

Dispersion der gekoppelten Wellen beim stimulierten Raman-Effekt in einfachen piezoelektrischen kubischen Kristallen

L. Merten und J. Wenk

Fachbereich Physik der Universität Münster

Z. Naturforsch. 34a, 126–133 (1979); eingegangen am 30. Oktober 1978

Even in the most simple case of cubic piezoelectric crystals with only one polariton branch the problem of coupling of polariton, Stokes and anti-Stokes waves in the parametric approximation leads to six coupled waves, each consisting of a polariton component, a Stokes component and an anti-Stokes component. The dispersion of all six coupled waves can be described by explicit formulae in very good approximation. The shift of the dispersion curves of the coupled waves against the dispersion curves of the uncoupled waves is proportional to the square of the amplitude of the pump wave.

1. Einleitung

Wie in einer vorhergehenden Arbeit [1] gezeigt wurde, existieren beim stimulierten Raman-Effekt im einfachsten Fall eines kubischen piezoelektrischen Kristalls insgesamt sechs gekoppelte Wellen. Jede dieser gekoppelten Wellen besteht aus einem Polariton-Anteil, einem Stokes-Anteil und einem Anti-Stokes-Anteil.

Die Dispersion des Polariton-Anteils dieser sechs Wellen wird beschrieben durch eine Dispersionsfunktion der Form

$$K_j(\omega, \omega_L, E_L) \quad (j = 1, 2, \dots, 6). \quad (1a)$$

Dabei bezeichnet K_j den im allgemeinen komplexen Wellenvektor des Polariton-Anteils der Welle, ω die Frequenz des Polariton-Anteils, ω_L und E_L die Frequenz bzw. Amplitude der Pumpwelle.

Mit Kenntnis der Dispersionsfunktion des Polariton-Anteils sind auch die Dispersionsfunktion des Stokes-Anteils

$$K_{S,j}(\omega_S, \omega_L, E_L) \quad (j = 1, 2, \dots, 6) \quad (1b)$$

und des Anti-Stokes-Anteils

$$K_{A,j}(\omega_A, \omega_L, E_L) \quad (j = 1, 2, \dots, 6) \quad (1c)$$

der Welle bekannt, da sich beide Funktionen aufgrund der Beziehungen (Erhaltung der Energie und der Quasi-Impulse)

$$K_{S,j}^* = K_L - K_j, \quad (2a)$$

$$\omega_S = \omega_L - \omega, \quad (2b)$$

$$\text{bzw. } K_{A,j} = K_L + K_j, \quad (2c)$$

$$\omega_A = \omega_L + \omega \quad (2d)$$

auf die Dispersionsfunktion des Polariton-Anteils zurückführen lassen. Dabei bedeuten $K_{S,j}$ und $K_{A,j}$

0340-4811 / 79 / 0200-0126 \$ 01.00/0

die im allgemeinen komplexen Wellenvektoren des Stokes- bzw. Anti-Stokes-Anteils und K_L den als reell angenommenen Wellenvektor der Pumpwelle. ω_S und ω_A sind die (reellen) Frequenzen des Stokes- bzw. Anti-Stokes-Anteils der Welle. $K_{S,j}^*$ bedeutet den zu $K_{S,j}$ konjugiert-komplexen Wellenvektor.

Im folgenden genügt es daher, die Dispersionsfunktionen $K_j(\omega, \omega_L, E_L)$ des Polariton-Anteils der Wellen zu berechnen. Die Dispersionsfunktionen sind Lösungen der Dispersionsgleichung [1, 2]:

$$\begin{aligned} & (n_{P,j}^2 - \varepsilon_1(\omega)) (n_{S,j}^{*2} - \varepsilon_3(\omega, E_L)) (n_{A,j}^2 - \varepsilon_3(\omega, E_L)) \\ & - (n_{P,j}^2 - \varepsilon_1(\omega)) (\varepsilon_3'(\omega, E_L))^2 \\ & - [(n_{S,j}^{*2} - \varepsilon_3(\omega, E_L)) + (n_{A,j}^2 - \varepsilon_3(\omega, E_L)) \\ & + 2\varepsilon_3'(\omega, E_L)] \varepsilon_2^2(\omega, E_L) = 0, \quad (3) \\ & \quad (j = 1, 2, \dots, 6), \end{aligned}$$

wobei die Brechungsindizes $n_{P,j}$, $n_{S,j}^*$, $n_{A,j}$ und die dielektrischen Funktionen ε_1 , ε_2 , ε_3 und ε_3' gegeben sind durch

$$n_{P,j}(\omega, \omega_L, E_L) = \frac{c K_j(\omega, E_L)}{\omega}, \quad (3a)$$

$$\begin{aligned} n_{S,j}^*(\omega, \omega_L, E_L) &= \frac{c K_{S,j}^*(\omega, E_L)}{\omega_S} \\ &= \frac{c (K_L - K_j(\omega, E_L))}{\omega_L - \omega}, \end{aligned} \quad (3b)$$

$$\begin{aligned} n_{A,j}(\omega, \omega_L, E_L) &= \frac{c K_{A,j}(\omega, E_L)}{\omega_A} \\ &= \frac{c (K_L + K_j(\omega, E_L))}{\omega_L + \omega}, \\ & \quad (j = 1, 2, \dots, 6); \end{aligned} \quad (3c)$$

$$\varepsilon_1(\omega) = \varepsilon^\infty + \frac{4\pi(B^{12})^2}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2}, \quad (3d)$$



