

Zum Mechanismus der kollinearen Abstrahlung der 2. Stokes-Linie bei der stimulierten Raman-Streuung

F. Aussenegg

Physikalisches Institut der Universität Graz,

U. Deserno

Forschungslaboratorien der Siemens AG, München

und

D. Scherr

Institut für Theoretische Physik der Universität Graz

(Z. Naturforsch. **28 a**, 1654–1659 [1973]; eingegangen am 18. Juni 1973)

On the collinear Emission of 2nd Order Stokes Radiation in Stimulated Raman Scattering

An attempt is made to check by experiment the assumption that the 2nd order Stokes radiation in collinear direction is generated from the primary light by the same mechanism as the 1st order radiation. If is found that the 1st order Stokes beam does not have a sufficiently high intensity over a sufficiently long interaction length to explain the generation of the observed 2nd order Stokes radiation as exclusively attributable to this mechanism. An alternative theory is advanced according to which the molecular vibrations generated in the 1st order Stokes process contribute to this effect in the small-signal range. This allows a more plausible explanation of the experimental results. The experiments were performed with benzene at $\lambda = 0.53 \mu\text{m}$ because this substance exhibits strong stimulated Raman scattering without selffocusing at this wavelength.

1. Einleitung

Der stimulierte Raman-Effekt ist theoretisch und experimentell bereits oftmals untersucht worden¹. Dabei können außer der um die Molekülschwingungsfrequenz verschobenen Raman-Linie auch solche Streulichtfrequenzen beobachtet werden, die um den zwei- oder mehrfachen Betrag der Molekülschwingungsfrequenz verschoben sind (Stokes-Linien höherer Ordnung). Über das Zustandekommen dieser höheren Ordnung ist folgende — hier stark vereinfacht wiedergegebene — Theorie üblich². Das spontan gestreute Raman-Licht, dessen Intensität I_{s0} sein möge, wird durch stimulierte Streuung gemäß der Gleichung

$$I_s = I_{s0} \exp\{g I_p l\}, \quad (1)$$

(I_s Intensität des stimuliert gestreuten Raman-Lichtes erster Ordnung, I_p Intensität des Primärlichtes, l Streulänge, g gain-Faktor), solange nachverstärkt, bis I_s mit I_p vergleichbar wird (leistungs-

Sonderdruckanforderungen an Dr. Franz Aussenegg, Physikalisches Institut der Universität Graz, Universitätsplatz 5, A-8010 Graz, Österreich.

bedingte Sättigung der Verstärkung). Sodann fungiert I_s als Primärlicht und bewirkt denselben Prozeß nochmals, wobei Licht entsteht, welches nunmehr um den doppelten Betrag der Molekülschwingung von der Frequenz des ursprünglichen Primärlichtes verschoben ist.

Nach dieser Theorie dürfte die 2. Stokes-Linie erst dann mit einer nennenswerten Intensität auftreten, wenn die 1. Stokes-Linie mit einer zur Primärlichtintensität vergleichbaren Stärke über eine mit der eigenen Erzeugungslänge vergleichbaren Wechselwirkungslänge zur Verfügung steht.

Im folgenden wird der Versuch einer experimentellen Überprüfung dieser Voraussetzungen mit Hilfe eines Lasers hoher Folgefrequenz beschrieben.

2. Experimentelle Anordnung

Die verwendete experimentelle Anordnung zeigt Abbildung 1. Die Strahlung eines blitzlampengepumpten YAG-Nd-Lasers (max. Ausgangsleistung 10 mJ pro Impuls; $\pm 4\%$ Schwankung der Pulsenergie, TEM₀₀, 5 Hz Folgefrequenz) wird mit einem LiJO₃-Kristall frequenzverdoppelt ($\lambda =$



Dieses Werk wurde im Jahr 2013 vom Verlag Zeitschrift für Naturforschung in Zusammenarbeit mit der Max-Planck-Gesellschaft zur Förderung der Wissenschaften e.V. digitalisiert und unter folgender Lizenz veröffentlicht: Creative Commons Namensnennung-Keine Bearbeitung 3.0 Deutschland Lizenz.

