

Pentru a evalua ordinul de mărime al câștigului, vom considera cazul nitrobenzenului (lichid) care a permis să se obțină prima observare a efectului Raman stimulat. Astfel, știind că $\frac{\omega_{ba}}{2\pi c} \approx 1345 \text{ cm}^{-1}$, $\sigma_{sp}^R \approx 6 \cdot 10^{-30} \text{ cm}^2$ (secțiunea eficace de difuzie), $\frac{\omega_{ba}}{2\pi c} \approx 4 \text{ cm}^{-1}$ și $\Pi_a \approx 1$, pentru o intensitate laser de 10^8 W/cm^2 , se obține $g \approx 0,3 \text{ cm}^{-1}$. Un astfel de câștig permite să se realizeze un *laser Raman* plasând mediul neliniar în interiorul unei cavități închisă de două oglinzi de coeficienți de reflexie la frecvența Stokes R_1 și R_2 . Astfel, condiția de oscilație se scrie:

$$\exp[2g_s L] = R_1 R_2 \exp[-2\alpha L], \quad (5.69)$$

unde termenul din stânga reprezintă câștigul în timpul unui dus – întors în cavitate și unde pierderile legate de fenomenele de difuzie, absorbție, difracție ... sunt încorporate în coeficientul de pierderi α . Se observă că această condiție, dată de ecuația (5.69), este identică cu condiția de oscilație a unui laser convențional.

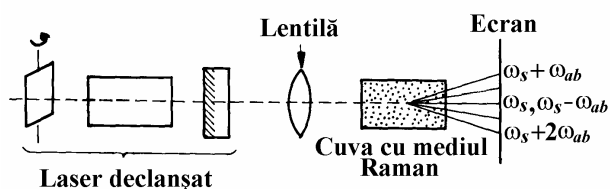


Fig. 5.22.

Efectul Raman stimulat poate fi pus în evidență cu ajutorul configurației din figura 5.22. Impulsurile unui laser cu rubin (laser declanșat) sunt focalizate într-o cuvă care conține nitrobenzen. La ieșire apar noi frecvențe: frecvențele Stokes radiate în aceeași direcție cu fasciculul excitator și frecvențele anti-Stokes radiate după conuri axate pe fasciculul excitator. Dacă se plasează cuvă Raman în interiorul unui laser cu rubin (figura 5.23) se pot obține, în cazul unui câștig suficient de mare, noi linii laser cu fiecare dintre frecvențele Stokes ale moleculei studiate.

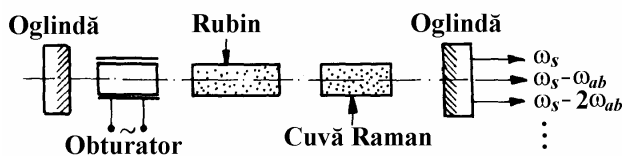


Fig. 5.23.

Observație. Susceptibilitatea neliniară este, în general, complexă:

$$\chi^{(3)} = \chi'^{(3)} + i\chi''^{(3)}.$$

Automodularea fazei (5.45):

$$\Delta\varphi = 2\pi n_2 \frac{L}{\lambda_0 A} \mathcal{P} = \frac{6\pi Z_0}{\varepsilon_0} \cdot \frac{\chi^{(3)}}{n^2} \cdot \frac{L}{\lambda_0 A} \mathcal{P} \quad (5.70)$$

este, prin urmare, complexă, astfel încât factorul de propagare a fazei $\exp[-i\varphi]$ este o combinație a schimbării fazei (5.70) și câștigului $\exp\left[\frac{1}{2}\gamma L\right]$, cu un *coeficient de câștig Raman*:

$$\gamma = \frac{12\pi Z_0}{\varepsilon_0} \cdot \frac{\chi^{(3)}}{n^2} \cdot \frac{1}{\lambda_0 A} \mathcal{P} \quad (5.71)$$

care este proporțional cu puterea optică \mathcal{P} . Acest efect, numit câștig Raman își are originea în cuplarea luminii la modurile vibraționale de frecvență înaltă ale mediului, care acționează ca o sursă de energie furnizând câștigul. Pentru medii cu pierderi scăzute, câștigul Raman poate depăși pierderile la nivele rezonabile de putere, astfel încât mediul poate acționa ca un *amplificator optic*. Cu o reacție proprie, *amplificatorul* se poate transforma în *laser*. Acest efect este manifestat în fibrele optice cu pierderi scăzute. Laserii Raman cu fibre optice au fost demonstrați experimental.

5.2.3. Difuzia Brillouin stimulată

Difuzia Brillouin este difuzia luminii pe o undă acustică, adică pe o undă de presiune (și deci, de densitate) care se propagă într-un mediu. Ea se manifestă, în general, asupra spectrului de transmisie a undei sub forma a două rezonanțe de formă lorentziană (figura 5.17b) centrate în $\delta = \pm\Omega_a$, unde Ω_a este frecvența undei acustice. Amplitudinea este cu atât mai importantă cu cât unghiul dintre pompă și sondă este mai apropiat de π . Undele se propagă în sens opus. Interpretarea acestui efect este comodă în cadrul descrierii clasice, în funcție de cuplajul parametric dintre câmpurile laser și unda de densitate considerată ca un câmp de fononi acustici.

Prezentarea făcută în continuare consideră cazul în care mediul neliniar este un fluid molecular.

