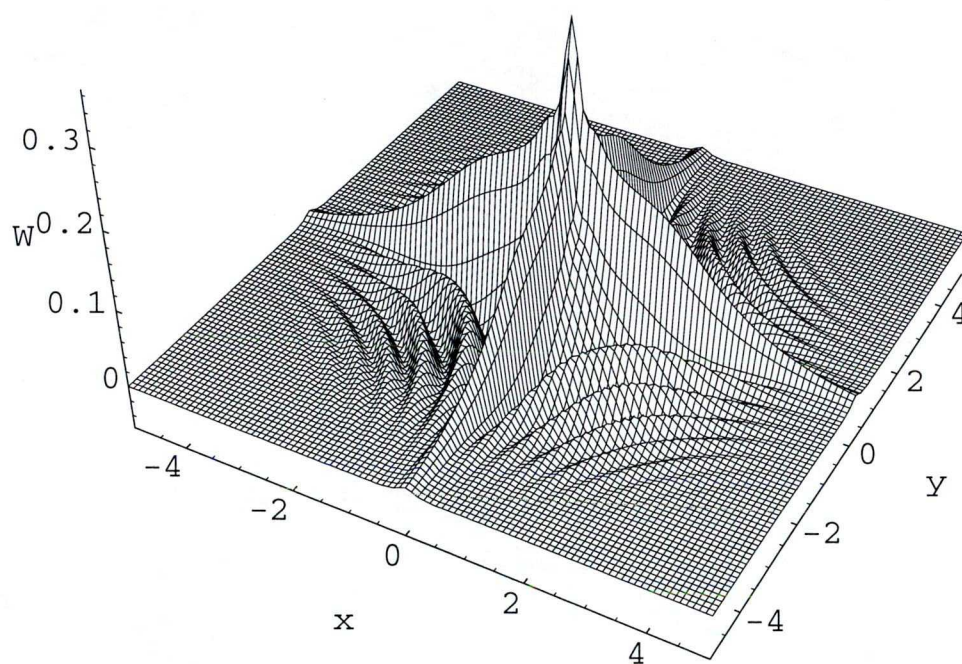
Itt $G_{in}^{(n,n)}$ a bemenő, $G_{out}^{(m,m)}$ a felerősített jel korrelációs-függvénye. A képletekből mindenekelőtt az látszik, hogy az erősítő zaja a kimenő jel korrelációs-függvényében is megjelenik. Másrészt mindkét kifejezésben valamennyi tag szorzófaktorra azonos nagyságrendű, vezető rendben arányos A^n -nel. Ennek következtében, ha egy állapot $G_{in}^{(n,n)}$ korrelációs-függvénye jóval meghaladja az n -nél alacsonyabb rendű korrelációs-függvényeit, akkor erősítés után valamennyi tulajdonságát megőrzi, amely ezzel a nagy (n,n) -ed rendű korrelációs-függvényével kapcsolatos. A konkrét példánkban szereplő csillag állapot korrelációs-függvényei $G_{in}^{(1,1)} = 4$, $G_{in}^{(2,2)} = 450$, és $G_{in}^{(3,3)} = 84100$. A másod és harmadrendű korrelációs-függvények között több, mint két nagyságrend a különbség, ezért megállapíthatjuk, hogy a csillag állapot erősítés során megőrzi kiemelkedően nagy hatékonyságát harmadrendű abszorpciós folyamatokban. Ez a következtetés magasabb rendű abszorpciós folyamatokra is igaz.



20. ábra: A kaszkád, kétszer 2-fotonos lekonverzió elvi sémája.