Zum 01.01.2015 ist eine Anpassung der Lizenzbedingungen (Entfall der Creative Commons Lizenzbedingung „Keine Bearbeitung“) beabsichtigt, um eine Nachnutzung auch im Rahmen zukünftiger wissenschaftlicher Nutzungsformen zu ermöglichen.

This work has been digitalized and published in 2013 by Verlag Zeitschrift für Naturforschung in cooperation with the Max Planck Society for the Advancement of Science under a Creative Commons Attribution-NoDerivs 3.0 Germany License.

On 01.01.2015 it is planned to change the License Conditions (the removal of the Creative Commons License condition "no derivative works"). This is to allow reuse in the area of future scientific usage.

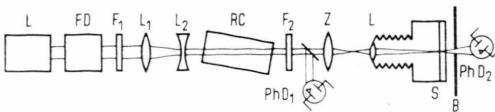


Abb. 1. Experimenteller Aufbau.

L	Nd-YAG Laser	F ₂	Sperrfilter für das
FD	Frequenz- verdoppler	Z	Primärlicht
F ₁	IR Sperrfilter	L	Zwischenbildlinse
L ₁ + L ₂	Teleskopisches System	S	Lupenobjektiv
RC	Raman-Küvette	B	Blende
		PhD ₁ , PhD ₂	Photodioden

0,53 μm) und mit Hilfe eines teleskopischen Systems auf einen Durchmesser von 0,6 mm konzentriert. Der Laser wird so betrieben, daß 2–3 benachbarte axiale Moden phasenstarr anschwingen, wodurch eine Modulation des abgegebenen Impulses mit einem Spitzendistanz von 3 ns und ca. 1,4 ns Modulationsspitzen-Halbwertsbreite auftritt³. Das nunmehr in die mit Benzol gefüllte Raman-Küvette eintretende Lichtbündel besitzt in guter Näherung eine Gaußsche Intensitätsverteilung mit einer gemessenen Spitzenintensität bis zu 200 MW/cm². Um das Auftreten störender Brechzahlunterschiede (Schlieren) zu verhindern, wurde die Raman-Küvette thermostatisiert.

Mit Hilfe des Lupenobjektives L₃ wird die Feldverteilung am Küvettenaustritt auf dem Schirm S beobachtet. Das Filter F₂ läßt entweder die 1. Stokes-Linie ($\lambda = 0,559 \mu\text{m}$) und 2. Stokes-Linie ($\lambda = 0,592 \mu\text{m}$) passieren (Schott OG 550/6 mm) oder nur die 2. Stokes-Linie (Schott OG 590/3 mm). Die räumlich integrale Ausgangsleistung wird mit der Photodiode PhD₁ registriert, die Intensitätsverteilung über den Bündelquerschnitt mit PhD₂. PhD₁ und PhD₂ sind Vakuumphotodioden, die zusammen mit einem Tektronix-Oszilloskop Typ 519 eine Zeitauflösung von 0,5 ns haben. In allen Experimenten wurde das kollinear zum 1. Stokes-Bündel emittierte 2. Stokes-Licht untersucht. Die unter bestimmten Bedingungen zusätzlich unter einem Winkel von 2,4° zur Vorwärtsrichtung auftretende 2. Stokes-Emission⁴ wurde nicht berücksichtigt.

3. Meßergebnisse

Trotz guter Konstanz der Primärlichtenergie schwankte die Ausgangsleistung der 1. und 2. Stokes-Linie stark. Dies ist einerseits darauf zurückzuführen, daß die Phasenkopplung der axialen Moden nicht ideal war, so daß die Modulationsspitzenleistung erheblich stärker schwankte als die Impulsenergie. Um repräsentative Werte angeben zu können, muß man daher immer eine Vielzahl von Mes-

sungen vornehmen, was durch die relativ hohe Folgefrequenz des Lasers auch leicht möglich war. Tabelle 1 zeigt typische Werte der räumlich integralen Ausgangsleistung für verschiedene Küvettenlängen wie sie mit der PhD₁ erhalten wurden.

