

Київський національний університет імені Тараса Шевченка
фізичний факультет

ЯЩУК В.П.

ВИМУШЕНЕ РАМАНІВСЬКЕ РОЗСІЯННЯ СВІТЛА

Методичний посібник для студентів

Київ-2024

1. Вимушене Раманівське розсіяння світла

Раманівське розсіяння є непружним процесом розсіяння світла, в результаті якого розсіяний фотон має енергію відмінну від енергії падаючого фотона. Решта енергії або передається молекулі або забирається в неї. Якщо енергія розсіяного фотона менша ніж падаючого, то розсіяння називається стоксовим. В результаті такого процесу, крім розсіяного фотона з меншою енергією $\hbar\omega_s$, утворюється ще коливальне збудження молекули - фонон з енергією $\hbar\omega_v$ (рис.1.1). Енергія стоксового фотона дорівнює $\hbar\omega_s = \hbar\omega_l - \hbar\omega_v$. Процес стоксового розсіяння можна уявити як поглинання падаючого (лазерного) фотона $\hbar\omega_l$, перехід молекули із *нижнього коливального рівня* $v=0$ на віртуальний рівень і повернення її на *збуджений коливальний рівень* $v=1$.

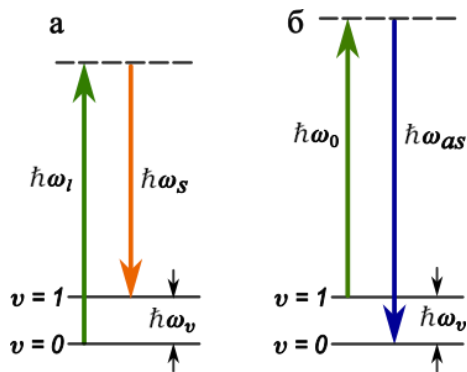


Рис.1.1 Діаграми переходів при спонтанному раманівському розсіянні: стоксовому (а) і антистоксовому (б).

Якщо ж енергія розсіяного фотона більша ніж падаючого, то процес називається антистоксовим. При такому розсіянні падаючий фотон, збуджуючи молекулу на віртуальний рівень, переводить її із *збудженого коливального рівня* $v=1$ на *основний* $v=0$. В результаті енергія розсіяного антистоксового фотона дорівнює $\hbar\omega_{as} = \hbar\omega_l + \hbar\omega_v$.

Процеси раманівського розсіяння можуть відбуватись і на інших квазічастинках з квантованими значеннями енергії: фононах, поляритонах, хвилях ентропії тощо. Ми, однак, зосередимось на розгляді механізму вимушеного розсіяння на молекулярних коливаннях як найбільш показовому.

Як і для переважної більшості оптичних процесів, що протікають за участю великої кількості фотонів (значне заповнення мод), теоретичні уявлення про механізм вимушеного Раманівського розсіяння світла (ВРР) можуть бути розвинені на основі класичного підходу, коли електромагнітне поле описується рівняннями Максвелла, а середовище – нелінійною поляризацією. Механізм встановлення вимушеного раманівського розсіяння на молекулах можна уявити собі як поєднання двох процесів:

- Встановлення в середовищі вимушених коливань молекул біхроматичним полем зовнішнього лазерного випромінювання з частотою ω_l і розсіяного стоксового випромінювання з частотою ω_s , яке виникає в

середині середовища в процесі розсіяння. В результаті цього в середовищі створюється когерентний ансамбль молекул з коливаннями, фази яких нав'язані цим біхроматичним полем.

- Розсіяння лазерного випромінювання на цьому когерентному ансамблі і утворення когерентного розсіяного стоксового чи антистоксового випромінювання.

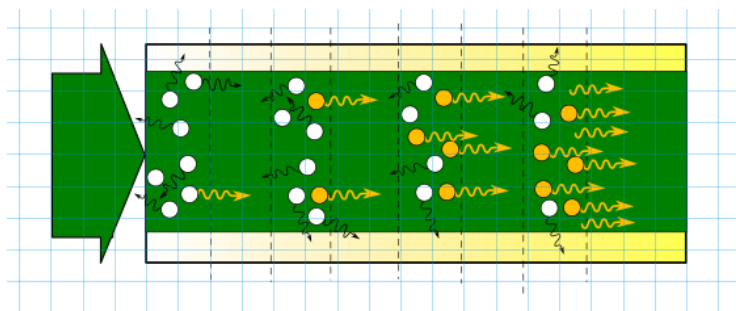


Рис.1.2. Схема формування когерентного ансамблю молекул і випромінювання вимушеного раманівського розсіяння.

Процес формування вимушеного раманівського розсіяння починається із спонтанного стоксового розсіяння лазерного випромінювання в початкових шарах середовища, прилеглих до вхідної поверхні (рис.1.2). Наступний шар середовища опромінюються вже

біхроматичним полем лазерного випромінювання ω_l і стоксового розсіяння ω_s , що виникло в попередньому шарі. Це створює в наступному шарі передумови для збудження вимушених коливань деякої невеликої частини молекул із скорельованими фазами, які нав'язані цим біхроматичним полем. Лазерне випромінювання розсіюється на цих коливаннях когерентно, а утворене при цьому когерентне стоксове випромінювання, разом з лазерним, утворює когерентну складову біхроматичного поля для збудження когерентних коливань молекул в подальших шарах. Легко зрозуміти, що з кожним наступним шаром доля когерентно збуджених молекул, і розсіяних на них стоксових фотонів зростатиме. Починаючи з деякого шару в середовищі сформується ансамбль когерентно збуджених молекул із скорельованими фазами коливань, на яких і буде в подальшому розсіюватися випромінювання.

Процес встановлення вимушеного раманівського розсіяння можна описати системою зв'язаних рівнянь для хвиль розсіяного випромінювання ω_s , ω_{as} та лазерного збудження ω_l . Джерелом випромінювання розсіяних хвиль є поляризація, що осцилює на відповідних частотах. Вона утворюється когерентними вимушеними коливаннями молекул. Тому спочатку слід розглянути утворення відповідної поляризації

Розглянемо модельне середовище, що складається із молекул, які не взаємодіють між собою і не беруть участь в хвильовому процесі (тобто їх коливання не згоджені). Спрощено молекули будемо вважати осциляторами, які відповідають нормальним коливанням реальних молекул, що описуються нормальними координатами X_i . Для простоти будемо вважати, що молекули двохатомні і, відповідно мають одне коливання. Багатоатомні молекули, що складаються з n атомів, мають в загальному випадку $3n-6$ коливань, які описуються відповідно $3n-6$ нормальними координатами. Таким молекулам відповідають $3n-6$ осциляторів. Тому розгляд коливань двохатомних молекул достатній для встановлення основних закономірностей ВРР. В таких молекулах нормальна координата X описує зміщення ядер молекули з рівноважних положень.

Вважатимемо, що при відсутності збудження молекули не мають дипольного моменту, тобто центри розподілу негативних (електронів) і позитивних (ядер) в молекулах співпадають. Під дією падаючого світла його електричне поле спричиняє зміщення центрів розподілу негативних і позитивних зарядів один відносно одного і молекула набуває дипольного моменту, величина якого пропорційна напруженості електричного поля світлової хвилі $E(t)$

$$p(t, X) = \alpha(X)E(t), \quad (1.1)$$

де $\alpha(X)$ - поляризованість молекули, яка характеризує здатність до зміщення зарядів в молекулі і служить коефіцієнтом пропорційності між напруженістю електричного поля світлової хвилі і спричиненим нею дипольним моментом молекули. В загальному випадку ця здатність, а отже і поляризованість, залежить від положення ядер, а тому вона залежить від координати X .