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 digitized 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.

$$\begin{aligned}\varepsilon_2(\omega, E_L) &= (4\pi D_E) E_L + \frac{4\pi B^{12} D_Q}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2} E_L \\ &= F(\omega) E_L,\end{aligned}\quad (3e)$$

$$\begin{aligned}\varepsilon_3(\omega, E_L) &= \varepsilon^\infty + \frac{(4\pi D_Q)^2 E_L^2}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2} \\ &= \varepsilon^\infty + G(\omega) E_L^2,\end{aligned}\quad (3f)$$

$$\varepsilon_3'(\omega, E_L) \equiv \varepsilon_3(\omega, E_L) - \varepsilon^\infty = G(\omega) E_L^2.\quad (3g)$$

Dabei sind $F(\omega)$ und $G(\omega)$ definiert durch

$$F(\omega) \equiv 4\pi D_E + \frac{4\pi B^{12} D_Q}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2}\quad (3h)$$

und

$$G(\omega) \equiv \frac{4\pi D_Q^2}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2}.\quad (3i)$$

In (3a)–(3f) bedeuten:

ω_{TO} Frequenz des (ungekoppelten) transversalen optischen Phonons,

Γ Dämpfung des transversalen optischen Phonons,

c Lichtgeschwindigkeit,

B^{12} mechanisch-elektrischer Kopplungskoeffizient,

ε^∞ Hochfrequenz-Dielektrizitätskonstante,

D_E elektro-optischer Koeffizient,

D_Q atomarer Verschiebungskoeffizient.

Es gilt die Beziehung

$$B^{12} = \sqrt{\frac{\varepsilon^0 - \varepsilon^\infty}{4\pi}} \omega_{TO},\quad (4)$$

worin ε^0 die statische Dielektrizitätskonstante bezeichnet.

Die sechs Funktionen $K_j(\omega, \omega_L, E_L)$ lassen sich im allgemeinen Fall nur numerisch exakt bestimmen, da die Dispersionsgleichung (3) als Gleichung sechsten Grades in K sich nicht durch geschlossene Ausdrücke exakt lösen lässt. Es lassen sich jedoch, wie im folgenden gezeigt werden soll, algebraische Näherungsausdrücke herleiten, die bis zu relativ hohen E_L mit den exakten, durch numerische Lösung gewonnenen Werten übereinstimmen. Dazu entwickeln wir die Dispersionsfunktionen $K_j(\omega, \omega_L, E_L)$ nach dem elektrischen Feld E_L , wobei nur gerade Potenzen in E_L auftreten können, da E_L in der Dispersionsgleichung (3) nur quadratisch auftritt:

$$\begin{aligned}K_j(\omega, \omega_L, E_L) &= a_{j,0}(\omega, \omega_L) + a_{j,2}(\omega, \omega_L) E_L^2 \\ &\quad + a_{j,4}(\omega, \omega_L) E_L^4 + \dots, \\ &\quad (j = 1, 2, \dots, 6).\end{aligned}\quad (5a)$$

Für die Entwicklung des (konjugiert-komplexen) Wellenvektors des Stokes-Anteils folgt hieraus unter Beachtung von (2a)

$$\begin{aligned}K_{S,j}^*(\omega, \omega_L, E_L) &= (K_L - a_{j,0}(\omega, \omega_L)) \\ &\quad - a_{j,2}(\omega, \omega_L) E_L^2 \\ &\quad - a_{j,4}(\omega, \omega_L) E_L^4 - \dots\end{aligned}\quad (5b)$$

und für die Entwicklung des Wellenvektors des Anti-Stokes-Anteils unter Beachtung von (2c)

$$\begin{aligned}K_{A,j}(\omega, \omega_L, E_L) &= (K_L + a_{j,0}(\omega, \omega_L)) \\ &\quad + a_{j,2}(\omega, \omega_L) E_L^2 \\ &\quad + a_{j,4}(\omega, \omega_L) E_L^4 + \dots\end{aligned}\quad (5c)$$

Das Ziel ist es, die Entwicklungskoeffizienten $a_{j,0}(\omega, \omega_L)$, $a_{j,2}(\omega, \omega_L)$ usw. zu bestimmen. Wir wollen uns dabei im folgenden auf die Berechnung von $a_{j,0}(\omega, \omega_L)$ und $a_{j,2}(\omega, \omega_L)$ beschränken.

