

# LiIO<sub>3</sub>晶体内谐波相干喇曼混频\*

梁培辉 谷忠民 张伟清

(中国科学院上海光学精密机械研究所)

刘 颂 豪

(中国科学院安徽光学精密机械研究所)

## 提 要

用 1.06 μm 微微秒激光脉冲序列按一定角度激励 LiIO<sub>3</sub> 晶体, 在 4896~6119 Å 可见光区内获得 8 种波长相干喇曼混频辐射, 这个复杂受激喇曼散射过程可解释为: 在满足位相匹配的条件下, 1.06 μm 强光束一方面与其散射光按非共线型产生二次谐波; 另一方面又在晶体形成激元的相干激发, 后者对倍频光散射而得到一阶以及高阶的斯托克斯辐射和反斯托克斯辐射, 这是二阶与三阶非线性光学过程的综合效应。此外, 我们观察到反向的受激散射, 其光谱成分与正向的成分不同。并证明, 与普通的后向散射也不同, 它是 1.06 μm 入射光在晶体出射端面的反射光所产生的谐波相干喇曼混频。

## 一、引 言

受激喇曼散射是非线性光学中的重要分支, 它既是一种产生可调谐相干辐射的方法, 又是研究强光与介质相互作用和介质激发态动力学的有效实验手段, 故一直十分活跃。Garmine、Panderese 和 Townes 最先研究了光散射引起介质内的相干晶格振动问题<sup>[1]</sup>; 沈元壤和 Bloembergen 用耦合波理论细致地描述了受激喇曼散射的物理过程<sup>[2]</sup>; Giordmaine 和 Kaiser (以下简称 GK) 通过受激喇曼散射的方法观察到相干驱动的晶格振动, 用耦合波的理论作了与实验结果相符合的解释<sup>[3]</sup>, 并以方解石为样品, 将 6943 Å 的高功率激光脉冲分成两束: 一束经缩孔后作激发, 另一束经倍频后作探测光束。两束光以满足位相匹配的几何配置射入样品, 在不同的入射角度下得到倍频光的斯托克斯线 (3608 Å) 和反斯托克斯线 (3345 Å); 利用这种原理, von der Linde 等首先测量了液态介质的振动弛豫过程, 并发展成为直接测量固体与液态中分子激发态的弛豫时间和退位相时间的重要方法<sup>[4]</sup>; 这几年颇为引人注目的 CARS 光谱技术以及相干喇曼混频技术也是利用相同的原理。

本文报道并讨论了一个原理上也属于相干喇曼混频的复杂过程(我们曾称之为复杂受激喇曼散射)。实验使用波长为 1.06 μm 的红外激光脉冲激发 LiIO<sub>3</sub> 晶体, 在一定的几何配置下, 获得可见光区内 4897~6119 Å 多种波长的相干辐射。

## 二、实验装置与结果

实验装置见图 1。激光源为一台 Nd:YAG 锁模激光器, 使用五甲川蓝色素的二氯乙

收稿日期: 1982年5月31日

\* 本工作已为第十二届国际量子电子学会议(1982年慕尼黑)录用。

烷溶液作饱和吸收体,被动锁模。重复率为 5 Hz 或 10 Hz 典型的脉冲序列包含有十余个波长为  $1.064 \mu\text{m}$  的超短光脉冲。经双光子荧光法测定,平均脉冲宽度约为 45 ps,脉冲的间隔为 10 ns。在多模操作时脉冲序列的能量平均为 24 mJ,峰值脉冲功率为 50 MW。

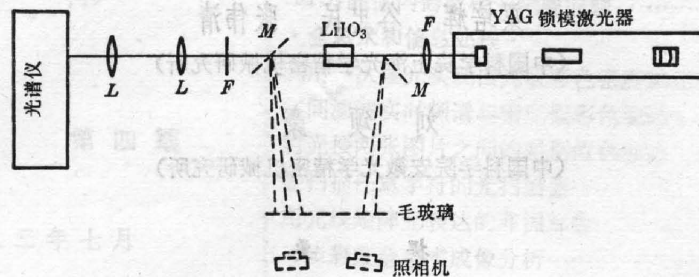


图 1 实验装置图(虚线表示拍摄受激散射光斑的排布)

Fig. 1 Experimental setup. Dashed line illustrates the arrangement for taking photos of scattering light patterns

