

## 基于抽运-探测法的皮秒反斯托克斯拉曼频移器的理论研究

王聪 吕冬翔

## Theoretical study of picosecond anti-Stokes Raman frequency converter based on pump-probe method

Wang Cong Lü Dong-Xiang

引用信息 Citation: *Acta Physica Sinica*, 70, 094202 (2021) DOI: 10.7498/aps.70.20201353

在线阅读 View online: <https://doi.org/10.7498/aps.70.20201353>

当期内容 View table of contents: <http://wulixb.iphy.ac.cn>

### 您可能感兴趣的其他文章

#### Articles you may be interested in

#### 基于光强传输方程相位成像的宽场相干反斯托克斯拉曼散射显微背景抑制

Nonresonant background suppression in wide-field Coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy with transport of intensity equation based phase imaging

物理学报. 2017, 66(11): 114206 <https://doi.org/10.7498/aps.66.114206>

#### 双光子荧光与相干反斯托克斯拉曼散射显微成像技术的实验研究

Experimental study on two-photon fluorescence and coherent anti-Stokes Raman scattering microscopy

物理学报. 2017, 66(10): 104204 <https://doi.org/10.7498/aps.66.104204>

#### 液相硝基甲烷分子振动特性的相干反斯托克斯拉曼散射光谱

Coherent anti-Stokes Raman scattering spectrum of vibrational properties of liquid nitromethane molecules

物理学报. 2018, 67(2): 024208 <https://doi.org/10.7498/aps.67.20171828>

#### 过阻尼布朗棘轮的斯托克斯效率研究

Stokes efficiency in the overdamped Brownian ratchet

物理学报. 2017, 66(22): 220501 <https://doi.org/10.7498/aps.66.220501>

#### 用于CARS激发源的全光纤飞秒脉冲谱压缩

All-fiber spectral compression of femtosecond pulse for coherent anti-Stokes Raman scattering excitation source

物理学报. 2017, 66(20): 204207 <https://doi.org/10.7498/aps.66.204207>

#### 级联四波混频相干反馈控制系统量子纠缠特性

Quantum entanglement in coherent feedback system based on the cascaded four wave mixing processes

物理学报. 2020, 69(13): 130301 <https://doi.org/10.7498/aps.69.20200042>

# 基于抽运-探测法的皮秒反斯托克斯拉曼频移器的理论研究\*

王聪<sup>1)†</sup> 吕冬翔<sup>2)</sup>

1) (天津理工大学理学院, 天津 300384)

2) (中国电子科技集团公司第十八研究所, 天津 300384)

(2020 年 8 月 17 日收到; 2021 年 2 月 17 日收到修改稿)

采用拉曼频移器在晶体介质中利用相干反斯托克斯散射效应可以获得超短脉冲(皮秒)反斯托克斯激光. 基于抽运-探测法的晶体拉曼频移器可以实现相干反斯托克斯散射的共线相互作用, 从而可以有效提高反斯托克斯光的转化效率. 本文在平面波近似下建立了基于抽运-探测法的皮秒反斯托克斯拉曼频移器的耦合波方程组, 引入归一化参量对方程组进行了归一化处理. 通过数值计算, 得到了描述皮秒反斯托克斯拉曼频移器运行的一组普适理论曲线, 分析了归一化拉曼增益系数  $G$ 、归一化相位失配参数  $\Delta K$  以及探测光脉冲能量占基频光总能量的比值  $r_{\text{probe}}$  三个变量对反斯托克斯拉曼频移器性能的影响, 确定了实现高效反斯托克斯转化时各归一化变量的合理取值. 采用实验数据对该理论模型的正确性进行了验证, 反斯托克斯转化效率的理论值与文献数据基本一致.

**关键词:** 相干反斯托克斯散射, 共线四波混频, 耦合波方程, 归一化理论

**PACS:** 42.65.Dr, 42.65.-k, 42.60.Lh, 42.55.Ah

**DOI:** 10.7498/aps.70.20201353

## 1 引言

随着晶体材料研究的不断深入, 基于受激斯托克斯拉曼散射 (stimulated Stokes Raman scattering, SSRS) 效应的晶体拉曼激光器作为扩展激光波长范围的重要手段之一, 已成为固体激光器领域研究的热点<sup>[1-10]</sup>. 利用相干反斯托克斯拉曼散射 (coherent anti-Stokes Raman scattering, CARS) 效应, 可以在拉曼晶体中实现频率上转换, 从而获得反斯托克斯光<sup>[11-19]</sup>. 它可以进一步扩大相干光谱范围, 产生具有重要应用价值的相干光. 例如, 晶体中的 CARS 效应能够将 532 nm 激光转化为在彩色全息、光学对抗、激光显示等方面有重要应

用的蓝光输出. 另外, 皮秒激光以其超高的峰值功率在许多领域得到了广泛的应用. 因此, CARS 效应与皮秒激光的结合为反斯托克斯激光的应用开辟了更多的可能性<sup>[12,14]</sup>.

拉曼频移器是产生超短脉冲反斯托克斯激光的有效方法. 2004 年, Grasiuk 等<sup>[14]</sup>采用两级拉曼频移器在  $\text{KGd}(\text{WO}_4)_2$  晶体中实现了 532 nm 激光的频率上转换, 当第一级晶体产生的一阶斯托克斯种子光与抽运光在第二级晶体中的传播方向满足相位匹配条件时, 获得了转化效率为 4% 的 511 nm 反斯托克斯光输出. 然而, 第二级晶体中的非共线相位匹配导致抽运光、一阶斯托克斯光和反斯托克斯光的光束不能完全重合, 从而限制了反斯托克斯光的转化效率. 2017 年, Smetanin 等<sup>[12]</sup>设计了一

\* 国家自然科学基金 (批准号: 11504268) 和天津市教委科研计划 (批准号: 2014KJ240) 资助的课题.

† 通信作者. E-mail: wangc.sd@163.com

种新的实验方案, 采用抽运-探测法实现了  $\text{CaCO}_3$  晶体中共线相位匹配的皮秒反斯托克斯拉曼频移器, 由探测光向反斯托克斯光的转化效率高达 30%. 基频光光源发出的基频光由分光装置分为不同偏振态的抽运光和探测光, 经光学延时系统进行时间和空间同步后入射到拉曼晶体中. 当抽运光和探测光束以一定的角度入射到拉曼晶体中时, 可以实现抽运光、探测光、一阶斯托克斯光和反斯托克斯光的共线相位匹配. 抽运光通过 SSRS 效应产生一阶斯托克斯光, 反斯托克斯光则由探测光经 CARS 效应产生.

理论模拟是研究激光运转的重要手段. Shen 和 Bloembergen<sup>[20]</sup> 采用耦合波方程解释了受激拉曼散射中高阶斯托克斯和反斯托克斯光的产生. 此后, 耦合波方程被广泛用来研究拉曼激光器<sup>[8,9]</sup> 和反斯托克斯激光器特性<sup>[11-13]</sup>. Smetanin 等<sup>[12]</sup> 采用物质方程和耦合波方程分析了探测光和抽运光光强三种占比情况下  $\text{CaCO}_3$  皮秒反斯托克斯拉曼频移器的转化效率. 然而, 以往报道的反斯托克斯拉曼频移器理论虽能反映频移器的运转规律, 但未有报道研究频移器的最优化问题, 也未有报道给出频移器参量对反斯托克斯激光输出特性的影响. 本文采用耦合波理论对基于抽运-探测法的皮秒反斯托克斯拉曼频移器进行了理论研究. 考虑探测通道中一阶斯托克斯光和抽运通道中二阶斯托克斯光的产生, 在平面波近似下, 建立了皮秒反斯托克斯拉曼频移器的耦合波方程. 对耦合波方程进行了归一化处理和数值求解, 得到了一组反映归一化参数对反斯托克斯拉曼频移器性能影响的曲线, 分析了归一化参量对反斯托克斯光转化效率的影响. 本文提出的归一化耦合波理论有助于了解皮秒反斯托克斯拉曼频移器的运转规律, 而且对频移器的设计具有指导意义.

