第4卷 第8期　　光学学报　　Vol. 4, No. 8
1984年8月　　ACTA OPTICA SINICA　　August, 1984

极性倍频晶体中的相干喇曼混频*

谷忠民　梁培辉
(中国科学院上海光学精密机械研究所)

提　　要

本文建立了极性倍频晶体中极化声子相干喇曼混频的耦合波方程，其中考虑了超喇曼极化率 β_R。该方程在小信号、声子近似以及喇曼驱动的参量近似下求解。结果表明：在高强度泵浦光受激喇曼散射的相干驱动下，极性倍频晶体可以在泵浦光倍频附近产生极化声子的相干喇曼光束。这种光束可以通过不同的相干喇曼混频过程，由倍频光直接转换，或由基波光直接转换，还可以由倍频光与基波光共同转换而成。这三种转换过程具有各自不同的相位失配因子。在一定条件下，后两种过程可以同时进行。在 $LiIO_3$ 晶体中证实了上述的结论。实验中泵浦光强度约 3.0×10^9 W/cm²。

一、引　言

我们认为，高功率密度泵浦光作用时的介质非线性极化强度必须同时计及喇曼极化率 α_R 与超喇曼极化率 β_R 的贡献。基于这种认识，本文提出了一个极性倍频晶体极化声子的相干喇曼混频的理论。它表明，在基波光 ω_1 的受激喇曼散射的作用下，倍频光 ω_2 的喇曼辐射 ω_{2S} 可以通过相干喇曼混频(CRM)，相干超喇曼混频，相干喇曼超喇曼混频这三个过程分别由 ω_2、ω_1 光单独或一起转换而成。这是一种复杂的非线性光学效应。仅在一个过程中就同时综合了二阶、三阶甚至四阶的非线性光学过程，而且参量、非参量过程可以混合进行。由于这种综合，原来需要两束光入射才能产生的相干喇曼混频，现在只需一束光入射就能实现。由于这种混合，使得参量、非参量过程能够相互影响、相互促进。例如，在参量混频相位匹配的影响下，原来达不到阈值就不能发生的受激喇曼散射有可能发生。在受激喇曼散射的影响下，本来需要严格满足相位匹配才能进行的参量混频降低了它对相位匹配的要求。显然研究这种复杂效应对于理解并掌握非线性光学的本质是十分有益的。我们在负单轴极性倍频晶体 $LiIO_3$ 的实验中初步证实了以上的结论。

二、耦合波方程的建立与求解

在我们的情况下，高强度的泵浦激光 ω_1 除了能引起 ω_2, ω_{1S}、ω_{2S} 光外还能引起频率为 ω_0 的极化声子的相干激发。因此极性倍频晶体中的总光场为

$$\boldsymbol{E}=\boldsymbol{E}(\omega_1)+\boldsymbol{E}(\omega_2)+\boldsymbol{E}(\omega_{1S})+\boldsymbol{E}(\omega_{2S})+\boldsymbol{E}(\omega_0), \tag{1}$$

其中 $\omega_2=2\omega_1$, $\omega_{1S}=\omega_1-\omega_0$, $\omega_{2S}=\omega_2-\omega_0$。不计及各光场在晶体中的单独作用，总光场所产生的位能密度为[1]:

收稿日期：1983年11月21日；收到修改稿日期：1984年4月5日

* 本文的主要结果曾在1983年广州国际激光会议上报告。

$$\Phi=\boldsymbol{Q}^{*}\cdot\omega_{fg}^{2}\cdot\boldsymbol{Q}/2-\boldsymbol{Q}^{*}\cdot B^{12}\cdot\boldsymbol{E}_{0}-\boldsymbol{E}_{1S}^{*}\cdot N\alpha_{1R}^{*}\cdot\boldsymbol{Q}^{*}\boldsymbol{E}_{1}-\boldsymbol{E}_{2S}^{*}\cdot N\alpha_{2R}^{*}\cdot\boldsymbol{Q}^{*}\boldsymbol{E}_{2}$$
$$-\boldsymbol{E}_{1S}^{*}\cdot(\chi_{1\alpha}^{(2)})^{*}\cdot\boldsymbol{E}_{0}^{*}\boldsymbol{E}_{1}-\boldsymbol{E}_{2S}^{*}\cdot(\chi_{2\alpha}^{(2)})^{*}\cdot\boldsymbol{E}_{0}^{*}\boldsymbol{E}_{2}-\boldsymbol{E}_{2S}^{*}\cdot(N\beta_{R}^{*}/2):\boldsymbol{Q}^{*}\boldsymbol{E}_{1}\boldsymbol{E}_{1}$$
$$-\boldsymbol{E}_{2S}^{*}\cdot(\chi_{\beta}^{(2)}/2)^{*}:\boldsymbol{E}_{0}^{*}\boldsymbol{E}_{1}\boldsymbol{E}_{1}+\text{c. c.。} \tag{2}$$