Відповідно до (1.1) дипольний момент молекули і напруженість електричного поля мають однакову часову залежність, тому дипольний момент молекули коливається з тією ж частотою ω_l , що і світлова хвиля, рівняння якої записуватимемо в експоненціальному вигляді:

$$\bar{E}_l(t, z) = \frac{1}{2}(E_l(z)e^{i[(\omega_l t - k_l z)]} + E_l^*(z) e^{-i[(\omega_l t - k_l z)]}) = \frac{1}{2}E_l(z) e^{i[(\omega_l t - k_l z)]} + \text{к.с.} \quad (1.2)$$

де \bar{E}_l та E_l – миттєве значення та комплексна амплітуда напруженості електричного поля світлової хвилі, яка включає в себе амплітуду (модуль комплексного числа) і початкову фазу коливань, k_l – її хвильовий вектор, а

«к.с.» - символізує комплексно спряжену величину до виразу, що стоїть спереду.

Саме залежність $\alpha(X)$ і є причиною Раманівського розсіяння світла. Якщо розкласти її в ряд

$$\alpha(x) = \alpha_0 + \left(\frac{\partial\alpha}{\partial X}\right)X + \dots \quad (1.3)$$

то дипольний момент молекули буде прямо пропорційний координаті X

$$p(t) = \alpha_0 \bar{E}_l(t) + \left(\frac{\partial\alpha}{\partial X}\right)X(t)\bar{E}_l(t) + \dots, \quad (1.4)$$

де α_0 -електронна поляризованість молекули в рівноважному (нерухомому) стані, а $\left(\frac{\partial\alpha}{\partial X}\right)X$ - описує зміну α в результаті коливань.

Звідки видно, що часова залежність $p(t)$ визначатиметься двома коливаннями: збуджуючого електричного поля $\bar{E}_l(t)$ з частотою ω_l і ядер в молекулі $X(t)$ з частотою ω_v :

$$X(t) = \frac{1}{2}X_0 e^{i\omega_v t} + \text{к.с.} \quad (1.5)$$

В результаті цього коливання дипольного моменту молекули відбувається на комбінаційних частотах $\omega_l \pm \omega_v$. Підставивши (1.2) і (1.5) в (1.4), матимемо

$$p(t) = \frac{1}{2}\alpha_0(E_l(z)e^{i[(\omega_l t - k_l z]} + E_l^*(z)e^{-i[(\omega_l t - k_l z]})) + \frac{1}{4}\left(\frac{\partial\alpha}{\partial X}\right)(X_0 e^{i\omega_v t} + X_0^* e^{-i\omega_v t})(E_l(z)e^{i[(\omega_l t - k_l z]} + E_l^*(z)e^{-i[(\omega_l t - k_l z]})) \quad (1.6)$$

Після перегрупування доданків видно, що часова залежність $p(t)$ містить три частотні складові:

$$p_{\omega_l}(t) = \frac{1}{2}\alpha_0(E_l(z)e^{i[(\omega_l t - k_l z]} + \text{к.с.}) \quad (1.7a)$$

$$p_{\omega_s}(t) = \frac{1}{4}\left(\frac{\partial\alpha}{\partial X}\right)X_0^* E_l(z)e^{i[(\omega_l - \omega_v) t - k_l z]} + \text{к.с.} \quad (1.7b)$$

$$p_{\omega_{as}}(t) = \frac{1}{4}\left(\frac{\partial\alpha}{\partial X}\right)(X_0 E_l(z)e^{i[(\omega_l + \omega_v) t - k_l z]} + \text{к.с.}) \quad (1.7b)$$

Перша складова (1.7a) дипольного моменту, що коливається з частотою падаючого випромінювання ω_l , відповідає релеевському розсіянню. А друга

(1.7б) і третя (1.7в) складові, із зміщеними відносно ω_l частотами $\omega_s = (\omega_l - \omega_v)$ і $\omega_{as} = (\omega_l + \omega_v)$, описують стоксове ω_s та антистоксове ω_{as} раманівське розсіяння. Макроскопічна поляризованість середовища описується сумарним дипольним моментом молекул, що знаходяться в одиниці об'єму, який називається вектором поляризації P (або просто - поляризацією).

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \sum_i^N \vec{p}_i = \varepsilon_0 \chi \vec{E}, \quad (1.8)$$

де N – кількість молекул в одиниці об'єму середовища;

ε_0 електрична стала, яка введена для раціонального запису наступних виразів;

$\chi = \sum_i^N \alpha_i(X) = \varepsilon_0 N \alpha(X) \vec{E}$ — діелектрична сприйнятливість середовища (яка в ізотропних середовищах є скаляром, а в анізотропних – тензором).

Відповідно до виразів (1.7а -1.7в) поляризація середовища також містить три компоненти, які осцилюють на тих же частотах ω_l , ω_s і ω_{as} .

$$P_{\omega_l}(t) = \frac{1}{2} \varepsilon_0 N \alpha_0 (E_l(z) e^{i[(\omega_l t - k_l z)]} + \text{к. с.}) \quad (1.9а)$$

$$P_{\omega_s}(t) = \frac{1}{4} \varepsilon_0 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right) X_0^* E_l(z) e^{i[(\omega_l - \omega_v) t - k_l z]} + \text{к. с.} \quad (1.9б)$$

$$P_{\omega_{as}}(t) = \frac{1}{4} \varepsilon_0 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right) (X_0 E_l(z) e^{i[(\omega_l + \omega_v) t - k_l z]} + \text{к. с.}) \quad (1.9в)$$

Коливання цих компонент призводить до випромінювання вторинних електромагнітних хвиль з напруженістю поля $E \sim \vec{P}$ на частотах, що відповідають релеєвському \vec{E}_l , раманівському стоксовому \vec{E}_s та антистоксовому \vec{E}_{as} розсіянню.

Пропорційність компонент поляризації P_{ω_s} і $P_{\omega_{as}}$ і напруженості відповідних полів \vec{E}_s і \vec{E}_{as} похідній $\frac{\partial \alpha}{\partial X}$ підтверджує що раманівське розсіяння існує лише тоді, коли електронна поляризованість молекули залежить від координат ядер X . Його ефективність пропорційна амплітуді коливань X_0 ядер. Тому розгляд механізму виникнення ВРР слід почати із розгляду молекулярних коливань.

В умовах вимушеного раманівського розсіяння молекули знаходяться під дією світлових хвиль падаючого і розсіяного випромінювання на частотах ω_l , ω_s і ω_{as} . Тому потрібно розглянути вимушені коливання молекули поляризації під дією цих хвиль, які описуються рівнянням

$$\ddot{X} + \gamma \dot{X} + \omega_v^2 = F(t)/m \quad (1.10)$$

де $F(t)$ – вимушуюча сила, з якою осцилююче електричне поле світлових хвиль діє на молекулу, m – її маса, γ - параметр, що характеризує затухання коливань.

Оскільки сила визначається швидкістю зміни енергії, викликаній її дією, то в конкретному випадку вимушуючої сили F , що збуджує коливання молекули, вона може бути визначена як похідна густини енергії ρ_E електричного поля хвиль по координаті X , віднесена до однієї молекули. Тобто

$$F(t) = - \frac{1}{N} \frac{\partial \rho_E}{\partial X}, \quad (1.11)$$

де $\rho_E = \varepsilon \bar{E}^2 / 2$, а $\varepsilon = \varepsilon_0(1 + \chi) = \varepsilon_0(1 + N\alpha(X))$ – діелектрична проникність середовища. Враховуючи ці вирази і (1.3) знайдемо:

$$F(t) = - \frac{\varepsilon_0}{2} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right) \bar{E}^2. \quad (1.12)$$

звідки видно, що сила $F(t)$ квадратично залежить від напруженості поля, що діє на молекулу. Оскільки кожна молекула середовища перебуває в сумарному полі трьох хвиль $\bar{E} = \bar{E}_l + \bar{E}_s + \bar{E}_{as}$, то сила

$$\begin{aligned} F \sim \bar{E}^2 &= \frac{1}{4} (E_l e^{i[(\omega_l t - k_l z]} + E_s e^{i[(\omega_s t - k_s z]} + E_{as} e^{i[(\omega_{as} t - k_{as} z]} + \text{к. с.})^* \\ &* (E_l e^{i[(\omega_l t - k_l z]} + E_s e^{i[(\omega_s t - k_s z]} + E_{as} e^{i[(\omega_{as} t - k_{as} z]} + \text{к. с.}) = \\ &= \dots \frac{1}{2} E_l E_s^* e^{i[(\omega_l - \omega_s)t - (k_l - k_s)z]} + \frac{1}{2} E_{as} E_l^* e^{i[(\omega_{as} - \omega_l)t - (k_{as} - k_l)z]} + \text{к. с.} \dots, \end{aligned} \quad (1.13)$$

містить загалом 36 доданків, серед яких є дві складові, які коливаються на різницевих частотах $(\omega_l - \omega_s)$ і $(\omega_l - \omega_{as})$, що є резонансними до частоти коливань ядер ω_v . Тому ці складові відіграють основну роль в збудженні коливань ядер молекули. Причому переважний вплив на встановлення вимушених коливань молекул має перша складова, оскільки вимушене стоксове розсіяння може існувати без антистоксового і виникає при меншій інтенсивності падаючого випромінювання. Тому, аналізуючи механізм виникнення ВРР, ми розглядатимемо спочатку цю складову.