## 2 理论分析

### 2.1 相互作用原理

考虑探测通道中一阶斯托克斯分量的产生和抽运通道中二阶斯托克斯分量的产生, 忽略高阶斯托克斯光和反斯托克斯光的产生, 各分量之间的相互作用原理如图 1 所示. 图 1(a) 为抽运通道 SSRS 过程的能级图. 频率为  $\omega_{\text{pump}}$  的抽运光入射到拉曼晶体中, 与物质分子相互作用, 一个抽运光光子转化成一个频率为  $\omega_{1s}$  的一阶斯托克斯光光子, 当一阶斯托克斯光强度大于二阶斯托克斯光阈值时, 作为抽运光产生频率为  $\omega_{2s}$  的二阶斯托克斯光. 探测通道的 CARS 过程是抽运光、探测光、一阶斯托克斯光和反斯托克斯光的四波混频过程, 如图 1(b) 所示. 在这个过程中, 产生一个频率为  $\omega_a$  的反斯托克斯光子的同时, 消耗一个一阶斯托克斯光子和一个频率为  $\omega_{\text{probe}}$  的探测光光子, 产生一个抽运光光子. 当反斯托克斯光强度足够大时, 还可以作为抽运光通过 SSRS 向探测光转化, 如图 1(c) 所示.

### 2.2 耦合波方程

在平面波近似下, 基于抽运-探测法的反斯托克斯拉曼频移器的耦合波方程为

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_a}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) E_a = -\frac{g}{2} \frac{\nu_a}{\nu_p} \left( |E_{\text{probe}}|^2 E_a + E_{\text{probe}} E_{\text{pump}} E_{1s}^* e^{i\Delta k z} \right), \quad (1a)$$

$$\left( \frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_{\text{pump}}}{c} \frac{\partial}{\partial t} \right) E_{\text{pump}} = -\frac{g}{2} \left( |E_{1s}|^2 E_{\text{pump}} + E_{1s} E_a E_{\text{probe}}^* e^{-i\Delta k z} \right), \quad (1b)$$

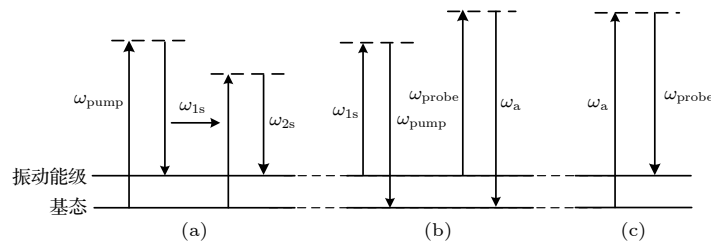


图 1 抽运通道和探测通道中的拉曼散射能级图 (a) 抽运通道的 SSRS 能级图; (b) 探测通道的 CARS 能级图; (c) 探测通道的 SSRS 能级图

Fig. 1. Raman scattering energy levels in pump and probe channels: (a) SSRS in pump channel; (b) CARS in probe channel; (c) SSRS in probe channel.

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_{\text{probe}}}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) E_{\text{probe}} = \frac{g}{2} \left( |E_{\text{a}}|^2 E_{\text{probe}} + E_{1s} E_{\text{a}} E_{\text{pump}}^* e^{-i\Delta k z} \right), \quad (1c)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_{1s}}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) E_{1s} = \frac{g}{2} \frac{\nu_{1s}}{\nu_p} \left[ \left( |E_{\text{pump}}|^2 - |E_{2s}|^2 \right) E_{1s} + E_{\text{probe}} E_{\text{pump}} E_{\text{a}}^* e^{i\Delta k z} \right], \quad (1d)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial z} + \frac{n_{2s}}{c} \frac{\partial}{\partial t}\right) E_{2s} = \frac{g}{2} \frac{\nu_{2s}}{\nu_p} |E_{1s}|^2 E_{2s}, \quad (1e)$$

式中,  $E_j$  ( $j = \text{a, pump, probe, 1s, 2s}$ ) 分别为沿  $z$  轴传播的反斯托克斯光、抽运光、探测光、一阶斯托克斯光和二阶斯托克斯光的缓变振幅,  $n_j$  为拉曼晶体中各辐射分量的折射率,  $c$  为真空中的光速,  $\nu_m$  ( $m = \text{p, a, 1s, 2s}$ ) 分别为基频光、反斯托克斯光、一阶斯托克斯光和二阶斯托克斯光的频率,  $g$  为拉曼晶体对基频光的拉曼增益系数,  $\Delta \mathbf{k} = \mathbf{k}_{1s} - \mathbf{k}_{\text{pump}} - \mathbf{k}_{\text{probe}} + \mathbf{k}_{\text{a}}$  为四波混频的相位失配参量.  $E_j$  为  $t$  和  $z$  的函数, 即  $E_j = E_j(t, z)$ , 为方便起见, 这里采用简化形式.

抽运光和探测光单程通过拉曼晶体, (1) 式的初始条件为

$$E_{\text{probe}}(t, 0) = \sqrt{r_{\text{probe}}} E_{\text{p}}(t), \\ E_{\text{pump}}(t, 0) = \sqrt{1 - r_{\text{probe}}} E_{\text{p}}(t), \quad (2)$$

式中,  $E_{\text{p}}(t)$  为从光源发出的基频光的缓变振幅,  $r_{\text{probe}}$  为探测光能量占基频光总能量的比例.

为使耦合波方程具有一般性, 引入归一化空间坐标  $\zeta$ 、归一化时间  $\tau$ 、归一化缓变振幅  $\Phi_j$ 、归一化拉曼增益系数  $G$  和归一化相位失配参量  $\Delta K$ :

$$\zeta = \frac{z}{l_{\text{R}}}, \quad \tau = \frac{t}{t_{\text{R}}}, \quad \Phi_j = \frac{E_j}{E_{\text{pmax}}}, \\ G = \frac{g}{2} |E_{\text{pmax}}|^2 l_{\text{R}}, \quad \Delta K = \Delta k l_{\text{R}}, \quad (3)$$

式中,  $l_{\text{R}}$  为拉曼晶体的长度,  $t_{\text{R}}$  为光在拉曼晶体中单程通过所需要的时间,  $E_{\text{pmax}}$  为光源产生的基频光的最大振幅.

假设基频光脉冲的强度在时间上为高斯分布, 脉冲宽度为  $w_{\text{p}}$ , 则基频光的归一化振幅  $\Phi_{\text{p}}$  与归一化时间  $\tau$  之间的关系可表示为

$$\Phi_{\text{p}}(\tau) = \exp\left(-\frac{\tau - \tau_{\text{pm}}}{W_{\text{p}}/2\sqrt{\ln(2)}}\right) \exp(i\varphi_{\text{p}}), \quad (4)$$

式中,  $\varphi_{\text{p}}$  为随机相位,  $\tau_{\text{pm}}$  为脉冲峰值对应的归一

化时间,  $W_{\text{p}} = w_{\text{p}}/t_{\text{R}}$  为基频光的归一化脉冲宽度. 若基频光脉冲宽度  $w_{\text{p}} = 20$  ps, 拉曼晶体长度  $l_{\text{R}} = 1.5$  cm, 拉曼晶体折射率  $n = 2$ , 则估算出的  $W_{\text{p}} = 0.2$ .