焦距为 1 米的透镜起着缩孔的作用,晶体与透镜的距离为 65 cm。实验测出激光在晶体表面处的光斑尺寸约为  $2 \text{ mm}^2$ ,相应的峰值功率密度为  $2.5 \times 10^8 \text{ MW/cm}^2$ 。被动锁模形成的超短脉冲序列起源于自发辐射,因此不可避免地出现幅度较大的强度起伏。

实验用的  $\text{LiIO}_3$  晶体尺寸为  $35 \times 21 \times 15 \text{ mm}^3$ ,  $30^\circ$  切割。通光的两端面为基本平行的光学面。将晶体置于调整架上,以便调整晶体光轴与入射光线之间的角度。在晶体的出射光路上放置一滤光片以去除  $1.064 \mu\text{m}$  基波辐射,后面放一纸屏,可以方便地观察调整的结果。晶体  $30^\circ$  切割本来适用于  $1.06 \mu\text{m}$  共线型倍频,故当基波垂直入射到晶体表面时,得到极强的绿色倍频光。转动晶体使之偏离这个状态,则出现环形的倍频光图形。这就是散射光与基波形成的非共线倍频光。再作细致的调整,便出现红、橙、黄、绿、蓝等各种波长的相干喇曼混频辐射。

我们用彩色照相记录了正向与反向的散射光图样,结果如图 2 所示(见彩色插页图(c),(d))。从图 2 中可以看到,斯托克斯散射位于二次谐波的一侧,而反斯托克斯散射位于谐波的另一侧。从散射光的图样并考虑  $\text{LiIO}_3$  晶体的色散,我们测出了晶体内各阶喇曼散射光

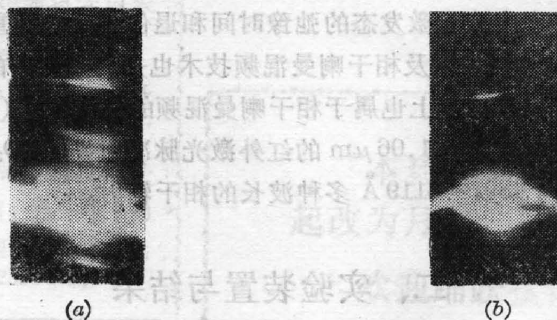


图 2 正向与反向谐波相干喇曼混频的输出光斑图(见彩色插页图(c),(d))  
(a) 正向; (b) 反向

Fig. 2 Output patterns of the SHG coherent Raman mixing (shown in color inset fig. (c), (d))  
(a) forward; (b) reflectedward

与二次谐波的输出角度。

从原理上来看,二阶受激散射的强度不应高于一阶受激散射,从光谱记录的结果来看的确如此,但图 2 的结果却给人一种印象,似乎二阶斯托克斯散射比较强。

从图 2(b) 可见,反向的相干喇曼混频辐射较弱,只有二阶斯托克斯散射和一阶反斯托克斯散射。

光谱研究采用色散率为  $7.4 \text{ \AA}/\text{mm}$  的 31WI 型 1 米平面光栅摄谱仪,并用 Hg 光谱灯和 He-Ne 激光标定。实验误差约为  $1 \text{ \AA}$ 。用一根玻璃纤维光导管将反向的喇曼光耦合到摄谱仪中,以获得反向的散射光谱。

图 3 为谐波相干喇曼混频正向输出的光谱图,从图中可以看出两种激光所形成的受激喇曼散射的强度是不同的,如图 3(a) 中纵向光学声子的散射较强,而图 3(c) 中则横向光学声子较强,图 3(b) 是专门拍摄的反斯托克斯线。散射过程中,哪种激光的散射光占优势,显然取决于入射光与晶轴的夹角。

将图 2 和图 3 的结果经过整理后得表 1。表 1 说明:在适当的入射角度下,在正向可同时观察到 8 种波长的受激散射,波长从  $4896 \sim 6119 \text{ \AA}$ 。散射激元为 LO (纵向光学) 模与 TO (横向光学) 模的  $A+E_1$  斜极化声子。斯托克斯线达三阶,反斯托克斯线达二阶,可是,反斯托克斯成分中,散射激元仅有纵模的斜极化声子。

最后,我们还观察到一个有趣而重要的实验现象。我们调整晶体到另外一个角度,此时正向与反向都只产生一阶斯托克斯散射,正向输出波长为  $5562 \text{ \AA}$  (LO 声子),反向输出波长为  $5541 \text{ \AA}$  (TO 声子),但是将晶体绕晶面法线旋转  $180^\circ$ ,则输出谱线的成分正好相反,正向输出  $5541 \text{ \AA}$ ,反向为  $5562 \text{ \AA}$ 。

