Dispersion der gekoppelten Wellen beim stimulierten Raman-Effekt unter Berücksichtigung der dielektrischen Dispersion

L. Merten und J. Wenk

Physikalisches Institut der Westfälischen Wilhelms-Universität Münster

Z. Naturforsch. **34a**, 1035–1040 (1979); eingegangen am 9. Juli 1979

Dispersion of Coupled Waves of Stimulated Raman-Effect with Regard to Dielectric Dispersion

It is shown that the dispersion functions of coupled waves depend very sensitively on the dielectric dispersion in the visible frequency region. The dispersion functions of all six coupled waves can be described by explicit formulae in very good approximation.

1. Grundgleichungen der gekoppelten Wellen

Die Kopplung der Wellen beim stimulierten Raman-Effekt in einfachen piezoelektrischen Kristallen wurde in zwei vorhergehenden Arbeiten [1, 3] unter der Annahme behandelt, daß der lineare elektronische Anteil der dielektrischen Funktion frequenzunabhängig ($=\varepsilon^{\infty}$) ist. Tatsächlich hängt der stimulierte Raman-Effekt jedoch sehr empfindlich von der dielektrischen Dispersion im sichtbaren (bzw. ultra-violetten) Spektralbereich ab.

Diese Dispersion soll im folgenden bezüglich ihres Einflusses auf den stimulierten Raman-Effekt untersucht werden. Dazu nehmen wir an, daß die Koeffizienten B^{22} in dem rein harmonischen Anteil U_{L} der Energiedichte U frequenzabhängig sind (siehe dazu Gl. (1) in [1] bzw. Gl. (1) in [3]):

$$\begin{aligned} U_{\mathrm{L}} = & -\tfrac{1}{2}\,\mathfrak{Q}^*\,B^{11}\,\mathfrak{Q} - \mathfrak{Q}^*\,B^{12}\,\mathscr{E} \\ & -\tfrac{1}{2}\,(\mathscr{E}^*\,B^{22}(\omega)\,\mathscr{E} + \mathscr{E}_{\mathrm{L}}{}^*\,B^{22}(\omega_{\mathrm{L}})\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}} \\ & + \mathscr{E}_{\mathrm{S}}{}^*\,B^{22}(\omega_{\mathrm{S}})\,\mathscr{E}_{\mathrm{S}} + \mathscr{E}_{\mathrm{A}}{}^*\,B^{22}(\omega_{\mathrm{A}})\,\mathscr{E}_{\mathrm{A}}) \\ & + \text{konjugiert-komplexe Terme.} \end{aligned} \tag{1}$$

Zwischen den Koeffizienten B^{22} und der elektronischen dielektrischen Funktion $\varepsilon(\omega)$ gelten dabei die Beziehungen:

$$B^{22}(\omega) = \frac{1}{4\pi}\,[\varepsilon(\omega) - 1]\,, \tag{1a}$$

$$B^{22}(\omega_{\mathrm{L}}) = \frac{1}{4\pi}\,[\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}}) - 1]\,, \tag{1b}$$

$$\begin{aligned} B^{22}(\omega_{\mathrm{S}}) &= \frac{1}{4\pi}\,[\varepsilon(\omega_{\mathrm{S}}) - 1] \\ &= \frac{1}{4\pi}\,[\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} - \omega) - 1]\,, \end{aligned} \tag{1c}$$

$$\begin{aligned} B^{22}(\omega_{\mathrm{A}}) &= \frac{1}{4\pi}\,[\varepsilon(\omega_{\mathrm{A}}) - 1] \\ &= \frac{1}{4\pi}\,[\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} + \omega) - 1]\,. \end{aligned} \tag{1d}$$

Wegen der Bedeutung der Koeffizienten B^{11} und B^{12} sei dabei u.a. auf [2] verwiesen.