为了以后求解的简便，倍频光 $\boldsymbol{E}_2$ 也可视作泵浦光；f、g 分别表示极化声子的基态与激发态；$\boldsymbol{Q}$、ω_{fg} 分别为极化声子准简正振动的位移与频率；B^{12} 是黄昆系数，涉及极化声子的振子强度。式(2)中前两项为极化声子的振动位能密度与振动电偶极矩在极化声子光场中的位能密度，其余各项均为各光场互作用时感生的电偶极矩的位能密度，而 $\chi^{(2)}$ 为电光系数，N 为晶体离子数密度。对晶体内部振动模而言[2]（例如 $LiIO_3$ 的 A 与 E_1 模），由喇曼共振引起的宏观极化率可以分别近似为 $N\alpha_{1R}$、$N\alpha_{2R}$、$N\beta_R$。

由(2)式可以导出晶体非线性极化强度 P^{NL} 以及极化声子准简正振动的运动方程[1]：

$$\boldsymbol{P}^{NL}(\omega_j)=-\partial\Phi/\partial\boldsymbol{E}^{*}(\omega_j)\quad(j=0,\ 1,\ 2,\ 1S,\ 2S), \tag{3}$$

$$\ddot{\boldsymbol{Q}}(\omega_0)+\Gamma\dot{\boldsymbol{Q}}(\omega_0)=-\partial\Phi/\partial\boldsymbol{Q}^{*}(\omega_0), \tag{4}$$

其中 Γ 为阻尼系数。取平面波振幅缓变近似，晶体中非寻常光束的非齐次波动方程可以简化成[2]

$$d\boldsymbol{E}/dS=2\pi i\omega\boldsymbol{P}^{NL}/cn_{r}\text{。} \tag{5}$$

上式中已令 $d\boldsymbol{E}/dS\sim\boldsymbol{e}\cdot\exp[i(\boldsymbol{K}\cdot\boldsymbol{r}-\omega t)]\cdot(dA/dS)$，$\boldsymbol{e}$ 为单位矢量；能流折射率 $n_r=n\cos\rho$，n、ρ 分别为波矢折射率及走散角；S 为光束能流方向上的作用长度。利用(2)～(5)式很容易建立同时涉及 α_R、β_R 的耦合波方程组：

$$(n_{r1}/\omega_1)\cdot d\boldsymbol{E}_1/dS=(2\pi i/c)\cdot[\boldsymbol{E}_{1S}\cdot N\alpha_{1R}\cdot\boldsymbol{Q}+\boldsymbol{E}_{1S}\cdot\chi_{1\alpha}^{(2)}\cdot\boldsymbol{E}_0$$
$$+\boldsymbol{E}_{2S}\cdot N\beta_R:Q\boldsymbol{E}_1^{*}+\boldsymbol{E}_{2S}\cdot\chi_{\beta}^{(2)}:\boldsymbol{E}_0\boldsymbol{E}_1^{*}], \tag{6}$$

$$(n_{r2}/\omega_2)\cdot d\boldsymbol{E}_2/dS=(2\pi i/c)\cdot[\boldsymbol{E}_{2S}\cdot N\alpha_{2R}\cdot\boldsymbol{Q}+\boldsymbol{E}_{2S}\cdot\chi_{2\alpha}^{(2)}\cdot\boldsymbol{E}_0], \tag{7}$$

$$(n_{r1S}/\omega_{1S})\cdot d\boldsymbol{E}_{1S}/dS=(2\pi i/c)\cdot[N\alpha_{1R}^{*}\cdot\boldsymbol{Q}^{*}\boldsymbol{E}_1+(\chi_{1\alpha}^{(2)})^{*}\cdot\boldsymbol{E}_0^{*}\boldsymbol{E}_1], \tag{8}$$