Interpretarea unui fenomen de difuzie într-un formalism clasic se face prin descrierea mecanismului de excitare a unei observabile plecând de la undele pompă și sondă. În cazul efectului Brillouin stimulat, procesul de considerat este cel al generării unei unde acustice plecând de la un câmp electric. Mecanismul implicat, de regulă, este electrostricțiunea, adică, tendința unui sistem de a deveni mai dens în prezența unui câmp electric. Din punct de vedere microscopic, când acționează asupra unei molecule individuale aflată în prezența unui câmp electric \bar{E} o forță, molecula primește un moment dipolar electric.

$$\bar{\mu}_e = \alpha \bar{E} \quad (5.72)$$

unde α este polarizabilitatea moleculei, acestea din urmă scăzându-i energia

$$\mathcal{E} = -\int_0^E \bar{\mu}_e d\bar{E}' = -\alpha \int_0^E \bar{E}' d\bar{E}' = -\frac{1}{2} \alpha \bar{E}^2. \quad (5.73)$$

Astfel, molecula, în prezența unui câmp electric, suferă forța

$$\bar{F} = -\nabla\mathcal{E} = \frac{1}{2}\alpha\nabla(\bar{E}^2). \quad (5.74)$$

Moleculele neputând să urmărească variațiile intensității laser la frecvențe optice, forța (5.74) este mediată în timp la scara unei perioade optice. În cazurile curențe $\alpha > 0$, forța (5.74) tinzând să crească densitatea moleculară în zonele de cea mai mare intensitate a câmpului electric.

În cazul *difuziei Brillouin stimulată* indusă prin electrostricțiune, se va contura o experiență în care se folosesc unda pompă și unda sondă în geometria cea mai favorabilă (figura 5.24), în care undele pompă și sondă se propagă în sensuri opuse, existând o acoperire completă între cele două unde și, deci, un câștig Brillouin maxim. Acțiunea combinată a câmpurilor undei pompă și undei sondă dau naștere la o undă acustică (undă de densitate) de frecvență δ . Mediul interacționează cu câmpul undei pompă E de frecvență ω și de vector de undă având modulul $k > 0$ și cu câmpul undei sondă E_s de frecvență $\omega_s = \omega + \delta$ și de vector de undă având modulul $-k$ (figura 5.24). Câmpul electric total în mediu va fi:

$$E_t = (E^0 \exp[ikz] + E_s^0 \exp[-i\delta t - ikz]) \exp[-i\omega t] + c.c. = \xi(z, t) \exp[-i\omega t] + c.c. \quad (5.75)$$

Se presupune că densitatea masică ρ a mediului molecular este “gubernată” de ecuația undelor acustice⁽³²⁾:

$$\frac{\partial^2 \rho}{\partial t^2} - \beta \nabla^2 \frac{\partial \rho}{\partial t} - v^2 \nabla^2 \rho = \nabla \bar{f}, \quad (5.76)$$

unde v este viteza sunetului, β este parametrul de amortizare a undei acustice⁽³³⁾ (care rezultă din transferurile de impuls și de căldură către interiorul mediului) și \bar{f} este densitatea volumică a forței. Folosind ecuațiile (5.74) și (5.75), densitatea volumică a forței este dată de expresia

$$\bar{f} = -A \nabla |\xi(z, t)|^2. \quad (5.77)$$

Reținând numai termenii care prezintă o dependență spațială, singurii care sunt susceptibili de a induce o undă acustică, se obține pentru termenul sursă

$$\nabla \bar{f} = Aq^2 [E^{0*} E_s^0 \exp(-i\delta t - iqz) + c.c.] \bar{u}_z, \quad (5.78)$$

unde s-a pus $q = 2k$. Atunci, este natural de ce se căuta soluția staționară forțată a ecuației (5.76) sub forma:

$$\rho = \rho_0 + \Delta\rho \exp[i\delta t - iqz], \quad (5.79)$$

unde ρ_0 este densitatea masică a mediului în absența câmpului. Introducând pe (5.78) și (5.79) în ecuația (5.76) și presupunând că $\Delta\rho$ variază în mod lent cu z și t

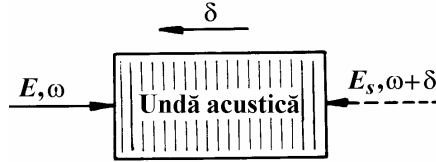


Fig. 5.24.

⁽³²⁾ I.L. Fabelinskii, *Molecular Scattering of Light*, Plenum Press, New York, (1968)

⁽³³⁾ R.W. Boyd, *Nonlinear Optics*, Academic Press, New York, (1992)

(aceasta fiind o presupunere echivalentă cu aproximația anvelopei lent variabile (2.69)), se obține:

$$\left(\Omega_B^2 - \delta^2 - i\delta\Gamma_B\right)\Delta\rho + 2i\Omega_B v \frac{\partial(\Delta\rho)}{\partial z} = Aq^2 E^{0*} E_S^0, \quad (5.80)$$

unde

$$\Gamma_B = q^2 \zeta \quad (5.81)$$

este lărgimea Brillouin și

$$\Omega_B = qv \quad (5.82)$$

este frecvența Brillouin.

Polarizația mediului fiind proporțională cu produsul densității de molecule și amplitudinea câmpului laser total, din ecuația (5.79) apare clar că, datorită prezenței undei acustice, mediul va primi o componentă de polarizație având aceleași caracteristici (frecvență și direcție de propagare) ca unda sondă. Această componentă a polarizației, care descrie procesul de difracție al undei pompă pe rețeaua de densitate asociată cu unda acustică, este de forma:

$$\frac{\partial E_S^0}{\partial z} = -\frac{ik}{2\varepsilon_0} B\Delta\rho E^0. \quad (5.83)$$

Acest sistem de ecuații are o structură analoagă cu cea care guvernează procesul de amestec parametric (vezi ecuațiile (4.47) și (4.48)). Astfel, interacția dintre undele pompă și sondă și unda acustică pe care acestea o generează, se poate interpreta ca un proces de cuplaj parametric între câmpurile laser și câmpul de fononi acustici.