Підставляючи цю складову у вираз для сили (1.12), матимемо рівняння вимушених коливань молекули:

$$\ddot{X} + \gamma \dot{X} + \omega_v^2 X = -\frac{\varepsilon_0}{4m} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right) E_l E_s^* e^{i[(\omega_l - \omega_s)t - (k_l - k_s)z]} + \text{к.с.} \quad (1.14)$$

Розв'язок цього рівняння слід шукати у вигляді, яка задається функціональною залежністю правої частини рівняння, а саме:

$$X(t) = \frac{1}{2} X_0 e^{i\omega t} + \text{к.с.} \quad (1.15)$$

Підставляючи (1.15) в рівняння (1.14), отримаємо:

$$(\omega_v^2 - \omega^2 + i\gamma\omega) \frac{X_0}{2} e^{i\omega t} + \text{к.с.} = \frac{\varepsilon_0}{4m} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right) E_l E_s^* e^{i[(\omega_l - \omega_s)t - (k_l - k_s)z]} + \text{к.с.} \quad (1.14a)$$

Очевидно рівняння задовольнятиметься, якщо $\omega = (\omega_l - \omega_s)$, тобто коливання молекул відбуватиметься на різничній частоті $\omega_l - \omega_s$ і, відповідно $\omega_s = \omega_l - \omega$.

Відкидаючи комплексно спряжену частину, знайдемо амплітуду коливань молекули:

$$X_0 = \frac{\varepsilon_0 \frac{\partial \alpha}{\partial x}}{4m(\omega_v^2 - (\omega_l - \omega_s)^2 + i\gamma(\omega_l - \omega_s))} \cdot E_l E_s^* \cdot e^{-i(k_l - k_s)z}. \quad (1.16)$$

Амплітуда вимушених коливань молекули стрімко зростає при наближенні частоти коливань вимушуючого поля $(\omega_l - \omega_s)$ до частоти ω_v власних коливань молекул. Максимум амплітуди досягається при $(\omega_l - \omega_s) = \sqrt{\omega_v^2 - \gamma^2/2}$. Це свідчить, що із-за затухання вимушені коливання відбуваються не точно з частотою власних коливань, а дещо меншою: $(\omega_l - \omega_s) < \omega_v$. Відповідно, частота стоксового випромінювання ω_s не рівна різниці частот лазерного збудження і власних коливань молекули: $\omega_s > (\omega_l - \omega_v)$, однак, при невеликому параметрі згасання γ (що справедливо для вузьких контурів раманівських ліній), цією відмінністю можна нехтувати і вважати що $\omega_s = \omega_l - \omega_v$.

Підставляючи отриманий вираз для X_0 у (1.9б), отримаємо остаточний вираз для стоксової поляризації:

$$P_{\omega_s}(t) = \frac{\varepsilon_0^2 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)^2}{16mD^*(\omega_v, (\omega_l - \omega_s))} E_l E_l^* E_s e^{i[(\omega_l - \omega_v)t - k_l z]} + \text{к.с.} \quad (1.17)$$

де $D(\omega_v, (\omega_l - \omega_s)) = (\omega_v^2 - (\omega_l - \omega_s)^2 + i\gamma(\omega_l - \omega_s))$ - позначення, яке часто зустрічається в резонансних виразах нелінійної оптики.

І аналогічний вираз для антистоксової поляризації при підстановці X_0 в (1.9в):

$$P_{\omega_{as}}(t) = \frac{\varepsilon_0^2 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)^2}{16mD(\omega_v, (\omega_l - \omega_s))} E_l E_l E_s^* e^{i[(\omega_l + \omega_v)t - (2k_l - k_s)z]} + \text{к. с.} \quad (1.18)$$

Вважаючи затухання коливань малими, можна покласти що $(\omega_l - \omega_v) \approx \omega_s$, $(\omega_l + \omega_v) \approx \omega_{as}$, а $D(\omega_v, (\omega_l - \omega_s)) \approx i\gamma\omega_v$.

Із структури запису виразів обох поляризацій видно, кожна з них виникає як результат дії трьох хвиль: стоксова ω_l , $-\omega_l$, ω_s , а антистоксова - ω_l , ω_l , $-\omega_s$. З іншого боку нелінійна поляризація пов'язана з напруженістю полів хвиль, що її обумовлюють, тензором. Його ранг визначається кількістю цих полів. Таким чином можна записати:

$$P_{\omega_s} = \varepsilon_0 \chi_{R_s}^{(3)}(\omega_s; \omega_l, -\omega_l, \omega_s) E_l E_l^* E_s \quad (1.19a)$$

$$P_{\omega_{as}} = \varepsilon_0 \chi_{R_{as}}^{(3)}(\omega_{as}; \omega_l, \omega_l, -\omega_s) E_l E_l E_s^* . \quad (1.19b)$$

$$\text{де} \quad \chi_{R_s}^{(3)} = \frac{\varepsilon_0^2 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)^2}{16mD^*(\omega_v, (\omega_l - \omega_s))} \quad (1.19v)$$

$$\chi_{R_{as}}^{(3)} = \frac{\varepsilon_0^2 N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right)^2}{16mD(\omega_v, (\omega_l - \omega_s))} \quad (1.19r)$$

нелінійна кубічна сприйнятливість що відповідає за вимушене стоксове і антистоксове раманівське розсіяння. Вона описується тензором четвертого рангу, який пов'язує вектор нелінійної поляризації з напруженістю полів трьох хвиль що її спричиняють. Щоб відрізнити тензори для різної поляризації в дужках вказані частоти відповідних полів і викликані ними поляризації.

Амплітуди стоксової і антистоксової хвиль описуються системою трьох вкорочених рівнянь, які є наслідками хвильового рівняння для кожної із цих частот в припущенні повільно змінних амплітуд полів, тобто коли на відстанях довжини хвилі змінами амплітуд можна нехтувати (математично це означає, що в хвильовому рівнянні можна нехтувати другою похідною).

Для стоксової хвилі вкорочене рівняння має вигляд:

$$\frac{dE_s}{dz} e^{i(\omega_s t - k_s z)} + \text{к. с.} = -\frac{1}{2} \sigma \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_s \varepsilon_0}} \cdot E_s e^{i(\omega_s t - k_s z)} + i \frac{\mu_0}{k_s} \frac{\partial^2}{\partial t^2} P_{\omega_s}(z, t) + \text{к. с.} \quad (1.20)$$

Підстановка в нього виразу (1.17) для поляризації P_{ω_s} і скорочення на експоненту дає

$$\frac{dE_s}{dz} = -\frac{1}{2} \beta \cdot E_s - i \frac{\varepsilon_0 \omega_s^2}{k_s} \chi_{R_s}^{(3)} |E_l|^2 E_s , \quad (1.21)$$

де $\sigma \sqrt{\frac{\mu_0}{\varepsilon_s \varepsilon_0}} = \beta$ - параметр, що має зміст втрат стоксового випромінювання в середовищі внаслідок дисипативних процесів.