$$(n_{r2S}/\omega_{2S})\cdot d\boldsymbol{E}_{2S}/dS=(2\pi i/c)\cdot[N\alpha_{2R}^{*}\cdot\boldsymbol{Q}^{*}\boldsymbol{E}_2+(\chi_{2\alpha}^{(2)})^{*}\cdot\boldsymbol{E}_0^{*}\boldsymbol{E}_2$$
$$+(N\beta_R^{*}/2):\boldsymbol{Q}^{*}\boldsymbol{E}_1\boldsymbol{E}_1+(\chi_{\beta}^{(2)}/2)^{*}:\boldsymbol{E}_0^{*}\boldsymbol{E}_1\boldsymbol{E}_1], \tag{9}$$

$$(n_{r0}/\omega_0)\cdot d\boldsymbol{E}_0/dS=(2\pi i/c)\cdot[Q\cdot B^{12}+E_{1S}^{*}\cdot(\chi_{1\alpha}^{(2)})^{*}\cdot E_1$$
$$+\boldsymbol{E}_{2S}^{*}\cdot(\chi_{2\alpha}^{(2)})^{*}\cdot\boldsymbol{E}_2+\boldsymbol{E}_{2S}^{*}\cdot(\chi_{\beta}^{(2)}/2)^{*}:E_1E_1], \tag{10}$$

$$\ddot{Q}+\Gamma\dot{Q}=-\omega_{fg}^{2}\cdot Q+B^{12}\cdot\boldsymbol{E}_0+\boldsymbol{E}_{1S}^{*}\cdot N\alpha_{1R}^{*}\cdot\boldsymbol{E}_1$$
$$+\boldsymbol{E}_{2S}^{*}\cdot N\alpha_{2R}^{*}\cdot\boldsymbol{E}_2+\boldsymbol{E}_{2S}^{*}\cdot(N\beta_R^{*}/2):\boldsymbol{E}_1\boldsymbol{E}_1\text{。} \tag{11}$$

利用上述方程组的前四式，和光强 $I=(cn_r/8\pi)\cdot|A|^2$，$d|A|^2/dS=d|\boldsymbol{E}|^2/dS=\boldsymbol{E}^{*}\cdot(d\boldsymbol{E}/dS)+\boldsymbol{E}\cdot(d\boldsymbol{E}^{*}/dS)$，则可推出各波耦合时的光子数守恒表达式：

$$\{[I_{1S}(L)-I_{1S}(O)]/\omega_{1S}+[I_1(L)-I_1(O)]/\omega_1\}$$
$$+2\{[I_{2S}(L)-I_{2S}(O)]/\omega_{2S}+[I_2(L)-I_2(0)]/\omega_2\}=0\text{。} \tag{12}$$

上式表明 I_1 光子除了能转换成 I_{1S} 光子外，还能直接转换成 I_{2S} 光子，这是建立耦合波方程时计及 β_R 的必然结果。如若不然，令 $\beta_R=0$，只能推出(12)式中二大括号分别取零的关系式。它们表明 $\beta_R=0$ 时，I_1、I_{1S} 与 I_2、I_{2S} 光子数是分别守恒的，不能互相转换，即 I_1 只能转换成 I_{1S}，I_{2S} 只能来自 I_2，不能来自 I_1 这正是普通 CRM 的特征。

下面我们将对耦合波方程在小信号与声子近似之下进行求解，此时 A_1 为常数，A_0 为 0。

求解中 A_2 视作常数，取 $\boldsymbol{Q}$ 为 $\exp[-i\omega_0 t]$ 的形式，那么在喇曼共振($\omega_0 \approx \omega_{fg}$)时，耦合波方程组就可以简化成

$$dA_{1S}/dS=(2\pi\omega_{1S}N^2/cn_{r1S}\omega_0\Gamma)\cdot[|\alpha_{1R}|^2\cdot|A_1|^2A_{1S}+(\alpha_{1R}^*\cdot\alpha_{2R})\cdot A_1A_2^*A_{2S}\cdot\exp(i\Delta\boldsymbol{K}\cdot\boldsymbol{r})$$
$$+(\alpha_{1R}^*\cdot\beta_R/2)\cdot|A_1|^2A_1^*A_{2S}\cdot\exp(i\Delta\boldsymbol{K}_1\cdot\boldsymbol{r}), \tag{13}$$