Ecuația (5.80) poate fi, adesea, simplificată în mod semnificativ, dacă se omite ultimul termen din membrul stâng. Acest termen descrie propagarea fononilor, care fiind hipersonici sunt foarte puternic amortizați și se propagă pe distanțe foarte mici, tipic de 10 ori lungimea de undă optică. În măsura în care termenul din dreapta al ecuației (5.80) variază în mod semnificativ pe o scală spațială mult mai mare, este posibil de a neglija termenul care conține derivata spațială. Deci, pentru amplitudinea undei acustice indusă datorită prezenței undelor laser, se obține expresia:

$$\Delta\rho = \frac{Aq^2 E^{0*} E_S^0}{\Omega_B^2 - \delta^2 - i\delta\Gamma_B}, \quad (5.84)$$

de unde se deduce imediat:

$$P_{NL}^0(\omega_S) \propto \frac{Aq^2 |E^0|^2 E_S^0}{\Omega_B^2 - \delta^2 - i\delta\Gamma_B} \exp[-ikz]. \quad (5.85)$$

Astfel, densitatea de putere \mathcal{P} transferată de mediul difuzor către unda sondă, care dă “acces” spectrului de transmisie al undei sondă, este așadar dat în bună aproximație, în vecinătatea rezonanțelor ($\delta = \pm\Omega_B$), de

$$P \sim -E_S \frac{dP_S}{dt} \propto \operatorname{sgn}(\delta) \frac{\left(\frac{\Gamma_B}{2}\right)^2}{\left(\Omega_B - |\delta|\right)^2 + \left(\frac{\Gamma_B}{2}\right)^2} I_{S^0}, \quad (5.86)$$

unde sgn reprezintă o funcție semn ($\text{sgn}(x > 0) = 1$; $\text{sgn}(x < 0) = -1$) și I și I_S sunt intensitățile undelor pompă și sondă. Rezultă, ceea ce s-a specificat mai înainte că, spectrul de transmisie prezintă două rezonanțe centrate în $\delta = \pm\Omega_B$, având o formă lorentziană, proporționale cu intensitatea unei pompă și de lărgime Γ_B . Mai exact, unda sondă suferă un fenomen de amplificare pentru $\delta = -\Omega_B$ și de absorbție pentru $\delta = +\Omega_B$. Din ecuația (5.86) se constată clar că transferul de putere dintre unda pompă și unda sondă este, după cum se înțelege, legat de faptul că polarizația neliniară $P_{NL}(\omega_S)$ conține o componentă în cuadratură cu unda sondă (ec. (5.86)). Această componentă implică lărgirea Brillouin Γ_B , ea descriind modulația de densitate asociată cu unda acustică. Datorită faptului că această modulație de densitate nu este în fază cu excitarea indusă de acțiunea conjugată a undelor pompă și sondă (aceasta aparținând de procesul de amortizare a unei acustice descris de Γ_B) există un transfer de putere între unda pompă și unda sondă și apariția de rezonanțe pe spectrul de transmisie.

Ordinul de mărime al parametrilor caracteristici ai efectului Brillouin stimulat în cazul unui mediu constituit din molecule de acetonă pentru $\frac{\Omega_B}{2\pi} \cong 4,6 \text{ GHz}$, $\frac{\Gamma_B}{2\pi} \cong 200 \text{ MHz}$ și puterea unui laser 10^8 W/cm^2 , este caracterizat prin câștigul linear de ordinul a 2 cm^{-1} , adică, o valoare mai mare comparabil cu câștigul Raman ($0,3 \text{ cm}^{-1}$).

5.2.4. Difuzia Rayleigh stimulată sau amestec cu două unde

Difuzia Rayleigh spontană este un proces de *difuzie elastică* a luminii la joasă energie (figura 5.25). În această figură se reprezintă procesul de difuzie Rayleigh spontană a unui foton incident de frecvență ω . Un foton incident de frecvență ω (care este mult mai mică decât frecvențele de rezonanță ale sistemului difuzor) și de polarizare \vec{u} , este difuzat într-un foton de aceeași

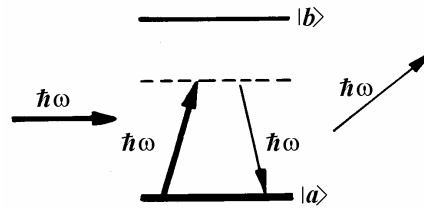


Fig. 5.25.

frecvență și de polarizare \vec{u}_R , centrul difuzor rămânând în aceeași stare de energie la ieșirea din proces. La fel ca în cazul difuziei Raman spontane, acest proces se caracterizează printr-o secțiune eficace diferențială de difuzie, de forma⁽³⁴⁾:

$$\frac{d\sigma_{sp}^{Ray}}{d\Omega} = \frac{\omega^4}{16\pi^2 \epsilon_0^2 c^4 \hbar^2} \left| \sum_b \frac{\langle a | \vec{\mu}_e \cdot \vec{u}_R | b \rangle \langle b | \vec{\mu}_e \cdot \vec{u} | a \rangle}{\omega_{ba} - \omega} + \frac{\langle a | \vec{\mu}_e \cdot \vec{u} | b \rangle \langle b | \vec{\mu}_e \cdot \vec{u}_R | a \rangle}{\omega_{ba} + \omega} \right|^2, \quad (5.87)$$

⁽³⁴⁾ C. Cohen-Tannoudji, J. Dupont-Roc, G. Grynberg, *Processus d'interaction entre photons et atomes*, Inter Edition / Edition du CNRS (1988)

unde notațiile sunt identice ca cele din § 5.2.2.