Вираз, що стоїть перед добутком полів в другому доданку є комплексним числом, яке в загальному випадку можна записати як

$$i \frac{\varepsilon_0 \omega_s^2}{k_s} \chi_{R_s}^{(3)} = 1/2 (k + i\delta) \quad (1.21a)$$

Інтегрування рівняння (1.20), в припущенні, що E_l не залежить від z (так зване наближення заданого поля), дає:

$$E_s = E_{s,0} e^{\frac{1}{2}(k|E_l|^2 - \beta)z} e^{-i\delta\chi_{R_s}^{(3)}|E_l|^2 z}, \quad (1.22)$$

$$I_s = I_{s,0} e^{(kI_l - \beta)z}. \quad (1.22)$$

де $E_{s,0}$ і $I_{s,0}$ напруженість поля і інтенсивність спонтанного стоксового випромінювання на вході в середовище, а $I_l = |E_l|^2$ – інтенсивність лазерного випромінювання, що збуджує вимушене раманівське розсіяння.

З цих виразів видно, що при

$$kI_l > \beta \quad (1.23)$$

в раман-активному середовищі виникає експоненціальне зростання стоксового випромінювання (рис.1.3). Темп цього

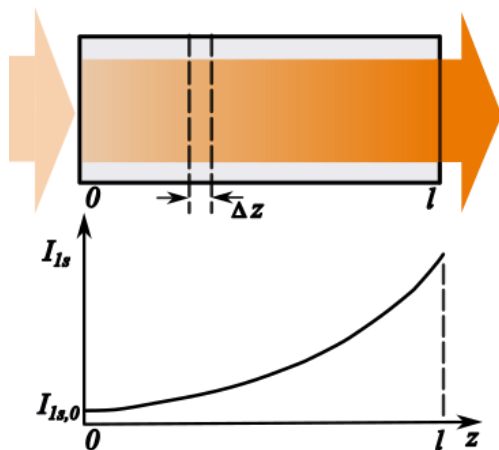


Рис.1.3. Залежність підсиленого стоксового від пройденої відстані.

зростання визначається коефіцієнтом підсилення $K = kI_l$, який пропорційний інтенсивності лазерного випромінювання і уявній частині тензора вимушеного раманівського розсіяння. Враховуючи (1.19) і (1.21), можна пересвідчитись, що знак k визначається різницею частот $(\omega_l - \omega_s) = \omega_\nu$, яка завжди $\Delta > 0$.

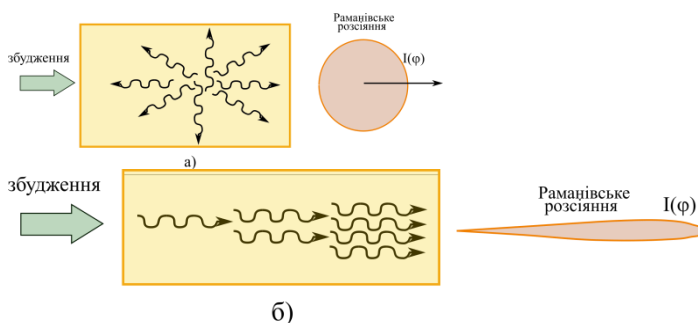


Рис.1.4. Відмінність просторового розподілу розсіяних стоксових фотонів для спонтанного (а) і вимушеного (б) раманівського розсіяння.

Зростання інтенсивності стоксового випромінювання вздовж збуджуючого лазерного пучка призводить до формування вузько спрямованого когерентного пучка на стоксовій частоті ω_s на відміну від спонтанного стоксового розсіяння,

випромінювання якого просторово ізотропне (рис. 1.4). Причина такої гостро спрямованості можна встановити із рівності хвильових векторів хвилі стоксової поляризації (1.17), яка утворює в кожному шарі середовища

стоксове випромінювання і лазерного випромінювання, яке в цьому ж шарі створює цю поляризацію (1.2). Ця рівність означає, що вздовж лазерного пучка відбувається синхронна взаємодія цих хвиль, а інших напрямках це не виконується. Тому вимушене раманівське розсіяння стоксової компоненти відбувається тільки в напрямі збуджуючого лазерного пучка. Це дає підстави розглядати це розсіяння як спосіб зсуву частоти когерентного лазерного пучка в іншу (довгохвильову) спектральну область із збереженням його спрямованості та когерентності.

Слід зауважити, що експоненціальне зростання розсіяного стоксового випромінювання відбувається за умов, при яких розглянутий механізм виникнення вимушеного раманівського розсіяння залишається вірним:

- Інтенсивність збуджуючого лазерного випромінювання на протязі всього розсіювального середовища залишається сталою;
- Коливання всіх молекул є вимушеними з фазами нав'язаними біхроматичним полем;
- Впливом антистоксового випромінювання на збудження вимушених коливань молекул можна нехтувати. Разом із лазерним випромінюванням воно теж утворює біхроматичне поле із резонансною різницею частот $\omega_{as} - \omega_l = \omega_0$.

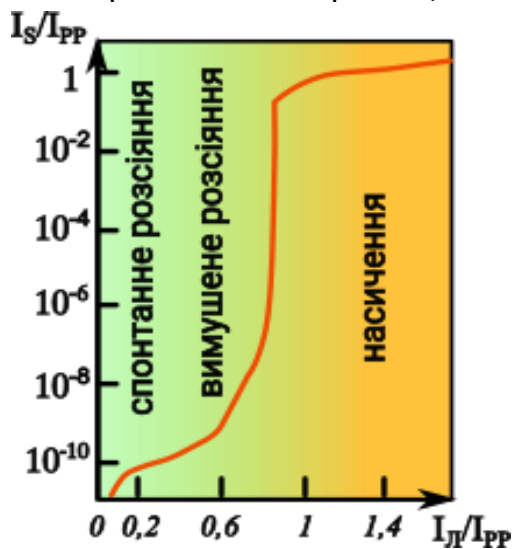


Рис.1.5. Зміна режимів раманівського розсіяння стоксової компоненти в залежності від інтенсивності лазерного випромінювання.

Порушення цих умов призводить до відхилення від експоненціального зростання (1.22). Як показано на рис.1.5, при збільшенні інтенсивності лазерного збудження, процес раманівського розсіяння проходить три етапи, які характеризуються різною залежністю інтенсивності раманівського розсіяння. Початковий етап, який характеризується лінійною залежністю $I_s(I_L)$, відповідає спонтанному розсіянню. Другий етап з експоненціальною залежністю відповідно до формули (1.22), відповідає вимушеному раманівському розсіянню при малому перетворенні лазерного випромінювання в розсіяне. І третій етап

відповідає вимушеному раманівському розсіянню з великою ефективністю,

яке суттєво зменшує інтенсивність збуджуючого лазерного випромінювання, що призводить до насичення.

Перехід між першим та другим етапами – від спонтанного до вимушеного розсіяння відповідає квазі пороговій умові (1.23). Цей перехід різкий і візуально сприймається як поріг, але експериментально чітко не фіксується. Через це він називається казіпорогом, на відміну від порога лазерної генерація, який чітко визначений. Це обумовлено загальною відмінністю між підсилювачем і генератором, останній з яких має позитивний зворотний зв'язок, завдяки якому він само підтримує свої коливання.

