

Fyzika laserových generátorů

Ramanův ozpyt

Jan Šulc

Katedra fyzikální elektroniky
České vysoké učení technické
jan.sulc@fjfi.cvut.cz

13. května 2021

Hamiltonián atomu v elektromagnetickém poli

- ▶ Elmag. pole

$$\vec{E} = -\text{grad } \varphi - \frac{\partial \vec{A}}{\partial t}, \quad \vec{B} = \text{rot } \vec{A}$$

- ▶ Atom = elektron ve statickém kulově symetrickém potenciálu $V(\vec{r})$
- ▶ Spin a další relativistické efekty zanedbán
- ▶ Hamiltonián atomu v elektromagnetickém poli:

$$\hat{H} = \frac{1}{2m_e} (\hat{\vec{p}} - e\hat{\vec{A}})^2 + e(\hat{\varphi} + V(\vec{r})) + \hat{H}_r$$

$$\hat{H} = \hat{H}_a + \hat{H}_r + \hat{H}_i$$

- ▶ Hamiltonián atomu

$$\hat{H}_a = \frac{\hat{\vec{p}}^2}{2m_e} + eV(\vec{r})$$

- ▶ Hamiltonián pole bez atomu

$$\hat{H}_r = \sum_{\lambda} \hbar\omega_{\lambda} (\hat{a}_{\lambda}^{\dagger} \hat{a}_{\lambda} + 1/2)$$

- ▶ Hamiltonián interakce atom – pole

$$\hat{H}_i = \hat{H}_{ar} + \hat{H}_{rr} = -\frac{e}{m_e} \hat{\vec{A}} \cdot \hat{\vec{p}} + \frac{e^2}{2m_e} \hat{\vec{A}}^2$$

Hamiltonián interakce atomu v elektromagnetickém poli

- ▶ Hamiltonián interakce atom – pole

$$\hat{H}_i = \hat{H}_{ar} + \hat{H}_{rr} = -\frac{e}{m_e} \hat{\mathbf{A}}(\vec{r}) \cdot \hat{\mathbf{p}} + \frac{e^2}{2m} \hat{\mathbf{A}}^2(\vec{r})$$

- ▶ Operátor vektorového potenciálu

$$\hat{\mathbf{A}}(\vec{r}) = \sum_{\lambda} \kappa_{\lambda} \vec{e}_{\lambda} \left(\hat{a}_{\lambda} e^{i\vec{k}_{\lambda} \cdot \vec{r}} + \hat{a}_{\lambda}^{\dagger} e^{-i\vec{k}_{\lambda} \cdot \vec{r}} \right) \quad \text{kde} \quad \kappa_{\lambda} = \sqrt{\frac{\hbar}{2\omega_{\lambda} \epsilon_0 L^3}}$$

- ▶ Vlna delší než atom, rozvoj $\vec{A}(\vec{r}, t)$ do Mac-Laurinovy řady v okolí $\vec{r} = 0$:

$$\vec{A}(\vec{r}, t) = \vec{A}(0, t) + (\vec{r} \cdot \vec{\nabla}) \vec{A}(0, t) +$$

$$e^{\pm i\vec{k}_{\lambda} \cdot \vec{r}} = 1 \pm i\vec{k}_{\lambda} \cdot \vec{r} \pm \dots \doteq 1$$

- ▶ Potom (dipólové přiblížení $\vec{A}(\vec{r}, t) \approx \vec{A}(0, t)$):

$$\hat{H}_{ra} = -\frac{e}{m_e} \sum_{\lambda} \kappa_{\lambda} \left(\hat{a}_{\lambda} + \hat{a}_{\lambda}^{\dagger} \right) \left(\vec{e}_{\lambda} \cdot \hat{\mathbf{p}} \right)$$

$$\hat{H}_{rr} = \frac{e^2}{2m_e} \sum_{\lambda, \lambda'} \kappa_{\lambda} \kappa_{\lambda'} \left(\vec{e}_{\lambda} \cdot \vec{e}_{\lambda'} \right) \left(\hat{a}_{\lambda} \hat{a}_{\lambda'}^{\dagger} + \hat{a}_{\lambda}^{\dagger} \hat{a}_{\lambda'} + \hat{a}_{\lambda} \hat{a}_{\lambda'} + \hat{a}_{\lambda}^{\dagger} \hat{a}_{\lambda'}^{\dagger} \right)$$

- Počáteční a konečný stav systému atomu – pole (dva fotony):

$$|i\rangle = |a, n_i, n_f\rangle, \quad |f\rangle = |b, n_i - 1, n_f + 1\rangle$$