Tab. 1. Räumlich integral gemessene Impulsspitzenleistungen des Primärlichtes (L_p), der 1. und 2. Stokes-Linie (L_s und L_{ss}), l = Küvettenlänge.

Nr.	l in cm	L_p in kW	L_s in kW	L_{ss} in kW
1	13,8	150	< 0,1	< 0,1
2	13,8	220	42	7,5
3	7,9	220	< 0,1	< 0,1

Wegen der Kürze der einzelnen Primärlichtimpulse (< 2 ns) trat keine gestimulierte Brillouin-Streuung auf. Eine Selbstfokussierung des Primärlichtbündels konnte bei Benzol in der beschriebenen Streugeometrie nicht festgestellt werden. Der Durchmesser der 1. Stokes-Strahlung war minimal 1/5 des Durchmessers der Primärstrahlung und nahm mit zunehmender Sättigung zu.

4. Diskussion und theoretische Betrachtung

Bei einer Diskussion der experimentellen Beobachtungen muß zwischen dem „Kleinsignalbereich“ ($I_s \ll I_p$) und der Sättigung ($I_s \approx I_p$) unterschieden werden. Im Kleinsignalbereich wird wegen der Gültigkeit von Gl. (1) I_s überlinear von I_p abhängen. Nun ist aber I_p weder räumlich noch zeitlich konstant. Dies führt dazu, daß die Stokes-Emission nur während einer kurzen Zeit während der Primär-impulsspitze und nur am Ort höchster Intensität (Mitte des Lichtbündels) erfolgt. Eine entsprechende Berechnung⁵ ergibt unter der Annahme eines gaußförmigen Zeitverlaufes der Impulsspitze in guter Näherung die Beziehung

$$\tau_s/\tau_p = 1/\sqrt{G_0} \quad (2)$$

τ_p Halbwertszeit des Primärlichtimpulses,
 τ_s Halbwertszeit des Stokes-Lichtimpulses,
 $G_0 = g I_p l$ Gesamtverstärkung.

In analoger Weise ergibt sich für eine Gaußsche Intensitätsverteilung über den Strahlquerschnitt

$$d_s/d_p = 1/\sqrt{G_0} \quad (3)$$

d_p Halbwertsdurchmesser des Primärlichtbündels,
 d_s Halbwertsdurchmesser des Stokes-Lichtbündels.

Bei einer typischen Gesamtverstärkung von $G_0 = 30$ ergibt sich $d_s/d_p = 1/5,5$ in guter Übereinstimmung mit der Beobachtung.

Auf Grund dieser Überlegung läßt sich nun folgende für die weiteren Betrachtungen wichtige Feststellung treffen. Von jenem Zustand, bei dem im Zentrum des 1. Stokes-Bündels die Sättigung erreicht wird ($I_s \approx I_p$), bis zur maximalen Leistungskonversion (Sättigung über den gesamten Querschnitt des Primärbündels) kann die gesamte Stokes-Leistung nur noch um den Faktor $d_p^2/d_s^2 (= 30)$ zunehmen. Ähnliches gilt bezüglich der Impulsdauerverkürzung für den Fall, daß die Photoregistration keine hinreichend hohe Zeitauflösung besitzt. Unter der Annahme, daß der Photodetektor unabhängig von der Impulsdauer stets eine der Zahl der auftreffenden Lichtquanten proportionale Ladung abgibt, kann im ungünstigsten Fall — also bei totaler zeitlicher Nichtauflösung — die gemessene „Spitzenleistung“ der Stokes-Linie nur um den Faktor $\tau_p/\tau_s (= 5,5)$ kleiner als die tatsächliche Spitzenleistung sein.