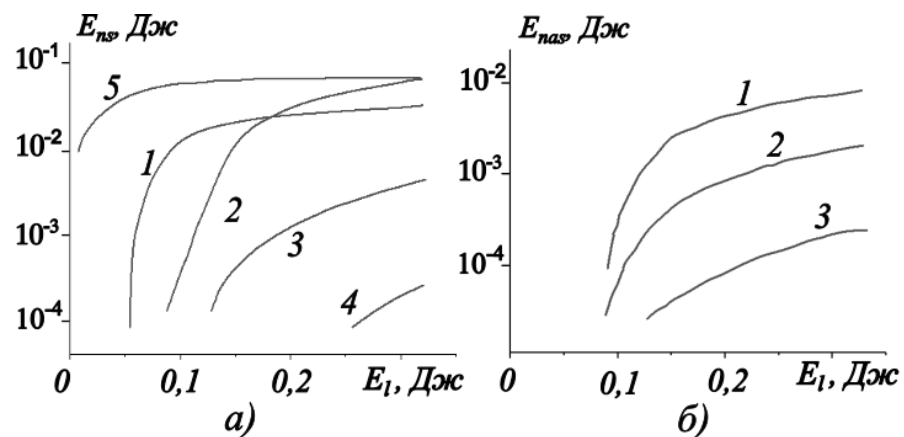


Рис. 1.6.а) Залежність інтенсивності стоксових компонент E_{ns} від інтенсивності випромінювання накачування E_l на вході середовища: 1s (1), 2s (2), 3s (3), 4s (4); 5 – залежність інтенсивності випромінювання накачування на виході E'_l із середовища від його інтенсивності на вході E_l .

б) Залежність інтенсивності I_{as} антистоксових компонент від інтенсивності випромінювання накачування на вході середовища: 1as (1), 2as (2), 3as (3).

При високій ефективності вимушеного раманівського розсіяння стоксова компонента досягає такої інтенсивності, що сама може збуджувати вимушене раманівське розсіяння із частотою, зміщеною відносно ω_s на ту ж частоту молекулярних коливань ω_v . В результаті частота цього випромінювання дорівнює $\omega_{2s} = \omega_l - 2\omega_v$. Щоб розрізнити, компоненти $\omega_{1s} = \omega_l - \omega_v$ і $\omega_{2s} = \omega_l - 2\omega_v$ називаються першою та другою стоксовими компонентами. Аналогічно компонента ω_{2s} може збуджувати наступну компоненту $\omega_{3s} = \omega_l - 3\omega_v$ і т.д. Із рис.1.6а, де наведені експериментальні дані, видно, що кожна наступна стоксова компонента виникає після того як попередня досягає насичення. Для порівняння там же наведена залежність інтенсивності випромінювання накачування на виході E'_l із середовища від його інтенсивності на вході E_l , із якої видно, що після виникнення компоненти

1s подальше збільшення інтенсивності лазерного випромінювання іде на утворення наступних вищих компонент раманівського розсіяння.

Вищі антистоксові компоненти з частотами $\omega_{nas} = \omega_l + n\omega_v$ виникають практично при однаковій інтенсивності лазерного збудження, але наростають з різним швидкістю (рис.1.6б).

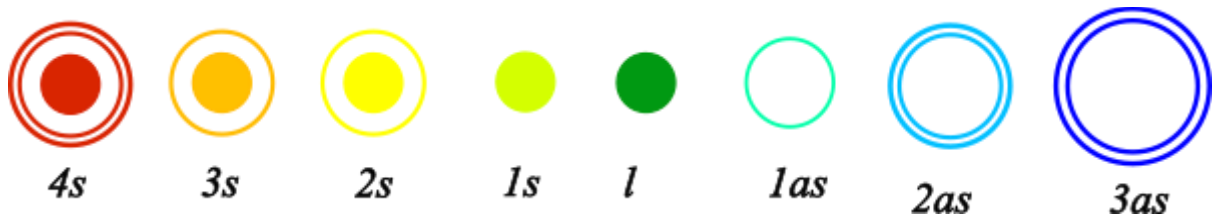


Рис.1.6. Схематичне зображення плям пучків випромінювання компонент вимушеного раманівського розсіяння і лазерного збудження.

На відміну від першої стоксової компоненти 1s, вищі стоксові компоненти ns і всі антистоксові компоненти nas мають доволі складний кутовий розподіл випромінювання, про що свідчить форма плям відповідних пучків. Як видно із рис.1.6 всі вищі стоксові компоненти мають центральну складову, в якій випромінювання зосереджено у вузькому тілесному куті, як в першій стоксовій компоненті. Навколо цього центрального пучка розташовані бокові складові, випромінювання яких утворює конуси з кутом в кілька градусів. Випромінювання всіх антистоксовим компонент розповсюджується виключно в конусах, під кутом до напрямку збуджуючого випромінювання. Це є наслідком того, що випромінювання антистоксових компонент розповсюджується з іншим хвильовим вектором, ніж поляризація, яка його продукує. Це видно на прикладі першої антистоксової компоненти 1as, яка має хвильовий вектор \vec{k}_{as} , а відповідна поляризація (1.18) - вектор $(2\vec{k}_l - \vec{k}_s)$. Для їх синхронної взаємодії необхідно, щоб ці вектори були рівні, що із-за дисперсії можливо задовольнити лише векторно:

$$\vec{k}_{as} = (2\vec{k}_l - \vec{k}_s). \quad (1.24)$$

Співвідношення (1.24) є умовою синхронізму, яка визначає напрям розповсюдження

На рис.1.7 наведено розташування векторів, що задовольняє цю умову. Видно, що випромінювання першої антистоксової компоненти розповсюджується під кутом до пучка лазерного збудження, утворюючи навколо нього конус, що на екрані проявляється як кільце. Кут розхилу конуса можна вирахувати знаючи показники заломлення на відповідних частотах. Слід, однак, прийняти до уваги, що напрями розповсюдження антистоксових

і вищих стоксових компонент можуть відхиляються від розрахованих із
внаслідок ефекту самофокусування, який впливає на значення показника
заломлення для взаємодіючих хвиль

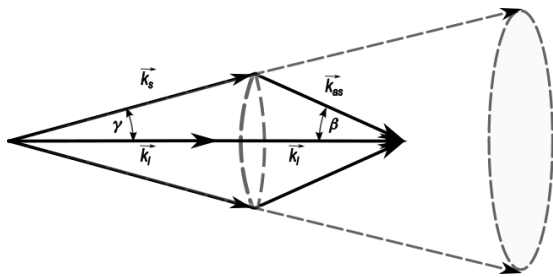


Рис. 1.7а. Діаграма хвильових векторів при вимушеному антистоксовому розсіянні.

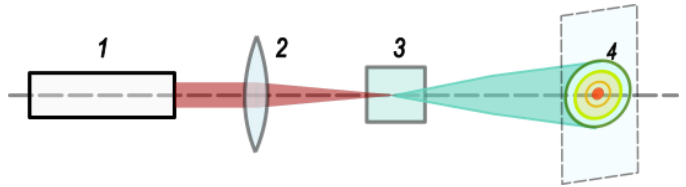


Рис.1.7б. Схема спостереження вимушеного антистоксового випромінювання: накладання плям антистоксовим компонент на екрані.

При звичайному спостереженні кільця різних антистоксовим компонент накладаються і на екрані мало розділяються, видно лише як лазерна пляма змінює свій колір при переході від центра до країв від «тепліх» кольорів (меншої частоти) до більш «холодних» (більшої частоти).

Виникнення кілець у випромінюванні вищих стоксових компонент вимушеного раманівського також обумовлено існуванням подібних умов синхронізму.

2.Раманівські підсилювачі і лазери

Раманівські підсилювачі

Раманівське підсилення можна використати для підсилення оптичного сигналу, якщо він розповсюджується синхронно з інтенсивною хвилею накачування і лежить в смузі Раманівського підсилення середовища. Важливою перевагою Раманівських підсилювачів є можливість пересування їх смуги підсилення по спектральній осі змінюючи частоту випромінювання накачування. Це вигідно відрізняє Раманівські підсилювачі від лазерних підсилювачів, смуга підсилення яких задається контуром люмінесценції активного середовища і не може зсуватись. Практично це вимагає або заміни лазера накачування або переналаштування його довжини хвилі генерації в межах смуги його підсилення, що ускладнює можливість узгодження контура Раманівського підсилення із спектром вхідного сигналу. Тим не менше є важливий випадок, коли це успішно працює.

