

5.2. Efecte neliniare care implică două unde laser

Efectele neliniare care implică două unde laser au o importanță deosebită în una din dezvoltările cele mai importante pentru fizica fundamentală, spectroscopia neliniară. Aceste tehnici spectroscopice au un câmp de aplicații considerabil.

5.2.1. Difuzia stimulată

Pentru prima dată, conceptul de *emisie stimulată* a fost introdus de Albert Einstein în anul 1917⁽¹¹⁾, care, studiind echilibrul dintre radiația electromagnetică și un ansamblu de atomi (oscilatori) la temperatura T , a arătat că se poate regăsi formula lui Max Planck pentru radiația corpului negru, considerând drept procese fundamentale de interacție radiatie substanță: - absorbția, - emisia spontană și - emisia stimulată. Începând cu lucrările lui Londenburg și Kopferman din anul 1928 până în anii începutului deceniului al cincilea al secolului al XX-lea, diferiți cercetători au confirmat existența emisiei stimulate. Urmează descoperirea maserului^{(12), (13)} și a laserului^{(14), (15)}, dispozitive care se bazează pe fenomenul de emisie stimulată. După decoperirea laserului, aceasta conduce la dezvoltarea Opticii neliniare și la punerea în evidență a unei noi clase de efecte stimulate, *procesele de difuzie stimulată*.

La fiecare *proces de difuzie spontană* este asociat un *proces de difuzie stimulată*. Rezultatele experimentale obținute sunt reprezentate în figurile 5.16 și 5.17. În experiența de difuzie spontană (figura 5.16 a) se observă difuzia unui fascicul laser incident de frecvență ω printr-un mediu, ale cărui proprietăți optice nu sunt afectate, intensitatea fascicului laser incident fiind foarte mică. Forma spectrului luminii difuzate este dată în figura 5.16 b. Se observă că avem trei tipuri de rezonanțe care se disting prin pozițiile lor și prin semilărgimile liniilor: rezonanța Raman, rezonanța Brillouin și rezonanța Rayleigh. În experiența de difuzie stimulată (figura 5.17 a) se regăsesc cele trei tipuri de structuri, în această experiență măsurându-se intensitatea unei unde laser sondă după traversarea unui mediu difuzor pompat de o undă laser intensă (numită pompă) de frecvență ω (figura 5.17 b). Această intensitate din figura 5.17 b este înregistrată funcție de $\delta = \omega_s - \omega$, unde ω_s este frecvența undei sondă și ω este frecvența undei pompă. Din figura 5.17 b se disting din nou trei tipuri de rezonanțe având forme diferite, însă cu aceleași poziții și lărgimi ca analoagele lor spontane (figura 5.16b). Din aceeași figură (figura 5.17b) se constată că unda sondă suferă un proces de amplificare și de absorbție datorită prezenței undei pompă în mediu, acest proces fiind urma unui efect neliniar.

⁽¹¹⁾ A. Einstein, *Physikalische Zeitschrift*, **XVIII**, 121 (1917)

⁽¹²⁾ J. P. Gordon, E. J. Zeiger, C. H. Townes, *Phys. Rev.*, **95**, 282 (1954); **99**, 1264 (1954)

⁽¹³⁾ N. G. Basov, A. M. Prokhorov, *J. Exptd. Therret. Phys. (U.R.S.S)* **27**, 431 (1954); **28**, 249, (1954)

⁽¹⁴⁾ A. L. Schawlow, C. H. Townes, *Phys. Rev.* **112**, 1940 (1958)

⁽¹⁵⁾ T. H. Maiman, *Brit. Commun. Electron.*, **7**, 674 (1960); *Nature*, **187**, 493 (1960)

Eficacitatea procesului de difuzie stimulată este mult mai importantă decât cea a procesului de difuzie spontană. De exemplu, în cazul în care unda laser se propagă pe distanța de 1 cm în apă, fracțiunea luminii difuzate spontan este de circa 10^{-5} , în timp ce pentru aceeași distanță în difuzia stimulată se obțin câștiguri de 10% până la 100%, putându-se obține o oscilație laser la o frecvență decalată în raport cu o frecvență de pompaj de care dispunem.