$$\begin{aligned}dA_{2S}/dS=(2\pi\omega_{2S}N^2/cn_{r2S}\omega_0\Gamma)\cdot[&|\alpha_{2R}|^2\cdot|A_2|^2A_{2S}\\&+(\alpha_{1R}\cdot\alpha_{2R}^*)\cdot A_1^*A_2A_{1S}\cdot\exp(-i\Delta\boldsymbol{K}\cdot\boldsymbol{r})\\&+(\alpha_{1R}\cdot\beta_R^*/2)\cdot|A_1|^2A_1A_{1S}\cdot\exp(-i\Delta\boldsymbol{K}_1\cdot\boldsymbol{r})\\&+(\alpha_{2R}\cdot\beta_R^*/2)\cdot A_2^*A_1^2A_{2S}\cdot\exp(i\Delta\boldsymbol{K}_2\cdot\boldsymbol{r})\\&+(\alpha_{2R}^*\cdot\beta_R/2)\cdot A_2A_1^*A_1^*A_{2S}\cdot\exp(-i\Delta\boldsymbol{K}_2\cdot\boldsymbol{r})]。\end{aligned} \tag{14}$$

在相差一个比例常数的条件下，从(13)、(14)式很容易得出晶体非线性极化率用 α_R、β_R 表达时的关系式，例如受激喇曼散射时的 $\chi_{SRS1}^{(3)}(-\omega_{1S};\ \omega_1,\ -\omega_1,\ \omega_{1S})\approx N^2|\alpha_{1R}|^2/(\omega_0\Gamma)$；四波混频时的 $\chi_{4WM}^{(3)}(-\omega_{2S};\omega_2,-\omega_1,\omega_{1S})\approx N^2\cdot(\alpha_{1R}\cdot\alpha_{2R}^*)/(\omega_0\Gamma)$；五波混频时的 $\chi_{5WM}^{(4)}(-\omega_{2S};\ \omega_1,\ -\omega_1,\ \omega_1,\ \omega_{1S})\approx N^2(\alpha_{1R}\cdot\beta_R^*/2)/(\omega_0\Gamma)$ 等。

(13)、(14)式中 $\alpha_{1R}=\boldsymbol{e}_{1S}\cdot\alpha_{1R}\cdot\boldsymbol{e}_1$，$\alpha_{2R}=\boldsymbol{e}_{2S}\cdot\alpha_{2R}\cdot\boldsymbol{e}_2$，$\beta_R=\boldsymbol{e}_{2S}\cdot\beta_R:\boldsymbol{e}_1\boldsymbol{e}_1$；相位失配 $\Delta\boldsymbol{K}=(\boldsymbol{K}_1-\boldsymbol{K}_{1S})-(\boldsymbol{K}_2-\boldsymbol{K}_{2S})$，$\Delta\boldsymbol{K}_1=(\boldsymbol{K}_{2S}-\boldsymbol{K}_1-\boldsymbol{K}_{1S})-(\boldsymbol{K}_1-\boldsymbol{K}_1)$，$\Delta\boldsymbol{K}_2=(\boldsymbol{K}_1+\boldsymbol{K}_1-\boldsymbol{K}_2)-(\boldsymbol{K}_{2S}-\boldsymbol{K}_{2S})$。令喇曼功率增益 $G_1=g_1'|A_1|^2=g_1I_1$，$G_2=g_2'|A_2|^2=g_2I_2$，超喇曼功率增益为 $G_{HR}=g_{HR}'|A_1|^4=g_{HR}I_1^2$，注意我们的情况中 $|A_2|$ 与 $|A_{2S}|$ 远小于 $|A_1|$ 与 $|A_{1S}|$，$(|\beta_R^*|/2)\cdot|A_1|$ 远小于 $|\alpha_{jR}|$ ($j=1,\ 2$)，那么(13)、(14)两式进一步可近似成

$$dA_{1S}/dS\cong(g_1'/2)\cdot|A_1|^2A_{1S}, \tag{15}$$

$$\begin{aligned}dA_{2S}/dS\cong(g_1'\cdot|A_1|^2/2)\cdot(\omega_{2S}n_{r1S}/\omega_{1S}n_{r2S})\cdot[&(\alpha_{1R}\cdot\alpha_{2R}^*/|\alpha_{1R}|^2)\\&\cdot(A_2/A_1)\cdot A_{1S}\exp(-i\Delta\boldsymbol{K}\cdot\boldsymbol{r})\\&+(\alpha_{1R}\cdot\beta_R^*/2|\alpha_{1R}|^2)\cdot A_1A_{1S}\exp(-i\Delta\boldsymbol{K}_1\cdot\boldsymbol{r})]。\end{aligned} \tag{16}$$