Прикладом такого підсилювача є раманівський волоконний підсилювач, який успішно використовується в оптоволоконних лініях зв'язку. Оптоволокну є діелектричним хвилеводом, в якому оптичне випромінювання може розповсюджуватися на великі відстані (десятки і навіть сотні кілометрів) завдяки повному внутрішньому відбиванню на межі серцевини оптоволокна і оболонки, що його оточує. Серцевина оптоволокна виготовлена із високо очищеного плавленого кварцу, який складається із молекул SiO_2 , зв'язаних хімічним зв'язком. Її діаметр становить 8 – 50 мкм в залежності від кількості хвилеводних мод, які можуть розповсюджуватись в оптоволокну.

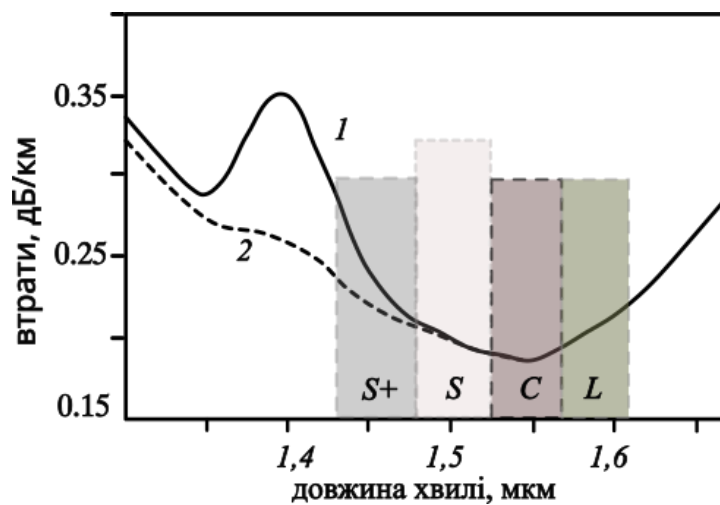


Рис.2.1. Спектр пропускання оптоволокна.

Затухання оптичного сигналу в оптоволокну визначається головним чином поглинанням кварцу в спектральному діапазоні, що відповідає частоті випромінювання сигналу. Іншими чинниками затухання є розсіяння світла на межі серцевини з оболонкою із-за порушень повного внутрішнього відбивання на поверхні серцевини, обумовлених дефектами поверхні серцевини, надмірним перегином волокна тощо. Вони можуть бути мінімізовані технологічно. В оптоволоконних кабелях, які використовуються для передачі сигналів на відносно невеликі відстані (до кількох десятків кілометрів), використовується випромінювання з довжиною хвилі 0.8 -0.9 мкм, для якої затухання оптоволокна становить 5 -20 дБ. Це досить мале затухання, співмірне із затуханням в електричних мідних проводах при передачі низькочастотних сигналів. Однак така величина затухання є надто великою при передачі оптичних сигналів на відстані сотні кілометрів.

Вікно прозорості оптичного волокна лежить в межах 1,43 — 1,61 мкм і складається із чотирьох діапазонів S+, S, C і L (Рис.2.1). В діапазон С попадає довжина хвилі генерації ербієвого лазера, що дає можливість у волоконних лініях передачі комбінувати два типи підсилювачів: на початку лінії ербієвий на кристалах, який підсилює оптичний сигнал до необхідного рівня і раманівський, який розподілений вздовж всього волокна і підтримує сигнал на рівні вище шумів.

Раманівських підсилювачі найбільш широко використовуються в телекомунікаційних оптоволоконних системах для передачі сигналів на далекі і наддалекі відстані (майже 1000 км). В таких системах використовуються розподілені Раманівські підсилювачі, в яких оптичне волокно використовується одночасно як для передачі оптичних сигналів так і для їх підсилення по всій довжині волокна. Розподілене Раманівське підсилення покращує відношення сигнал/шум у оптоволоконних лініях зв'язку, завдяки чому можна використовувати довші ділянки волокна, вищу швидкість передачі, менші проміжки між каналами. Це дозволяє також зменшувати нелінійні спотворення сигналів, наближаючи робочий діапазон до довжини хвилі нульової дисперсії.

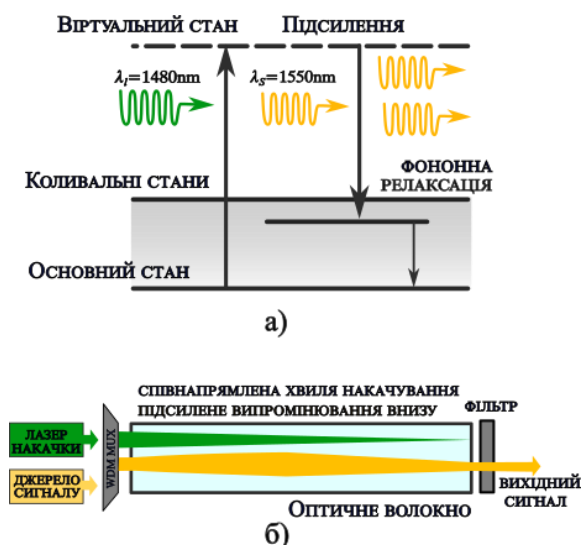


Рис. 2.2. Принцип дії і оптична схема Раманівського підсилювача на оптичному волокні. WDM MUX (wavelength division multiplexing) – пристрій, що об'єднує оптичні сигнали з різною несучою частотою (довжиною хвилі) в одному волокні.

В оптичному волокні, що виготовляється із плавленого кварцу, Раманівське розсіяння виникає на флуктуаціях поляризації, яке обумовлено коливаннями іонів кремнію Si і кисню O з частотою Ω . Ці коливання

збуджують коливання пружних хвиль в кварці, які поведуть себе як квазічастинки – фонони з енергією $\hbar\Omega$ (Рис.2.2). В результаті непружного розсіяння лазерного випромінювання виникають Раманівські компоненти з частотами $\omega_s = \omega_l - \Omega$ та $\omega_{as} = \omega_l + \Omega$. При невеликій інтенсивності падаючої лазерної хвилі розсіяна хвиля слабка і вимушуюча сила біхроматичного поля падаючої ω_l і розсіяної ω_s хвиль не в змозі вплинути на фази цих коливань і вони відбуваються хаотично, а розсіяне випромінювання некогерентне. При великій інтенсивності хвилі коливання іонів і поляризації середовища стають вимушеними когерентними, а розсіяння на них – вимушеним. Внаслідок цього виникають умови для Раманівського підсилення

Енергія падаючої хвилі тратиться на збудження коливань і іонів і фононів. Тому при вимушеному раманівському розсіянні енергія квантів стоксового розсіяння (1s) не строго фіксована, а розподілена в певному інтервалі частот. Відповідно смуга раманівського підсилення доволі широка, що дозволяє підсилювати доволі багато оптичних сигналів, що відрізняються своїми частотами.

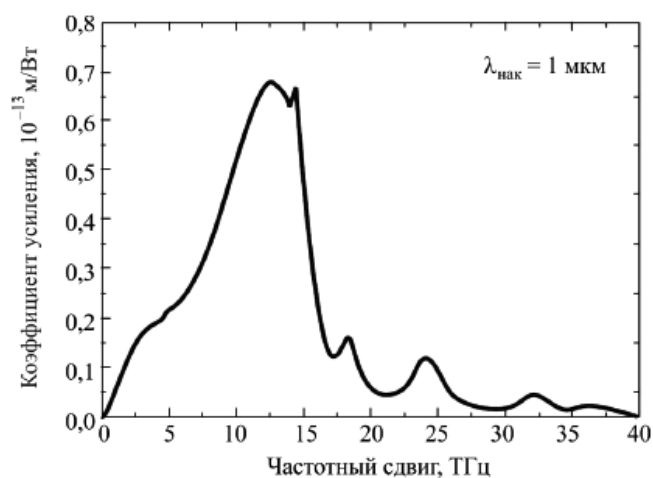


Рис. 2.3 Спектр раманівського підсилення для кварцового волокна в залежності від раманівського зсуву ($\lambda_l = 1.064$ нм).