2. Grenzfall ungekoppelter Wellen, Berechnung der $a_{j,0}(\omega, \omega_L)$

Zur Bestimmung der $a_{j,0}(\omega, \omega_L)$ betrachten wir zunächst den Grenzfall $E_L = 0$ (ungekoppelte Wellen). In diesem Grenzfall verschwinden das zweite und dritte Glied in Gl. (3). Berücksichtigt man noch, daß $\varepsilon^\infty \equiv \varepsilon_3(\omega, 0)$, so reduziert sich Gl. (3) auf

$$(n_{P,j}^2 - \varepsilon_1(\omega))(n_S^{*2} - \varepsilon^\infty)(n_A^2 - \varepsilon^\infty) = 0,\quad (6)$$

d.h. es ergeben sich die drei Gleichungen

$$\begin{aligned}n_{P,j}^2 - \varepsilon_1(\omega) &= \frac{c^2 K_j^2}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega) = 0, \\ j &= 1, 2,\end{aligned}\quad (6a)$$

$$\begin{aligned}n_{S,j}^{*2} - \varepsilon^\infty &= \frac{c^2 (K_L - K_j)^2}{(\omega_L - \omega)^2} - \varepsilon^\infty = 0, \\ j &= 3, 4,\end{aligned}\quad (6b)$$

$$\begin{aligned}n_{A,j}^2 - \varepsilon^\infty &= \frac{c^2 (K_L + K_j)^2}{(\omega_L + \omega)^2} - \varepsilon^\infty = 0, \\ j &= 4, 5.\end{aligned}\quad (6c)$$

Die Lösungen von Gl. (6a) sind die Dispersionsfunktionen der ungekoppelten Polariton-Wellen

$$K_1(\omega, \omega_L, 0) = + \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_1(\omega)},\quad (7a)$$

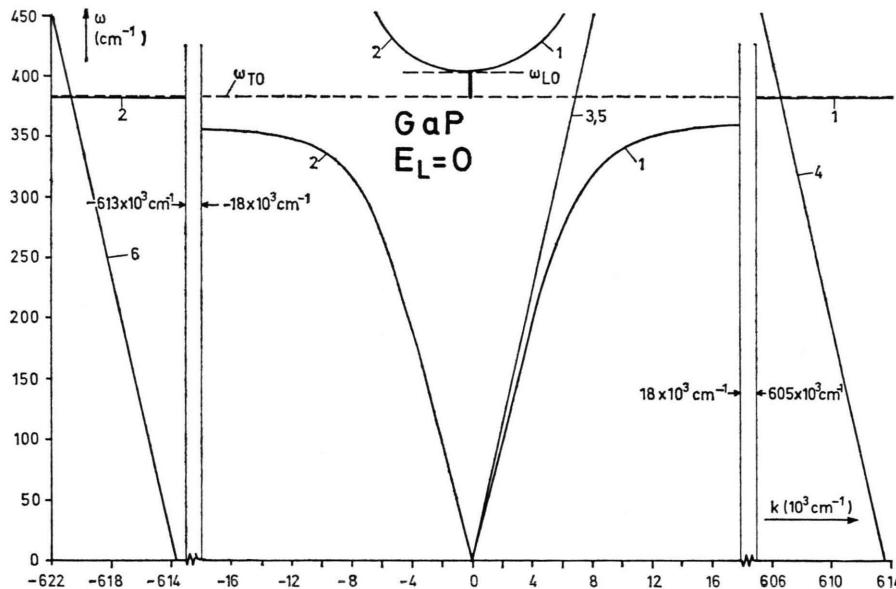


Abb. 1. Dispersionskurven der sechs Wellen für GaP im Grenzfall der Entkopplung ($E_L = 0$):

Wellen 1 und 2: Polariton-Wellen (ohne Dämpfung),

Wellen 3 und 4: Stokes-Wellen,

Wellen 5 und 6: Anti-Stokes-Wellen.

Die Dispersionskurven zu den Wellen 1, 2, 3 und 5 sind für $E_L = 0$ von ω_L unabhängig, während die Lage der Geraden zu den Wellen 4 und 6 von ω_L abhängt. In der Abbildung wurde $\omega_L = 16793 \text{ cm}^{-1}$ gewählt.

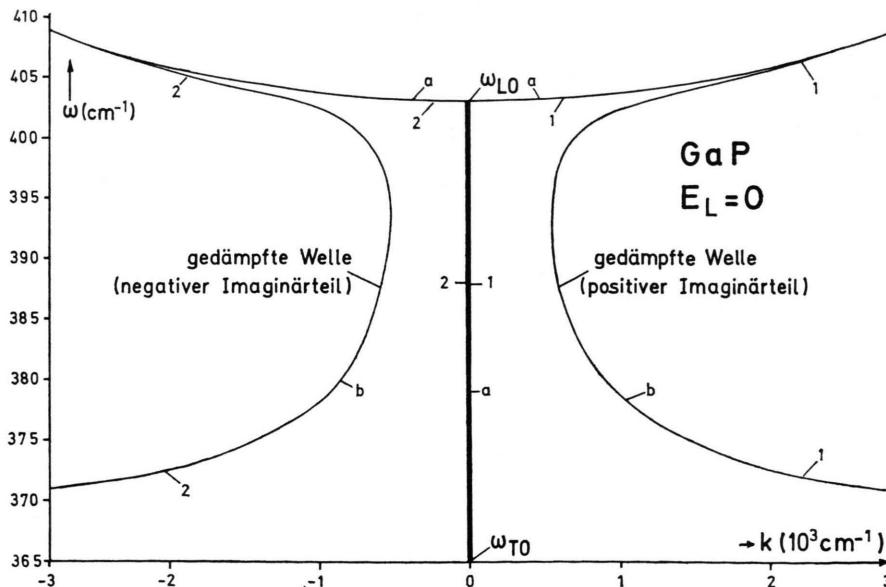


Abb. 2. Dispersionskurven (Kurven 1 und 2) der ungekoppelten Polariton-Wellen für GaP im Bereich der Bandlücke $\omega_{TO} \leq \omega \leq \omega_{LO}$, a) ohne Dämpfung ($\Gamma = 0$), b) mit Dämpfung ($\Gamma \neq 0$).