将 (3) 式代入 (1) 式和 (2) 式中, 可以得到归一化耦合波方程组为

$$\left(\frac{\partial}{\partial \zeta} + \frac{\partial}{\partial \tau}\right) \Phi_{\text{a}} = -\frac{\nu_{\text{a}}}{\nu_{\text{p}}} G \left( |\Phi_{\text{probe}}|^2 \Phi_{\text{a}} + \Phi_{\text{probe}} \Phi_{\text{pump}} \Phi_{1s}^* e^{i\Delta K \zeta} \right), \quad (5a)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial \zeta} + \frac{\partial}{\partial \tau}\right) \Phi_{\text{pump}} = -G \left( |\Phi_{1s}|^2 \Phi_{\text{pump}} + \Phi_{1s} \Phi_{\text{a}} \Phi_{\text{probe}}^* e^{-i\Delta K \zeta} \right), \quad (5b)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial \zeta} + \frac{\partial}{\partial \tau}\right) \Phi_{\text{probe}} = G \left( |\Phi_{\text{a}}|^2 \Phi_{\text{probe}} + \Phi_{1s} \Phi_{\text{a}} \Phi_{\text{pump}}^* e^{-i\Delta K \zeta} \right), \quad (5c)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial \zeta} + \frac{\partial}{\partial \tau}\right) \Phi_{1s} = \frac{\nu_{1s}}{\nu_{\text{p}}} G \left[ \left( |\Phi_{\text{pump}}|^2 - |\Phi_{2s}|^2 \right) \Phi_{1s} + \Phi_{\text{probe}} \Phi_{\text{pump}} \Phi_{\text{a}}^* e^{i\Delta K \zeta} \right], \quad (5d)$$

$$\left(\frac{\partial}{\partial \zeta} + \frac{\partial}{\partial \tau}\right) \Phi_{2s} = \frac{\nu_{2s}}{\nu_{\text{p}}} G |\Phi_{1s}|^2 \Phi_{2s}. \quad (5e)$$

归一化初始条件为

$$\Phi_{\text{probe}}(0, \tau) = \sqrt{r_{\text{probe}}} \Phi_{\text{p}}(\tau), \\ \Phi_{\text{pump}}(0, \tau) = \sqrt{1 - r_{\text{probe}}} \Phi_{\text{p}}(\tau). \quad (6)$$

运用初始条件 (6) 式对 (5) 式进行数值求解, 可以得到出射分量  $j$  的归一化振幅  $\Phi_j(1, \tau)$ , 则各分量出射光的单脉冲能量为

$$e_j = A_j \int |E_j(l_{\text{R}}, t)|^2 dt \\ = \frac{A_j l_{\text{R}} n_j}{c} |E_{\text{pmax}}|^2 \int |\Phi_j(1, \tau)|^2 d\tau, \quad (7)$$

式中,  $A_j$  为分量  $j$  的光束面积.

各拉曼分量的转化效率定义为输出脉冲能量与入射基频光脉冲能量之比

$$\frac{e_j}{e_{\text{p}}} = \frac{A_j \int |\Phi_j(1, \tau)|^2 d\tau}{A_{\text{p}} \int |\Phi_{\text{p}}(\tau)|^2 d\tau}, \quad (8)$$

式中,  $A_{\text{p}}$  为基频光的光束面积. 拉曼分量  $j$  的归一



化转化效率定义为

$$\eta_j = \frac{\int |\Phi_j(1, \tau)|^2 d\tau}{\int |\Phi_p(\tau)|^2 d\tau}. \quad (9)$$

### 3 数值分析与讨论

相位失配参量是影响四波混频强度的一个重要因素. 图 2 给出了不同  $r_{\text{probe}}$  时反斯托克斯光、一阶斯托克斯光和二阶斯托克斯光的归一化转化效率 ( $\eta_a$ ,  $\eta_{1s}$  和  $\eta_{2s}$ ) 随归一化相位失配参量  $\Delta K$  的变化关系, 其中  $G = 90$ ,  $W_p = 0.2$ . 当  $r_{\text{probe}}$  较

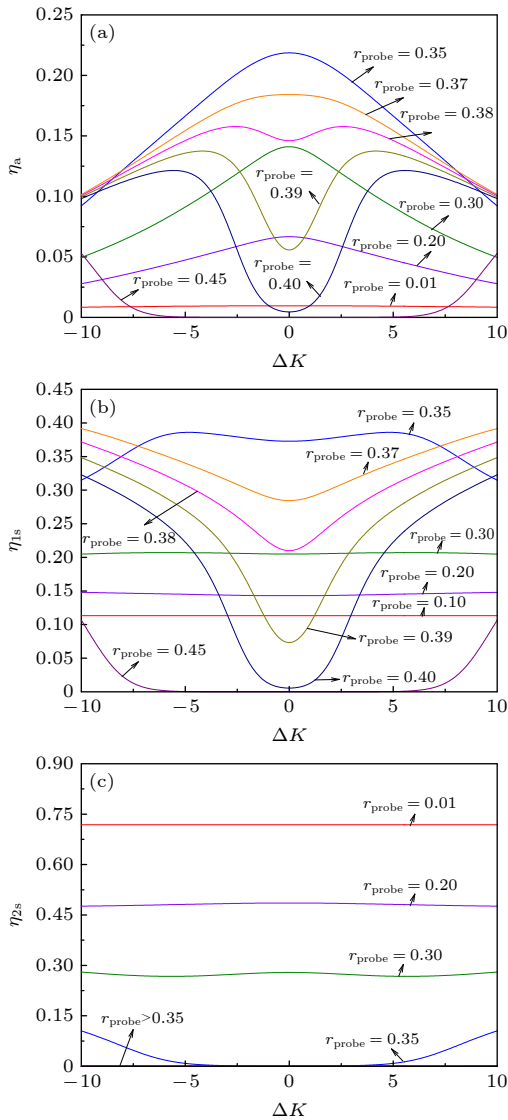


图 2  $G = 90$ ,  $W_p = 0.2$ ,  $r_{\text{probe}}$  取不同值时 (a)  $\eta_a$ , (b)  $\eta_{1s}$  和 (c)  $\eta_{2s}$  随  $\Delta K$  的变化

Fig. 2. (a)  $\eta_a$ , (b)  $\eta_{1s}$  and (c)  $\eta_{2s}$  versus  $\Delta K$  for different  $r_{\text{probe}}$  with  $G = 90$  and  $W_p = 0.2$ .

小时 ( $r_{\text{probe}} < 0.35$ ), 抽运光的强度大于二阶斯托克斯光的阈值, 因此二阶斯托克斯光具有较大的转化效率.  $\eta_a$  在相位匹配 ( $\Delta K = 0$ ) 时有最大值, 且  $\eta_{1s}$  和  $\eta_{2s}$  随  $\Delta K$  基本不变. 随着  $r_{\text{probe}}$  的增大, 二阶斯托克斯转化减弱, 反斯托克斯光的产生随一阶斯托克斯转化的增加而增加. 当  $r_{\text{probe}}$  约为 0.35 时,  $\eta_a$  和  $\eta_{1s}$  达到最大值,  $\eta_{1s}$  和  $\eta_{2s}$  的曲线中心出现凹陷. 抽运光强度低于二阶斯托克斯光阈值 ( $r_{\text{probe}} > 0.35$ ) 时, 二阶斯托克斯光消失,  $\eta_a$  和  $\eta_{1s}$  随  $r_{\text{probe}}$  的增大而减小. 当  $r_{\text{probe}} > 0.37$  时,  $\eta_a$  的最大值偏离  $\Delta K = 0$  处, 且  $\Delta K = 0$  处的  $\eta_a$  和  $\eta_{1s}$  随  $r_{\text{probe}}$  的增加迅速减小.