Раманівські підсилювачі на оптоволокні мають відносно невелике підсилення на один метр, однак цей недолік успішно компенсується великою протяжністю оптоволокна в оптоволоконних лініях зв'язку. Недоліком є також відносно низька ефективність накачування при нижчій потужності оптичного сигналу. Але ця недостача ефективності накачування полегшується затискуванням підсилення в оптоволокні

Розподілені Раманівські підсилювачі покращують відношення сигнал/шум і зменшують нелінійні незручності волоконних систем, дозволяючи збільшити проміжки підсилювача, вищі бітрейти, менший інтервал каналів і робота поблизу нульової дисперсії, що запобігає розпливанню хвильових пакетів сигналів.

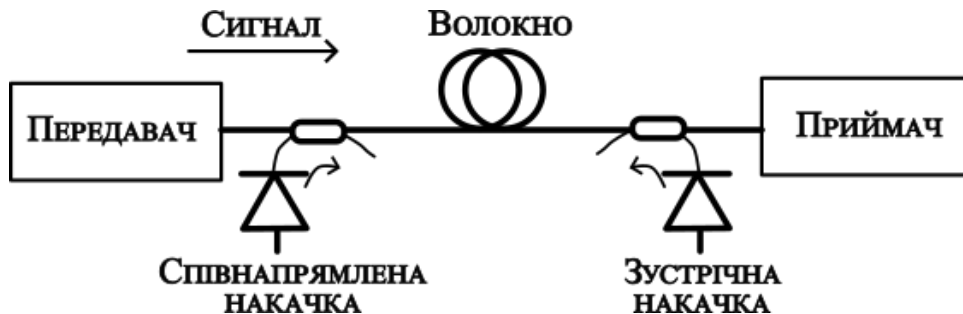


Рис.2.4. Схема оптичного зв'язку з розподіленим Раманівським підсилювачем за рахунок двостороннього накачування.

Зрозуміло, що чим більш рівномірно розподілена інтенсивність випромінювання накачування і, відповідно сигналу по довжині оптоволокна, тим краще співвідношення сигнал/шум досягається на його кінці, де розташований приймач. Тому доцільно використовувати двостороннє накачування: в прямому і протилежному напрямку відносно розповсюдження сигналу (рис.3.4). Це забезпечує більш рівномірний розподіл випромінювання обох сигналів вздовж оптичного волокна.

Раманівські лазери

Якщо середовище з раманівським підсиленням розмістити в резонаторі із дзеркалами, напиленими на довжину хвилі λ_s стоксового раманівського розсіяння, і забезпечити умову самозбудження

$$G \geq \alpha + \frac{1}{2L} \ln \frac{1}{r_1 r_2}, \quad (2.1)$$

то на цій довжині хвилі виникне генерація (G — коефіцієнт раманівського підсилення, а r_1 , r_2 і α — відповідно коефіцієнти відбиття дзеркал резонатора і розподілених втрат в розсіювальному середовищі для λ_s). Такий пристрій називається раманівським лазером. Джерелом накачування для нього є випромінювання звичайного лазера, що працює на вимушеному випромінюванні електронних переходів в атомах чи молекулах, а генерація відбувається за рахунок вимушеного раманівського розсіяння на коливальних модах розсіювального середовища. Причому активні

середовища звичайного і раманівського лазерів можна розмістити в одному резонаторі і, навіть, об'єднати в одному середовищі.

Раманівські лазери використовуються для перетворення довжини хвилі лазерного випромінювання в інший спектральний діапазон (т.зв. Raman shifter). Як правило використовується генерація на першій стоксовій компоненті $1s$, тому довжина хвилі Раманівського лазера зсунута відносно спектральної лінії накачування в довгохвильову область. Зручними для цього є кристали, в яких вимушене розсіяння відбувається на високочастотних фононних модах, активних в раманівському розсіянні.

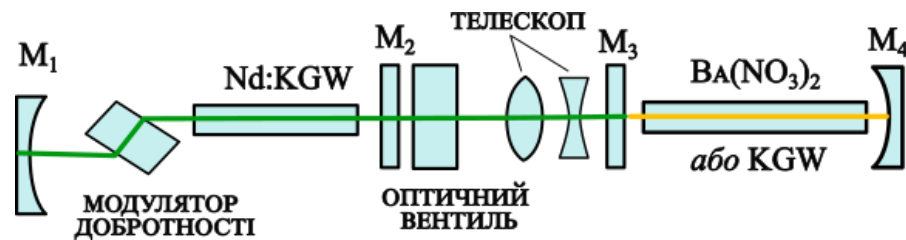


Рис. 2.5. Раманівський лазер на кристалах KGW із зовнішнім накачуванням KGW:Nd лазером.

Прикладом є калій гадолінієвий гранат $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$ (KGW), який має дві високо добротні фононні моди з частотами $\omega_{v1}=768 \text{ см}^{-1}$ і $\omega_{v2}=901 \text{ см}^{-1}$, активні в Раманівському розсіянні. До того ж він може бути також активований рідкоземельними іонами Nd^{3+} та Yb^{3+} , що дозволяє використовувати його і як активний елемент лазерів.

На рис. 2.5 наведена оптична схема раманівського лазера із зовнішнім лазерним накачуванням. В обох лазерах використовується кристали KGW – в лазері накачування активований іонами Nd^{3+} з довжиною хвилі генерації $\lambda_1 = 1351 \text{ нм}$, а в раманівському – чистий бездомішковий кристал, в якому збуджується раманівська генерація на довжині хвилі $\lambda_s = 1538 \text{ см}^{-1}$, що відповідає високочастотній коливальній моді $\omega_v = 901 \text{ см}^{-1}$. Вибір довжини хвилі генерації визначається селективним відбивання діелектричних дзеркал M_3 і M_4 резонатора Раманівського лазера, які напилені на відповідну спектральну область. Дзеркало M_3 прозоре для λ_1 і повністю відбиваюче для λ_s , дзеркало M_4 навпаки повністю відбиває λ_1 і прозоре для λ_s .

Резонатор лазера накачування утворений сферичним та плоским дзеркалами M_1 і M_2 . Оптичний вентиль між резонаторами унеможливорює потрапляння випромінювання λ_1 із Раманівського лазера назад в лазер накачування.

Випромінювання генерації зазнає розсіяння на коливальній моді $\omega_v = 901 \text{ см}^{-1}$ і в самому активному елементі лазера накачування (KGW: Nd^{3+}), де інтенсивність його ще більша. Це дозволяє реалізовувати на одному і тому ж кристалі, в одному резонаторі, звичайну і Раманівську генерацію одночасно, якщо використати діелектричні дзеркала з достатнім коефіцієнт відбиття на обох довжинах хвиль λ_s і λ_{ν} .

Раманівські лазери можуть працювати також на стиснених газах (для підвищення щільності розсіювальних молекул). Найбільш привабливим є водень, молекули якого мають найбільшу величину коливального кванта $h\nu_v = 4155 \text{ см}^{-1}$ і, відповідно найбільший зсув довжини хвилі стоксового випромінювання Раманівського лазера відносно довжини хвилі накачування. Наприклад, при накачуванні випромінюванням лазера YAG: Nd з довжиною хвилі $\lambda_1 = 1.064 \text{ мкм}$, стоксове випромінювання водневого Раманівського лазера має довжину хвилі $\lambda_s = 1.907 \text{ мкм}$.

Раманівські лазери на стиснених газах можуть мати велику довжину і, відповідно, достатнє підсилення для отримання високої інтенсивності Раманівського пучка за один прохід. Тому вони, як правило, однопрохідні і по суті є підсилювачами, вихідне випромінювання яких формується із спонтанного випромінювання на вході середовища внаслідок підсилення за один прохід. Поріг генерації однопрохідних раманівських лазерів, як і самого явища ВРР, є умовним. Він визначається умовно як така інтенсивність накачування I_L , при якій інтенсивність вимушеного стоксового випромінювання складає $\sim 1\%$ від величини I_L . Для такого перетворення необхідно розмноження шумових фотонів Раманівського розсіяння за один прохід в $\sim e^{23} - e^{30}$ разів, що відповідає інтенсивності випромінювання на виході $\sim 100 \text{ кВт/см}^2$.