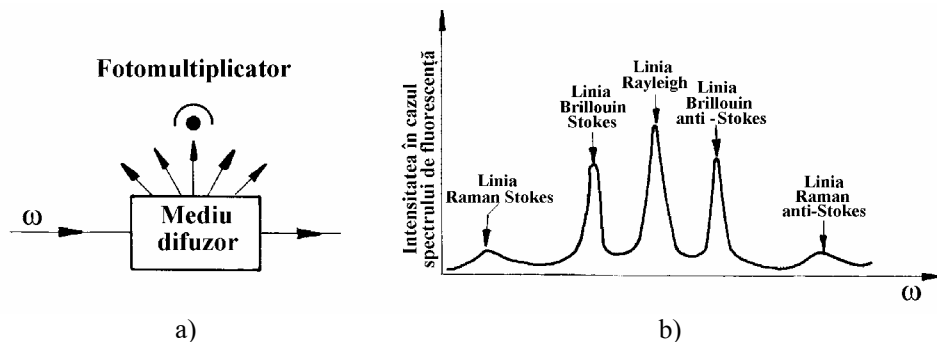


Fig. 5.16.

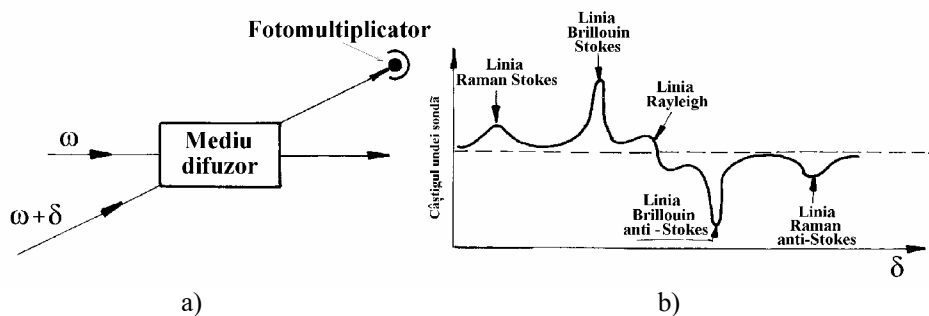


Fig. 5.17.

Modificarea intensității unei sonde în cursul interacției acesteia cu mediul neliniar provine din faptul că în mediu există o polarizație indusă având aceeași frecvență și același vector de undă ca unda sondă, însă posedând o componentă în cuadratură cu aceasta (2.9), care descrie transferul de putere între câmp și substanță. De asemenea, o caracteristică esențială a unei experiențe *undă pompă – undă sonoră* este aceea că unda sondă are o intensitate mult mai slabă decât unda pompă și, deci, modifică foarte puțin starea sistemului (câmp pompă + mediu neliniar) în interacție. Aceasta face ca rezonanțele care apar în spectrul de transmisie să fie rezultatul răspunsului liniar al polarizației mediului la excitarea cu undă sondă. cele două remarci făcute și faptul că unda pompă considerată aici nu este constituită decât dintr-o undă plană, ne permit să afirmăm că din punctul de vedere al formalismului opticii neliniare, rezonanțele care apar pe spectrul de transmisie al unei sonde sunt asociate cu existența în material a unei susceptibilități neliniare de forma

$\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$, care are partea imaginară $\chi''^{(3)}$ nenulă și anume, $\chi''^{(3)} < 0$ pentru rezonanța în cazul amplificării și $\chi''^{(3)} > 0$ în cazul absorbției. $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ prezintă un caracter rezonant pentru anumite valori ale lui $\delta = \omega_s - \omega$. Vectorul de undă al componentei polarizației asociată susceptibilității $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ este egal cu

$$\bar{K} = \bar{k}_s - \bar{k} + \bar{k} = \bar{k}_s, \quad (5.62)$$

astfel încât se poate afirma că procesul neliniar implicat în spectrul de transmisie al unei sonde satisface automat condiția de acord de fază.

La susceptibilitate neliniară de forma $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ se pot asocia două fenomene fizice:

1°. Primul fenomen constă în *modificarea indicelui complex al mediului neliniar de către câmpul pompă*, modificare care face să intervină numai unda pompă și afectează, în general, propagarea fasciculusului sondă sub o formă identică oricare ar fi frecvența sa, însă, în măsura în care ea rămâne suficient de aproape de cea a câmpului pompă. Acest fenomen se manifestă de obicei printr-o translație verticală globală a spectrului de transmisie al sondei și, deci, nu este implicat în structurile rezonante.