Wegen der ungenügenden Konstanz der Laser-impuls-Spitzenleistung war es mit der verwendeten Apparatur nicht möglich, im Kleinsignalbereich reproduzierbare Messungen von I_s und I_{ss} durchzuführen. Es ist daher auch nicht möglich, die eingangs aufgezeigten Voraussetzungen für den Stufenprozeß durch eine Messung dieser Größen entlang der Wechselwirkungslänge zu kontrollieren.

Dennoch läßt sich aus den durchgeföhrten Messungen ein bemerkenswertes Resultat folgern. Betrachtet man die Meßwerte von Versuch Nr. 2 in Tabelle 1, so erkennt man aus dem Verhältnis $L_s/L_p = 0,2$, daß in diesem Fall ca. 20% des Strahlquerschnittes q_p bezüglich der 1. Stokes-Strahlung in Sättigung sind; dabei tritt bereits eine nennenswerte 2. Stokes-Leistung auf. Ist die Primärintensität — wie dies hier der Fall ist — so groß, daß eine räumlich begrenzte Sättigung möglich ist, so wird an der Flanke des Primärbündels I_p offensichtlich gerade so groß sein, daß Sättigung erreicht wird. Wegen der Gaußschen Intensitätsverteilung des Primärbündels herrschte an der Flanke des hier betrachteten 1. Stokes-Bündels ($d_{s1} = 0,45 d_p$ entsprechend $q_s = 0,2 q_p$) die Primärlichtintensität $I_p = 0,85 I_{pz}$ (I_{pz} Primärintensität im Strahlzentrum). Da I_p und l in Gl. (1) als gleichwertige Faktoren erhalten sind, wird die Sättigung im Zentrum somit frühestens bei $0,85 l_k$ erreicht (l_k Küvettenlänge bei Versuch

Nr. 2). Will man das Auftreten einer 2. Stokes-Linie zufolge des eingangs beschriebenen Stufenprozesses erklären, so müßte die Sättigung der 1. Stokes-Linie aber bereits bei $0,5 l_k$ erfolgt sein, um die dafür notwendige Bedingung $I_s \approx I_p$ entlang einer Wechselwirkungslänge vergleichbar der Erzeugungslänge der 1. Stokes-Strahlung zu erfüllen. Bei einer Streulänge gleich der 0,57-fachen ursprünglichen Länge und konstanter Primärlichtintensität (Nr. 3 in Tab. 1) konnte aber niemals eine Raman-Lichtleistung registriert werden, das heißt, L_s/L_p ist auf jeden Fall kleiner als $5 \cdot 10^{-4}$. Dabei müßte aber für den Fall der Sättigung von I_s selbst unter der ungünstigen Annahme totaler zeitlicher Nichtauflösung und unter Berücksichtigung des kleinstmöglichen Stokes-Bündeldurchmessers, ein Verhältnis L_s/L_p von wenigstens $1/30 \cdot 1/5,5$ gemessen werden.

Die Betrachtungen betreffend die Intensitätsverteilung über den Bündelquerschnitt wurden durch Messungen mit PhD_2 im Rahmen der dabei auftretenden geringeren Meßgenauigkeit bestätigt.

Auf Grund dieser experimentellen Ergebnisse scheint das Modell des Stufenprozesses zur Beschreibung der Erzeugung der 2. Stokes-Linie zumindest ohne Zusatzannahmen nicht hinreichend zu sein.

Im folgenden wird ein geändertes Modell zur Erzeugung der 2. Stokes-Linie in kollinearer Vorwärtsrichtung vorgeschlagen, welches die experimentellen Ergebnisse besser zu erklären gestattet. Der wesentliche Unterschied zu der bisher üblichen theoretischen Auffassung besteht darin, daß im Kleinsignalbereich die bei der Erzeugung der 1. Stokes-Welle entstehende kohärente Molekülschwingung für die Erzeugung der 2. Stokes-Welle mit verantwortlich gemacht wird. Dies führt zu einem Mechanismus, ähnlich dem, der üblicherweise für die Entstehung der nicht kollinear emittierten 2. Stokes-Strahlung angenommen wird, nämlich einem parametrischen Prozeß, für den allerdings bei kollinearer Abstrahlung keine Phasenanpassung vorliegt.