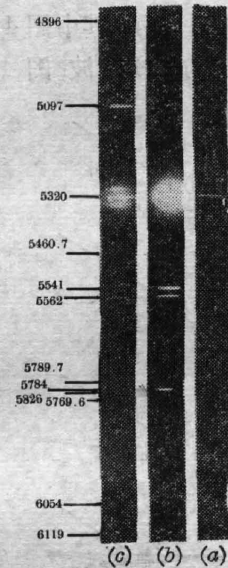


图 3 正向谐波相干喇曼混频辐射的光谱,短的线段标出 Hg 灯谱线位置

Fig. 3 Spectral structure of forward coherent Raman mixing, short lines show the spectrum of Hg lamp

表 1 谐波相干喇曼混频的输出

Table 1 The output of second harmonic coherent Raman mixing

波长(Å)	波数( $\text{cm}^{-1}$ )	对倍频光的频移( $\text{cm}^{-1}$ )	输出角度(度)	说 明
6119	16343	$2454=818 \times 3$	$\sim 4.9$	Stokes, $n=3$ , LO( $A+E_1$ )斜极化声子
6054	16518	$2279=760 \times 3$	$\sim 4.9$	Stokes, $n=3$ , TO( $A+E_1$ )斜极化声子
5826	17164	$1633=817 \times 2$	$\sim 2.8$	Stokes, $n=2$ , LO( $A+E_1$ )斜极化声子
5784	17289	$1508=754 \times 2$	$\sim 2.8$	Stokes, $n=2$ , TO( $A+E_1$ )极斜化声子
5562	17979	818	$\sim 1.1$	Stokes, $n=1$ , LO( $A+E_1$ )斜极化声子
5541	18047	750	$\sim 1.1$	Stokes, $n=1$ , TO( $A+E_1$ )斜极化声子
5320	18797	0	0	倍频光(作比较)
5097	19619	822	$\sim -1.3$	反 Stokes, $n=1$ , LO( $A+E_1$ )斜极化声子
4896	20425	$1628=814 \times 2$	$\sim -2.6$	反 Stokes, $n=2$ , LO( $A+E_1$ )斜极化声子

### 三、理论解释

乍看起来,直接获得  $2\omega_L \pm n\omega_P$  的受激散射可看作是受激超喇曼散射<sup>[6]</sup>,但我们认为上述的实验现象应该这样解释:  $\text{LiIO}_3$  在强  $1.06 \mu\text{m}$  激光激发下产生非共线位相匹配的谐波,  $1.06 \mu\text{m}$  激光又与晶体激元作用,产生基波的喇曼光和相干晶格振动,谐波与相干激发的格波作用最后导致多阶的斯托克斯和反斯托克斯波。这就是我们所说的谐波相干喇曼混频,如图 4 所示,其中图 4(a) 为基波激光声子;图 4(b) 为基波光束与其散射光形成非共线位相匹配的二次谐波;图 4(c) 为相干驱动下的谐波的喇曼散射(一阶斯托克斯);图 4(d) 为高阶斯托克斯与反斯托克斯线的产生。

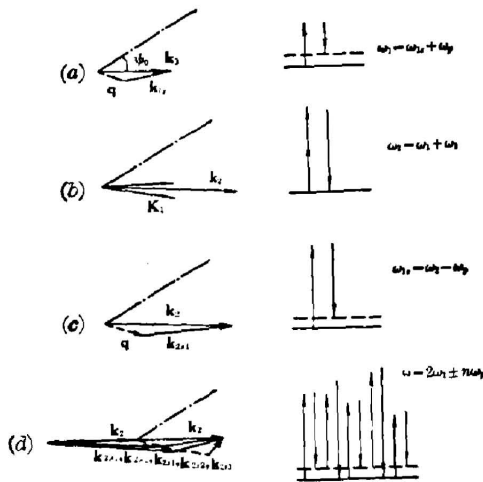


图 4 谐波相干喇曼混频过程表示图,左侧表示动量守恒关系,右侧表示能量守恒关系  
Fig. 4 The harmonic wave coherent Raman mixing scheme, the momentum conservation and the energy conservation are illustrated at the left side and the right side respectively.