2°. Al doilea fenomen corespunde *interacției mediului neliniar cu câmpul rezultat din interferența dintre undele pompă și sondă*, posedând o componentă modulată temporal la frecvența de bătăi, $\delta = \omega_s - \omega$, dintre cele două unde și spațial cu un vector de undă egal cu diferența vectorilor de undă pompă și sondă. Când $\delta \ll \omega_s, \omega$, componenta respectivă poate varia suficient de lent pentru a induce în materialul neliniar modularea unei anumite observabile la o frecvență δ (de exemplu vibrația, orientarea sau densitatea moleculelor mediului). Ținând seama de caracteristicile proprii ale materialului, amplitudinea acestei modulații ar putea să varieze sub o formă rezonantă în jurul anumitor valori ale lui δ . Difracția unei pompe pe aceasta rețea a observabilei modulate temporal și spațial dă atunci naștere la o undă

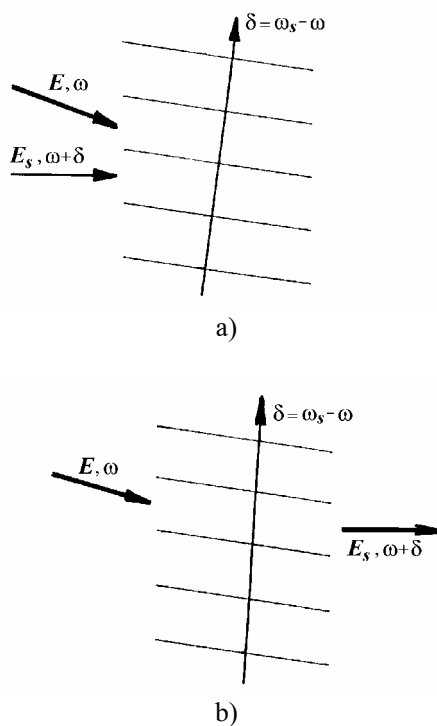


Fig. 5.18.

care are aceleași caracteristici (frecvență și vectorul de undă) ca unda sondă și, deci, poate interfera cu ea (figura 5.18). Acest fenomen este responsabil de modificarea rezonanță a intensității undei sondă, adică, de rezonanțele spectrului de transmisie. În figura 5.18 se observă că interferența dintre unda pompă $E(\omega, \bar{k})$ și unda sondă $E_s(\omega + \delta, \bar{k})$ induce în mediul neliniar o rețea a observabilei modulate temporal (frecvența δ) și spațial (vectorul de undă $\bar{k}_s - \bar{k}$) (figura 5.18a), iar difracția câmpului $E(\omega, \bar{k})$ pe această rețea conduce la o undă care are aceleași caracteristici ca unda sondă (figura 5.18b). După faza sa, unda difractată poate să interfere cu unda E_s și să conducă la atenuarea sau la amplificarea sa.

În imaginea din figura 5.18, faptul că numai partea imaginară a susceptibilității $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ contribuie la spectrul de transmisie este legat de aceea că singura componentă a câmpului difractat care este în fază cu unda sondă modifică în mod real intensitatea acesteia (componenta în cuadratură modificând indicele mediului). O astfel de componentă provine din faptul că procesele de relaxare care se produc în mediul neliniar tind, în mod constant, să-l aducă pe acesta către starea sa inițială, aceasta manifestându-se printr-o întârziere a modulației observabilelor în raport cu excitația legată de sondă. Datorită acestei întârzieri se induce în mediu o componentă în coadratură a polarizației și, ca urmare, un câmp difractat în fază.

O altă caracteristică a componentei de polarizație asociată susceptibilității neliniare $\chi^{(3)}(\omega_s; \omega_s, -\omega, \omega)$ este aceea că ea este proporțională cu amplitudinea undei sondă și cu pătratul modulului câmpului pompă, adică, cu intensitatea pompei. Ca atare, amplitudinea rezonanțelor spectrului de transmisie va fi, în general, direct proporțională cu produsul numărului de fotoni ai undei pompă și ai undei sondă prezenți în mediul neliniar, cum este de așteptat pentru un proces stimulat. În limbajul fizicii clasice înseamnă că bătăile dintre undele pompă și sondă conduc la modularea unei observabile la frecvența $\delta = \omega_s - \omega$, a cărei amplitudinea este proporțională cu produsul câmpurilor undei pompă și undei sondă. Atunci, interacția dintre unda pompă și această observabilă dă naștere la o componentă a polarizației de aceeași frecvență ca cea a undei sondă, adică, la produsul câmpului undei sondă și intensității pompei. Deci, bătaia dintre unda pompă și observabila modulată tinde să amplifice unda sondă, în timp ce bătaia dintre undele pompă și sondă tind să amplifice modulația observabilei. Ca și în §4.2, unda sondă joacă rolul de câmp semnal și observabila modulată pe cel al câmpului complementar. Această analogie dintre procesele fizice de difuzie stimulat și amestecul parametric poate fi împinsă mai departe. Într-adevăr, se poate asocia la observabila modulată un câmp de bosoni: – la vibrația moleculelor va fi asociat un câmp de fononi optici; – la o undă acustică un câmp de fononi acustici; – la o excitare electronică un câmp de excitoni; – la orientarea moleculelor o undă de orientare ș.a.m.d. Atunci, transferul de putere dintre