Die kohärente Raman-Streuung wird üblicherweise durch eine Reihe gekoppelter Wellengleichungen beschrieben. Bei der Annahme eines Stufenprozesses sind dies vier Wellengleichungen, und zwar für die beim ersten Streuprozeß entstehende Molekülschwingungswelle Gl. (4), für das Stokes-Feld 1. Ordnung Gl. (5) und zwei analoge Gleichungen für das beim zweiten Prozeß entstehende Mole-

külschwingungsfeld Gl. (6) und das Stokes-Feld zweiter Ordnung Gl. (7)

$$\begin{aligned} \beta \nabla^2 \mathbf{Q}_v + (\omega_0^2 - \omega_v^2) \mathbf{Q}_v - i 2 \omega_v \Gamma \mathbf{Q}_v \\ = N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial \mathbf{Q}_{tv}} \right)_0 : \mathbf{E}_p \mathbf{E}_s^*, \end{aligned} \quad (4)$$

$$\begin{aligned} \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}_s) - \frac{\epsilon_s \omega_s^2}{c^2} \mathbf{E}_s \\ = \frac{4 \pi \omega_s^2}{c^2} N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial \mathbf{Q}_{tv}} \right)_0 : \mathbf{Q}_v^* \mathbf{E}_p, \end{aligned} \quad (5)$$

$$\begin{aligned} \beta \nabla^2 \mathbf{Q}_{v'} + (\omega_0^2 - \omega_{v'}^2) \mathbf{Q}_{v'} - i 2 \omega_{v'} \Gamma \mathbf{Q}_{v'} \\ = N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial \mathbf{Q}_{tv'}} \right)_0 : \mathbf{E}_s \mathbf{E}_{ss}^*, \end{aligned} \quad (6)$$

$$\begin{aligned} \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}_{ss}) - \frac{\epsilon_{ss} \omega_{ss}^2}{c^2} \mathbf{E}_{ss} \\ = \frac{4 \pi \omega_{ss}^2}{c^2} N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial \mathbf{Q}_{tv'}} \right)_0 : \mathbf{Q}_{v'}^* \mathbf{E}_s. \end{aligned} \quad (7)$$

Das Primärfeld wird hier sowie bei allen folgenden Betrachtungen als konstant angenommen.

In den obigen Gleichungen sind \mathbf{E} und \mathbf{E}^* die beiden zueinander konjugiert komplexen Teile eines elektrischen Feldes \mathbf{E}_t (d.h. $\mathbf{E}_t = \mathbf{E} + \mathbf{E}^*$). Weiter gilt $\mathbf{E} = \mathbf{E}_0 \exp[i\{\mathbf{k}\mathbf{r} - \omega t + \Phi\}]$. Analoge Beziehungen gelten für ein molekulares Schwingungsfeld \mathbf{Q}_t .

α ist der optische Polarisierbarkeitstensor eines Moleküls, N die Anzahl der Moleküle pro Volumen, Γ ein Dämpfungsfaktor, und β bestimmt die Dispersion in der Nähe von $k_v = 0$.

Es bezeichnen die tiefgestellten Indizes:
 p das einfallende Pumpfeld,
 s das Stokes-Feld 1. Ordnung,
 ss das Stokes-Feld 2. Ordnung,
 v das Molekülschwingungsfeld in der primären Raman-Streuung,
 v' ein weiteres in einem 2. Raman-Prozeß entstehendes Molekülschwingungsfeld.

Der Real- bzw. Imaginärteil eines Wellenvektors k werden mit k' bzw. k'' bezeichnet.