Plecându-se de la principiul că la orice proces spontan este asociat un proces stimulat, este normal să se caute să se lege efectele Rayleigh spontan și stimulat printr-un procedeu analog cu cea folosită în cazul difuziei Raman. Procedând în acest mod, apare dificultatea legată de caracterul elastic al difuziei Rayleigh, în care nivelele inițial și final ale procesului de difuzie sunt identice (adică, de aceeași populație), conducând la o compensare exactă între amplificarea și absorbția stimulate ale unde sondă. Totuși, acest rezultat nu semnifică faptul că nu există efect Rayleigh stimulat. Formula (5.87) este dedusă cu ajutorul ordinului doi al teoriei perturbațiilor, caz în care diagramele asociate la amplificarea și la absorbția unde sondă, se compensează exact. În cele ce urmează se va vedea că pentru a pune în evidență efectul Rayleigh stimulat, este necesar de a face să intervină procesele disipative care se produc în mediu. Datorită acestui fapt, descrierea efectului Rayleigh stimulat în cadrul mecanicii cuantice este adesea delicat^{(35),(36)}.

Astfel, pentru o înțelegere mai ușoară a efectului Raman stimulat, se apelează la teoria clasică, aceasta presupunând că sub acțiunea combinată a câmpului unde pompă și cel al unde sondă se creează o observabilă macroscopică modulată temporal la diferența de frecvență $\delta = \omega_s - \omega$, ω_s fiind frecvența unde sondă și ω , cea a unde pompă. Această observabilă macroscopică, însă, nu se propagă, cum se întâmplă cu undele acustice din cazul efectului Brillouin stimulat. Pe aceasta se difractă unda pompă, radiind un câmp care poate să interfere cu cel al unde sondă. Existența transferului de putere între unda pompă și unda sondă își are originea în existența în mediul nelinier a unei componente de polarizație având aceleași frecvență și vector de undă ca unda sondă, dar oscilând în cuadratură cu ea. Existența unei astfel de componente a polarizației face ca mediul difuzor să nu fie capabil să urmărească în mod instantaneu polarizația temporală impusă de unda sondă cu frecvența de bătai δ între unda pompă și unda sondă, mediul difuzor fiind complet insensibil la modulațiile cu frecvența optică. Proprietatea mediului de a urmări excitația fiind caracterizată printr-un grad de răspuns γ , care este de fapt gradul de evoluție care intervine în relaxarea către starea sa staționară, se disting mai multe cazuri limită după mărimea lui γ relativă la δ . Astfel, când $\delta \ll \gamma$, mediul este capabil să se adapteze la fiecare moment la unda sondă care rămâne neschimbată în decursul propagării la traversarea mediului. În mod asemănător, când $\delta \gg \gamma$, modulația temporală impusă de unda sondă este prea rapidă pentru ca mediul să-i poată răspunde, astfel încât nici o polarizație (atât în fază cât și în cuadratură) nu este indusă în mediu. Rezultă că pentru a se obține o *rezonanță Rayleigh stimulată* pe spectrul de transmisie al unde, este necesar ca $\delta \approx \gamma$. Aceasta înseamnă că lărgimea rezonanțelor Rayleigh stimulate, de o formă, în general, dispersivă (figura 5.17 b), va fi de ordinul de mărime al gradului caracteristic de relaxare a mediului. Astfel, pe când *procesele Raman stimulate* dau în esență acces la *caracteristicile statice ale mediului* (pozițiile și populațiile nivelelor de energie), *efectul Rayleigh stimulat* furnizează informații asupra *dinamicii mediului difuzor*. În sfârșit, deoarece gradele de răspuns tipice ale unui mediu sunt în general mult

⁽³⁵⁾ G. Grynberg și C.Cohen-Tannoudyi, *Opt. Commun.* **96**, 150 (1993)

⁽³⁶⁾ G. Grynberg și L.A. Lugiato, *Opt. Commun.* **101**, 69 (1993)

inferioare frecvențelor sale de rezonanță sau frecvențelor acustice, structurile Rayleigh stimulate se observă în centrul spectrelor ($\delta=0$), pentru frecvențe ale unde sondă mult mai apropiate de frecvența câmpului unde pomă ca în cazurile Raman și Brillouin.

Ne amintim că acele rezonanțe induse de relaxare pot să se producă de asemenea între stări de energii și de populații diferite. Se poate arăta că spre deosebire de rezonanțele care fac să intervină diferența de populație dintre astfel de nivele și au o alură lorentziană, rezonanțele induse prin relaxare fac să intervină suma populațiilor nivelelor și au o formă dispersivă. Aceste rezonanțe sunt numite “two-wave mixing” sau “two-beam coupling resonance”. Existența unor astfel de rezonanțe a fost considerată pentru prima dată de Bogdan, Downer și Bloembergen⁽³⁷⁾. Structurile Raman și Rayleigh, de aceeași poziție și de aceeași lărgime, coexistă deci, în principiu, totdeauna, dar rezonanțele induse prin relaxare au, în general, o amplitudine sensibil mai mică și pot, adesea, să fie neglijate în cursul interpretării structurilor laterale ale spectrelor.