$$K_2(\omega, \omega_L, 0) = -\frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_1(\omega)}. \quad (7b)$$

Die Lösungen von Gl. (6b) sind die Dispersionsfunktionen der ungekoppelten Stokes-Wellen

$$K_3(\omega, \omega_L, 0) = \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega, \quad (8a)$$

$$K_4(\omega, \omega_L, 0) = 2K_L(\omega_L) - \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega. \quad (8b)$$

Die Lösungen von Gl. (6c) schließlich sind die Dispersionsfunktionen der ungekoppelten Anti-Stokes-Wellen

$$K_5(\omega, \omega_L, 0) = \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega, \quad (9a)$$

$$K_6(\omega, \omega_L, 0) = -2K_L(\omega_L) - \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega. \quad (9b)$$

Die sechs Lösungen sind in Abb. 1 und Abb. 2 dargestellt. Man beachte dabei, daß sich Unterschiede im Dispersionsverlauf für den ungedämpften Fall ($\Gamma = 0$) und den gedämpften Fall ($\Gamma \neq 0$) im wesentlichen nur im Bereich der sog. Bandlücke ($\omega_{TO} \leq \omega \leq \omega_{LO}$) bemerkbar machen (siehe Abb. 2). Dabei bedeutet ω_{LO} die Frequenz des longitudinalen optischen Phonons, für das im Falle $\Gamma = 0$ die dielektrische Funktion $\varepsilon_1(\omega)$ verschwindet.

Besonderheiten ergeben sich dadurch, daß die Wellen 3 und 5 im Grenzfall ungekoppelter Wellen miteinander entartet sind. Hierauf ist im Abschnitt 5 im einzelnen eingegangen.

Die Lösungen $K_j(\omega, \omega_L, 0)$ von (6a)–(6c) sind offensichtlich die gesuchten Koeffizienten* $a_{j,0}(\omega, \omega_L)$ in der Entwicklung (5a)–(5c):

$$a_{j,0}(\omega, \omega_L) = K_j(\omega, \omega_L, 0). \quad (10)$$

3. Dispersion der Wellen 1 und 2

Zur Berechnung der $a_{j,2}(\omega, \omega_L)$ denken wir uns die Pumpwelle ($E_L \neq 0$) stetig eingeschaltet, so daß sich die gekoppelten Wellen stetig aus den ungekoppelten entwickeln. Die Änderungen der Dispersionsfunktionen $K_j(\omega, \omega_L, E_L)$ gegenüber dem Grenzfall ungekoppelter Wellen werden in erster Näherung durch das Glied $a_{j,2}(\omega, \omega_L) E_L^2$ in Gl. (5a) beschrieben. Es ist sinnvoll, die $a_{j,2}(\omega, \omega_L)$

* Bei den Wellen $j = 1, j = 2, j = 3$ und $j = 5$ können wir im folgenden im Argument ω_L fortlassen, da nach Gln. (7a), (7b), (8a) und (9a) die zugehörigen $a_{j,0}$ von ω_L unabhängig sind. Für die Wellen $j = 4$ und $j = 6$ besteht jedoch nach Gl. (8b) und (9b) eine Abhängigkeit von ω_L .

für die verschiedenen Wellentypen getrennt zu berechnen.

Wir betrachten zunächst die Wellen 1 und 2, deren Dispersionsfunktionen im Grenzfall $E_L = 0$ durch Gl. (7a) und Gl. (7b) gegeben werden. Ausgangsgleichung zur Berechnung von $a_{1,2}(\omega, \omega_L)$ und $a_{2,2}(\omega, \omega_L)$ ist die Dispersionsgleichung (3). Sie läßt sich, wenn wir den Faktor

$$P \equiv n_P^2 - \varepsilon_1(\omega) \quad (11a)$$

als Polariton-Faktor, den Faktor

$$S \equiv n_S^*{}^2 - \varepsilon_3(\omega, E_L) \quad (11b)$$

als Stokes-Faktor und den Faktor

$$A \equiv n_A^2 - \varepsilon_3(\omega, E_L) \quad (11c)$$

als Anti-Stokes-Faktor bezeichnen, auch in der vereinfachten Form schreiben:

$$PSA - P(\varepsilon_3')^2 - [S + A + 2\varepsilon_3'] \varepsilon_2^2 = 0. \quad (12)$$

Unter Beachtung, daß der Polariton-Faktor für die Wellen 1 und 2 in nullter Ordnung ($P^{(0)} = 0$) verschwindet, bilden wir aus Gl. (12) die Gleichung erster Ordnung in E_L^2 :

$$P^{(1)} S^{(0)} A^{(0)} - (S^{(0)} + A^{(0)}) \varepsilon_2^2 = 0. \quad (13)$$

Das Glied $-P(\varepsilon_3')^2$ liefert keinen Beitrag, weil $P^{(0)}(\varepsilon_3')^2$ wegen $P^{(0)} = 0$ verschwindet und das Glied $P^{(1)}(\varepsilon_3')^2$ bereits E_L^4 enthält.