Nach dieser Darstellung wird das Stokes-Feld zweiter Ordnung und ein zweites molekulares Schwingungsfeld unabhängig vom Primärprozeß und insbesonders unabhängig vom schon bestehenden ersten Molekularschwingungsfeld unter Verwendung des Stokes-Feldes erster Ordnung als Pri-

märlicht gebildet. In der Wellengleichung für das zweite Stokes-Feld [Gl. (7)] steht die Amplitude der Molekülschwingung, wobei beim Stufenprozeß die vom ersten Raman-Prozeß stammende Amplitude Q_v außer acht gelassen wird und nur die beim 2. Prozeß selbst erzeugte Molekülschwingung $Q_{v'}$ Berücksichtigung findet.

Außer einer Erzeugung nach dem Stufenprozeß kann man aber auch die Entstehung des Stokes-Feldes zweiter Ordnung durch Kopplung an das Stokes-Feld erster Ordnung und das im primären Raman-Prozeß entstehende Molekularschwingungsfeld erklären. Die Gleichungen für das Stokes-Feld erster Ordnung und das im primären Raman-Prozeß entstehende Molekülschwingungsfeld sind dabei in erster Näherung (für $E_{ss} \ll E_p$) gleich jenen des Stufenprozesses [Gln. (4) und (5)]. Wesentlich verschieden ist jedoch die Gleichung für das Stokes-Feld zweiter Ordnung. Sie enthält in ihrem Quellterm die Amplitude des im primären Raman-Prozeß erzeugten Schwingungsfeldes \mathbf{Q}_v^* . Sie lautet daher

$$\begin{aligned} \nabla \times (\nabla \times \mathbf{E}_{ss}) - \frac{\epsilon_{ss} \omega_{ss}^2}{c^2} \mathbf{E}_{ss} \\ = \frac{4 \pi \omega_{ss}^2}{c^2} N \left(\frac{\partial \alpha}{\partial \mathbf{Q}_{tv'}} \right)_0 : \mathbf{Q}_{v'}^* \mathbf{E}_s \end{aligned} \quad (7')$$

und unterscheidet sich gegenüber Gl. (7) durch die Größe \mathbf{Q}_v^* an Stelle von $\mathbf{Q}_{v'}^*$.

In Analogie zur Behandlung der fundamentalen kohärenten Raman-Streuung, versuchen wir folgenden Lösungssatz:

$$\begin{aligned} \mathbf{E}_p &\propto \exp\{i(\mathbf{k}_p \mathbf{r} - \omega_p t)\}, \\ \mathbf{E}_s &\propto \exp\{i(\mathbf{k}_s \mathbf{r} - \omega_s t)\}, \\ \mathbf{E}_{ss} &\propto \exp\{i(\mathbf{k}_{ss} \mathbf{r} - \omega_{ss} t)\}, \\ \mathbf{Q}_v &\propto \exp\{i(\mathbf{k}_v \mathbf{v} - \omega_v t)\}, \end{aligned} \quad (8)$$

$$\begin{aligned} \mathbf{k}_p &= \mathbf{k}_s^* + \mathbf{k}_v, \\ \mathbf{k}_s^* &= \mathbf{k}_{ss}^* + \mathbf{k}_v. \end{aligned} \quad (9)$$

Man erhält die bekannten Lösungen² für das molekulare Schwingungsfeld und das Stokes-Feld erster Ordnung. Die Beträge der Lösungen haben die Form

$$|\mathbf{Q}_v| = |\mathbf{Q}_{v0}| \exp\{k_v'' l\}, \quad (10)$$

$$|\mathbf{E}_s| = |\mathbf{E}_{s0}| \exp\{k_s'' l\}. \quad (11)$$

Drückt man dieses Ergebnis gemäß der Beziehung $I \propto |\mathbf{E}|^2$ durch Intensitäten aus, so erhält man

$$I_s = I_{s0} \exp\{g I_p l\}, \quad (1)$$

$$I_v = I_{v0} \exp\{g I_p l\}, \quad (12)$$

wobei $g I_p = 2 k_s''$ ist.