Efectul Rayleigh stimulat indus prin relaxare obținut în cazul în care unda pomă și unda sondă se propagă printr-un mediu difuzor simplu în care există un singur proces de relaxare de grad γ , se manifestă, în general, asupra spectrului de transmisie al unde sondă sub forma unei rezonanțe dispersive de semilărgime γ . Se presupune că mediul interacționează cu câmpul unde pomă E de frecvență optică ω și de vector de undă \bar{k} și cu cel al unde sondă E_s de frecvență $\omega_s = \omega + \delta$, foarte apropiată de ω , și de vector de undă \bar{k}_s . Câmpul laser total este, deci, de forma:

$$E_t = (E^0 \exp[i\bar{k}\bar{r}] + E_s^0 \exp[-i\delta t + i\bar{k}_s\bar{r}]) \exp[-i\omega t] + \text{c.c.} = \xi(\bar{r}, t) \exp[-i\omega t] + \text{c.c.} \quad (5.88)$$

Interacția simultană a mediului cu aceste câmpuri induce în mediul difuzor o polarizație P :

$$P = \varepsilon_0 \chi \xi(\bar{r}, t) \exp[-i\omega t] + \text{c.c.}, \quad (5.89)$$

care posedă o componentă ce are aceleași caractere (frecvență și vector de undă) ca unda sondă. Ea este asociată cu o susceptibilitate χ , soluție a ecuației de evoluție:

$$\dot{\chi} + \gamma(\chi - \chi_{st}^{(0)}) = \beta E^{0*} E_s^0 \exp[-i\delta t + i(\bar{k}_s - \bar{k})\bar{r}], \quad (5.90)$$

unde $\chi_{st}^{(0)}$ este valoarea staționară a susceptibilității în absența unde sondă și γ este gradul caracteristic al procesului de relaxare. Al doilea membru al ecuației (5.90) descrie modificarea susceptibilității mediului sub influența unde sondă. Deci, este vorba de un proces neliniar. Valoarea staționară a acestei susceptibilități neliniare rezultă din ecuația (5.90), fiind:

$$\chi_{st} = \frac{\beta E^{0*} E_s^0}{\gamma - i\delta} \exp[-i\delta t + i(\bar{k}_s - \bar{k})\bar{r}]. \quad (5.91)$$

Atunci, componenta polarizației mediului care are aceeași frecvență și același vector de undă ca fasciculul unde sondă, va fi:

⁽³⁷⁾ A.R. Bogdan, R.C. Downer și N. Bloembergen, *Opt. Lett.* **6**, 348 (1981)

$$P_S = \frac{\varepsilon_0 \beta}{\gamma - i\delta} |E^0|^2 E_S^0, \quad (5.92)$$

de unde se deduce expresia densității de putere P transferată de mediul difuzor către unda sondă:

$$\mathcal{P} = -E_S \frac{dP_S}{dt} = -2\varepsilon_0 \omega \beta I_S \frac{\delta}{\delta^2 + \gamma^2}, \quad (5.93)$$

cu I și I_S intensitățile undelor pompă și sondă, iar β s-a presupus real. După cum s-a afirmat și mai înainte, spectrul de transmisie al undei sondă prezintă deci o rezonanță centrată la $\delta = 0$, având forma dispersivă și semilărgimea γ . Se ține seama de faptul că în cazul unui mediu subțire din punct de vedere optic, transferul de putere al undei pompă către unda sondă este direct proporțională cu \mathcal{P} . Astfel, sonda suferă un fenomen de extra-amplificare și de extra-absorbție de o parte și de alta a lui $\delta = 0$, fără a fi a priori posibil să se determine dacă amplificarea corespunde la frecvențele Stokes sau anti-Stokes. În plus, se asigură că pentru $\delta \approx 0$, când mediul urmează perfect modulația sondei și pentru $\delta \gg \gamma$, când mediul este incapabil de a urma modulația temporală prea rapidă impusă de sondă, transferul de putere către sondă tinde către zero.

În continuare se vor prezenta două exemple de procese de difuzie Rayleigh stimulată, provenite din fizica mediilor moleculare, acestea permițând să se întrevadă diversitatea fenomenelor fizice care pot să dea naștere la o rezonanță Rayleigh în spectrul de transmisie al undei sondă.

Efectul "Rayleigh - wing" stimulat a fost observat experimental pentru prima dată în anul 1965 de către Mash ș.a.⁽³⁸⁾, urmați de Cho ș.a.⁽³⁹⁾, iar descrierea teoretică a fost dată de Bloembergen și Lallemand⁽⁴⁰⁾ și de Chiao ș.a.⁽⁴¹⁾. Originea acestui proces de difuzie Rayleigh stimulată constă în tendința pe care o au moleculele anizotrope (CS_2 , benzen, acetonă, etc.) de a se orienta de-a lungul direcției câmpului electric al unei unde laser, antrenând o modificare a indicelui de refracție al mediului. Această tendință este parțial contrabalansată de agitația termică care tinde să readucă la izotropie distribuția de orientare a moleculelor. Evoluția dinamică a orientării moleculare este caracterizată printr-un timp de dezorientare τ , dat de teoria lui Debye⁽⁴²⁾ a moleculelor polare:

$$\tau = \frac{4\pi a^3}{k_B T} \eta, \quad (5.94)$$

unde η este vâscozitatea fluidului și a raza medie a moleculei. Ordinul de mărime al acestui timp este de picosecunde și variază în mod sensibil de la un fluid la altul.

⁽³⁸⁾ I. D. Mash, V. V. Morozov, V. S. Starunov și I. L. Fabelinskii, *JETP Lett.* **2**, 25, (1965)

⁽³⁹⁾ C. W. Cho, N. D. Foltz, D. H. Rank și T. A. Wiggins, *Phys. Rev. Lett.*, **18**, 107, (1967)

⁽⁴⁰⁾ N. Bloembergen și P. Lallemand, *Phys. Rev. Lett.*, **16**, 81, (1966)

⁽⁴¹⁾ R. Y. Chiao, P. L. Kelley și E. Garmire, *Phys. Rev. Lett.*, **17**, 1158, (1966)

⁽⁴²⁾ P. Debye, *Polar molecules*, Dover Publications Inc., New York, (1929)

Schema experimentală de observare a efectului “Rayleigh – wing” stimulat este dată în figura 5.26. Se iluminează mediul molecular cu ajutorul unei unde pompă de frecvență ω polarizată linear de-a lungul direcției x .