可以混合形成斜声子,在长程静电力作用下分裂成为横向光学声子和纵向光学声子,它们都具有明显的角色散。

$\text{LiIO}_3$  晶体是极性材料,声子与光子存在强的耦合关系,因此对光学实验而言,激元是极化声子。

#### 2. $\text{LiIO}_3$ 晶体的非共线位相匹配倍频

众所周知,在共线匹配方式下,倍频光与晶轴的取向是不能变化的。但是如果采用非共线的匹配方式,例如,利用基波与基波在晶体内的散射光所形成的动量匹配,只要改变入射基波与晶轴的夹角,在一定的范围内,可以获得与晶轴夹角不同的倍频光<sup>[10]</sup>。

令晶体的光轴与入射的晶体表面法线的夹角为  $\psi_0$ , 在晶体内,当基波的波矢与晶轴成  $\psi_0 + \Delta\psi$ , 并使它与散射光满足位相匹配的条件,在与晶轴夹角  $\theta$  的方向产生倍频光(见图 5),则  $\theta$  与  $\Delta\psi$  应满足下列关系:

严格地描述上述现象,应该列出耦合方程组并求解。耦合方程组要包括:二次谐波的发生、晶体激元的色散关系、相干驱动下的受激喇曼散射,同时要考虑激光模式和自聚焦的影响。但本文的目的在于揭示新的物理现象,故暂且忽略激光束模式的影响和自聚焦的作用。并采用所谓喇曼驱动参量近似,即将耦合过程分为两步处理,在相干激发时只考虑基波的受激喇曼散射,而不管别的参量作用;反之,在考虑参量作用,产生谐波的受激散射时,忽略谐波的非参量受激喇曼散射。

#### 1. $\text{LiIO}_3$ 晶体<sup>[6~9]</sup>的激元

$\text{LiIO}_3$  晶体是单轴光学晶体,属  $C_6$  对称群,每个元胞内有两个分子。晶体的光学声子来源于 A、B、 $E_1$  和  $E_2$  四种对称性。在晶轴 z 方向, A 模光学声子和在 (x, y) 平面上  $E_1$  模光学声子都是喇曼与红外同激活,  $E_2$  模光学声子只是喇曼激活,而 B 模则是喇曼与红外均不激活, A 和  $E_1$  可

$$n_o(\omega) \cos(\psi_0 + \Delta\psi - \theta) = \{[\cos^2 \theta / n_o^2(2\omega)] + [\sin^2 \theta / n_e^2(2\omega)]\}^{1/2}, \quad (1)$$

其中  $n_o$ 、 $n_e$  分别为晶体的寻常光与非常光的折射率。

1.06  $\mu\text{m}$  激光激发 LiIO<sub>3</sub> 晶体,  $\psi_0 = 30^\circ$ , 色散数据取自文献[11], 在入射面内, 可以得出如图 5 所示  $\theta - \Delta\psi$  关系。实际上, 所得的倍频光成圆锥面状输出。有关这方面的细致分析我们将另文讨论。

这种倍频光的强度可以写成<sup>[32]</sup>:

$$I(2\omega) = C_1 \frac{\omega^6 (d_{ijk}^2)^2 L^2}{n^3(\omega)} \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0}\right)^{3/2} I^2(\omega), \quad (2)$$

式中  $C_1$  表示与基波在晶体内的散射有关的系数,  $d_{ijk}$  为有效非线性系数,  $\mu_0$  与  $\epsilon_0$  分别为真空中的磁化率和介电常数,  $L$  为晶体的长度。(2) 式中考虑了与  $\omega^4$  成正比的瑞利散射。后者的散射截面很小, 但是因为我们使用微微秒光脉冲, 峰值功率约为  $10^9 \text{ W/cm}^2$ , 因此在入射光束附近的小角度散射光还是相当强的。

### 3. LiIO<sub>3</sub> 晶体内激元的相干激发

激发光束  $E_1 = iA_1 \exp[i(\mathbf{k} \cdot \mathbf{r} - \omega t)]$  的传播方向偏离晶轴的角度为  $\psi_0 + \Delta\psi$ , 如图 4(a) 所示, 即只要满足能量守恒和动量守恒, 就有可能产生斯托克斯的受激喇曼散射

$$\omega_1 - \omega_{1S} = \omega_P, \quad \mathbf{k}_1 - \mathbf{k}_{1S} = \mathbf{q}, \quad (3)$$

式中  $\omega_{1S}$  为斯托克斯频率,  $\mathbf{k}_1$ 、 $\mathbf{k}_{1S}$  为基波、斯托克斯线的波矢,  $\mathbf{q}$  为晶体激元的波矢。在 LiIO<sub>3</sub> 晶体存在各种模的激元, 例如斜声子的 LO 模, 其频率为

$$\omega_P(\beta) = \sqrt{\omega_{ALO}^2 \cos^2 \beta + \omega_{ELO}^2 \sin^2 \beta}, \quad (4)$$