Az alábbiakban ismertetünk egy másik lehetőséget, amellyel megfelelő intenzitású csillag állapotot lehet előállítani. Tekintsük a 20. ábrát, amelyen két nemlineáris kristály, kaszkád elrendezésben egy kétlépcsős lekonverziós folyamatot valósít meg. Az első kristály degenerált 2-fotonos lekonverzióval összenyomott vákuum állapotot generál. A pumpa fény frekvenciája 4ω , így a megjelenő jel 2ω frekvenciájú. Az összenyomott vákuum állapot pumpaként szolgál a második nemlineáris folyamathoz, amely az elsőhöz

hasnólóan ugyancsak degenerált 2-fotonos lekonverzió, csak itt a pumpa frekvenciája 2ω és a megjelenő jelé ω . Az első folyamatot kezelhetjük parametrikus közelítésben, a második esetében viszont figyelembe kell vennünk a pumpa módus fotonstatisztikáját, ezért a fenn bemutatott teljes kvantumos eljárást alkalmazzuk. Egy konkrét példában az első nemlineáris kristály kimenetén megjelenő összenyomott állapot fotonszám várhatóértéke $\langle \hat{n}_{2\omega} \rangle = 2.9$, kvadratúra-szórásai $\Delta \hat{x} = 0.192$ és $\Delta \hat{p} = 2.595$. A második nemlineáris kristály bemenetén mint pumpa módus alkalmazzuk ezt az állapotot. A kimeneten $\gamma t = 0.5$ idő elteltével megjelenő állapot fotonszám várhatóértéke $\langle \hat{n}_\omega \rangle = 3.2$. Az állapot Wigner eloszlásfüggvényét a 21. ábrán mutatjuk be. Az ábrán jól látható, hogy az állapot kicsit zajos, de kvantuminterferencia megjelenik a karok között, és a függvénynek vannak nemklasszikus tulajdonságokra utaló negatív tartományai is. Az állapot korrelációs-függvényeit az előző példában vizsgált csillag állapotéhoz hasonlóan, numerikusan tudjuk meghatározni: $G^{(1,1)} = 3.2$, $G^{(2,2)} = 44.4$ és $G^{(3,3)} = 900$. A $G^{(k,k)}$, $k > 1$ értékek jóval meghaladják az azonos intenzitású koherens, termikus és kvadratúra-összenyomott állapotok megfelelő korrelációs-függvényeit, ezáltal beláthatjuk, hogy a kaszkád folyamatban kialakuló csillag állapot ugyancsak kiemelkedő hatékonysággal indukál sokfotonos abszorpciót.



21. ábra: A kaszkád folyamat kimenetén megjelenő állapot Wigner eloszlásfüggvénye.

Összefoglalás

A Ph.D. értekezésemben nemklasszikus állapotok előállításával és tulajdonságaik vizsgálatával foglalkozom. Az alábbiakban összefoglalom a főbb területeket, amelyeket vizsgáltam. A témához kapcsolódó publikációimat az összefoglalás utáni jegyzékben adom meg, a hivatkozások itt ezekre vonatkoznak.

Legfontosabb eredményeim:

1. Kidolgoztam egy konstruktív eljárást a harmonikus oszcillátor tetszőleges állapotának reprezentálására a fázistér valamely folytonos egy-dimenziós görbéje mentén. A módszer lényege, hogy a reprezentáció súlyfüggvényét valamely teljes ortogonális polinomhalmaz elemei szerint kifejttem, és a kifejtési együtthatókat az állapot Fock együtthatóinak a felhasználásával fejezem ki. A módszert alkalmaztam a koherens és a fázisoptimalizált állapotok reprezentálására a fázistér valós tengelyének különböző szakaszain. Levezettem egy összefüggést a folytonos koherens állapot reprezentáció és a vákuumállapot körüli Bargmann állapot reprezentáció között. Megmutattam azt is, hogy az egy-dimenziós, folytonos koherens állapot reprezentáció kiindulási pontul szolgálhat egy állapot diszkrét koherens állapot reprezentációjának megtalálásához [VI].