图 2 中曲线的变化规律可以用图 3 和图 4 给出的抽运光、探测光、一阶斯托克斯光和反斯托克斯光的归一化强度在拉曼晶体中的空间演化进行解释, 其中图 3 中  $r_{\text{probe}} = 0.3$ , 图 4 中  $r_{\text{probe}} = 0.39$ . 对于每一组曲线,  $|\Delta K| = 0, 4$  和 8,  $G = 90$ ,  $W_p = 0.2$ . 根据图 5(a) 所示的脉冲形状, 当  $r_{\text{probe}} = 0.3$  时, 二阶斯托克斯光的产生消耗了入射抽运光和探测光脉冲峰值附近大部分的一阶斯托克斯光, 这导致了峰值附近的反斯托克斯输出很弱. 因此, 将图 3 中基频光的归一化强度 ( $|\Phi_p|^2$ ) 设为 0.8, 从而偏离了二阶斯托克斯光产生的区域. 相反, 如图 5(b) 所示, 对于  $r_{\text{probe}} = 0.39$ , 没有二阶斯托克斯光产生, 一阶斯托克斯光和反斯托克斯光均产生于入射脉冲峰值附近. 因此图 4 中, 令  $|\Phi_p|^2$  等于基频光归一化强度的最大值, 即 1.

在图 3 和图 4 中, 拉曼晶体中各分量归一化强度的空间演化分为以  $\zeta_1$  和  $\zeta_2$  为分界点的 3 个阶段. 第 1 个阶段 ( $\zeta < \zeta_1$ ) 是受激拉曼散射的积累阶段, 散射光在  $\zeta_1$  点达到一定强度时使抽运光迅速向一阶斯托克斯光转化. 与此同时, 产生的一阶斯托克斯光参与到 CARS 中, 反斯托克斯光强度在  $\zeta_1$  点也快速增长. 在  $\zeta_1$  点前,  $|\Delta K|$  越小, CARS 效应越强, 造成的斯托克斯散射损耗也就越大, 则  $\zeta_1$  越大; 并且  $r_{\text{probe}}$  越大, 探测光越强, 反斯托克斯衰减越大,  $\zeta_1$  也越大. 在第 2 个阶段 ( $\zeta_1 < \zeta < \zeta_2$ ), 四波相互作用迅速增强, 抽运光通过 SSRS 转化为一阶斯托克斯光, 探测光通过 CARS 转化为反斯托克斯光, 一阶斯托克斯光和反斯托克斯光强度在  $\zeta_2$  处达到最大值.  $|\Delta K|$  越小, 相互作用越强, 导致  $\zeta_2$  处的一阶斯托克斯光和反斯托克斯光强度越大, 剩余抽运光和探测光强度越小. 在第 3 个阶段

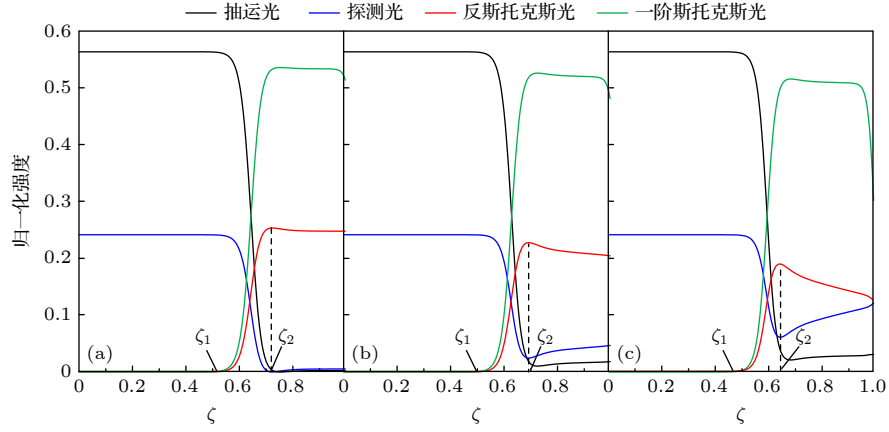


图 3  $r_{\text{probe}} = 0.3$ ,  $G = 90$ ,  $W_p = 0.2$  时, 抽运光、探测光、一阶斯托克斯光和反斯托克斯光归一化光强随  $\zeta$  的空间演化 (a)  $|\Delta K| = 0$ ; (b)  $|\Delta K| = 4$ ; (c)  $|\Delta K| = 8$

Fig. 3. Plots of the spatial evolution of pump, probe, first Stokes, and anti-Stokes normalized intensities with  $r_{\text{probe}} = 0.3$ ,  $G = 90$  and  $W_p = 0.2$ : (a)  $|\Delta K| = 0$ ; (b)  $|\Delta K| = 4$ ; and (c)  $|\Delta K| = 8$ .

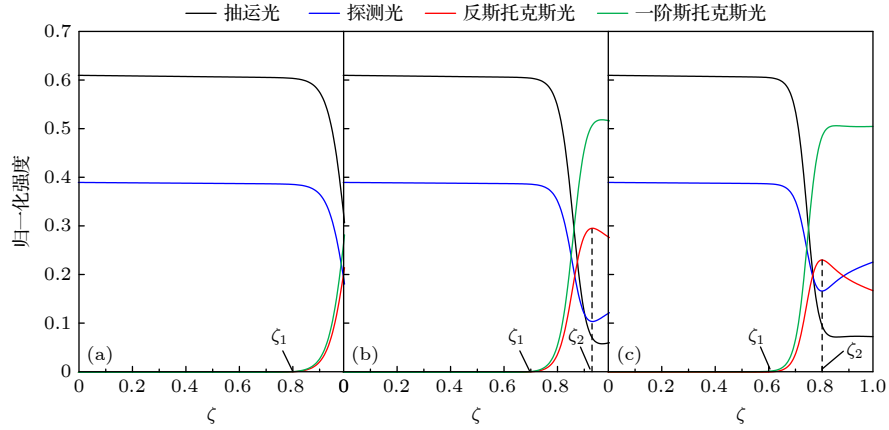


图 4  $r_{\text{probe}} = 0.39$ ,  $G = 90$ ,  $W_p = 0.2$  时, 抽运光、探测光、一阶斯托克斯光和反斯托克斯光归一化光强随  $\zeta$  的空间演化 (a)  $|\Delta K| = 0$ ; (b)  $|\Delta K| = 4$ ; (c)  $|\Delta K| = 8$

Fig. 4. Plots of the spatial evolution of pump, probe, first Stokes, and anti-Stokes normalized intensities with  $r_{\text{probe}} = 0.39$ ,  $G = 90$  and  $W_p = 0.2$ : (a)  $|\Delta K| = 0$ ; (b)  $|\Delta K| = 4$ ; and (c)  $|\Delta K| = 8$ .

( $\zeta > \zeta_2$ ), 反斯托克斯光的强度大于 SSRS 的阈值, 通过 SSRS 向探测光转化. 当  $|\Delta K|$  较大时, 由于  $\zeta_2$  处作为初始散射光的探测光强度大, 反斯托克斯光强度下降更快. 在图 3 所示的情况下,  $\zeta_2$  均小于 1, 因此, 输出的一阶斯托克斯光和反斯托克斯光的强度随  $|\Delta K|$  的增大而减小. 然而, 当  $r_{\text{probe}}$  较大时, 在相位匹配时  $\zeta_2$  大于 1 (图 4(a)), 因此输出的一阶斯托克斯光和反斯托克斯光的强度最低.