其中  $\beta$  为声子波矢与晶轴的夹角,  $\omega_{ALO} = 810 \text{ cm}^{-1}$ ,  $\omega_{ELO} = 838 \text{ cm}^{-1}$ 。

从激元的色散关系、晶体的色散、 $\omega_1$  和  $\psi_0$  的数值, 并假定入射光为  $o$  光, 通过数学运算, 原则上可以求出不同的入射角, 满足 (3) 式的激元的  $\omega_P$  和  $\mathbf{q}$  的数值。但是, 由于晶体内激元的色散关系相当复杂, 因此我们采用简单的近似计算。

从 (4) 式得出, 当  $\beta$  从 0 变到  $\pi/2$ ,  $\omega_P$  由  $810 \text{ cm}^{-1}$  变到  $838 \text{ cm}^{-1}$ , 相差  $28 \text{ cm}^{-1}$ 。如果  $\beta$  的变化在  $10^\circ$  之内, 则仅差  $3 \text{ cm}^{-1}$ , 这一数量相当于我们的光谱测试的实验误差, 因此, 当  $\psi_0 = 30^\circ$ ,  $\Delta\psi < 5^\circ$ , 我们可以近似认为  $\omega_P \approx 819 \text{ cm}^{-1}$  是常数。由 LiIO<sub>3</sub> 的激元的色散曲线可以查出对应于  $819 \text{ cm}^{-1}$  的斜极化声子的动量约为  $10200 \text{ cm}^{-1 [9]}$ 。计算动量守恒的三角形, 可以求出  $E_1$  与  $E_{1S}$  的夹角为  $1.2^\circ$ , 而声子的波矢与激发波波矢的夹角约为  $12^\circ$  左右。这就说明, 通过  $E_1$  和  $E_{1S}$  的相互作用, 在满足动量守恒的三角形关系下, 使得阻尼很大的声子有可能被激发。

### 4. 相干喇曼混频过程

当晶体在  $E_1$ 、 $E_{1S}$  作用下形成相干驱动的激发波(声子场)时, 如果再入射一束强度较弱的探测光束  $E_2(\omega_2)$ , 当满足动量守恒和能量守恒并符合跃迁守则时, 就可以得到相干驱动晶格振动的光散射, 即相干喇曼混频。GK 的工作<sup>[3]</sup>表明, 忽略激励耗尽(假定  $|E_1| \gg$

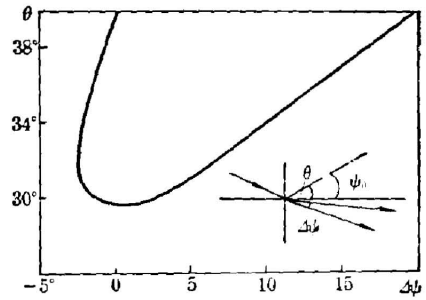


图 5 非共线位相匹配条件下, 入射基波与所产生的二次谐波在 LiIO<sub>3</sub> 晶体内的传播方向关系

Fig. 5 The angle between SHG and optic axis of LiIO<sub>3</sub> crystal versus the angle at which the fundamental wave deviated from collinear phase matching

$|E_2|$ ), 探测光的受激斯托克斯线的强度为

$$\left. \begin{aligned} I_{2S} &= I_2(I_{1S}/I_1)(1/f)(\lambda_{22}/\lambda_{12})^2, \\ f &= 1 + [(\Delta k)^2/(\lambda_{11}I_1 + \lambda_{22}I_2)^2], \\ f &\approx 1 + [(\Delta k)^2/(\lambda_{11}I_1)^2] \quad (\text{当 } \lambda_{22}I_2 \ll \lambda_{11}I_1), \end{aligned} \right\} \quad (5)$$

其中  $\lambda_{11}$ 、 $\lambda_{12}$ 、 $\lambda_{22}$  为四波耦合方程组中的耦合系数,  $\Delta k$  为动量失配。

如果探测光束就是晶体的非共线匹配的二次谐波, 则谐波的受激散射可以写成

$$I_{2S}(2\omega - \omega_P) = C_2 I_1(\omega) I_{1S}(\omega - \omega_P) [\omega^6/n^3(\omega)] L^2 (\mu_0/\epsilon_0)^{3/2} (d_{ijk})^2 (\lambda_{22}/\lambda_{12})^2 (1/f), \quad (6)$$