Setzt man diese Lösungen [Gl. (10) und (11)] in die Gl. (7') ein, so erhält man mit Hilfe der Wellenvektorbeziehung [Gl. (9)] für das Stokes-Feld zweiter Ordnung die Amplitudengleichung

$$|\mathbf{E}_{ss}| = |\mathbf{E}_{ss0}| \exp\{2k_s''l\} = \frac{\omega_{ss}}{2\omega_s} \cdot \frac{|\mathbf{E}_{s0}|^2}{|\mathbf{E}_p|} \exp\{2k_s''l\} \quad (13)$$

bzw.

$$I_{ss} = I_{ss0} \exp\{2gI_p l\}. \quad (14)$$

Daraus ersicht man, daß für das Stokes-Feld zweiter Ordnung der Verstärkungsfaktor doppelt so groß ist wie für das Stokes-Feld erster Ordnung.

Ersetzt man in Gl. (13) den Term

$$|\mathbf{E}_{s0}|^2 \exp\{2k_s''l\}$$

gemäß Gl. (11) durch $|\mathbf{E}_s|^2$, so erhält man die wegunabhängige Amplitudenbeziehung

$$|\mathbf{E}_{ss}| = \frac{\omega_{ss}}{2\omega_s} \cdot \frac{|\mathbf{E}_s|^2}{|\mathbf{E}_p|}. \quad (15)$$

Unter der näherungsweisen Annahme $\omega_s = \omega_{ss}$ ergibt sich das folgende Intensitätsverhältnis:

$$I_{ss}/I_s = \frac{1}{4} I_s/I_p. \quad (16)$$

Die Ergebnisse der theoretischen Überlegungen sind in einem in Abb. 2 gezeigten Diagramm dargestellt. Es zeigt die Primärlicht-, die 1. Stokes- und 2. Sto-

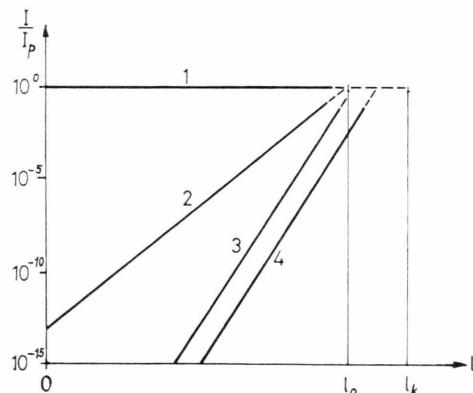


Abb. 2. Theoretischer Intensitätsverlauf innerhalb der Küvette. Kurve (1) Primärlicht, (2) 1. Stokes-Strahlung, (3) 2. Stokes-Strahlung phasenangepaßt, (4) 2. Stokes-Strahlung bei Phasenfehlangepaßung (Benzol). l_0 : Sättigung von I_s im Strahlzentrum; l_k : Küvettenlänge bei Versuch Nr. 2.

kes-Intensität in Abhängigkeit von der Wechselwirkungslänge. Im strichliert gezeichneten Bereich entspricht das Diagramm nicht mehr den realen

Verhältnissen, weil hier Sättigungseffekte bereits maßgebend sind.

In Gl. (9) wurde die Phasenadjustierung zwischen den einzelnen Wellenfeldern vorweggenommen. Im allgemeinen wird infolge der Dispersion in Flüssigkeiten diese Phasenadjustierung in Vorwärtsrichtung nicht erfüllbar sein. Eine Lösung der Wellengleichung für das Stokes-Feld zweiter Ordnung nach der vorhin beschriebenen Methode ist unter Beibehaltung der Frequenzbeziehung $\omega_{ss} = \omega_s - \omega_v$, der Impulsbeziehung [Gl. (9)] und der Dispersionsbeziehung $\omega = k'c/n$ gegeben, wenn die Phasenfehlangepaßung Δk in der Gleichung für die Imaginärteile der k -Vektoren wie folgt berücksichtigt wird

$$k_{ss}'' = k_s'' + k_v'' + i\Delta k. \quad (17)$$

Eine entsprechende Berechnung ergibt für nicht zu kleine Intensitäten (etwa $I_{ss} \geq I_{s0}$) in guter Näherung

$$I_{ss} = \frac{1}{4} \frac{g^2 I_p I_{s0}^2}{g^2 I_p^2 + \Delta k^2} \exp\{2gI_p l\} \quad (18)$$

bzw.

$$\frac{I_{ss}}{I_s} = \frac{1}{4} \frac{g^2 I_p I_s}{g^2 I_p^2 + \Delta k^2}. \quad (19)$$

Für den Fall $\Delta k \rightarrow 0$ geht Gl. (19) in Gl. (16) über.