由以上分析可知, 在某些情况下, 相位匹配时反斯托克斯光的转化效率并不是最高的, 但只要  $r_{\text{probe}}$  在合理的范围内,  $|\Delta K| = 0$  仍然是获得高反斯托克斯转化效率的必要条件. 因此, 在以下的计算中, 令  $|\Delta K|$  的取值为零.

图 6 给出了不同  $r_{\text{probe}}$  时  $\eta_a$ ,  $\eta_{1s}$  和  $\eta_{2s}$  随  $G$  的

变化关系, 其中  $|\Delta K| = 0$ ,  $W_p = 0.2$ . 从图 6(a) 和图 6(b) 可看出,  $\eta_a$  和  $\eta_{1s}$  随  $G$  的变化规律几乎相同, 这是由于反斯托克斯光产生的前提是一阶斯托克斯光的存在, 如图 1(b) 所示. 定义  $G_{\text{ath}}$ ,  $G_{1\text{sth}}$  和  $G_{2\text{sth}}$  分别为  $\eta_a$ ,  $\eta_{1s}$  和  $\eta_{2s}$  的增益阈值,  $G_{\text{aopt}}$  和  $G_{1\text{sopt}}$  分别为  $\eta_a$  和  $\eta_{1s}$  最大值对应的最佳增益值, 则从图 6 可看出,  $G_{\text{ath}} \approx G_{1\text{sth}}$ ,  $G_{\text{aopt}} \approx G_{1\text{sopt}}$ ,  $G_{1\text{sopt}} \approx G_{2\text{sth}}$ . 可以这样定性地解释: 开始阶段,  $G$  较小, 抽运光在拉曼晶体中受激拉曼散射增益很弱,  $\zeta_1 > 1$ , 没有散射光输出.  $G > G_{\text{ath}}$  ( $G_{1\text{sth}}$ ) 时, 抽运光通过 SSRS 开始向一阶斯托克斯光转化, 与此同时探测光通过 CARS 开始向反斯托克斯光转化,  $\eta_a$  和  $\eta_{1s}$  迅速增长并分别在  $G_{\text{aopt}}$  和  $G_{1\text{sopt}}$  处达到最大值. 一阶斯托克斯光达到一定强度后进而向

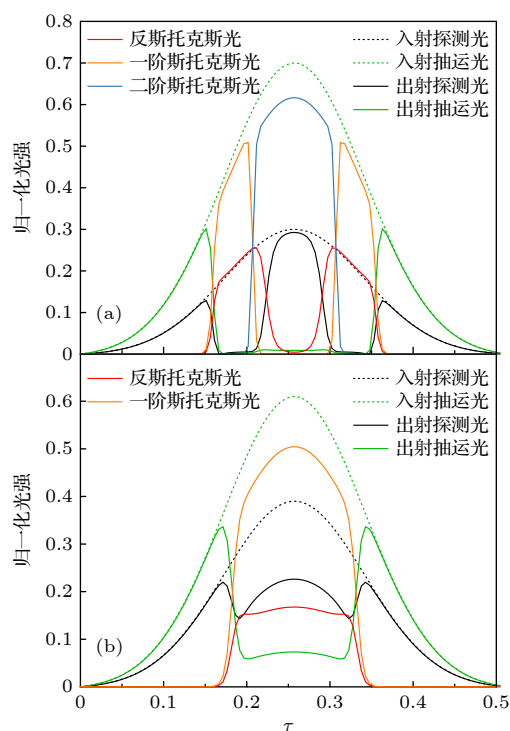


图 5  $G = 90$ ,  $|\Delta K| = 0$ ,  $W_p = 0.2$  时抽运光、探测光、一阶斯托克斯光、二阶斯托克斯光和反斯托克斯光的脉冲形状 (a)  $r_{\text{probe}} = 0.3$ ; (b)  $r_{\text{probe}} = 0.39$

Fig. 5. Temporal profiles of the pump, probe, first Stokes, second Stokes and anti-Stokes pulses with  $G = 90$ ,  $|\Delta K| = 0$  and  $W_p = 0.2$ : (a)  $r_{\text{probe}} = 0.3$ ; (b)  $r_{\text{probe}} = 0.39$ .

二阶斯托克斯光转化,  $\eta_a$  和  $\eta_{1s}$  随  $G$  的增大迅速减小,  $\eta_{2s}$  则随之单调增大, 如图 6(c) 所示.  $r_{\text{probe}}$  越小, 抽运光越强, 各阶散射分量的增益阈值和最佳增益值则越小.

由图 2 和图 6 可知, 当  $G$  一定时, 反斯托克斯光的转化效率在一个最佳的  $r_{\text{probe}}(r_{\text{opt}})$  时有一最大值, 反之亦是如此.  $|\Delta K| = 0$ ,  $W_p = 0.2$  时, 反斯托克斯光最大归一化转化效率  $\eta_{\text{amax}}$  和对应的  $r_{\text{opt}}$  随  $G$  的变化见图 7.  $r_{\text{opt}}$  随  $G$  的增大单调增长, 这与图 6 中得到的结果一致.  $G$  大于增益阈值后,  $\eta_{\text{amax}}$  随  $G$  的增大先迅速增长, 在  $G = 110$ ,  $r_{\text{opt}} = 0.373$  时有最大值 0.236, 随后缓慢下降. 这是由于反斯托克斯光是由探测光转化而来, 当  $G < 110$  时, 反斯托克斯光在低增益时几乎不向探测光转化,  $r_{\text{probe}}$  越大, 探测光越强, 则反斯托克斯光越强, 如图 8(a) 和图 8(b) 所示. 然而, 如图 8(c) 所示, 当  $G > 110$  时,  $G$  增大的同时  $r_{\text{opt}}$  也增大,  $G$  的增大使反斯托克斯光向探测光转化增强,  $r_{\text{opt}}$  的增大使探测光向反斯托克斯光转化增强, 但前者增量大于后者, 因此  $\eta_{\text{amax}}$  随  $G$  的增大有所下降.

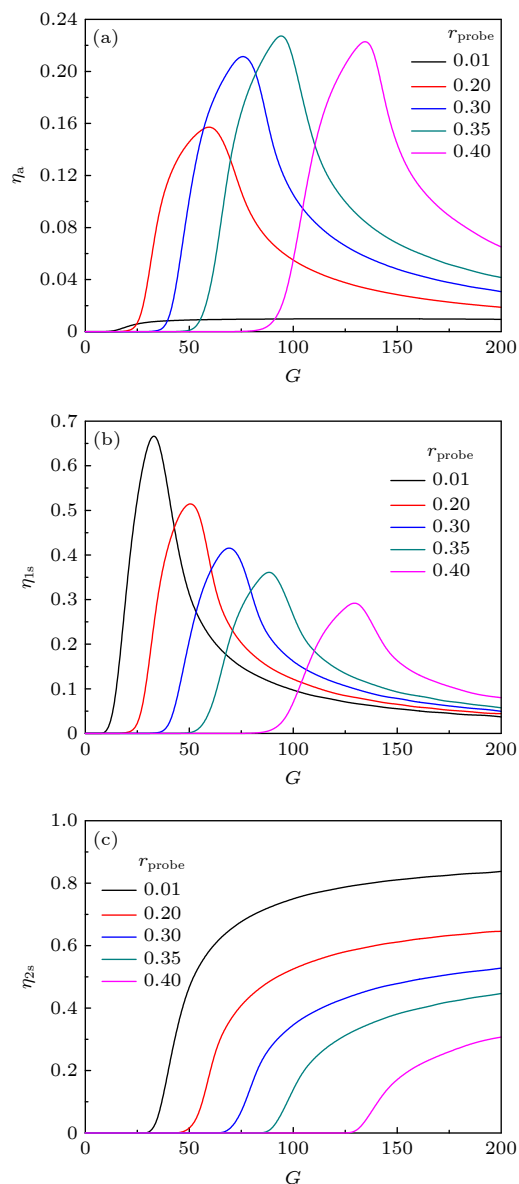


图 6  $|\Delta K| = 0$ ,  $W_p = 0.2$ ,  $r_{\text{probe}}$  取不同值时 (a)  $\eta_a$ , (b)  $\eta_{1s}$  和 (c)  $\eta_{2s}$  随  $G$  的变化

Fig. 6. (a)  $\eta_a$ , (b)  $\eta_{1s}$  and (c)  $\eta_{2s}$  versus  $G$  for different  $r_{\text{probe}}$  with  $|\Delta K| = 0$  and  $W_p = 0.2$ .