Aus Gl. (13) folgt für die Welle 1 (unterer Index):

$$\begin{aligned} P_1^{(1)} &= \left(\frac{1}{S_1^{(0)}} + \frac{1}{A_1^{(0)}} \right) \varepsilon_2^2 \\ &= \left(\frac{1}{S_1^{(0)}} + \frac{1}{A_1^{(0)}} \right) F^2(\omega) E_L^2 \end{aligned} \quad (14a)$$

und entsprechend für die Welle 2:

$$\begin{aligned} P_2^{(1)} &= \left(\frac{1}{S_2^{(0)}} + \frac{1}{A_2^{(0)}} \right) \varepsilon_2^2 \\ &= \left(\frac{1}{S_2^{(0)}} + \frac{1}{A_2^{(0)}} \right) F^2(\omega) E_L^2. \end{aligned} \quad (14b)$$

Andererseits gilt unter Berücksichtigung von (11a), (3a) und (5a) für die Welle 1:

$$\begin{aligned} P_1^{(1)} &= (c^2/\omega^2)(K_1^2(\omega, \omega_L, E_L))^{(1)} \\ &= (c^2/\omega^2)[(a_{1,0}(\omega) + a_{1,2}(\omega, \omega_L) E_L^2 + \dots)^2]^{(1)} \\ &= (2c^2/\omega^2) a_{1,0}(\omega) a_{1,2}(\omega, \omega_L) E_L^2 \end{aligned} \quad (15a)$$

und entsprechend für die Welle 2:

$$P_2^{(1)} = (2c^2/\omega^2) a_{2,0}(\omega) a_{2,2}(\omega, \omega_L) E_L^2. \quad (15b)$$

Faßt man Gl. (14a) und (15a) zusammen, so folgt für die Welle 1 das Ergebnis:

$$\begin{aligned} a_{1,2}(\omega, \omega_L) &= \frac{\omega^2}{2c^2} \left(\frac{1}{S_1^{(0)}} + \frac{1}{A_1^{(0)}} \right) \frac{F^2(\omega)}{a_{1,0}(\omega)} \\ &= \left(\frac{1}{S_1^{(0)}} + \frac{1}{A_1^{(0)}} \right) \frac{a_{1,0}(\omega)}{2\varepsilon_1(\omega)} F^2(\omega) \\ &= \frac{\omega}{2c} R_1(\omega, \omega_L) \frac{F^2(\omega)}{\sqrt{\varepsilon_1(\omega)}}. \end{aligned} \quad (16a)$$

Faßt man Gl. (14b) und (15b) zusammen, so folgt entsprechend für die Welle 2:

$$\begin{aligned} a_{2,2}(\omega, \omega_L) &= \frac{\omega^2}{2c^2} \left(\frac{1}{S_2^{(0)}} + \frac{1}{A_2^{(0)}} \right) \frac{F^2(\omega)}{a_{2,0}(\omega)} \\ &= \left(\frac{1}{S_2^{(0)}} + \frac{1}{A_2^{(0)}} \right) \frac{a_{2,0}(\omega)}{2\varepsilon_1(\omega)} F^2(\omega) \\ &= -\frac{\omega}{2c} R_2(\omega, \omega_L) \frac{F^2(\omega)}{\sqrt{\varepsilon_1(\omega)}}. \end{aligned} \quad (16b)$$

Dabei wurde zur Abkürzung eingeführt:

$$\begin{aligned} R_1(\omega, \omega_L) &\equiv \frac{1}{S_1^{(0)}(\omega, \omega_L)} + \frac{1}{A_1^{(0)}(\omega, \omega_L)} \\ &= \frac{1}{\frac{c^2(K_L(\omega_L) - a_{1,0}(\omega))^2}{(\omega_L - \omega)^2} - \varepsilon^\infty} \quad (17) \\ &+ \frac{1}{\frac{c^2(K_L(\omega_L) + a_{1,0}(\omega))^2}{(\omega_L + \omega)^2} - \varepsilon^\infty}. \end{aligned}$$

$$\begin{aligned} S_4^{(1)} &= \frac{c^2}{(\omega_L - \omega)^2} [(K_L(\omega_L) - K_4(\omega, \omega_L, E_L))^2]^{(1)} - \varepsilon_3' \\ &= \frac{c^2}{(\omega_L - \omega)^2} [(K_L(\omega_L) - a_{4,0}(\omega, \omega_L) - a_{4,2}(\omega, \omega_L) E_L^2 + \dots)^2]^{(1)} - G(\omega) E_L^2 \quad (21) \\ &= \left[\frac{-2c^2}{(\omega_L - \omega)^2} (K_L(\omega_L) - a_{4,0}(\omega, \omega_L)) a_{4,2}(\omega, \omega_L) - G(\omega) \right] E_L^2. \end{aligned}$$

Durch Kombination von Gl. (20) mit Gl. (21) ergibt sich somit für $a_{4,2}(\omega, \omega_L)$:

$$a_{4,2}(\omega, \omega_L) = -\frac{(\omega_L - \omega)^2}{2c^2(K_L(\omega_L) - a_{4,0}(\omega, \omega_L))} \left[\frac{F^2(\omega)}{P_4^{(0)}(\omega, \omega_L)} + G(\omega) \right] \quad (22a)$$

$$= \frac{a_{4,0}(\omega, \omega_L) - K_L(\omega_L)}{2\varepsilon^\infty} \left[\frac{F^2(\omega)}{P_4^{(0)}(\omega, \omega_L)} + G(\omega) \right] \quad (22b)$$

$$= \frac{K_L(\omega_L) - \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega}{2\varepsilon^\infty} \left[\frac{F^2(\omega)}{P_4^{(0)}(\omega, \omega_L)} + G(\omega) \right]. \quad (22c)$$