2. Új mérési elrendezést javasoltam a fény kvantumállapotához rendelt kvázi-valószínűségeloszlás függvény rekonstruálására. A kaszkád homodin mérésben a szimmetrikus és az aszimmetrikus homodin mérés összekapcsolása egy olyan mérési elrendezést eredményez, amelyben az állapot s -paraméterezett kvázi-valószínűségeloszlás függvénye lokálisan rekonstruálható egy kísérleti szempontból is reális méréssel. A módszer mellékeredménye, hogy megtaláltam a generátorfüggvényét azoknak a mintafüggvényeknek, amelyek a szimmetrikus homodin mérésben a sűrűségmátrix diagonális elemeit szolgáltatják Fock reprezentációban [VIII].

3. Megmutattam azt, hogy egy kétatomos molekulában két rövid, transzformáció-limitált fényimpulzussal rezgési Schrödinger-macska állapotot lehet kelteni a gerjesztett elektronállapothoz tartozó rezgési potenciálfelületen. Ilyenkor a molekula két nukleonjának a távolsága két különböző távolság szuperpozíciója [I,II,III].

4. Meghatároztam sokatomos molekulák rezgési állapotát, amely egy gyenge, transzformáció-limitált fényimpulzus hatására alakul ki Franck-Condon átmenet során. Kimutattam, hogy a gerjesztés hatására két rezgési módus összefonódott állapotba kerülhet, ha a normálrezgési frekvenciák aránya kifejezhető kis egész számok hányadosával. Az összefonódottság mérésére a von Neumann-féle statisztikus entrópiát használtam [IV,V].

5. Kimutattam, hogy egy nemlineáris optikai kristályban, k -fotonos lekonverziós folyamatban kialakuló fény (csillag állapot) kiemelkedő hatékonysággal indukál sokfotonos abszorpciót. Megmutattam, hogy a csillag állapotú fény erősíthető parametrikus erősítőben anélkül, hogy a sokfotonos abszorpcióban mutatott nagy hatékonysága jelentősen lecsökkenne. Ismertettem egy kaszkád elrendezésű fényforrást, amelyben két 2-fotonos lekonverziós folyamat követi egymást, és az így kialakuló csillag állapotról megmutattam, hogy ugyancsak kiemelkedő hatékonysággal vesz részt sokfotonos abszorpciós folyamatban [VII].

Az értekezés témájához kapcsolódó publikációk

- [I] J. Janszky, A. V. Vinogradov, T. Kobayashi, Z. Kis, *Vibrational Schroedinger-cat states*, Phys. Rev. A **50**, 1777-1784 (1994).
- [II] Z. Kis, J. Janszky, A. V. Vinogradov, P. Adam, *Unusual vibrational states*, Proceedings II. Central-European Workshop on Quantum Optics, Budapest, pp. 27-30 (1994).
- [III] Z. Kis, J. Janszky, A. Vinogradov, T. Kobayashi, *Vibrational Schrödinger Cats*, Proc. 4. ICSSUR, NASA Conf. Publ. **3322**, pp. 109-114 (1996).
- [IV] Z. Kis, J. Janszky, P. Adam, A. Vinogradov, T. Kobayashi, *Entangled vibrational states in polyatomic molecules*, Phys. Rev. A **54**, 5110-5117 (1996).
- [V] J. Janszky, Z. Kis, P. Adam, *Correlated and squeezed vibrational states in polyatomic molecules*, Acta Phys. Slov. **47**, 217-224 (1997).
- [VI] Z. Kis, J. Janszky, P. Adam, *Generalized one-dimensional representation in quantum optics*, Acta Phys. Slov. **47**, 299-302 (1997).
- [VII] J. Janszky, Z. Kis, and P. Adam, *Star States*, Progress of Physics **46**, 829-836 (1998).
- [VIII] Z. Kis, T. Kiss, J. Janszky, P. Adam, S. Wallentowitz, and W. Vogel, *Local Sampling of Phase-Space Distributions by Cascaded Optical Homodyning*, Phys. Rev. A. **59**, R39-R42 (1999).