unda pompă și unda sondă se interpretează ca un proces de cuplaj parametric între câmpurile unei pompă și unei sondă cu emisia (sau absorbția) unui boson asociat la observabila modulată în mediul neliniar (figura 5.19). În figura 5.19a avem interpretarea procesului de câștig și în figura 5.19b a celui de absorbție pentru unda sondă în legătura cu amestecul parametric dintre unda pompă (ω), unda sondă ($\omega+\delta$) și câmpul bosonului (δ) legat de observabila modulată. În cazul procesului de câștig (figura 5.19a), absorbția unui foton al undei pompă și a unui boson este urmată de emisia stimulată a unui foton al undei sondă. În cazul procesului de absorbție (figura 5.19b), absorbția unui foton al undei sondă este urmată de emisia stimulată a unui foton al undei pompă, însoțită de generarea unui boson complementar. În ambele cazuri energia și impulsul sistemului (fotoni + bosoni) se conservă în cursul proceselor.

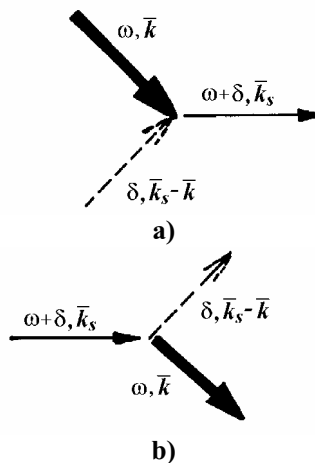


Fig. 5.19.

Aspectele diferite ale proceselor studiate sunt descrise pe diferite căi. În afară de descrierea procesului de transfer de putere între unda pompă și unda sondă via mediu, de exemplu, există și un punct de vedere complementar, bazat pe o descriere complet cuantică a sistemului (câmp + mediu). În această descriere, efectele neliniare responsabile de rezonanțele spectrului de transmisie al undei sondă sunt interpretate ca procese de difuzie de fotoni pe substanța, aceasta fiind descrisă de ansamblul nivelurilor sale cuantice. Acestea pot fi nivele electronice, de vibrație, de rotație sau un produs tensorial al acestora cu cuantele de vibrație ale mediului în ansamblul său (fononi acustici și optici), și chiar cu plasmoni, excitoni sau polaritoni. Această descriere cuantică este comodă când procesul neliniar poate fi descris cu ajutorul unui mic număr de diagrame cuantice, permițând să se obțină o interpretare naturală a pozițiilor rezonanțelor și a dependenței lor de populația nivelurilor de energie. În plus, în cazul descrierii cuantice, condițiile de conservare a energiei și impulsului sistemului (câmp + substanță) în cursul procesului neliniar apar sub o formă mai naturală decât în descrierea clasică. În schimb, se va ține seama de faptul că imaginea rolului exact al procesului de relaxare care se produc în mediu datorită modificărilor mediului produse de câmpuri (vibrație, rotații, modificarea densității ș.a.) este mai clară în interpretarea fizicii clasice.

În cele ce urmează vom prezenta procesele de difuzie Raman, Brillouin și Rayleigh stimulate, care se manifestă pe spectrul de transmisie al

unde sondă (în urma experienței din figura 5.17 a), evidențiind pentru fiecare dintre ele fenomenele fizice care le susțin și principalele caracteristici ale rezonanțelor asociate.

5.2.2. Difuzia Raman stimulată

Difuzia Raman este un proces care rezultă, în general (însă, nu numai), din interacția luminii cu modurile de vibrație, ω_v , ale moleculelor care constituie mediul difuzor. Acest efect se manifestă asupra spectrului de transmisie sub formă de rezonanță care are o formă lorentziană și sunt centrate în $\pm\omega_v$, având amplitudinile proporționale cu diferența de populație dintre nivelele de vibrație implicate. Ca atare, difuzia Raman ne poate furniza informații asupra poziției și populației nivelelor cuantice ale sistemului difuzor studiat.