- Počáteční a konečná energie systému atomu – pole:

$$E_i = E_a + \hbar\omega_i n_i + \hbar\omega_f n_f, \quad E_f = E_b + \hbar\omega_i(n_i - 1) + \hbar\omega_f(n_f + 1)$$

- V prvním řádu teorie poruch je $\langle i|\hat{H}_{ra}|f\rangle = 0$. Nenulové mohou být jen $\langle i|\hat{H}_{rr}|f\rangle$ pokud se nezmění stav atomu ($\langle a|b\rangle = \delta_{ab}$)

$$\langle i|\hat{H}_{rr}|f\rangle = \frac{e^2}{m} \kappa_i \kappa_f (\vec{e}_i \cdot \vec{e}_f) \sqrt{n_i(n_f + 1)} \delta_{ab}$$

- Amplituda pravděpodobnosti přechodu $|i\rangle \rightarrow |f\rangle$ v prvním řádu teorie poruch:

$$c^{(1)}(f, t|i, t_0) = \frac{1}{i\hbar} \int_{t_0}^t e^{i\omega_f t_1} \langle i|\hat{V}_s|f\rangle dt_1 = -\frac{e^2(\vec{e}_i \cdot \vec{e}_f)\delta_{ab}}{4m\epsilon_0 L^3} \sqrt{\frac{n_i(n_f + 1)}{\omega_i \omega_f}} \frac{e^{i\omega_f t} - 1}{\omega_f}$$

- Raman, coby nepružný rozptyl, má $|a\rangle \neq |b\rangle$

- ▶ Oprava druhého řádu:

$$c^{(2)}(f, t|i, t_0) = \left(\frac{1}{i\hbar}\right)^2 \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \langle f|\hat{V}'(t_1)\hat{V}'(t_2)|i\rangle$$

- ▶ Mezi $\hat{V}'(t_1)\hat{V}'(t_2)$ vložíme $\hat{1} = \sum_l |l\rangle\langle l|$ (zřejmě $\hat{H}_a|l\rangle = E_l|l\rangle$) a přejdeme k Schrödingerově reprezentaci $\hat{V}' = \hat{U}_0 \hat{V}^S \hat{U}_0^\dagger$:

$$c^{(2)}(f, t|i, t_0) = \left(\frac{1}{i\hbar}\right)^2 \int_{t_0}^t dt_1 \int_{t_0}^{t_1} dt_2 \sum_l \langle f|\hat{V}^S|l\rangle\langle l|\hat{V}^S|i\rangle e^{i(\omega_f(t_1-t_0)+\omega_l(t_2-t_0))}$$

- ▶ Najdeme si vhodný intermediální stav $|k\rangle = |\mathcal{I}, n'_i, n'_f\rangle$, aby

$$\begin{aligned} 0 \neq \langle f|\hat{H}_{ra}|k\rangle\langle k|\hat{H}_{ra}|i\rangle &= \frac{e^2}{m_e^2} \sum_\lambda \sum_{\lambda'} \kappa_\lambda \kappa_{\lambda'} \langle b|\vec{e}_\lambda \cdot \hat{\vec{p}}|\mathcal{I}\rangle\langle \mathcal{I}|\vec{e}_{\lambda'} \cdot \hat{\vec{p}}|a\rangle \\ &\quad \times \langle n_i - 1, n_f + 1|\hat{a}_\lambda + \hat{a}_\lambda^\dagger|n'_i, n'_f\rangle\langle n'_i, n'_f|\hat{a}_{\lambda'} + \hat{a}_{\lambda'}^\dagger|n_i, n_f\rangle = \\ &= \frac{e^2 \hbar}{2m_e \epsilon_0 L^3} \sqrt{\frac{n_i(n_f + 1)}{\omega_i \omega_f}} \times \begin{cases} (\vec{p}_{b\mathcal{I}} \cdot \vec{e}_f)(\vec{p}_{\mathcal{I}a} \cdot \vec{e}_i) & \text{pro } |k\rangle = |\mathcal{I}, n_i - 1, n_f\rangle \\ (\vec{p}_{b\mathcal{I}} \cdot \vec{e}_i)(\vec{p}_{\mathcal{I}a} \cdot \vec{e}_f) & \text{pro } |k\rangle = |\mathcal{I}, n_i, n_f + 1\rangle \end{cases} \end{aligned}$$

kde $\vec{p}_{b\mathcal{I}} = \langle b|\hat{\vec{p}}|\mathcal{I}\rangle$ a $\vec{p}_{\mathcal{I}a} = \langle \mathcal{I}|\hat{\vec{p}}|a\rangle$ (a $\frac{e}{m_e} \langle s|\hat{\vec{p}}|s'\rangle = i\omega_{ss'} \langle s|\hat{\vec{x}}|s'\rangle = i\omega_{ss'} \vec{d}_{ss'}$).