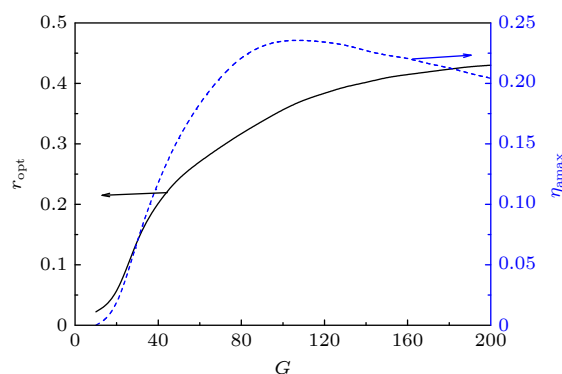


图 7  $|\Delta K| = 0$ ,  $W_p = 0.2$  时,  $r_{\text{opt}}$  和  $\eta_{\text{amax}}$  随  $G$  的变化  
Fig. 7.  $r_{\text{opt}}$  and  $\eta_{\text{amax}}$  versus  $G$  with  $|\Delta K| = 0$  and  $W_p = 0.2$ .

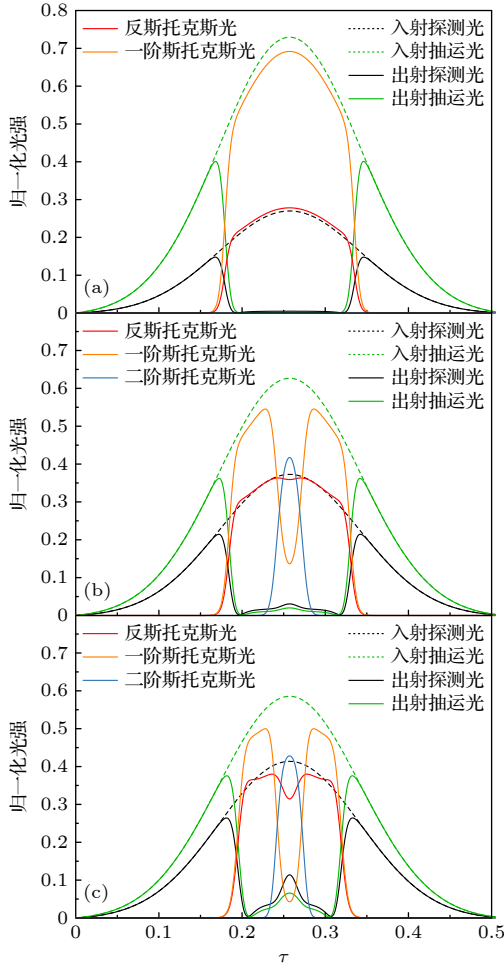


图 8  $|\Delta K| = 0$ ,  $W_p = 0.2$  时抽运光、探测光、一阶斯托克斯光、二阶斯托克斯光和反斯托克斯光的脉冲形状 (a)  $r_{\text{opt}} = 0.270$ ,  $G = 60$ ; (b)  $r_{\text{opt}} = 0.373$ ,  $G = 110$ ; (c)  $r_{\text{opt}} = 0.414$ ,  $G = 160$

Fig. 8. Temporal profiles of the pump, probe, first Stokes, second Stokes, and anti-Stokes pulses with  $|\Delta K| = 0$  and  $W_p = 0.2$ : (a)  $r_{\text{opt}} = 0.270$ ,  $G = 60$ ; (b)  $r_{\text{opt}} = 0.373$ ,  $G = 110$ ; (c)  $r_{\text{opt}} = 0.414$ ,  $G = 160$ .

当  $r_{\text{probe}}$  一定时, 反斯托克斯光的转化效率在一个最佳的  $G(G_{\text{opt}})$  时有一最大值.  $|\Delta K| = 0$ ,  $W_p = 0.2$  时, 反斯托克斯光的最大归一化转化效率  $\eta_{\text{amax}}$  和对应的  $G_{\text{opt}}$  随  $r_{\text{probe}}$  的变化曲线如图 9 所示. 与图 7 的分析和结论相同, 由于反斯托克斯光是由探测光转化而来,  $\eta_{\text{amax}}$  随  $r_{\text{probe}}$  的增大首先增长, 在  $G_{\text{opt}} = 110$ ,  $r_{\text{probe}} = 0.373$  时达到最大值. 当  $r_{\text{probe}} > 0.373$  时,  $r_{\text{probe}}$  的增大使反斯托克斯光向探测光的转化多于探测光向反斯托克斯光的转化, 因此  $\eta_{\text{amax}}$  随  $r_{\text{probe}}$  的增大而下降.

下面分析  $G_{\text{opt}}$  随  $r_{\text{probe}}$  的变化规律. 当  $r_{\text{probe}} < 0.05$  时,  $G_{\text{opt}}$  随  $r_{\text{probe}}$  的增大而减小, 这是因为当  $r_{\text{probe}}$  很小时, 抽运光很强, 大部分的抽运光通过

SSRS 效应转化成了二阶斯托克斯光, 参与 CARS 效应的一阶斯托克斯光很弱.  $G_{\text{opt}}$  的减小一方面减弱了抽运通道中的 SSRS 效应, 使得探测通道中的 CARS 效应增强, 另一方面减弱了探测通道中反斯托克斯光向探测光的转化. 当  $r_{\text{probe}} > 0.05$  时, 随着  $r_{\text{probe}}$  的增大, 抽运光强度逐渐减弱,  $G_{\text{opt}}$  随  $r_{\text{probe}}$  的增大而增大, 增强了抽运通道的 SSRS 效应以增大一阶斯托克斯光的强度, 使得 CARS 效应最强而获得最大的反斯托克斯转换效率.

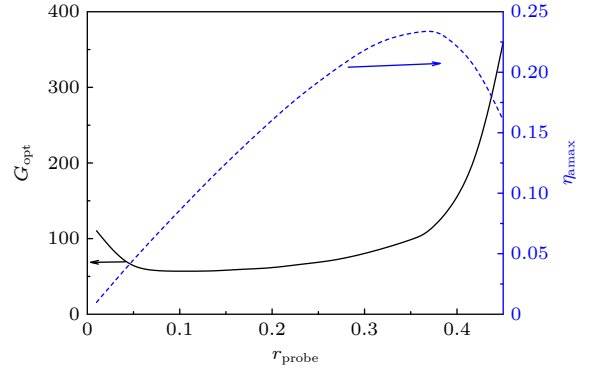


图 9  $|\Delta K| = 0$ ,  $W_p = 0.2$  时,  $G_{\text{opt}}$  和  $\eta_{\text{amax}}$  随  $r_{\text{probe}}$  的变化  
Fig. 9.  $G_{\text{opt}}$  and  $\eta_{\text{amax}}$  versus  $r_{\text{probe}}$  with  $|\Delta K| = 0$  and  $W_p = 0.2$ .