上两式解的结果为

$$I_{1S}(L)=I_{1S0}\exp(G_1L), \tag{17}$$

$$I_{2S}(L)=I_{2S}^{(1)}(L)+I_{2S}^{(2)}(L)+I_{2S}^{(3)}(L), \tag{18}$$

其中

$$I_{2S}^{(1)}(L)=(\omega_{2S}/\omega_{1S})\cdot(G_2/G_1)\cdot I_{1S0}\exp(G_1L)\cdot f_1^{-1}, \tag{19}$$

$$I_{2S}^{(2)}(L)=(\omega_{2S}/\omega_{1S})\cdot(G_{HR}/G_1)\cdot I_{1S0}\exp(G_1L)\cdot f_2^{-1}, \tag{20}$$

$$I_{2S}^{(3)}(L)=(\omega_{2S}/\omega_{1S})\cdot(G_2\cdot G_{HR}/G_1\cdot G_1)^{1/2}\cdot I_{1S0}\exp(G_1L)\cdot f_3^{-1}。 \tag{21}$$

以上式子中相位失配因子分别为：$f_1=1+(2\Delta K/G_1)^2$；$f_2=1+(2\Delta K_1/G_1)^2$；$f_3=(f_1f_2)^{1/2}/|2\cos\varphi|$。$\varphi$ 为复数

$$(\alpha_{2R}^*\cdot\beta_R/2|\alpha_{1R}|^2)\cdot(A_1^*A_2/A_1)\cdot\exp(i\Delta K_2L)/[(1+2i\Delta K_1/G_1)\cdot(1-2i\Delta K/G_1)]$$

的辐角。相位失配因子 f_3 具有涨落性，因为它涉及的 φ 值与激光场 A_1A_2 的涨落相位角有关。

三、解的意义与相干喇曼混频

从(18)～(21)式可知 $I_{2S}^{(j)}$ ($j=1,\ 2,\ 3$)所示的三个过程均为 I_1、I_{1S} 喇曼相干驱动下的

多波参量混频，所以可统称为 CRM。$I_{2S}^{(1)}$ 表示的是通常的 CRM，它只涉及 α_R，$I_{2S}^{(1)}$ 的生成必须 I_1、I_2 同时泵浦，但是只有 I_2 能转换成 $I_{2S}^{(1)}$。在 I_2 为 I_1 的非共线倍频光时，可称作谐波 CRM[3]。$I_{2S}^{(2)}$ 涉及的是相干超喇曼混频(CHRM)，它计及 α_R 与 β_R 的作用，特点是：$I_{2S}^{(2)}$ 的生成毋需 I_2，只需 I_1 泵浦，且 I_1 可直接转换成 $I_{2S}^{(2)}$。$I_{2S}^{(3)}$ 的生成也涉及 α_R 与 β_R，特点是：$I_{2S}^{(3)}$ 的生成必须使 I_1I_2 同时泵浦，$I_{2S}^{(3)}$ 由 I_1、I_2 两者共同转换而成。建议称该过程为作相干喇曼超喇曼混频。