- ▶ Amplituda pravděpodobnosti přechodu (součet obou nenulových výsledků a suma přes všechny možné $|I\rangle$):

$$c^{(2)}(f, t|i, t_0) = \frac{e^2 \hbar}{2m_e \epsilon_0 L^3} \sqrt{\frac{n_i(n_f + 1)}{\omega_i \omega_f}} \times \\ \times \sum_I \left[\frac{(\vec{p}_{bI} \cdot \vec{e}_i)(\vec{p}_{Ia} \cdot \vec{e}_f)}{E_I - E_a + \hbar\omega_f} + \frac{(\vec{p}_{bI} \cdot \vec{e}_f)(\vec{p}_{Ia} \cdot \vec{e}_i)}{E_I - E_a - \hbar\omega_i} \right] \frac{e^{i\omega_f t} - 1}{\omega_f}$$

- ▶ Výsledná rychlost přechodu tvoří součet přes všechny konečné stavy, tj. různé rozptýlené fotony při dodržení zákona zachování energie $\omega_f = \omega_i - (E_b - E_a)/\hbar$ plus příspěvek od prvního řádu teorie poruch. Výsledkem je diferenciální účinný průřez pro rozptyl (Kramers-Heisenbergův vztah):

$$\frac{d\sigma}{d\Omega} = r_0^2 (n_f + 1) \frac{\omega_f}{\omega_i} \left| (\vec{e}_i \cdot \vec{e}_f) \delta_{ab} - \frac{1}{m_e} \sum_I \left[\frac{(\vec{p}_{bI} \cdot \vec{e}_i)(\vec{p}_{Ia} \cdot \vec{e}_f)}{E_I - E_a + \hbar\omega_f} + \frac{(\vec{p}_{bI} \cdot \vec{e}_f)(\vec{p}_{Ia} \cdot \vec{e}_i)}{E_I - E_a - \hbar\omega_i} \right] \right|^2$$

kde

$$r_0 = \frac{e^2 \hbar}{2m_e \epsilon_0 c^2} = \frac{e^2}{4\pi \epsilon_0 \hbar c} \frac{\hbar}{m_e c} = \frac{1}{137} \frac{\hbar}{m_e c} \approx 2,8 \times 10^{-15} \text{ m}$$

je klasický poloměr elektronu.

Ramanův rozptyl

- ▶ Nepružný rozptyl pro který obecně $a \neq b$
- ▶ Zavede se Ramanův tenzor:

$$\mathcal{R} = \frac{1}{m_e} \sum_{\mathcal{I}} \left[\frac{\vec{p}_{b\mathcal{I}} \cdot \vec{p}_{\mathcal{I}a}}{E_{\mathcal{I}} - E_a + \hbar\omega_f} + \frac{\vec{p}_{a\mathcal{I}}^* \cdot \vec{p}_{\mathcal{I}b}^*}{E_{\mathcal{I}} - E_a - \hbar\omega_i} \right]$$

- ▶ Zadefinuje se frekvence Stokesova ($E_b > E_a$) a Antistokesova ($E_a > E_b$) posuvu:

$$\hbar\omega_S = \hbar\omega_i - (E_b - E_a) < \hbar\omega_i$$




$$\hbar\omega_A = \hbar\omega_i + (E_a - E_b) > \hbar\omega_i$$

- ▶ a vyjádří se příslušné účinné průřezy

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{Stokes}} = r_0^2 (n_S + 1) \frac{\omega_S}{\omega_i} |\vec{e}_S \cdot \mathcal{R} \cdot \vec{e}_i|$$

$$\left(\frac{d\sigma}{d\Omega} \right)_{\text{Antistokes}} = r_0^2 (n_A + 1) \frac{\omega_A}{\omega_i} |\vec{e}_A \cdot \mathcal{R} \cdot \vec{e}_i|$$

- ▶ Ramanův rozptyl řešen
 - ▶ plně kvantově do druhého řádu teorie poruch;
 - ▶ Hamiltonián nerelativistický bez zpětného ovlivnění polem elektronu v dlouhovlnné aproximaci;
 - ▶ intermediální stav $\hat{H}_a|I\rangle = E_I|I\rangle$.

-  LOUISELL, W. H.: *Quantum statistical properties of radiation*, John Wiley & Sons, New York, 1973
-  LADISLAV PÍNA: *Kvantová lekttronika II (Kvantová teorie interakce optického záření s látkou)*, Skriptum ČVUT FJFI, 1991.
-  Přednášky: <http://people.fjfi.cvut.cz/sulcjan1/FLT/>