Az értekezésben fel nem dolgozott, további publikációim

- [a] Z. Kis, P. Adam, J. Janszky, *Properties of states generated by excitations on the amplitude squeezed state*, Phys. Lett. A **188**, 16-20 (1994).
- [b] S. Szabo, Zs. Kis, J. Janszky, P. Adam, T. Kobayashi, A. V. Vinogradov, *Planning of nonclassical vibrational states*, Acta Phys. Hung. **74**, 409-418 (1994).
- [c] S. Szabo, Zs. Kis, P. Adam, J. Janszky, *Number-phase uncertainty properties of the Gaussian arc distribution function*, Quantum Optics **6**, 527-539 (1994).

- [d] Z. Kis, J. Janszky, P. Adam, *Wigner function description of a generalized two-dimensional oscillator*, Acta Phys. Slov. **45**, 375-378 (1995).
- [e] M. Koniorczyk, J. Janszky, Z. Kis, *Particle Number Teleportation*, Phys. Lett. beküldve

Summary

In my Ph.D. thesis I have considered generation of nonclassical quantum states of simple physical systems. I have worked out some methods for the investigation of the properties of these states also. Below I summarize briefly my main results:

1. I have derived a method to represent any state of the quantum harmonic oscillator along an arbitrary, continuous curve in phase-space by a continuous superposition of coherent states. It is well known, that coherent states of the harmonic oscillator form an overcomplete basis set in phase-space. Because of the overcompleteness, a subset of coherent states still can be complete. It has been shown earlier, that the quadrature squeezed eigenstates of the harmonic oscillator can be represented by continuous superposition of coherent states along the real axis in phase-space. Moreover, a constructive procedure has been proposed to find the weight function for the continuous coherent state representation of a state along the real axis.

In my method the curve along which the superposition takes place can have arbitrary shape in principle. The weight function of the superposition is expressed in terms of the Fock state expansion coefficients of the state. The basic idea of the method is to develop the weight function into a series of orthonormal polynomials. For mathematical convenience it is assumed, that the Fock state expansion of the state is given in an arbitrarily large, finite dimensional, truncated Hilbert space.

The expression for the derived weight function can be easily evaluated choosing a certain set of polynomials. The weight function does not necessarily exist as an ordinary function, it can be a distribution also if the dimension of the truncated Hilbert space tends to infinity.

2. I have proposed a feasible experimental scheme, in which the s -parameterized quasi-probability density function associated with the state of a light field can be locally reconstructed. I proceeded from the unbalanced homodyning which yields a local method for reconstructing the phase-space distribution of a light field. The signal field is superimposed by the local oscillator whose intensity and phase uniquely define the point in phase space where the quasiprobability of the signal field is reconstructed. That is, this method yields a local reconstruction of the quantum state for

each point in phase space independently. Therefore, the density of the chosen set of phase-space points has no impact on the quality of the reconstructed quasiprobabilities, contrary to the situation in homodyne tomography. For applying this method one has to discriminate between n and $n+1$ photons, which is a non-trivial task with available photo-detection devices.

I have solved this problem by combining the unbalanced homodyne scheme for the local reconstruction of phase-space distributions and the phase-randomized balanced homodyne detection of the photon statistics to a unified detection scheme which we call cascaded optical homodyning. Here the phase-randomized balanced homodyne detection scheme serves as the photon-counter in an unbalanced homodyne measurement. I have derived a local sampling relation for the cascaded homodyne scheme that maps the measured phase-integrated quadrature statistics directly onto the quasiprobability of the signal field for the phase-space point defined by the setting of the local-oscillator amplitude in the unbalanced subdevice. An important result is that the complete phase space can be locally probed by a universal sampling function. This is in contrast to the, in principle, infinite set of sampling functions needed for the density-matrix reconstruction via balanced optical homodyning. In my method rapidly oscillating sampling functions, that appear in balanced homodyning for large photon numbers, become superfluous. Moreover, I obtained an analytical expression for the sampling function for cascaded homodyning, which turns out to be an appropriately scaled zeroth-order pattern function known from quantum-state tomography. Consequently, the sampling function is well-behaved and the scheme is robust against noisy data.