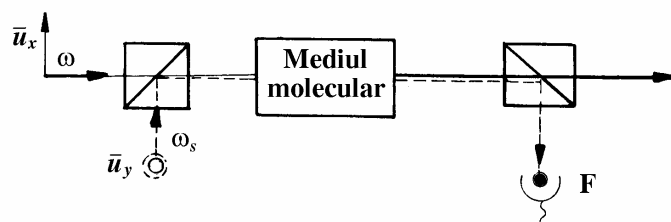


Fig. 5.26.

Această undă conduce la alinierea moleculelor în lungul axei x printr-un proces pe care îl vom prezenta mai departe. În afară de unda pompă (ω), se face ca mediul orientat să interacționeze cu o undă sondă de frecvență $\omega_s = \omega + \delta$ polarizată liniar de-a lungul direcției y (figura 5.26). Mediul molecular conține moleculele anizotrope de tipul CS_2 . La ieșirea din celulă, intensitatea fasciculului undei sondă este măsurată în funcție de ω_s cu ajutorul fotodiodei F și se constată o rezonanță “Rayleigh – wing” în vecinătatea lui $\omega_s = \omega$, cu lărgimea de ordinul $a(10 \div 100)\text{GHz}$. În primul ordin al amplitudinii undei sondă, se pot distinge două efecte ale acesteia asupra moleculelor. Pe de o parte, câmpul electric al sondei va induce un dipol în moleculă, care este proporțional cu polarizabilitatea α_{\perp} (figura 5.3), având o direcție diferită de cea a câmpului undei pompă și creând astfel un cuplu modulat la frecvența δ (formula (5.22)). Pe de altă parte, dipolul induce în moleculele din unda pompă, care este proporțional cu polarizabilitatea α_{\parallel} (figura 5.3), nefiind îndreptat după direcția câmpului undei sondă, moleculele suferă de asemenea un cuplu din partea undei sondă, care este modulată tot la frecvența δ . Suma acestor două contribuții fiind nenulă, datorită anizotropiei polarizabilității moleculei, efectul global al undei sondă va fi o modulație temporală la frecvența δ a orientării medii a moleculelor în jurul direcției câmpului undei pompă.

Un alt mod de a interpreta dinamica de orientare a moleculelor este de a remarca faptul că întregul câmp laser (al undei pompă + cel al undei sondă) are o direcție care variază în spațiu la o frecvență δ , de-a lungul căreia moleculele încearcă să se alinieze în mod constant. Trecerea de la situația în care moleculele urmează în mod adiabatic câmpul electric și cazul în care ele rămân insensibile la variațiile câmpului, se produce pentru $|\delta| \approx \frac{1}{\tau}$. Cum timpul caracteristic al reorientării moleculelor, τ , este de ordinul picosecundelor, este de așteptat ca rezonanța “Rayleigh – wing” stimulată să aibă o lărgime de ordinul $a(10 \div 100)\text{MHz}$, proporțională cu temperatura și invers proporțională cu vâscozitatea mediului (după ecuația (5.94)). Originea fizică a câștigului undei sondă este explicată prin crearea unei orientări medii a moleculelor, când unda sondă induce o birefrință modulată la frecvența δ în mediu. Transmisia câmpului undei pompă la frecvența ω și polarizată liniar după Ox în acest mediu în care

birefrința variază temporal, conduce la un câmp de frecvență $\omega_s = \omega + \delta$ de polarizare eliptică, la care componenta după Oy interferă cu unda sondă și îi modifică intensitatea sa. Principalele caracteristici ale *efectului "Rayleigh – wing" stimulat* sunt: – mediul difuzor este lichid la $T \cong 300\text{K}$ și moleculele anizotrope sunt centri difuzori; – lărgimea de rezonanță este dată de gradul de dezorientare al lui Debye ($10 \div 100\text{GHz}$), vâscozitatea și agitația termică fiind la originea relaxării; – forma rezonanței este dictată de excitarea prin unda sondă care cuplează reorientarea moleculelor, caracteristicile undei sondă care conduc la polarizarea ortogonală a unei pompă și mecanismul de difracție dat de birefrință.

În sfârșit, se amintește că *efectului "Rayleigh – wing" stimulat* poate fi considerat ca un efect Raman stimulat între stările rotaționale ale moleculei, aceste stări nefiind rezolvate în fluide, deoarece lărgimea legată de procesul de relaxare este mult mai mare decât separația nivelelor. Diferența de energie $\hbar\delta$ legată de schimbarea nivelului de rotație al moleculelor este înlăturată de mecanismul de amortizare.

Efectele Rayleigh și Brillouin stimulate sunt în mod tradițional asociate la lucrările care tratează *procesele stimulate* în mediile moleculare. Aceasta se datorează faptului că ambele fenomene de difuzie a luminii au loc pe neomogenități ale mărimilor termodinamice. Distincția între aceste două efecte se face fără ambiguitate alegând entropia S și presiunea P ca variabile termodinamice independente. Atunci, se specifică prin *efect Rayleigh* mecanismele de difuzie legate de *fluctuațiile izobare ale entropiei* și prin *efect Brillouin* procesele în cursul cărora lumina este difuzată de *fluctuații izentropice de presiune*, variațiile corespunzătoare ale susceptibilității optice χ a mediului fiind $\left(\frac{\partial\chi}{\partial S}\right)_P$, respectiv $\left(\frac{\partial\chi}{\partial P}\right)_S$. Totodată, este

mai comod pentru tratarea teoretică și interpretarea fizică a rezultatelor, să se lucreze cu variabilele densitate masică ρ și temperatură T , ca mărimi termodinamice independente. Se arată că aceste două descrieri pot fi legate cu ajutorul relațiilor de forma⁽⁴³⁾:

$$\left(\frac{\partial\chi}{\partial S}\right)_P = \frac{\tilde{T}}{C_p \tilde{\rho} v} \left[\tilde{\rho} \beta_T \left(\frac{\partial\chi}{\partial \rho}\right)_T + \left(\frac{\partial\chi}{\partial T}\right)_\rho \right] \quad (5.95)$$