#### 4 实验验证

已知基频光脉冲能量  $e_p$ 、基频光脉冲宽度  $w_p$ 、基频光光束面积  $A_p$ 、拉曼增益系数  $g$  以及拉曼晶体的长度  $l_R$ , 可以估算出基频光脉冲的峰值振幅为  $E_{p\text{max}} = \sqrt{e_p / (A_p w_p)}$ 、归一化拉曼增益系数为  $G = \frac{1}{2} g |E_{p\text{max}}|^2 l_R$  以及归一化基频光脉冲宽度为  $W_p = w_p / t_R$ . 将归一化参量值和探测光所占的能量比  $r_{\text{probe}}$  代入归一化耦合波方程组中进行数值求解, 可以计算反斯托克斯光的转化效率.

如引言所述, 文献 [12] 采用抽运-探测法在  $\text{CaCO}_3$  晶体中实现了共线相位匹配的皮秒反斯托克斯拉曼频移器. 下面采用文献 [12] 中的实验结果对本文理论的正确性进行验证. 表 1 总结了文献 [12] 中的部分实验参数. 表 2 为反斯托克斯转化效率的理论值与实验数据的对比结果, 理论结果与实验结果基本一致. 误差产生的原因有: 1) 本文的耦合波理论基于平面波近似, 实际入射的抽运光和探测光的光强在横截面上近似为高斯分布, 且由于透镜的聚焦, 光束有一定的发散角, 在晶体不同位置处光束半径不同; 2) 理论上假设入射抽运光和



探测光强度在时间上为高斯分布, 与实际光源产生的脉冲形状有所差异.

表 1 参考文献 [12] 中的参数  
Table 1. Parameters in Ref. [12].

参数	值	参数	值
$\nu_a/\nu_p$	1.06	$A_p/\text{cm}^2$	$2.83 \times 10^{-4}$
$\nu_{1s}/\nu_p$	0.94	$l_R/\text{cm}$	3.2
$\nu_{2s}/\nu_p$	0.88	$g/(\text{cm}\cdot\text{GW}^{-1})$	13
$w_p/\text{ps}$	20	$\Delta k$	0

表 2 不同情况下反斯托克斯转化效率的理论值与实验数据的对比结果

Table 2. Comparisons of theoretical and experimental results of anti-Stokes conversion efficiency under different conditions.

抽运脉冲能量/ $\mu\text{J}$	探测脉冲能量/ $\mu\text{J}$	$G$	$r_{\text{probe}}$	实验值/%	理论值/%
30	25	206	0.45	2.80	2.54
30	2	118	0.063	1.88	1.86
26	12	140	0.32	3.50	4.13

为进一步验证本文理论的正确性, 下面考虑一种更接近实际的情况. 基频光光强在横截面上近似为高斯分布, 且在传播方向上各处的光束半径  $R$  均相等. 因此, 基频光的缓变振幅  $E_p^g$  是径向坐标  $r$  和  $t$  的函数,

$$E_p^g(r, t) = E_p^g(0, t) \exp\left(-\frac{r^2}{R^2}\right). \quad (10)$$

为了与平面波近似时得到的结论有可比性, 即平面波近似和高斯近似时基频光具有相同的脉冲能量和光束面积, 高斯近似时基频光在光轴 ( $r = 0$ ) 处的峰值振幅  $E_{p\text{max}}^g(0, t)$  为平面近似时基频光最大振幅  $E_{p\text{max}}^g$  的  $\sqrt{2}$  倍 [8]. 因此, 高斯近似时基频光的归一化振幅  $\Phi_p^g(r, \tau)$  表示为

$$\Phi_p^g(r, \tau) = \sqrt{2} \exp\left(-\frac{r^2}{R^2}\right) \times \exp\left(-\frac{\tau - \tau_{\text{pm}}}{W_p/2\sqrt{\ln(2)}}\right) \exp(i\varphi_p). \quad (11)$$

当考虑光强的横向分布时, 各拉曼分量的归一化振幅  $\Phi_j^g$  为  $r, \zeta$  和  $\tau$  的函数, 则 (5) 式的归一化初始条件为

$$\begin{aligned} \Phi_{\text{probe}}^g(r, 0, \tau) &= \sqrt{r_{\text{probe}}} \Phi_p^g(r, \tau), \\ \Phi_{\text{pump}}^g(r, 0, \tau) &= \sqrt{1 - r_{\text{probe}}} \Phi_p^g(r, \tau). \end{aligned} \quad (12)$$

由 (3) 式和 (10) 式可以看出高斯近似时归一化拉曼增益系数  $G^g(r)$  与平面波近似时归一化拉曼增益系数  $G$  的关系为

$$\begin{aligned} G^g(r) &= \frac{g}{2} \left| E_{p\text{max}}^g(r) \right|^2 l_R \\ &= \frac{g}{2} \left| E_{p\text{max}}^g(0) \exp\left(-\frac{r^2}{R^2}\right) \right|^2 l_R \\ &= 2G \exp\left(-\frac{2r^2}{R^2}\right). \end{aligned} \quad (13)$$

在时间上, 实际激光脉冲的上升沿比下降沿稍陡. 为使基频光脉冲形状更接近实际情况同时便于计算, 令  $\Phi_p^g(r, \tau)$  的上升沿和下降沿均为高斯函数. 上升沿的宽度 (由  $\Phi_p^g(r, \tau_{\text{pm}})/2$  到  $\Phi_p^g(r, \tau_{\text{pm}})$  的归一化时间) 与下降沿的宽度 (由  $\Phi_p^g(r, \tau_{\text{pm}})$  到  $\Phi_p^g(r, \tau_{\text{pm}})/2$  的归一化时间) 的比值为 0.8.

运用 (12) 式的初始条件对归一化耦合波方程组 (5) 进行数值求解, 可以得到出射分量  $j$  的归一化振幅  $\Phi_j^g(r, 1, \tau)$ . 由 (8) 式, 高斯近似时反斯托克斯光的转化效率  $\eta_a^g$  为

$$\eta_a^g = \frac{\iint |\Phi_a^g(r, 1, \tau)|^2 2\pi r dr d\tau}{\iint |\Phi_p^g(r, \tau)|^2 2\pi r dr d\tau}. \quad (14)$$

在上述高斯近似条件下, 采用表 1 的实验参数进行计算得出的反斯托克斯转化效率的理论值如表 3 所列, 与表 2 中的结果相比可以发现, 两种近似条件下的理论值均与实验结果相符合, 同时也证明了平面波近似时耦合波理论可以正确地反映反斯托克斯拉曼频移器的运转特性.

表 3 高斯近似时反斯托克斯转化效率的理论值

Table 3. Theoretical values of anti-Stokes conversion efficiency for Gaussian approximation.

抽运脉冲能量/ $\mu\text{J}$	探测脉冲能量/ $\mu\text{J}$	$\eta_a^g$ /%
30	25	2.63
30	2	1.91
26	12	4.09

## 5 结 论

本文在理论上研究了基于抽运-探测法的皮秒反斯托克斯拉曼频移器, 建立了平面波近似下的耦合波方程组. 为使方程组具有普适性, 引入 4 个无量纲综合参量对方程组进行了归一化. 对方程组数

值求解显示该拉曼频移器的性能主要依赖于 3 个参量: 归一化相位失配参量  $\Delta K$ 、归一化拉曼增益系数  $G$  及探测光与基频光的能量比  $r_{\text{probe}}$ . 在以往的报道中, 相位匹配 ( $|\Delta K| = 0$ ) 是皮秒反斯托克斯拉曼频移器的搭建原则<sup>[12,14]</sup>. 本文通过分析归一化相位失配参量对反斯托克斯转化效率的影响发现, 虽然在相位匹配条件下可以获得最大的反斯托克斯输出, 但前提是当  $G$  一定时  $r_{\text{probe}}$  在合理的范围之内. 在实际中, 较容易改变的参量为基频光的峰值光强 ( $|E_{\text{pmax}}|^2$ ) 和  $r_{\text{probe}}$ , 对于确定的拉曼晶体 ( $g$  和  $l_{\text{R}}$  一定),  $|E_{\text{pmax}}|^2$  决定了  $G$  的大小. 因此, 共线相位匹配时, 需选择合适的基频光能量和探测光比例才可以获得高效的反斯托克斯光输出. 需要说明的是, 由于理论上抽运光和探测光的脉冲宽度相同且同步单程通过拉曼晶体, 当其他条件一定时, 基频光的脉冲宽度对反斯托克斯光的转化效率几乎没有影响. 本文提出的归一化耦合波理论可以作为分析基于抽运-探测法的共线反斯托克斯拉曼频移器的理论工具, 辅助激光器的设计以实现超短脉冲 (皮秒) 反斯托克斯光的最大转化效率.