3. I have shown, that in a diatomic molecule two short, transform-limited light pulses induce a vibrational Schrödinger-cat state during a Franck-Condon transition in the vibrational potential associated with the excited electronic state of the molecule. Let the molecule be in its ground state initially, i.e. both the electronic system and the vibrational system are in the ground state. Assume that a short, weak electric pulse arrives at the molecule which excites the electronic system. As a result, a small portion of the electronic population appears in an excited electronic level. In the excited electronic state the vibrational potential is distinct from the one in the ground

electronic state. In general both the minimum position and the shape of the vibrational potential surface change during an electronic transition.

In the course of a rapid electronic excitation the ground state vibrational wave packet preserves its shape and position. I have assumed, that the vibrational potentials can be approximated by harmonic ones. If the equilibrium position of the potential is displaced and the shape of the potential is conserved during the electronic transition there appears a vibrational coherent state in the excited potential surface. This coherent state then starts to oscillate in the harmonic potential valley. After half of the vibrational period has passed a second pulse arrives to the molecule. This pulse drops again a small amount of the vibrational ground state to the excited potential surface. As a result, we have a superposition of two coherent states in the excited potential. This state is regarded as the vibrational counterpart of the optical Schrödinger-cat state.

4. I have calculated analytically the time evolution operator and the emerging vibrational state of a polyatomic molecule in a Franck-Condon transition when the electronic system is excited with a weak, transform-limited light pulse. I considered a general polyatomic molecule but I have taken into account only two vibrational freedoms because it is enough to demonstrate the considered phenomenon.

I have analyzed the impact of the duration of the exciting pulse and the change of the vibrational surface during the excitation on the emerging vibrational state. I have shown, that the emerging vibrational state is non-entangled when the exciting pulse is very short compared to the vibrational period and the ground state vibrational potential is spherical and/or the equilibrium nuclear configuration is not rotated in the excited electronic state compared with that in the ground electronic state. If the ground state vibrational potential is nonspherical and the vibrational potential rotates during the electronic transition a very short exciting pulse induces an entangled vibrational state.

A finite exciting pulse leads to an entangled vibrational state. In the CW limit the vibrational state keeps to be entangled only if the ratio of the vibrational frequencies in the excited electronic level is the ratio of small integer numbers. I have described the deepness of entanglement by the von Neumann's statistical entropy.

5. I have shown that the absorption probability of states generated in degenerate three-photon down-conversion (so called star states) is very high in multiphoton absorption processes. As an example I compared it to coherent and thermal light. It turned out that the efficiency of absorption for this state is orders of magnitude larger than for the other considered states.

The intensity of light produced in three-photon down-conversion is very low even in an optical cavity because of the smallness of the third order nonlinear constants of the available materials. Thus the amplification of such a signal is of great practical importance. The amplification process introduces some noise inevitably into the amplified signal. I have shown that in case of star states, linear amplification does not destroy the ability for high absorption efficiency in multiphoton processes.

I have proposed an alternative way to generate star states of light with sufficient intensity. In my cascaded scheme two second-order nonlinear crystals follow each other. The pump field at frequency 4ω enters the first crystal. This crystal generates a signal field in squeezed vacuum state at frequency 2ω in a degenerate two-photon down-conversion process. The squeezed vacuum state serves as pump field for the second nonlinear crystal. In that crystal in the course of degenerate two-photon down-conversion process a signal field is generated at frequency ω . I have shown that this signal field has nonclassical properties and it also exhibits outstanding efficiency in multiphoton absorption processes.