Beim Übergang von Gl. (22a) zu Gl. (22b) wurde dabei die aus Gl. (6b) und Gl. (10) folgende Beziehung

$$c^2(K_L(\omega_L) - a_{4,0}(\omega_L, \omega))^2 = \varepsilon^\infty(\omega_L - \omega)^2 \quad (23)$$

und beim Übergang zu Gl. (22c) die Beziehung (8b) benutzt. $P_4^{(0)}(\omega, \omega_L)$ ist nach Gl. (11a) in Verbindung mit Gl. (3b) und Gl. (10) gegeben durch:

$R_2(\omega, \omega_L)$ ergibt sich hieraus, indem man in Gl. (17) $S_1^{(0)}$, $A_1^{(0)}$ und $a_{1,0}(\omega)$ durch $S_2^{(0)}$, $A_2^{(0)}$ bzw. $a_{2,0}(\omega)$ ersetzt.

Damit sind die Dispersionsfunktionen zu den Wellen 1 und 2 gemäß Gl. (5a) bis zum in E_L quadratischen Gliede vollständig bestimmt.

4. Dispersion der Wellen 4 und 6

Für die Berechnung der Dispersionsfunktion $K_4(\omega, \omega_L, E_L)$ zur Welle 4 ist die Kenntnis des Koeffizienten $a_{4,2}(\omega, \omega_L)$ erforderlich. Um $a_{4,2}(\omega, \omega_L)$ zu bestimmen, hat man zu beachten, daß jetzt der Stokes-Faktor in nullter Näherung verschwindet:

$$S_4^{(0)} = 0. \quad (18)$$

In erster Ordnung (in E_L^2) erhält man daher aus Gl. (12):

$$P_4^{(0)} S_4^{(1)} A_4^{(0)} - A_4^{(0)} \varepsilon_2^2 = 0 \quad (19)$$

oder

$$S_4^{(1)} = \varepsilon_2^2 / P_4^{(0)} = (F^2(\omega) / P_4^{(0)}) E_L^2. \quad (20)$$

Andererseits gilt für den Stokes-Faktor in erster Ordnung nach Gl. (11b) und (3b):

$$P_4^{(0)} = \frac{c^2}{\omega^2} a_{4,0}^2(\omega, \omega_L) - \varepsilon_1(\omega). \quad (24)$$

Die Berechnung des Koeffizienten $a_{6,2}(\omega, \omega_L)$ zur Welle 5 erfolgt ganz analog. In nullter Ordnung verschwindet der Anti-Stokes-Faktor:

$$A_6^{(0)} = 0, \quad (25)$$

so daß sich in erster Ordnung (in E_L^2) aus Gl. (12) ergibt:

$$A_6^{(1)} = \varepsilon_2^2 / P_6^{(0)} = (F^2(\omega) / P_6^{(0)}(\omega, \omega_L)) E_L^2. \quad (26)$$

Andererseits ist analog zu Gl. (22a) — Gl. (22c):

$$A_6^{(1)} = \left[\frac{2c^2}{(\omega_L + \omega)^2} (K_L(\omega_L) + a_{6,0}(\omega, \omega_L)) a_{6,2}(\omega, \omega_L) - G(\omega) \right] E_L^2. \quad (27)$$

Durch Kombination von Gl. (26) mit Gl. (27) ergibt sich somit für $a_{6,2}(\omega, \omega_L)$:

$$a_{6,2}(\omega, \omega_L) = \frac{(\omega_L + \omega)^2}{2c^2(K_L(\omega_L) + a_{6,0}(\omega, \omega_L))} \left[\frac{F^2(\omega)}{P_6^{(0)}(\omega, \omega_L)} + G(\omega) \right] \quad (28a)$$

$$= \frac{a_{6,0}(\omega, \omega_L) + K_L(\omega_L)}{2\varepsilon^\infty} \left[\frac{F^2(\omega)}{P_6^{(0)}(\omega, \omega_L)} + G(\omega) \right] \quad (28b)$$

$$= - \frac{K_L(\omega_L) + \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega}{2\varepsilon^\infty} \left[\frac{F^2(\omega)}{P_6^{(0)}(\omega, \omega_L)} + G(\omega) \right]. \quad (28c)$$

Beim Übergang von Gl. (28a) zu Gl. (28b) wurde dabei die aus Gl. (6c) und Gl. (10) folgende Beziehung

$$c^2(K_L(\omega_L) + a_{6,0}(\omega, \omega_L))^2 = \varepsilon^\infty(\omega_L + \omega)^2 \quad (29)$$

und beim Übergang zu Gl. (28c) die Beziehung (9b) benutzt. $P_6^{(0)}(\omega, \omega_L)$ ist nach Gl. (11b) in Verbindung mit Gl. (3c) und Gl. (10) gegeben durch:

$$P_6^{(0)}(\omega, \omega_L) = \frac{c^2}{\omega^2} a_{6,0}^2(\omega, \omega_L) - \varepsilon_1(\omega). \quad (30)$$

Damit sind die Dispersionsfunktionen zu den Wellen 4 und 6 gemäß Gl. (5a) bis zum in E_L quadratischen Gliede vollständig bestimmt.