从(19)～(21)式还可以知道 $I_{2S}^{(j)}$ 所示的三个过程均具有参量、非参量混合过程的特点。这些过程有效的进行，取决于 I_1 是否具有足够的强度，来产生阈值以上的喇曼功率增益 G，也取决于各自相位匹配因子 f_j^{-1} 的大小。G_1 越大生成 $I_{2S}^{(j)}$ 的相位匹配要求就越低。$\Delta\boldsymbol{K}=0$ 时，$I_{2S}^{(1)}$ 能有效地生成；$\Delta\boldsymbol{K}_1=0$ 时，$I_{2S}^{(2)}$ 能有效地生成；$\Delta\boldsymbol{K}$ 与 $\Delta\boldsymbol{K}_1$ 均为零虽然可导致 $\Delta\boldsymbol{K}_2=0$ 及 $f_3^{-1}=|2\cos\varphi|$，此时似乎 $I_{2S}^{(1)}$、$I_{2S}^{(2)}$ 与 $I_{2S}^{(3)}$ 均可同时生成，但是 $\Delta\boldsymbol{K}_2=2\boldsymbol{K}_1-\boldsymbol{K}_2=0$，表明此时晶体已处于共线倍频相位匹配状态，会使泵浦光 I_1 耗尽，从而抑制了 CRM 的进行，使得 $I_{2S}^{(j)}$ 都不能生成。因此倍频晶体中要生成 $I_{2S}^{(3)}$ 必须避开 $\Delta\boldsymbol{K}$ 与 $\Delta\boldsymbol{K}_1$ 同时为零的状态。从 f_j 的表达式可知 $I_{2S}^{(j)}$ 均为相位失配($\Delta\boldsymbol{K}$, $\Delta\boldsymbol{K}_1$)的罗仑兹函数，其半最大值强度处的宽度等于 G_1。可以将 $I_{2S}^{(j)}$ 的表达式改写成

$$I_{2S}^{(1)}(L)/I_2=(\omega_{2S}/\omega_{1S})\cdot(g_2/g_1)\cdot[I_{1S}(L)/I_1]\cdot f_1^{-1},\tag{22}$$

$$I_{2S}^{(2)}(L)/I_1=(\omega_{2S}/\omega_{1S})\cdot(g_{HR}I_1/g_1)\cdot[I_{1S}(L)/I_1]\cdot f_2^{-1},\tag{23}$$

$$I_{2S}^{(3)}(L)/\sqrt{I_1I_2}=(\omega_{2S}/\omega_{1S})\cdot\sqrt{(g_2\cdot g_{HR}I_1)/(g_1\cdot g_1)}\cdot(I_{1S}(L)/I_1)\cdot f_3^{-1},\tag{24}$$

注意有 $g_2\approx g_1$，$g_{HR}I_1<g_1$。上式表明转换成 $I_{2S}^{(j)}$ 的效率主要取决于 I_1 的喇曼转换率以及相位匹配因子 f_j^{-1}。同等的条件下且实现相位匹配时，$I_{2S}^{(j)}$ 的转换效率满足不等式：$I_{2S}^{(2)}/I_1<I_{2S}^{(3)}/\sqrt{I_1I_2}<I_{2S}^{(1)}/I_2$。其中转换效率最高的是 $I_{2S}^{(1)}$，它可与 I_1 的喇曼转换效率相比较。因此，虽然 $I_{2S}^{(1)}$ 来自低强度 I_2 的转换，但其强度还足以观察到。$I_{2S}^{(2)}$、$I_{2S}^{(3)}$ 尽管转换效率低，然而它们的转换效率随 I_1 的增强而加大，并且两者可从高强度基波光 I_1 转换而成。显而易见只要 I_1 足够强，不但 $I_{2S}^{(2)}$、$I_{2S}^{(3)}$ 能够产生，而且都可以比 $I_{2S}^{(1)}$ 强。在 $LiIO_3$ 中，$I_1\approx3.0\times10^9\,W/cm^2$ 的情况下，估算 $I_{2S}^{(2)}$ 比 $I_{2S}^{(1)}$ 大 30% 左右。

四、$LiIO_3$ 晶体实验

在 $LiIO_3$ 晶体样品中，我们观察到了上述的涉及 α_R、β_R 的 CRM 现象。样品中泵浦光强度高达 $3.0\times10^9\,W/cm^2$。

1. 仅涉及 α_R 的谐波 CRM 现象。当 1.064 μm 的泵浦光 (I_1) 相对晶体光轴成 30.5° 角入射时，可以观察到 $LiIO_3$ 中 I_{2S} 光的产生，且其强度均低于晶体主平面上的非共线倍频光 I_2。这表明该 I_{2S} 是由 I_2 转换而成，它就是 $I_{2S}^{(1)}$。文献[3]中产生 $I_{2S}^{(1)}$ 时光泵强度约为 $0.5\times10^9\,W/cm^2$。