Köszönetnyilvánítás

Ezúton szeretném megköszönni témavezetőmnek, Janszky Józsefnek a közös munkában nyújtott segítséget és a sok hasznos tanácsát. Külön szeretném kiemelni a leglényegesebbet, amit tőle tanultam: bonyolult problémákról is lehet egyszerűen gondolkodni.

Továbbá köszönöm közvetlen munkatársaim Ádám Péter, Kiss Tamás, Szabó Szilárd, Domokos Péter együttműködését és munkámmal szemben támasztott kritikáját, amely sokat segített egy-egy probléma megoldásában.

Irodalom

- [1] R. J. Glauber, Phys. Rev. **131**, 2766 (1963).
- [2] W. H. Louisell, *Quantum Statistical Properties of Radiation* (John Wiley & Sons, 1990).
- [3] R. L. Stratonovich, Sov. Phys. JETP **31**, 1012 (1956).
- [4] A. Czirják and M. G. Benedict, Quantum Semiclass. Opt. **8**, 975 (1996).
- [5] M. G. Benedict and A. Czirják, *Fifth International Conference on Squeezed States and Uncertainty Relations*, 269 (1998).
- [6] A. Perelomov, *Generalized Coherent States and Their Applications* (Springer-Verlag, 1986).
- [7] K. E. Cahill, Phys. Rev. **138**, B1566 (1965).
- [8] J. Janszky, A. V. Vinogradov, Phys. Rev. Lett. **64**, 2771 (1990).
- [9] C. M. Caves, Phys. Rev. D. **23**, 1693 (1981).
- [10] B. E. Saleh, M. C. Teich, Phys. Rev. Lett. **58**, 1656 (1987).
- [11] R. Loudon and P. L. Knight, J. Mod. Opt. **34**, 3974 (1986).
- [12] P. Adam, I. Földesi, and J. Janszky, Phys. Rev. A, **49**, 1281 (1994).
- [13] H. Moya-Cessa, S. Wallentowitz, and W. Vogel, sent to Phys. Rev. A
- [14] G. B. Arfken and H. J. Weber, *Mathematical Methods for Physicists* (Academic Press, 1995).
- [15] G. S. Summy, D. T. Pegg, Opt. Commun. **77**, 75 (1990).
- [16] D. T. Pegg, S. M. Barnett, Europhys. Lett. **6**, 483 (1988).
- [17] M. Abramowitz and I. A. Stegun, *Handbook of Mathematical Functions*, (Dover Publications, Inc. 1970).

- [18] J. Janszky, P. Domokos, S. Szabo, and P. Adam, Phys. Rev. A **51**, 4191 (1995).
- [19] S. Szabo, P. Adam, J. Janszky, and P. Domokos, Phys. Rev. A **53**, 2698 (1996).
- [20] P. Adam, S. Szabo, and J. Janszky, Phys. Lett. A **215**, 229 (1996).
- [21] W. Pauli, *Handbuch der Physik* eds. H. Geiger and K. Scheel (1933).
- [22] K. Vogel and H. Risken, Phys. Rev. A **40**, 2847 (1989).
- [23] K. E. Cahill and R. J. Glauber, Phys. Rev. **177**, 1857 (1969); em ibid. **177**, 1882 (1969).
- [24] R. J. Glauber, Phys. Rev. Lett. **10**, 84 (1963).
- [25] E. C. G. Sudarshan, Phys. Rev. Lett. **10**, 277 (1963).
- [26] E. P. Wigner, Phys. Rev. **40**, 749 (1932a).
- [27] M. Hillery, R. F. O'Connell, M. O. Scully, and E. P. Wigner, Phys. Rep. **106**, 121 (1984).
- [28] J. Radon, *Berichte über die Verhandlungen der Königlich-Sächsischen Gesellschaft der Wissenschaften zu Leipzig, Mathematisch-Physische Klasse* **62**, 262 (1917).
- [29] D. T. Smithey, M. Beck, M. G. Raymer, A. Faridani, Phys. Rev. Lett. **70**, 1244 (1993).
- [30] H. P. Yuen, and V. W. S. Chan, Opt. Lett. **8**, 177 (1983).
- [31] G. L. Abbas, V. W. S. Chan, and T. K. Yee, Opt. Lett., **8**, 419 (1983).
- [32] E. S. Polzik, J. Carry, H. J. Kimble, Phys. Rev. Lett. **68**, 3020 (1992).
- [33] G. M. D'Ariano, C. Macchiavello, and M. G. A. Paris, Phys. Rev. A **50**, 4298 (1994).
- [34] G. M. D'Ariano, U. Leonhardt, H. Paul, Phys. Rev. A **52**, R1801 (1995).