这里有一点需要加以说明, 在相干驱动光散射或喇曼混频的理论中,  $I_2$  是注入信号, 即在输入端具有最大值。可是在本文所称复杂受激喇曼散射过程中,  $I_2$  来自晶体内的二次谐波, 在输入端信号为零, 不考虑激励耗尽,  $I_2$  正比于基波传播距离的平方[见(2)式]。作为一种近似的、半定量的描述, 我们可以引入一个等效的  $I_2$  数值, 显然这个数值仍然正比于  $L^2$ 。为简单起见, 我们将这种关系一并由  $C_2$  系数表示, 即在(6)式中  $C_2$  系数代表与分子散射有关的等效系数。根据简单的受激喇曼散射理论

$$I_{1S}(L) = I_{1S0} \exp(g_1 I_1 L), \quad (7)$$

式中  $I_{1S0}$  为自发辐射强度,  $g_1 I_1 = g_S$  是增益常数。将(7)式代入(6)式, 可以得到

$$I_{2S}(L) = C_2 I_1 I_{1S0} \exp(g_1 I_1 L) \frac{\omega^6 (d_{ijk})^2}{n^3} L^2 \left(\frac{\mu_0}{\epsilon_0}\right)^{3/2} \left(\frac{\lambda_{22}}{\lambda_{12}}\right)^2 \left[1 + \frac{\Delta k}{(\lambda_{11} I_1)^2}\right]^{-1}. \quad (8)$$

至此, 我们形式上已经导出谐波相干喇曼混频的最后表达式(为简单起见, 我们已经去掉了频率的标号)。显然,  $d_{ijk}$  与  $\chi^{(2)}$  相关, 而  $\lambda_{11}$ 、 $\lambda_{12}$ 、 $\lambda_{22}$  和  $g_1$  则与  $\chi^{(3)}$  相关。因此, 谐波相干喇曼混频是非线性光学材料二阶与三阶非线性极化的综合效应, 它与入射波的频率的六次方成正比, 与入射波的强度有指数关系, 同时取决于是否满足位相匹配条件。这个过程示于图4。

细致的受激喇曼散射理论表明, 斯托克斯波与反斯托克斯波存在紧密的耦合, 因此, 满足一定的动量关系时, (即动量失配  $\Delta k \neq 0$ , 而又小于某一数值时)反斯托克斯波与斯托克斯波同时出现。

当斯托克斯波与反斯托克斯波激发时, 由于各个波的非线性耦合, 就会激发高阶的斯托克斯波与反斯托克斯波, 因此, 相干喇曼混频可以同时产生多阶的喇曼分量。在这个过程中,  $\Delta k$  即动量失配是否能自动满足各阶参量过程的要求, 具有决定性的意义。

### 5. 对实验结果的分析

运用上述的理论, 计算了激元为斜极化声子( $LO$ 支)参与的相干喇曼混频的位相匹配关系。设  $1.064 \mu\text{m}$  基波与晶轴的夹角为  $30.5^\circ$ , 即  $\Delta\psi = 0.5^\circ$ , 非共线型倍频光与晶轴的夹角  $\theta = 29.7^\circ$ , 倍频光为  $e$  光。基波与其一阶斯托克斯所激发的斜声子的传播方向与晶轴成  $52^\circ$ , 当忽略波的耦合作用(即文献[2]中所说的线性位相匹配)时, 近似算得从三阶斯托克斯散射到二阶反斯托克斯线与谐波的夹角分别为  $1.1^\circ$ ,  $2.3^\circ$ ,  $3.6^\circ$ ,  $-1^\circ$ ,  $-1.9^\circ$ 。在文献[7, 9]中, 使用氩离子激光器  $5145 \text{ \AA}$  光束测量到波数为  $820 \text{ cm}^{-1}$  的  $LO$  声子的散射光的散射角在  $1^\circ$  附近, 这与我们的计算结果是相近的。

在 GK 的工作中没有报道反向受激散射。而在我们的实验中, 恰恰在反射方向得到较强的复杂喇曼散射。我们认为, 这种反向的散射并不是通常所称的后向喇曼散射<sup>[13]</sup>, 而是

由于 LiIO<sub>3</sub> 的折射率较大, 在表面处有 8% 左右的反射, 被反射的基波在反射方向形成了谐波相干喇曼混频。为区别起见, 我们称之为反向散射。反向散射并非是正向散射光的反射。实验结果的最后一段所述的内容, 完全证实我们的论断。