Difuzia Raman stimulată, în fizica clasică, este interpretată funcție de cuplajul parametric al câmpurilor laser și câmpului de fononi optici care descrie vibrația moleculelor^(16, 17). În cazul prezentării pe care o facem vom da interpretarea cuantică, în acest caz particular fiind mai simplă și sugestivă.

Făcând un *scurt istoric*⁽¹⁸⁾, amintim că *fenomenul de difuzie elastică a luminii* a fost studiat la sfârșitul secolului al XIX-lea de Rayleigh⁽¹⁹⁾, iar cel al difuziei elastice al radiațiilor X pe particule libere de J.J. Thomson în anul 1900. Ideea unei difuzii asociată la o schimbare de lungime de undă a radiației, adică, a *difuziei neelastice a luminii* apare la începuturile edificării teoriei cuantice, fiind prezis pentru prima dată de Smekal⁽²⁰⁾, plecând de la argumente de conservare a energiei și dezvoltată de Kramers și Heisenberg⁽²¹⁾, care au utilizat principiul de corespondență și au ajuns la expresia cuantică exactă pentru secțiunea eficace a difuziei inelastice. Urmează lucrările lui Klein⁽²²⁾ care, cu ajutorul unei teorii semiclasice, folosind teoria perturbațiilor în reprezentarea lui Schrödinger, calculează elementul de matrice al operatorului dipol electric oscilant la frecvența Stokes, pe care îl introduce apoi în formula clasică și obține energia radiată de un dipol pentru a obține radiația difuzată. Urmează lucrările lui Dirac⁽²³⁾ asupra cuantificării câmpului electromagnetic care demonstrează în mod riguros formula Kramers-Haeisenberg și cele ale lui Guppert-Mayer⁽²⁴⁾, care prevede teoretic procesele stimulate a doi fotoni, această lucrare fiind prima care prevede posibilitatea unui *efect Raman stimulată*. Rezumatele acestor lucrări^(22 - 24) sunt făcute de Placzek⁽²⁵⁾.

⁽¹⁶⁾ N. Bloembergen, *Am. J. Phys.* **35**, 987 (1967)

⁽¹⁷⁾ Y.R. Shen, *The Principles of Nonlinear Optics*, Wiley, New York, (1984)

⁽¹⁸⁾ M.G. Raymer și I.A. Walmsley in *Progress in Optics* **28** (ed. E. Wolf), North-Holland, Amsterdam, (1990)

⁽¹⁹⁾ Lord Rayleigh, *Phyl. Mag.* **XLI**, 274, 447 (1871) și **XLVII**, 375 (1899)

⁽²⁰⁾ A. Smekal, *Naturwissenschaften* **11**, 873, (1923)

⁽²¹⁾ H.A. Kramers și W. Heisenberg, *Z. Phys.* **31**, 681

⁽²²⁾ O. Klein, *Z. Phys.* **41**, 407, (1927)

⁽²³⁾ P.A.M. Dirac, *Proc. R. Soc. London Ser. A* **114**, 710 (1927)

⁽²⁴⁾ M. Guppert-Mayer, *Ann. Phys. (Germany)* **9**, 273 (1931)

⁽²⁵⁾ G. Placzek, *The Rayleigh and Raman scattering*, in *Handbuch der Radiologie*, Band VI (ed. E. Marx), Akademische, Leipzig, (1934)

Pentru prima dată, *fenomenul radiației modificate* sau difuzia Raman spontană a fost observat de Raman și Krishnan⁽²⁶⁾. Efectul a fost observat în lichide și în vapori denși de eter și de amilenă. La scurt timp, Landsberg și Mandel'stamm⁽²⁷⁾ descoperă o difuzie similară în solide.

La început, difuzia Raman spontană, a condus la experiența care au fost probe de verificare a teoriei cuantice care a servit ca bază a demonstrării formulei Kramers-Heisenberg și, ulterior, între anii 1928 – 1960, difuzia Raman se dezvoltă ca instrument spectroscopic important.

Dezvoltarea surselor luminoase coerente de putere mare implică posibilitatea obținerii de câmpuri difuzate sub o formă stimulată, care conțin un număr mare de fotoni pe mod, contribuind la utilitatea efectului Raman ca instrument spectroscopic.

Difuzia Raman stimulată a fost observată pentru prima dată de Woodbury și Ng⁽²⁸⁾ în nitrobenzen, fiind identificată de Eckhard ș.a.⁽²⁹⁾

Pentru o înțelegere mai ușoară a efectului Raman stimulată, vom prezenta pe scurt *difuzia Raman spontană*^(30,31). Principiul difuziei Raman spontană este schematizat în figura 5.20.