- [35] U. Leonhardt, H. Paul, and G. M. D'Ariano, Phys. Rev. A **52**, 4899 (1995).
- [36] U. Leonhardt, M. G. Raymer, Phys. Rev. Lett. **76**, 1989 (1996).
- [37] U. Leonhardt, M. Munroe, T. Kiss, Th. Richter, M. G. Raymer, Opt. Commun. **127**, 144 (1996).
- [38] S. Wallentowitz and W. Vogel, Phys. Rev. A **53**, 4528 (1996).
- [39] S. Wallentowitz, R. L. de Matos Filho, and W. Vogel, Phys. Rev. A **56**, 1205 (1997).
- [40] L. Mandel, Proc. Phys. Soc. Lond. **72**, 1037 (1958).
- [41] L. Mandel and E. Wolf, Optical Coherence and Quantum Optics (1995).
- [42] P. L. Kelley and W. H. Kleiner, Phys. Rev. **136**, A316 (1964).
- [43] H. Paul, P. Törmä, T. Kiss, and I. Jex, Phys. Rev. Lett., **76**, 2464 (1996).
- [44] M. Munroe, D. Boggavarapu, M. E. Anderson, and M. G. Raymer, Phys. Rev. A **52**, R924 (1995).
- [45] U. Leonhardt, *Measuring the Quantum State of Light* (Cambridge University Press, 1997).
- [46] Chap. 6.10 of W.H. Press, S.A. Teukolsky, W.T. Vetterling, and B.P. Flannery, *Numerical Recipes in C* (Cambridge University Press, 1995).
- [47] S. Schiller, G. Breitenbach, S. F. Pereira, T. Müller, and J. Mlynek, Phys. Rev. Lett. **77**, 2933 (1996).
- [48] G. Breitenbach, S. Schiller, and J. Mlynek, Nature **387**, 471 (1997).
- [49] Kapuy Ede és Török Ferenc, *Az atomok és molekulák kvantumelmélete*, (Akadémiai Kiadó, 1975).
- [50] L. D. Landau és E. M. Lifsic, *Kvantummechanika*, (Tankönyvkiadó, 1978).
- [51] M. Born und R. Oppenheimer, Ann. der Phys. **84**, 457 (1927).