5. Dispersion der Wellen 3 und 5 (Entartung)

Wir wenden uns nun den Wellen 3 und 5 zu, die bei ausgeschalteter Pumpwelle ($E_L = 0$) miteinander entartet sind [siehe Gl. (8a) und Gl. (9a)].

$$\begin{aligned} S_j^{(1)} &= \left(\frac{c^2(K_S^*)^2}{\omega_S^2} - \varepsilon_3 \right)_j^{(1)} \\ &= - \frac{2c^2}{(\omega_L - \omega)^2} (K_L(\omega_L) - a_{j,0}) a_{j,2} E_L^2 - G(\omega) E_L^2 \\ &= - (\tilde{S}(\omega, \omega_L) a_{j,2} + G(\omega)) E_L^2 \quad (j = 3, 5) \end{aligned} \quad (33a)$$

Die Entartung hat zur Folge, daß die Gleichung erster Ordnung (in E_L^2) von Gl. (12), nämlich

$$P_j^{(0)} S_j^{(0)} A_j^{(1)} + P_j^{(0)} S_j^{(1)} A_j^{(0)} - (S_j^{(0)} + A_j^{(0)}) \varepsilon_2^2 = 0, \quad (31)$$

wegen

$$S_j^{(0)} = A_j^{(0)} = 0$$

eine Identität darstellt, also auf keine Bestimmungsgleichung für $a_{j,2}(\omega, \omega_L)$ ($j = 3, 5$) führt.

Erst die Gleichung zweiter Ordnung ist eine Bestimmungsgleichung für $a_{3,2}(\omega, \omega_L)$ und $a_{5,2}(\omega, \omega_L)$:

$$\begin{aligned} P^{(0)} S_j^{(1)} A_j^{(1)} - P^{(0)} (\varepsilon_3')^2 \\ - [S_j^{(1)} + A_j^{(1)} + 2\varepsilon_3'] \varepsilon_2^2 = 0. \end{aligned} \quad (32)$$

Bei $P^{(0)}$ kann dabei der untere Index fortgelassen werden, da $P_3^{(0)} = P_5^{(0)}$.

Für $S_j^{(1)}$ ergibt sich andererseits aus (11b) und (5b)

und für $A_j^{(1)}$ aus (11c) und (5c)

$$\begin{aligned} A_j^{(1)} &= \left(\frac{c K_A^2}{\omega_A^2} - \varepsilon_3 \right)_j^{(1)} \\ &= \frac{2c^2}{(\omega_L + \omega)^2} (K_L(\omega_L) + a_{j,0}) a_{j,2} E_L^2 - G(\omega) E_L^2 \\ &= (\tilde{A}(\omega, \omega_L) a_{j,2} - G(\omega)) E_L^2 \quad (j = 3, 5). \end{aligned} \quad (33b)$$

Dabei wurde zur Abkürzung gesetzt:

$$\begin{aligned} \tilde{S}(\omega, \omega_L) &\equiv \frac{2c^2}{(\omega_L - \omega)^2} (K_L(\omega_L) - a_{j,0}) \\ &= \frac{2c^2}{(\omega_L - \omega)^2} \left(K_L(\omega_L) - \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega \right) \end{aligned} \quad (34a)$$

und

$$\begin{aligned} \tilde{A}(\omega, \omega_L) &\equiv \frac{2c^2}{(\omega_L + \omega)^2} (K_L(\omega_L) + a_{j,0}) \\ &= \frac{2c^2}{(\omega_L + \omega)^2} \left(K_L(\omega_L) + \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega \right), \end{aligned} \quad (34b)$$

wobei die Beziehungen (10) und (8a) bzw. (9a) für $a_{j,0}$ ($j = 3, 5$) benutzt wurden. Wegen $a_{3,0} = a_{5,0}$ hängen $\tilde{S}(\omega, \omega_L)$ und $\tilde{A}(\omega, \omega_L)$ von j nicht ab.

Setzen wir \tilde{S} , \tilde{A} , ε_2 (nach Gl. (3e)) und ε_3' (nach Gl. (3g)) in Gl. (32) ein, so folgt

$$\begin{aligned} P^{(0)}[-(\tilde{S} a_{j,2} + G)(\tilde{A} a_{j,2} - G) - P^{(0)} G^2] \\ + [(\tilde{S} a_{j,2} + G) + (\tilde{A} a_{j,2} - G) - 2G] F^2 = 0 \end{aligned} \quad (35a)$$

oder

$$P^{(0)} \tilde{S} \tilde{A} a_{j,2}^2 - (\tilde{S} - \tilde{A})(P^{(0)} G + F^2) a_{j,2} = 0 \quad (j = 3, 5). \quad (35b)$$