从图 6 中可以看出, 当入射光不是垂直入射, 而与晶轴的夹角  $\theta_{in}$ , 且不等于反射光与晶轴的夹角  $\theta_r$  时, 由上述的理论可知, 晶体中哪一种激元在喇曼混频中起主要作用, 在很大程度上取决于动量匹配关系是否得到满足。因此出现了这样一种结果, 即在  $\theta_{in}$  的方向上, 纵向光学声子产生相干驱动下的喇曼散射, 在  $\theta_r$  的方向上, 则横向光学声子满足散射要求, 从而出现正向与反向的输出谱线不同的结果。由图 6 可见, 将晶体绕表面法线转 180°, 入射角与反射角的大小正好对调。因此, 此时的输出波长也正好对调, 在入射方向横向光学声子参与散射, 而在反射方向纵向光学声子起作用。

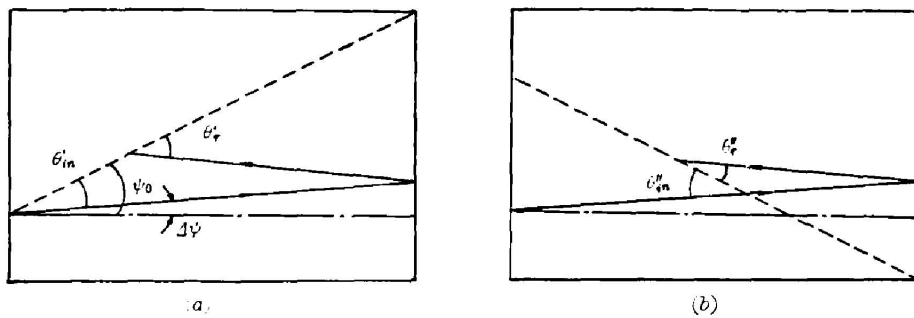


图 6 晶体内入射光线和反射光线与晶轴的夹角关系

(a)  $\theta'_{in} = \psi_0 - \Delta\psi$ ,  $\theta'_r = \psi_0 + \Delta\psi$ ;

(b) 晶体绕法线转 180°,  $\theta'_{in} = \psi_0 + \Delta\psi$ ,  $\theta'_r = \psi_0 - \Delta\psi$

Fig. 6 Angular dependence of the incident beam and reflected beam

(a)  $\theta'_{in} = \psi_0 - \Delta\psi$ ,  $\theta'_r = \psi_0 + \Delta\psi$ ;

(b) the crystal was rotated 180° about the normal line  $\theta'_{in} = \psi_0 + \Delta\psi$ ,  $\theta'_r = \psi_0 - \Delta\psi$

严格的参量作用过程, 由于  $\Delta k$  的作用, 各阶喇曼散射都应具有确定的散射角, 而在普通的非参量过程的受激喇曼散射中, 一阶斯托克斯则是在一个锥体内输出。从我们的实验结果来看, 一阶斯托克斯线仍然有一个较清楚的散射角度, 但是从照片(图 2)也能断定, 在此角度内的光强不如二阶斯托克斯对应的强度大, 故我们认为可以用一阶斯托克斯的散射比较弥散来解释。将整个相干喇曼混频过程区分为非参量过程与参量过程仅是一种近似。

在整个分析过程中, 我们忽略了激发基波模式的作用以及自聚焦的影响。但正如文献 [2] 所指出的, 受激喇曼散射的角度分布和光谱结果对各个激光模式的功率是相当敏感的。因此, 表 1 所列的散射角数据和激元波数的数据与理论分析有些误差, 可以归结为激光模式与自聚焦的作用。

## 6. 其它

正如本节开始所述,乍看起来我们的实验结果属于受激超喇曼散射, 但是受激超喇曼散射涉及高阶非线性极化率  $\chi^{(5)}$ , 普通喇曼跃迁几率与超喇曼跃迁几率相差  $10^6$  [5], 而 LiIO<sub>3</sub> 晶体在  $1 \mu\text{m}$  附近是透明的, 不存在共振加强的可能性, 一般晶体要观察到明显的受激喇曼散射, 激光光波的功率密度要大于  $1 \text{ MW/cm}^2$ , 因此要获得受激超喇曼散射, 入射功率密度应