- [52] G. Herzberg, *Molecular Spectra and Molecular Structure*.
- [53] Condon, Am. J. Phys. **15**, 365 (1947).
- [54] Herzberg, *Molecular Spectra, vol I. Diatomic Molecules*, (1950).
- [55] D. J. Tannor and S. A. Rice, J. Chem. Phys. **83**, 5013 (1985).
- [56] G. Szabó, *Quantum Control of Reaction Dynamics* (invited lecture in the Fifth International Conference on Squeezed States and Uncertainty Relations, 1997 Budapest).
- [57] An. V. Vinogradov and J. Janszky, Sov. Phys. JETP **73**, 211 (1991).
- [58] J. Janszky, An. V. Vinogradov, I. A. Walmsley, and J. Mostowski, Phys. Rev. A **50**, 732 (1994).
- [59] F. Duschinsky, Acta Physiocochem. **7**, 551 (1937).
- [60] N. J. D. Lucas, J. Phys. B: Atom. Molec. Phys. **6**, 155 (1973).
- [61] E. V. Doktorov, I. A. Malkin, and V. I. Man'ko, Journal of Mol. Spect. **64**, 302 (1977).
- [62] J. D. Jackson, *Classical Electrodynamics*, (John Wiley & Sons, Inc. 1962).
- [63] A. Yariv, *Quantum Electronics*, (John Wiley & Sons, Inc. 1989).
- [64] P. A. Franken, A. E. Hill, C.W. Peters, and G. Weinreich, Phys. Rev. Lett. **7**, 118 (1961).
- [65] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. S. Pershan, Phys. Rev. **127**, 1918 (1962).
- [66] J. A. Giordmaine, and R. C. Miller, Phys. Rev. Lett. **14**, 973 (1965).
- [67] W. H. Louisell, A. Yariv, and A. E. Siegman, Phys. Rev. **124**, 1646 (1961).
- [68] P. Lambropoulos, Phys. Rev. **156**, 286 (1967).

- [69] J. E. Midwinter, and J. Warner, J. Appl. Phys. **38**, 519 (1967).
- [70] J. Warner, Appl. Phys. Lett. **12**, 222 (1968).
- [71] D. F. Walls and C. T. Tindle, J. Phys. A **5**, 534 (1972).
- [72] J. Mostowski and K. Rzażewski, Phys. Lett **66A**, 275 (1978).
- [73] Y. H. Shih and C. O. Alley, Phys. Rev. A **61**, 2921 (1988).
- [74] P. G. Kwiat, K. Mattle, H. Weinfurter, and A. Zeilinger, Phys. Rev. Lett **75**, 4337 (1995).
- [75] T. E. Keller and M. H. Rubin, Phys. Rev. A **56**, 1534 (1997).
- [76] H. P. Yuen, Phys. Rev. A **13**, 2226 (1976).
- [77] H. P. Yuen and J. H. Shapiro, Opt. Lett. **4**, 334 (1976).
- [78] D. F. Walls, Nature **306**, 141 (1983).
- [79] P. Loudon, and P. L. Knight, J. Mod. Opt. **34**, 709 (1987).
- [80] R. A. Fisher, M. M. Nieto, and V. D. Sandberg, Phys. Rev. D **29**, 1107 (1984).
- [81] S. L. Braunstein and R. I. McLachlan, Phys. Rev. A **35**, 1659 (1987).
- [82] P. V. Elyutin and D. N. Klyshko, Phys. Lett. **149A**, 241 (1990).
- [83] M. Hillery, Phys. Rev. A **42**, 498 (1990).
- [84] G. Drobný and I. Jex, Phys. Rev. A **45**, 4897 (1992).
- [85] K. Banaszek and P. L. Knight, Phys. Rev. A **55**, 2368 (1997).
- [86] T. Felbinger, S. Schiller, and Jürgen Mlynek, Phys. Rev. Lett. **80**, 492 (1998).
- [87] P. Lambropoulos, C. Kikuchi, and R. K. Osborne, Phys. Rev. **144**, 1081 (1966).
- [88] M. C. Teich and G. J. Wolga, Phys. Rev. Lett **16**, 625 (1966).
- [89] S. Carusotto, G. Fornaca, and E. Polacco, Phys. Rev. **157**, 1207 (1967).

- [90] P. Lambropoulos, Phys. Rev. **168**, 1418 (1968).
- [91] B. R. Mollow, Phys. Rev. **175**, 1555 (1968).
- [92] G. S. Agarwal, Phys. Rev. A **1**, 1445 (1970).
- [93] J. Janszky and Y. Yushin, Phys. Rev. A **36**, 1288 (1987).
- [94] J. Janszky and T. Kobayashi, Phys. Rev. A **41**, 4074 (1990).