2. 同时涉及 α_R、β_R 的 CRM 现象。当 1.064 μm 光相对光轴成 27.5° 角入射时，非共线倍频的锥状光恰好缩成一束并消失。这时 $LiIO_3$ 中也出现了 0.53 μm 附近的一至三阶的斜极化声子的 Stokes 光束。与此时仅有的相位失配下的共线倍频光束 I_2 相比，其强度

要大得多。与 30.5° 角时的 $I_{2S}^{(1)}$ 相比其强度也大很多。这就是通过相干超喇曼混频由 I_1 直接转换成的 $I_{2S}^{(2)}$ 光。泵浦光较弱为 $0.5\times10^9\,W/cm^2$ 时不能观察到 $I_{2S}^{(2)}$。泵浦光较强为 $3.0\times10^9\,W/cm^2$ 时,则可观察到。估算的 $I_{2S}^{(2)}$ 大约比 $I_{2S}^{(1)}$ 强 30%。与 $I_{2S}^{(1)}$ 场图的实验观察相似, $I_{2S}^{(2)}$ 仍然是垂直于晶体主平面的扁长条光束。阶数越高与光轴的夹角也越大。随着泵浦光强的涨落,扁长条的大小也会涨落。这揭示了 $I_{2S}^{(2)}$ 也是相位失配 ΔK_1 的罗仑兹函数。高阶 $I_{2S}^{(2)}$ 的形成原因与高阶 $I_{2S}^{(1)}$ 相同[3]。只要 I_1 足够强,高阶的 I_{2S} 很容易通过涉及 α_R 的 CRM 并自然满足相位匹配条件由低一阶的 I_{2S} 光转换而成。这种转换的效率很高,与 I_1 的喇曼转换效率几乎相等,很容易使高阶的 I_{2S} 达到可供观察的程度。

略微转动晶体使 $I_{2S}^{(2)}$ 光束经过相位失配的共线倍频光束 I_2 附近,发现 I_{2S} 会突然增强。增加的部分超过了 I_2 的强度。我们认为这可能是 $I_{2S}^{(3)}$ 能在此时生成并加入光束 $I_{2S}^{(2)}$ 中的缘故。由 I_1 与 I_2 共同转换成的 $I_{2S}^{(3)}$ 可以超过 I_2 的强度。

总之,本文提出了极性倍频晶体中涉及 α_R、β_R 的 CRM 理论。利用该理论可以解释 $LiIO_3$ 中有关的实验现象。本文的结果是在小信号、声子近似以及喇曼驱动的参量近似情况下给出的,其它情况有待进一步的讨论。

最后,我们衷心感谢刘颂豪教授对本工作的支持与赵继然同志对实验工作的帮助。

参　考　文　献

[1] R. Claus *et al.*; «*Light Scattering by Phonon-Polariton*», (Springer-Verlag, Berlin, 1975), 53.
[2] J. A. Giordmaine, W. Kaiser; *Phys. Rev.*, 1966, **144**, No. 2 (Apr), 676.
[3] 梁培辉等;«光学学报», 1983, **3**, No. 4 (Jul), 289.

Coherent Raman Mixing in Polar second-harmonic-generation crystals*

GU ZHONGMIN AND LIANG PEIHUI
(*Shanghai Institute of optics and Fine Mechanics, Academia Sinica*)

(Received 21 November 1983; revised 5 April 1984)

Abstract

In this paper the coupled-wave equations, which involved Hyper-Raman polarizability of coherent polariton-Raman mixing in polar SHG crystals is presented. The equations have been solved in terme of small signal, phonon and Raman-driven-parametric approximation. The solution shows that coherent polariton-Raman emissions near the double-frequency of pumping laser beam may occur in polar SHG crystals which are driven coherently by the stimulated Raman scattering of the

* The main results of this work have been reported at the 1983 International Conference on Lasers, Kuangzhou, China.

intense pumping beam. The coherent Raman emissions may be directly converted from second harmonic or from fundamental wave beam alone, and also from both waves through different individual processes of coherent Raman mixing. These processes have their own independent phase-mismatching factors. The latter two processes may occur simultaneously in proper case. The conclusion above has been proved true in an experiment on crystal $LiIO_3$ in which incident pumping intensity was up to $3.0\times10^9\ W/cm^2$.