Un foton incident de frecvență ω este difuzat într-un foton de frecvență ω_s , diferența de energie $\hbar(\omega - \omega_s) = \hbar\omega_{ba}$ fiind absorbită de centrul difuzor al materialului (figura 5.20 a). Excitarea mediului se poate manifesta printr-o schimbare a stării electronice sau, mai frecvent, în cazul moleculelor, printr-o modificare a nivelului vibrațional sau rotațional (caz în care frecvența ω_{ba} corespunde la frecvența de vibrație a moleculei). Aici, frecvența ω_s este numită *frecvența Stokes*. Acesată frecvență Stokes este inferioară frecvenței incidente

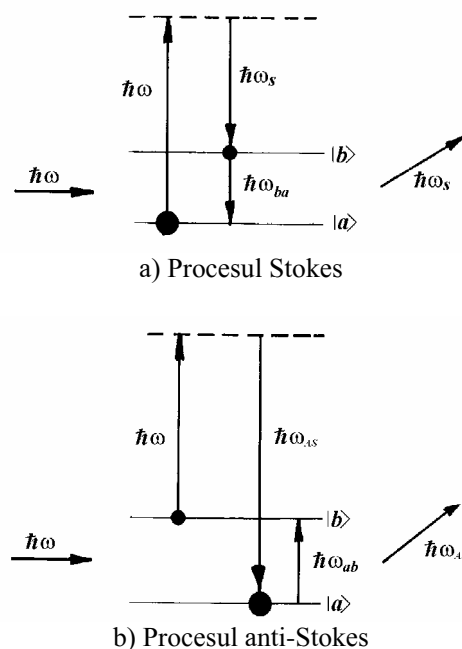


Fig. 5.20.

⁽²⁶⁾ C.W. Raman și K. S. Krishnan, *Nature*, **121**, 501, (1928)

⁽²⁷⁾ G. Landsberg și L.I. Mandel'stamm, *Naturwissenschaften* **16**, 557 (1928)

⁽²⁸⁾ E.J. Woodbury și W.K. Ng, *Proc. IRE* **50**, 2347, (1962)

⁽²⁹⁾ G. Eckhardt, R. Hellworth, F. McClung, S. Schwarz, D. Weiner, E. Woodbury, *Phys. Rev. Lett.* **9**, 455, (1962)

⁽³⁰⁾ N. Bloembergen, *Am. J. Phys.* **35**, 989, (1967)

⁽³¹⁾ Francis Hartmann, *Les lasers*, Presses Universitaires de France, Paris, (1985)

($\omega_S < \omega$) cu o cantitate care corespunde frecvenței de excitare a mediului. Dacă, totuși, sistemul difuzor este, inițial, într-o stare excitată, el poate să efectueze o tranziție către un nivel de energie inferior în cursul difuziei (figura 5.20 b). În acest caz, lumina difuzată conține *frecvențe anti-Stokes*, care sunt superioare frecvenței incidente: $\omega_{AS} = \omega + \omega_{ba}$. În mediile moleculare, intensitatea luminii difuzate la frecvența anti-Stokes este, în general, cu multe ordine de mărime mai slabă decât cea a frecvențelor Stokes, deoarece intensitatea liniilor Raman este proporțională cu populația nivelului inițial al procesului de difuzie și la echilibru termic populația nivelului $|b\rangle$ este mai slabă decât cea a nivelului $|a\rangle$ cu o cantitate egală cu factorul

$$\text{lui Boltzmann } \exp\left[-\frac{\hbar\omega_{ba}}{k_B T}\right].$$

În rezumat, ecartul de frecvență ν_{ab} dintre radiațiile incidentă și difuzată apare astfel ca o caracteristică a moleculei. Populația la echilibru termic a nivelului inferior fiind mult mai mare decât cea a nivelului superior, se explică rezultatul experimental după care intensitatea *liniei Stokes*, $\nu_S = \nu - \nu_{ba}$ este mult superioară *liniei anti-Stokes*, $\nu_{AS} = \nu + \nu_{ab}$.