Gleichung (35b) hat also die beiden Lösungen

$$a_{3,2}(\omega, \omega_L) = Q(\omega, \omega_L) \left(G(\omega) + \frac{F^2(\omega)}{P^{(0)}(\omega)} \right) \quad (36)$$

und

$$a_{5,2}(\omega, \omega_L) = 0, \quad (37)$$

wobei zur Abkürzung eingeführt wurde:

$$\begin{aligned} Q(\omega, \omega_L) &\equiv \frac{1}{\tilde{A}(\omega, \omega_L)} - \frac{1}{\tilde{S}(\omega, \omega_L)} \quad (38) \\ &= \frac{1}{2c^2} \left[\frac{(\omega_L + \omega)^2}{K_L(\omega_L) + \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega} - \frac{(\omega_L - \omega)^2}{K_L(\omega_L) - \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega} \right]. \end{aligned}$$

Nimmt man näherungsweise an, daß $\varepsilon(\omega_L) \approx \varepsilon^\infty$, d.h.

$$K_L = \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega_L$$

oder

$$K_L \pm \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} \omega = \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c} (\omega_L \pm \omega), \quad (39)$$

so vereinfacht sich (38) offensichtlich zu:

$$\begin{aligned} Q(\omega, \omega_L) &= (1/2c \sqrt{\varepsilon^\infty}) [(\omega_L + \omega) - (\omega_L - \omega)] \\ &= (\omega/c \sqrt{\varepsilon^\infty}). \end{aligned} \quad (40)$$

Im Rahmen dieser Näherung wird $Q(\omega, \omega_L)$ und damit auch $a_{3,2}(\omega, \omega_L)$ von ω_L unabhängig.

$P^{(0)}(\omega)$ in Gl. (36) ist nach Gln. (11a), (6a), (8a) und (3d) gegeben durch

$$\begin{aligned} P^{(0)}(\omega) &= (n_F^2)^{(0)} - \varepsilon_1(\omega) \\ &= \frac{c^2 K_3^2(\omega, \omega_L, 0)}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega) \\ &= \varepsilon^\infty - \varepsilon_1(\omega) \\ &= -\frac{4\pi(B^{12})^2}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2}. \end{aligned} \quad (41)$$

Damit sind die Dispersionsfunktionen zu den Wellen 3 und 5 gemäß Gl. (5a) bis zum in E_L quadratischen Gliede vollständig bestimmt.

Gleichung (37) zeigt, daß die Dispersionsfunktion zur Welle 5 im Rahmen der hier diskutierten Näherung sich gegenüber der Dispersionsfunktion für $E_L = 0$ (Grenzfall der ungekoppelten Wellen) nicht geändert hat. Tatsächlich bleibt die Dispersionsfunktion zur Welle 5 auch für beliebig große E_L gegenüber der Dispersionsfunktion für $E_L = 0$ unverändert.

Um dies zu beweisen, zeigen wir, daß die Lösung der Dispersionsgleichung (3) für $E_L = 0$, nämlich [siehe Gl. (6b) und (6c)]

$$n_{S,5}^2 = \frac{c^2(K_L - K_5)^2}{(\omega_L - \omega)^2} = \varepsilon^\infty, \quad (42a)$$

$$n_{A,5}^2 = \frac{c^2(K_L + K_5)^2}{(\omega_L + \omega)^2} = \varepsilon^\infty, \quad (42b)$$

gleichzeitig Lösung der Dispersionsgleichung für jedes $E_L \neq 0$ ist. Wir setzen dazu (42a) und (42b)

in Gl. (3) ein. Das letzte (dritte) Glied in (3) verschwindet, da in Verbindung mit Gl. (3g), (42a) und (42b) folgt:

$$(n_{S,5}^2 - \varepsilon_3) + (n_{A,5}^2 - \varepsilon_3) + 2\varepsilon_3' \\ = n_{S,5}^2 + n_{A,5}^2 - 2\varepsilon^\infty = 0. \quad (43)$$

Der erste Summand in (3) wird wegen (3g)

$$= (n_{P,5}^2 - \varepsilon_1(\omega))(n_{S,5}^2 - (\varepsilon^\infty + \varepsilon_3')) \\ \cdot (n_{A,5}^2 - (\varepsilon^\infty + \varepsilon_3'))$$

und wegen (42a) und (42b)

$$= (n_{P,5}^2 - \varepsilon_1(\omega))[\varepsilon_3'(\omega, E_L)]^2. \quad (44)$$

Er hebt sich also gegenüber dem zweiten Summanden fort.

Mit Gl. (36) und Gl. (37) sind die Dispersionsrelationen nach Gl. (5a) im Rahmen der hier behandelten Näherung für alle sechs gekoppelten Wellen vollständig bestimmt.

Eine numerische Auswertung der Dispersionsgleichungen und eine ausführliche Diskussion für spezielle Substanzen, insbesondere für GaP, soll an anderer Stelle [3] erfolgen. Die numerische Auswertung zeigt u.a., daß die erhaltenen Dispersionsgleichungen bis zu relativ sehr hohen E_L mit den exakten Lösungen der Dispersionsgleichung (3) praktisch übereinstimmen.

Wir danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft für finanzielle Förderung der Arbeit.

[1] J. Wenk u. L. Merten, Phys. Stat. Sol. (b), im Druck
 [2] L. Merten u. J. Wenk, Proceedings of the Sixth International Conference on Raman Spectroscopy, Bangalore

(India), Verlag Heyden and Son, London 1978,
 Seite 484/485.
 [3] J. Wenk u. L. Merten, Veröffentlichung in Vorbereitung.