达  $10^6 \text{ MW/cm}^2$ , 这个数值远远超出我们的实验范围, 因此在我们的实验条件下不会获得超喇曼受激散射。

#### 四、结 束 语

用  $1.06 \mu\text{m}$  超短脉冲激发  $\text{LiIO}_3$  晶体从而在可见光区产生多种波长的受激辐射, 这是非共线倍频光与基波激发的晶体激发态的相干喇曼混频的结果, 是一种二阶与三阶非线性光学效应的综合过程。除了  $\text{LiIO}_3$  晶体, 还有哪些材料可以出现这种现象? 还有哪些现象是  $\chi^{(2)}$ 、 $\chi^{(3)}$  的综合作用的产物? 这些问题是值得研究的。

从实用的角度来看, 本文所报道的现象提供了一种新的激光器方案, 即用红外  $1.06 \mu\text{m}$  激发, 可以获得红、橙、黄、绿、青、蓝多种激光输出。用微微秒脉冲激发, 则可得多种波长的微微秒脉冲, 这对于微微秒光谱技术来说是有用处的。

作者之一(梁培辉)感谢与 von der Linde 教授有益的讨论, 并对中国科学院物理研究所提供  $\text{LiIO}_3$  晶体毛坯表示谢意。

#### 考 参 文 献

- [1] E. Garmire, F. Padarese *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1963, **11**, No. 4 (15 Aug), 160.
- [2] Y. R. Shen, N. Bloembergen; *Phys. Rev.*, 1965, **137 A**, No. 6 (15 Mar), 1787.
- [3] J. A. Giordmaine, W. Kaiser; *Phys. Rev.*, 1966, **144**, No. 2 (15 Apr), 676.
- [4] D. von der Linde, A. Laubereau *et al.*; *Phys. Rev. Lett.*, 1971, **26**, No. 16 (19 Apr), 954.
- [5] D. A. Long, L. Stanton; *Proc. Roy. Soc.*, 1970, **A 318**, No. 1535 (22 Sep), 441.
- [6] R. Claus; *Z. Naturforsch.*, 1970, **25a**, No. 2 (Feb), 306.
- [7] W. Ottaguro, C. A. Arguello *et al.*; *Phys. Rev.*, 1970, **B1**, No. 6 (15 Mar), 2818.
- [8] W. Ottaguro, E. Wiener-Avneer *et al.*; *Phys. Rev.*, 1971, **B4**, No. 12 (15 Dec), 4542.
- [9] W. Ottaguro, E. Wiener-Avneer *et al.*; *Phys. Rev.*, 1972, **B6**, No. 8 (15 Oct), 3100.
- [10] J. A. Giordmaine; *Phys. Rev. Lett.*, 1962, **8**, No. 1 (1 Jan), 19.
- [11] G. Nath, S. Haussuhl; *Appl. Phys. Lett.*, 1969, **14**, No. 5 (1 Mar), 154.
- [12] A. Yariv; *Quantum Electronics*, (Second Edition, John Wiley & Sons, Inc., 1975), 423.
- [13] M. Maier, W. Kaiser; *Phys. Rev.*, 1969, **177**, No. 2 (10 Jan), 580.



## Second harmonic wave coherent Raman mixing in LiIO<sub>3</sub> crystal\*

LIANG PEIHUI GU ZHONGMIN AND ZHANG WEIQING

(Shanghai Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica)

LIU SONGHAO

(Anhui Institute of Optics and Fine Mechanics, Academia Sinica, Hefei)

(Received 31 May 1982)

### Abstract

By pumping a LiIO<sub>3</sub> crystal with 1.06 μm picosecond laser pulses train at a proper incident angle, 8 stimulated Raman scattering lines have been obtained at the visible region from 4896 Å to 6119 Å:  $\omega = 2\omega_1 \pm n\omega_p$ ,  $n = 1, 2, 3$ , concerned elementary excitations being LO mode and TO mode of  $(A + E_1)$  oblique polariton in the crystal. The process of such a complex stimulated Raman scattering is as following: with phase matching intense 1.06 μm laser beam and its scattering light generate SHG in the crystal; meanwhile it excites coherently the elementary excitations of the crystal, the latter scatter the SHG into Stokes and antistokes radiations resulting in a complex effect of  $\chi^{(2)}$  and  $\chi^{(3)}$  nonlinear optical process. Furthermore the reflectedward stimulated Raman scattering with distinct wavelength has been observed from the forward one. Present paper shows that the reflectedward scattering is also the SHG coherent Raman mixing but generated by the 1.06 μm beam reflected upon the exit crystal surface.

\*This work has been accepted by 12th IQEC 1982, Munich.