Bei Benzol ist $\Delta k \sim 40 \text{ cm}^{-1}$. Da bei unseren Experimenten $g I_p$ ungefähr 3 cm^{-1} ist, gilt $\Delta k^2 \gg g^2 I_p^2$. Man erkennt somit aus Gl. (18) und Gl. (19), daß I_{ss} nach wie vor mit der doppelten Verstärkung der ersten Stokes-Linie zunimmt, das Verhältnis I_{ss}/I_s aber erheblich geringer ist als bei Phasenadjustierung. Für den fiktiven Fall $I_s = I_p$ ist

$$I_{ss}/I_s = 3,6 \cdot 10^{-3}.$$

Der Verlauf von I_{ss} unter diesen Annahmen ist als Kurve 4 in Abb. 2 eingezzeichnet.

Nach dieser Modellvorstellung handelte es sich bei der Erzeugung der 2. Stokes-Linie in kollinearer Vorwärtsrichtung im Nichtsättigungsbereich um einen phasenfehlangepaßten parametrischen Prozeß. Im Bereich der Sättigung der 1. Stokes-Linie wird, insbesondere wenn $I_s > I_p$, ein Prozeß nach Gl. (1) bei der Erzeugung der 2. Stokes-Linie dominant werden. Durch den vorangegangenen parametrischen Prozeß ist I_{ss0} jedoch wesentlich größer als auf Grund der spontanen Raman-Streuung.

Wie bereits erwähnt, konnte wegen der stark schwankenden Ausgangsleistung der 1. Stokes-Strahlung die Ortsabhängigkeit der 2. Stokes-Strah-

lung nicht mit der erforderlichen Genauigkeit überprüft werden. Versuch Nr. 2 in Tab. 1 würde etwa bei $1,18 l_0$ liegen (wegen der Sättigung im Zentrum des Primärbündels bei 0,85 der Küvettenlänge). In dem mathematisch nicht einfach erfaßbaren Bereich teilweiser Sättigung der 1. Stokes-Linie ($l > l_0$) wird I_{ss} analog Gl. (1) weiter verstärkt, wodurch das gemessene Verhältnis von $L_{s2}/L_{s1} = 0,18$ erklärbar wird.

Obwohl in der vorliegenden Diskussion zahlreiche Betrachtungen nur qualitativer Natur sind, erkennt man, daß das vorgeschlagene Modell die experimen-

telten Gegebenheiten wesentlich besser beschreibt als der reine Stufenprozeß. Die experimentell ermittelte Weglänge, über die die 1. Stokes-Linie eine mit dem Primärlicht vergleichbare Intensität besitzt, ist auf jeden Fall zu kurz, um die beobachtete Erzeugung der 2. Stokes-Linie nur durch eine dem ersten Prozeß analoge Nachverstärkung des spontan gestreuten Raman-Lichtes erklären zu können.

Herrn UD Dr. M. Maier und Herrn Dr. G. Zeidler sind wir für zahlreiche wertvolle Diskussionen sehr zu Dank verpflichtet.

1 z. B.: W. Kaiser u. M. Maier, Laserhandbook North Holland Publ. Co. [1972] 1079 ff.

2 Y. R. Shen u. N. Bloembergen, Phys. Rev. **137** 6A, 1787 [1965].

3 F. Aussenegg u. U. Deserno, Opt. Com. **2**, 295 [1970].

4 F. Aussenegg u. U. Deserno, Phys. Lett. **34 A**, 260 [1971].

5 O. Rahn u. M. Maier, im Druck.