Eficacitatea procesului de difuzie Raman spontană este caracterizată prin secțiunea eficace diferențială de difuzie a unui foton de frecvență ω și de polarizație \bar{u} într-un foton de frecvență ω_S și de polarizație \bar{u}_S , care este dată de formula Kramers-Heisenberg:

$$\frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} = \frac{\omega\omega_S^3 n_S^3}{16\pi^2 \epsilon_0^2 c^4 \hbar^2} \left| \sum_c \frac{\langle b | \bar{\mu}_e \cdot \bar{u}_S | c \rangle \langle c | \bar{\mu}_e \cdot \bar{u} | a \rangle}{\omega_{ca} - \omega} + \frac{\langle b | \bar{\mu}_e \cdot \bar{u} | c \rangle \langle c | \bar{\mu}_e \cdot \bar{u}_S | a \rangle}{\omega_{cb} + \omega} \right|^2, \quad (5.63)$$

unde Ω reprezintă unghiul solid de difuzie, n_S - indicele de refracție al mediului la frecvența Stokes, $\hat{\mu}_e$ - operatorul moment dipolar electric, și $|c\rangle$ - o stare de energie a sistemului difuzor distinctă de stările $|a\rangle$ și $|b\rangle$. În concluzie, se remarcă faptul că procesul de difuzie Raman spontană este un proces puțin eficace, deoarece chiar pentru medii destul de dense, secțiunea eficace totală a difuziei la frecvența Stokes pe unitatea de volum este în mod tipic egală cu 10^{-6} cm^{-1} . Deci, după parcurgerea distanței de 1 cm în mediul difuzor, numai o milionime din energia incidentă ar fi difuzată.

În cele ce urmează vom constata că dacă avem o stimulare cu o undă laser suficient de intensă, procesul de difuzie Raman devine mult mai eficace.

Principiul *procesului de difuzie Raman stimulată* este dat în figura 5.21. În acest caz, mediul este iluminat simultan de o undă sondă la frecvența ω_S și de o undă pompă la frecvența ω . Un foton a cărui frecvență este ω_S este emis simultan în modul undei sondă, conducând la o amplificare a undei sondă pe seama undei pompă. Aici, însă, diferența de energie, $\hbar(\omega - \omega_S) = \hbar\omega_{ba}$ este absorbită de mediul difuzor. În figura 5.21 se reprezintă efectul Raman de difuzie stimulată al undei sondă, rezultând din competiția dintre amplificare (figura 5.21 a) și absorbție (figura

5.21 b). Eficacitatea acestui proces este destul de mare, puterea transferată frecvenței Stokes atingând în mod curent 10% din puterea unei pompă incidentă.

Legătura dintre procesul de emisie stimulată și spontană se exprimă prin faptul că probabilitatea ca un oscilator de frecvență ω_s de a efectua o tranziție de la o stare cu n_s cuante de excitare către o stare cu $n_s + 1$ cuante este proporțională cu $n_s + 1$, având $n_s = 0$ pentru procesul de emisie spontană. Numărul de cuante, $(dn_s)_{sp}$, difuzate spontan de elementul de lungime dz și pe unitatea de unghi solid $d\Omega$, se exprimă cu ajutorul secțiunii eficace diferențială de difuzie Raman spontană:

$$(dn_s)_{sp} = N \Pi_a n \frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} dz, \quad (5.64)$$

unde N este numărul de centri difuzori (în general, moleculele) pe unitatea de volum, Π_a - probabilitatea ca un astfel de centru să fie în nivelul de energie cel mai de jos $|a\rangle$ și n este numărul de fotoni laseri pompați incidenti.

Procesele spontane și procesele stimulate se diferențiază și prin faptul că, cele spontane sunt proporționale cu populația nivelului inițial, pe când cele stimulate depind de diferența dintre populațiile nivelelor inițial și final. De exemplu, pentru un proces de amplificare stimulată plecând de la nivelul $|a\rangle$ și ajungând la nivelul $|b\rangle$ (figura 5.21 a) se opune când nivelul $|b\rangle$ este populat, procesul de absorbție stimulată plecând de la $|b\rangle$ și ajungând la $|a\rangle$ (figura 5.21 b). O altă diferență între procesele Raman spontan și stimulat aparține de continuumul de stări finale de considerat. deci, în cazul procesului spontan, direcția și polarizarea fotonului emis sunt mărimi parțial nedeterminate și continuumul de stări este relativ la radiație, iar pentru un proces stimulat, fotonul emis are caracteristici perfect definite și continuumul de stări este relativ la sistemul material (mediu). Astfel, variația numărului de fotoni Stokes prin emisia și absorbția Raman stimulate se poate exprima prin:

$$\frac{dn_s}{dz} = N(\Pi_a - \Pi_b) \frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} n_s n \left(\frac{c^3}{4\nu_s n_s^3} \Lambda(\nu_s) \right), \quad (5.65)$$