și o expresie similară pentru $\left(\frac{\partial\chi}{\partial P}\right)_S$, unde C_p este căldura specifică la presiune

constantă, v este viteza sunetului în mediu, β_T este coeficientul de dilatare termică și barele de deasupra lui \tilde{T} și $\tilde{\rho}$ specifică valorile medii în mediu. Al doilea termen din paranteza mare a ecuației (5.95), care este asociat dependenței explicite de temperatură a susceptibilității optice a mediului este, în general, suficient de mic pentru a putea fi neglijat fără a face vreo eroare cât de cât⁽⁴⁴⁾. Astfel, rezultă că *efectul Rayleigh* depinde, în mod esențial, de variația susceptibilității cu densitatea și

⁽⁴³⁾ H. Z. Cummins și R. W. Gammon, *J. Chem. Phys.* **44**, 2785, (1966)

⁽⁴⁴⁾ I.P. Batra și R.H. Enns, *Phys. Rev.* **185**, 396 (1969)

diferă de *efectul Brillouin* prin faptul că nici o undă acustică nu este implicată în fluctuațiile de densitate.

În general, se disting două tipuri de *efect Rayleigh* după originea acestor fluctuații: – *efectul Rayleigh electrostrictiv stimulat*, care corespunde difuziei luminii pe fluctuații de densitate izobare induse prin procesul de electrostricțiune și – *efectul Rayleigh termodifuziv stimulat*, care descrie efectul de difuzie a luminii prin fluctuații de densitate izobare datorate dilatării termice după încălzirea locală a mediului prin absorbția luminii laser.

Observarea *efectului Rayleigh stimulat* necesită utilizarea unei unde pompă de frecvență ω și de vector de undă \bar{k} , care face un unghi $\theta \in [0^\circ, 180^\circ]$ cu o undă sondă de frecvență $\omega_s = \omega + \delta$ și de vector de undă \bar{k}_s (figura 5.27). La ieșirea din celulă (mediul molecular), intensitatea fasciculului unei sonde este măsurată în funcție de frecvența ω_s cu ajutorul fotodiodei F. Interferența celor două unde pompă și sondă conduce la un câmp electric a cărui intensitate prezintă o componentă

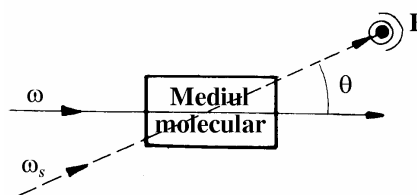


Fig. 5.27.

modulată temporal cu frecvența δ și spațial cu perioada $\frac{\lambda}{2} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)$, unde λ este lungimea de undă a laserilor. Atunci, aceasta modulație de intensitate va da naștere la – modulație de densitate prin procesele antagoniste de electrostricțiune (acumulare de molecule în zonele de mare intensitate) și de absorbție a luminii (prin provocarea unei încălziri locale a mediului în locurile de mare intensitate și printr-o dilatare termica care conduce la o diminuare a densității).

Procesul de relaxare a fluctuațiilor densității izobare a mediului sunt însoțite de variații ale temperaturii mediului, relaxarea făcând să intervină în același timp procesele de transport de energie, de masă și de impuls (ecuația lui Navier – Stokes). Atunci, timpul de relaxare al fluctuațiilor izobare ale densității sub acțiunea acestor procese este^{(45), (2), (3)}:

$$\tau = \frac{\tilde{\rho} C_p}{2\sigma(\bar{k} - \bar{k}_s)^2} = \frac{\tilde{\rho} C_p}{8\sigma \tilde{k}^2 \sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right)}, \quad (5.96)$$

unde σ este conductivitatea termică a mediului. Din expresia (5.96) rezultă că expresia timpului de relaxare a unei modulații de densitate de pas $\frac{\lambda}{2} \sin\left(\frac{\theta}{2}\right)$ corespunde *procesului de difuzie spațială* de coeficient

$$D = \frac{\sigma}{\tilde{\rho} C_p}, \quad (5.97)$$

⁽⁴⁵⁾ W. Kaiser și M. Meir, în *Laser Handbook* (ed. F.T. Arecchi și E.O. Schultz – Dubois, North – Holland, Amsterdam, (1972)

această difuzie ținând seama că avem schimburi de energie și de masă. Ordinul de mărime tipic al timpului de relaxare τ pentru $\theta=180^\circ$ este de 10 ns (cazul mediilor de slabă conductivitate termică) și devine considerabil mai lung în cazul în care unda pompă și unda sondă fac între ele un unghi foarte mic.

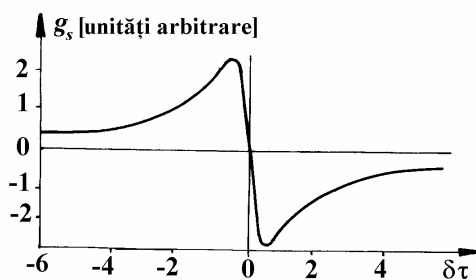


Fig. 5.28.

transmisie a unei sonde sub forma unei rezonanțe Rayleigh de alură dispersivă și care prezintă o parte în amplificare și o parte în absorbție (figura 5.28).