Коефіцієнт Раманівського підсилення водню, в розрахунку на 1 МВт/см^2 інтенсивності накачування, при тиску 10 атм становить $g_s \sim 10\text{-}3 \text{ см/МВт}$ [4]. Оцінена таким чином порогова інтенсивність накачування при довжині кювети із газом $L = 1 \text{ м}$ становить значну величину $I_{l,th} \sim 600 \text{ МВт/см}^2$. Проте, не зважаючи на це вона досягається без проблем шляхом фокусування коротких лазерних імпульсів. Так при імпульсах лазера накачування тривалістю $\tau_i = 10 \text{ нс}$ і фокусуванні випромінювання в пляму радіусом $w_0 = 0.2 \text{ мм}$ це вимагає відносно невеликої енергії в імпульсі $W = 375 \text{ мДж}$. При скороченні імпульса накачування до $\tau_i \sim 50 \text{ пс}$ (пікосекундні лазери із синхронізацією мод) ця величина зменшується до одиниць мВт.

Не зважаючи на відсутність резонатора, параметри випромінювання однопрохідного Раманівського лазера близькі до параметрів випромінювання лазера накачування, що є наслідком ефектів повторення властивих самому явищу ВРР, розглянутих раніше. Зокрема, зберігається розбіжність і гаусів профіль пучка накачування, а спектральна ширина може бути в кілька разів меншою за спектральну ширину лінії накачування.

Однак, навіть невеликий позитивний зворотній зв'язок за рахунок Френелівського відбиття від вікон кювети, які відіграють роль дзеркал з коефіцієнтом відбиття $r=4\%$, може бути достатнім для виконання умови самозбудження Раманівської генерації, в резонаторі, утвореного вікнами кювети: $G_s \geq \alpha_r$, де $G_s = g_s I_l$ – коефіцієнт раманівського підсилення, а $\alpha_r = 1/2L \ln(1/r^2)$ – коефіцієнт радіаційних втрат через вікна кювети. При пороговій інтенсивності для однопрохідного лазера $I_{l,th} = 600 \text{ МВт/см}^2$ величини цих параметрів становлять: $G_s = 0.6 \text{ см}^{-1}$; $\alpha_r = 0.04 \text{ см}^{-1}$ і умова самозбудження задовольняється з великим запасом. Тобто, навіть при пороговому накачуванні, однопрохідний Раманівський лазер за рахунок Френелівського відбиття легко перетворюється в Раманівський лазер з резонатором із вікон кювети, при умові їх паралельності.

3. Когерентна антистоксова Раманівська спектроскопія (КАРС)

Когерентна антистоксова Раманівська спектроскопія (КАРС) — це метод, який використовує чотирихвильове змішування оптичних сигналів для генерації когерентної хвилі Раманівського розсіяння на антистоксовій частоті. Завдяки когерентному характеру розсіяння КАРС сигнал має набагато кращі параметри по відношенню до спонтанного антистоксового Раманівського розсіяння: вище ($\sim 10^5$ раз) відношення сигнал-шум, набагато меншу розбіжність ($\sim 10^{-4}$ раз) пучка, високе спектральне розділення (рівне ширині лінії лазерного збудження), практично повне усунення впливу люмінесцентного засвічування досліджуваних речовин.

Метод КАРС ґрунтується на збудженні когерентних коливань молекул в зразку біхроматичним випромінюванням, різниця частот яких рівна частоті молекулярних коливань $\omega_1 - \omega_2 = \omega_v$. Завдяки квадратичній залежності від напруженості сумарного електричного поля $(\vec{E}_l + \vec{E}_l)$ вимушуюча сила (1.11), що діє на молекулу, містить складову компоненту

$$F(t) = \frac{\varepsilon_0}{2} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right) (\bar{E}_1 + \bar{E}_2)^2 = \dots \frac{\varepsilon_0}{4} \left(\frac{\partial \alpha}{\partial X} \right) E_1 E_2^* e^{i[(\omega_1 - \omega_2)t - (k_1 - k_2)z]} + \text{к.с.}, \quad (3.1)$$

яка потрапляє в резонанс з молекулярними коливаннями і робить їх когерентними по всьому ансамблю, що створює необхідні умови для вимушеного Раманівського розсіяння. Для спостереження цього розсіяння на збуджену частину зразка спрямовується пробне випромінювання з частотою ω_3 , яке розсіюється на когерентно збуджених молекулах на стоксовій і антистоксовій частотах:

$$\omega_s = \omega_3 - (\omega_1 - \omega_2) \quad (3.2a)$$

$$\omega_{as} = \omega_3 + (\omega_1 - \omega_2). \quad (3.2b)$$

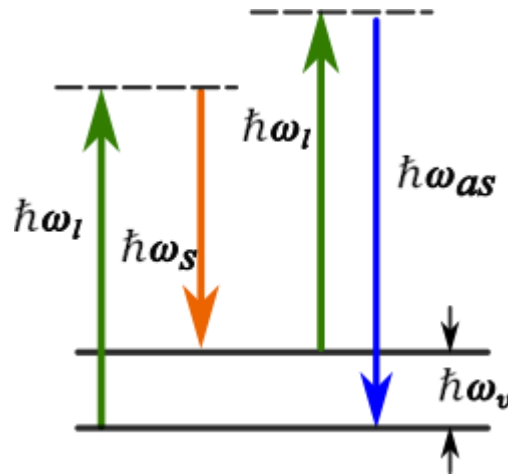


Рис. 3.1. Схема переходів при КАРС

Ці вирази слід сприймати як символічні. Вони свідчать про те, що завдяки чотирьох хвильовому змішуванню, в середовищі виникає розсіяне випромінювання, обумовлене осциляцією поляризації на антистоксовій (стоксовій) частоті ω_{as} , яка описується Раманівською резонансною кубічною сприйнятливістю $\chi_R^{(3)}(\omega_{as}; \omega_3, \omega_1, -\omega_2)$ або $\chi_R^{(3)}(\omega_s; \omega_3, -\omega_1, \omega_2)$. Ця поляризація утворюється хвилями з іншими трьома частотами, відділеними знаком «;».

Зазвичай пробним сигналом є одна із хвиль збуджуючого випромінювання, наприклад $\omega_3 = \omega_1 = \omega_l$. В цьому випадку

$$\omega_{as} = \omega_l + (\omega_l - \omega_2). \quad (3.3a)$$

$$\omega_s = \omega_l - (\omega_l - \omega_2) \quad (3.3b)$$

Оскільки в цьому випадку $\omega_l - \omega_2 = \omega_v$, то $\omega_2 = \omega_l - \omega_v = \omega_s$, що в підсумку відповідає схемі переходів зображених на рис.3.1 для розсіяного антистоксового сигналу.

$$\omega_{as} = \omega_l + (\omega_l - \omega_s)$$

Як видно із рис.3.1 при утворенні антистоксового розсіяного фотона поглинається два фотони лазерного накачування і вивільняється енергія одного стоксового фотона.

Література

1. Robert W. Boyd. Nonlinear Optics. 4th edit., Academic Press, 2020, 627p.
2. R.L. Sutherland, D.G.McLean, S. Kirkpatrick. Handbook of Nonlinear Optics, second edition. New York, Basel. 2003, 963 p.
3. 2. Б.Салех, М.Тейх. Оптика и фотоника. Принципы и применение. Т.2, 2012, 802 с.
4. 5. И.Р.Шен. Принципы нелинейной оптики. -М., 1989, 559с.
5. Mohammed N. Islam IEEE Journal Of Selected Topics In Quantum Electronics, Vol. 8, No. 3, May/June 2002.