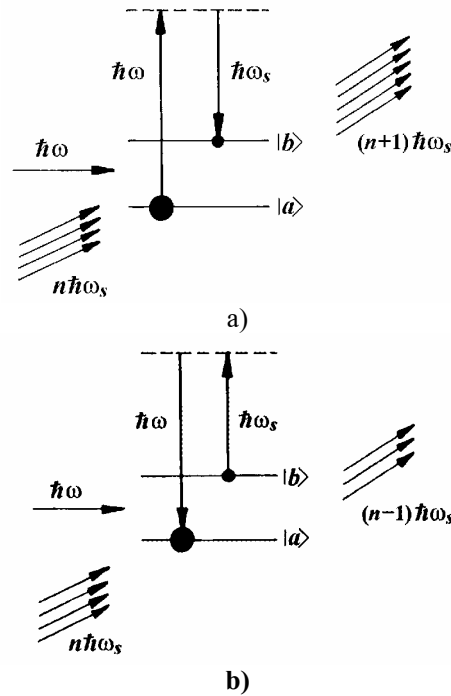


Fig. 5.21.

unde \mathcal{V} este volumul de cuantificare a radiației, $v_s = \frac{\omega_s}{2\pi}$ și $\omega_s = \omega - \omega_{ba}$. Ultimul factor din expresia (5.65) exprimă faptul că densitatea de stări finale este diferită pentru procesele spontan și stimulat. În cazul procesului spontan intervine numărul de moduri ale vidului pe unitatea de unghi solid și pe unitatea de frecvență, $\frac{\mathcal{V} v_s n_s^3}{c^3}$, iar pentru absorbția și emisia stimulată de fotoni Stokes într-o undă electromagnetică contează densitatea de stări a mediului. Densitatea de stări a mediului poate fi descrisă cu ajutorul unei funcții de formă normată $\Lambda(v_s)$, care, adesea, poate fi reprezentată printr-o lorentziană ce prezintă o rezonanță pentru $\omega_s = \omega - \omega_{ba}$ și având semilărgimea (lărgimea la semiînălțime) Γ_{ab} :

$$\Lambda(v_s) = \frac{2\Gamma_{ab}}{(\omega - \omega_s - \omega_{ba})^2 + \Gamma_{ab}^2}. \quad (5.66)$$

Formele caracteristice ale rezonanțelor Raman stimulate, reprezentate pe spectrul din figura 5.17 b sunt date de lorentziana (5.66). La rezonanță, când $\Lambda = \frac{2}{\Gamma_{ab}}$, expresia (5.65) ne arată că fenomenul de difuzie stimulată depășește pe cel de difuzie spontană, cu condiția ca numărul de fotoni ai unde sondă n_s să fie mult superior numărului de moduri ale vidului electromagnetic conținut în intervalul de frecvență corespunzând lărgimii Γ_{ab} . Această proprietate a făcut ca efectul Raman stimulat să fie observat, imposibil de evidențiat înainte de obținerea surselor laser de mare putere.

Integrând ecuația diferențială (5.65), se poate obține numărul de fotoni n_s sau, sub o formă echivalentă intensitatea unde I_s care este proporțională cu n_s , care crește exponențial în cursul propagării sale la traversarea mediului Raman:

$$I_s(L) = I_s(0) \exp[g_s L], \quad (5.67)$$

unde L este lungimea zonei de interacție dintre câmpuri și mediul difuzor. Coeficientul de câștig g_s se deduce fără dificultate din ecuația (5.65):

Integrând ecuația diferențială (5.65), se poate obține numărul de fotoni n_s sau, sub formă echivalentă intensitatea unde I_s care este proporțională cu n_s , care crește exponențial în cursul propagării sale la traversarea mediului Raman:

$$I_s(L) = I_s(0) \exp[g_s L], \quad (5.67)$$

unde L este lungimea zonei de interacție dintre câmpuri și mediul difuzor. Coeficientul de câștig g_s se deduce fără dificultate din ecuația (5.65):

$$g_s = \frac{N(\Pi_a - \Pi_b) \left(\frac{d\sigma_{sp}^R}{d\Omega} \right) c^2 n^2 \varepsilon_0 \Lambda(v_s)}{2v_s^2 n_s^3 \hbar \omega} I, \quad (5.68)$$

I fiind intensitatea unde pompă (numărul de fotoni pompați este bineînțeles proporțional cu intensitatea unde laser pompă) și n este indicele mediului la frecvența ω .