Efectul Rayleigh termodifuziv stimulat nu se produce decât în mediile care absorb lumină. În acest caz, modulația spațio-temporală a intensității legată de interferența unei pompe și unei sonde este însoțită de o variație modulată a temperaturii sub efectul de absorbție al luminii laser și, prin urmare, a fenomenului de dilatație termică, a unei modulații spațio-temporale a densității, eventual defazată datorită timpului de răspuns finit τ al mediului. Se observă atunci că, contrar procesului de electrostricțiune, acest efect tinde să acumuleze moleculele în zonele de mică intensitate. Difrakția unei pompe pe această modulație de densitate conduce, de asemenea, la o rezonanță Rayleigh de alură dispersivă pe spectrele de transmisie al unei sonde (figura 5.29).

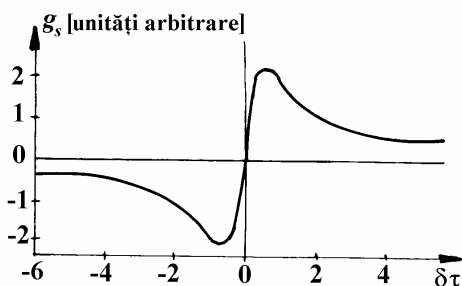


Fig. 5.29.

că într-un mediu absorbant de lumină, efectul Rayleigh electrostrictiv este aproape totdeauna neglijabil față de efectul termodifuziv și rezonanța Rayleigh prezintă atunci totdeauna alura din figura 5.29. Se observă că procesul Rayleigh termodifuziv se manifestă asupra spectrului de transmisie sub forma unei rezonanțe dispersive de

Datorită procesului de electrostricțiune, modulația de intensitate legată de interferența unei pompe cu unda sondă va conduce la o variație spațio-temporală a densității, eventual defazată datorită timpului de răspuns τ finit al mediului, moleculele tinzând să se acumuleze în zonele de intensitate mare. Difrakția unei pompe pe această modulație de densitate se manifestă atunci asupra spectrului de

Compararea figurilor 5.28 și 5.29 arată că rezonanța Rayleigh termodifuzivă are un semn opus la rezonanța Rayleigh electrostrictivă. Acest rezultat este natural deoarece electrostricțiunea și absorbția au efecte opuse. Într-adevăr, pentru o modulație de intensitate dată, variațiile locale ale densității datorită acestor două procese au semne exact opuse și nasc în mod natural rezonanțe de semne opuse. O altă caracteristică foarte importantă a acestor două tipuri de rezonanțe este

lărgimea $\frac{1}{\tau}$. Amplificarea unei sondă ($g_s > 0$) corespunde frecvențelor antiStokes.

Mai exact, se poate arăta că în cea mai mare parte a mediilor moleculare, prezența de impurități, chiar în slabă concentrație, contribuie la a face ca mecanismul de absorbție să domine pe cel de electrostricțiune, această tendință inversându-se în cazul unui mediu foarte pur, în care coeficientul de absorbție este inferior la 10^{-3} cm^{-1} . Aceasta face ca observarea efectului Raman stimulat electrostrictiv să fie extrem de dificilă.

Se remarcă faptul că *efectul Rayleigh* conduce, în general, la câștiguri tipice de un ordin de mărime inferior câștigurilor Raman și cu două ordine de mărime inferioare câștigurilor Brillouin. Caracteristicile celor două efecte Rayleigh sunt:

– mediul difuzor este un fluid dens la $T=300^\circ \text{ C}$ și centrul difuzorilor sunt molecule sau atomi; – lărgimea rezonanței este dictată de gradul de relaxare $\sin^2\left(\frac{\theta}{2}\right) \times 10 \text{ MHz}$,

originea relaxării fiind difuzia spațială prin transport de energie și masă; – forma rezonanței depinde de excitația de către unda sondă (modulația de densitate prin electrostricțiune în cazul efectului Rayleigh electrostrictiv și prin absorbția laser în cazul efectului Rayleigh termodifuziv), caracteristicile sondei dictate de unghiul θ dintre unda pompă și unda sondă și mecanismul de difracție Bragg pe rețeaua de densitate.

5.3. Efecte neliniare care implică amestecul a patru unde

Printre efectele neliniare de al treilea ordin care implică trei unde laser, am ales să studiem aici, în particular, procesele care grupează, în mod tradițional, noțiunea de amestec a patru unde (“four-wave mixing”). O asemenea denumire, surprinzătoare în primul rând în măsura în care trei unde sunt incidente pe mediul neliniar, se explică prin faptul ca interacția acestor trei fascicule cu mediul poate da naștere la o undă (chiar mai multe), susceptibilă de a interacționa la rândul său cu cele trei câmpuri incidente. După cum toate undele incidente au sau nu aceeași frecvență, vom vorbi de amestec *degenerat* sau *nedegenerat* cu patru unde.

Într-un mediu neliniar de al treilea ordin, amestecul a trei unde nu este în general posibil. Trei unde de frecvențe distincte ω_1 , ω_2 și ω_3 nu pot fi cuplate de un sistem dacă nu contribuie ca un auxiliar cea de-a patra undă. De exemplu, nu există, în general, nici o contribuție la componenta $P_{NL}(\omega_1)$ a undelor 2 și 3, cu excepția cazului degenerat (adică, atunci când $\omega_1 = 2\omega_3 - \omega_2$).

Acum se va examina cazul *amestecului a patru unde* într-un mediu neliniar de al treilea ordin. Începem prin a determina răspunsul mediului la o suprapunere de trei unde de frecvențe unghiulare ω_1 , ω_2 și ω_3 , cu câmpul

$$E(t) = \text{Re}\{E^0(\omega_1)\exp[i\omega_1 t]\} + \text{Re}\{E^0(\omega_2)\exp[i\omega_2 t]\} + \text{Re}\{E^0(\omega_3)\exp[i\omega_3 t]\} \quad (5.98)$$