## 参考文献

- [1] Sun Y L, Duan Y M, Cheng M Y, Yuan X Z, Zhang L, Zhang D, Zhu H Y 2020 *Acta Phys. Sin.* **69** 124201 (in Chinese) [孙瑛璐, 段延敏, 程梦瑶, 袁先漳, 张立, 张栋, 朱海永 2020 *物理学报* **69** 124201]
- [2] Zhang Y C, Fan L, Wei C F, Gu X M, Ren S X 2018 *Acta Phys. Sin.* **67** 024206 (in Chinese) [张蕴川, 樊莉, 魏晨飞, 顾晓敏, 任思贤 2018 *物理学报* **67** 024206]
- [3] Zhou Q Q, Shi S C, Chen S M, Duan Y M, Zhang X M, Guo J, Zhao B, Zhu H Y 2019 *Chin. Phys. Lett.* **36** 014205
- [4] Sheng Q, Li R, Lee A J, Spence D J, Pask H M 2019 *Opt. Express* **27** 8540
- [5] Wei L J, Chen M T, Zhu S Q, Dai S B, Yin H, Chen Z Q 2018 *Laser Phys. Lett.* **15** 125001
- [6] Duan Y M, Sun Y L, Zhu H Y, Mao T W, Zhang L, Chen X 2020 *Opt. Lett.* **45** 2564
- [7] Liu J, Ding X, Jiang P B, Sheng Q, Yu X Y, Sun B, Wang J B, Shi R, Zhao L, Bai Y T, Zhang G Z, Wu L, Yao J Q 2018 *Appl. Opt.* **57** 3154
- [8] Ding S H, Zhang X Y, Wang Q P, Jia P, Zhang C, Liu B 2006 *Opt. Commun.* **267** 480
- [9] Smetanin S N, Doroshenko M E, Ivleva L I, Jelínek M, V. Kubeček, Jelínková H 2014 *Appl. Phys. B* **117** 225
- [10] Ding S H, Zhang X Y, Wang Q P, Zhang J, Wang S M, Liu Y R, Zhang X H 2007 *J. Phys. D* **40** 2736
- [11] Smetanin S N, Jelínek M, Tereshchenko D P, Kubeček V 2018 *Opt. Express* **26** 22637
- [12] Smetanin S N, Jelínek M, Kubeček V 2017 *Appl. Phys. B* **123** 203
- [13] Vermeulen N, Debaes C, Fotiadi A A, Panajotov K, Thienpont H 2006 *IEEE J. Quantum Electron.* **42** 1144
- [14] Grasiuk A Z, Kurbasov S V, Losev L L 2004 *Opt. Commun.* **240** 239
- [15] Mildren R P, Coutts D W, Spence D J 2009 *Opt. Express* **17** 810
- [16] Wang C, Zhang X Y, Wang Q P, Cong Z H, Liu Z J, Wei W, Wang W T, Wu Z G, Zhang Y G, Li L, Chen X H, Li P, Zhang H J, Ding S H 2013 *Opt. Express* **21** 26014
- [17] Wang C, Cong Z H, Qin Z G, Zhang X Y, Wei W, Wang W T, Zhang Y G, Zhang H J, Yu H H 2014 *Opt. Commun.* **322** 44
- [18] Wei W, Zhang X Y, Wang Q P, Wang C, Cong Z H, Chen X H, Liu Z J, Wang W T, Wu Z G, Ding S H, Tu C Y, Li Y F, Cheng W Y 2014 *Appl. Phys. B* **116** 561
- [19] Smetanin S N, Jelínek M, Tereshchenko D P, Shukshin V E, Konyukhov M V, Papashvili A G, Voronina I S, Ivleva L I, Kubeček V 2020 *Opt. Express* **28** 22919
- [20] Shen Y R, Bloembergen N 1965 *Phys. Rev.* **137** 1787

# Theoretical study of picosecond anti-Stokes Raman frequency converter based on pump-probe method\*

Wang Cong<sup>1)†</sup> Lü Dong-Xiang<sup>2)</sup>

1) (School of Science, Tianjin University of Technology, Tianjin 300384, China)

2) (The 18<sup>th</sup> Research Institute of China Electronics Technology Group Corporation, Tianjin 300384, China)

( Received 17 August 2020; revised manuscript received 17 February 2021 )

## Abstract

Ultra-short pulse (picosecond) anti-Stokes laser can be obtained by using Raman frequency converter in a crystal medium by the coherent anti-Stokes Raman scattering effect. The crystalline Raman frequency converter based on the pump-probe method can realize the collinear interaction of coherent anti-Stokes Raman scattering, thus effectively improving the conversion efficiency of the anti-Stokes light. Theoretical simulation is an important means to study laser operation. Coupled wave equation is widely used to study the characteristics of Raman laser and anti-Stokes laser. Although the coupling wave theory of anti-Stokes Raman frequency shifter reported previously can reflect the operation law of the frequency shifter, the optimization of the frequency shifter and the influence of the frequency shifter parameters on the output characteristics of anti-Stokes laser have not been reported so far. In this paper, the picosecond anti-Stokes Raman frequency converter based on the pump-probe method is studied theoretically. Considering the generation of the first Stokes light in the probe channel and the second Stokes light in the pump channel, the coupled wave equation of the collinear picosecond anti-Stokes Raman frequency converter is established under the plane wave approximation. Without loss of generality, four dimensionless comprehensive parameters are introduced to normalize the equations. A set of universal theoretical curves describing the operation of the Raman frequency converter is obtained. The numerical solutions of the equations show that the performance of the Raman frequency converter mainly depends on three parameters: the normalized phase mismatch parameter  $\Delta K$ , the normalized Raman gain coefficient  $G$ , and the energy ratio of the probe light to the fundamental light  $r_{\text{probe}}$ . The reasonable values of normalized variables are determined when the high efficiency anti-Stokes conversion is realized. Experimental data are used to verify the correctness of the theoretical model. The theoretical value of the anti-Stokes conversion efficiency is basically consistent with the literature data. The normalized coupled wave theory proposed in this paper is helpful in understanding the operation law of the picosecond anti-Stokes Raman frequency shifter, and has guiding significance for the design of the frequency converter.

**Keywords:** coherent anti-Stokes scattering, collinear four-wave mixing, coupled wave equation, normalization theory

**PACS:** 42.65.Dr, 42.65.-k, 42.60.Lh, 42.55.Ah

**DOI:** 10.7498/aps.70.20201353

\* Project supported by the National Natural Science Foundation of China (Grant No. 11504268) and the Scientific Research Program of Tianjin Municipal Education Commission, China (Grant No. 2017KJ240).

† Corresponding author. E-mail: wangc.sd@163.com