Die Energiedichte des anharmonischen Anteils U_{NL} ist wie in [1], [3] gegeben durch:

$$\begin{aligned} U_{\mathrm{NL}} = & -\{\mathscr{E}^*(D_{\mathrm{E}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}})\,\mathscr{E}_{\mathrm{S}}{}^* + \mathscr{E}^*(D_{\mathrm{E}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}}{}^*)\,\mathscr{E}_{\mathrm{A}} \\ & + \mathfrak{Q}^*(D_{\mathrm{Q}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}})\,\mathscr{E}_{\mathrm{S}}{}^* + \mathfrak{Q}^*(D_{\mathrm{Q}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}}{}^*)\,\mathscr{E}_{\mathrm{A}}\} \\ & + \text{konjugiert-komplexe Terme.} \end{aligned} \tag{2}$$

Durch Einsetzen von (1) und (2) in die Bewegungsgleichung für die Normalkoordinate

$$\ddot{\mathfrak{Q}} + \Gamma\,\dot{\mathfrak{Q}} = -\,\partial U/\partial\mathfrak{Q}^*\,, \tag{3a}$$

worin Γ die Dämpfungskonstante bedeutet, und in die Gleichungen für die Polarisation

$$\mathscr{P} = -\,\partial U/\partial\mathscr{E}^*\,, \tag{3b}$$

$$\mathscr{P}_{\mathrm{S}} = -\,\partial U/\partial\mathscr{E}_{\mathrm{S}}{}^*\,, \tag{3c}$$

$$\mathscr{P}_{\mathrm{A}} = -\,\partial U/\partial\mathscr{E}_{\mathrm{A}}{}^* \tag{3d}$$

folgt:

$$\begin{aligned} \ddot{\mathfrak{Q}} + \Gamma\,\dot{\mathfrak{Q}} &= B^{11}\,\mathfrak{Q} + B^{12}\,\mathscr{E} + (D_{\mathrm{Q}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}})\,\mathscr{E}_{\mathrm{S}}{}^* \\ &\quad + (D_{\mathrm{Q}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}}{}^*)\,\mathscr{E}_{\mathrm{A}}\,, \end{aligned} \tag{4a}$$

$$\begin{aligned} \mathscr{P} &= B^{12}\,\mathfrak{Q} + B^{22}(\omega)\,\mathscr{E} + (D_{\mathrm{E}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}})\,\mathscr{E}_{\mathrm{S}}{}^* \\ &\quad + (D_{\mathrm{E}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}}{}^*)\,\mathscr{E}_{\mathrm{A}}\,, \end{aligned} \tag{4b}$$

$$\begin{aligned} \mathscr{P}_{\mathrm{S}} &= B^{22}(\omega_{\mathrm{S}})\,\mathscr{E}_{\mathrm{S}} + (D_{\mathrm{E}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}})\,\mathscr{E}^* \\ &\quad + (D_{\mathrm{Q}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}})\,\mathfrak{Q}^*\,, \end{aligned} \tag{4c}$$

$$\begin{aligned} \mathscr{P}_{\mathrm{A}} &= B^{22}(\omega_{\mathrm{A}})\,\mathscr{E}_{\mathrm{A}} + (D_{\mathrm{E}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}})\,\mathscr{E} \\ &\quad + (D_{\mathrm{Q}}\,\mathscr{E}_{\mathrm{L}})\,\mathfrak{Q}\,. \end{aligned} \tag{4d}$$

Wie in [3] versuchen wir, (4) mit dem Ansatz (inhomogener) ebener Wellen zu lösen:

$$\mathscr{E}_{\mathrm{L}} = E_{\mathrm{L}}\exp\{i(K_{\mathrm{L}}x - \omega_{\mathrm{L}}t)\} \tag{5a}$$

bedeute das elektrische Feld der Pumpwelle,

$$\mathscr{E} = E\exp\{i(K\,x - \omega\,t)\} \tag{5b}$$

Sonderdruckanforderungen an Prof. Dr. L. Merten, Physikalisches Institut, Westfälische Wilhelms-Universität, Schloßplatz 7, D-4400 Münster.

0340-4811 / 79 / 0900-1035 $ 01.00/0

das elektrische Feld der Polariton-Welle,

$$\mathcal{E}_S = E_S \exp\{i(K_S x - \omega_S t)\} \tag{5c}$$

das elektrische Feld der Stokes-Welle und

$$\mathcal{E}_A = E_A \exp\{i(K_A x - \omega_A t)\} \tag{5d}$$

das elektrische Feld der Anti-Stokes-Welle.

$$\mathfrak{Q} = Q \exp\{i(K x - \omega t)\} \tag{5e}$$

bedeute schließlich die Normalkoordinate zur Polariton-Welle. Setzt man die Wellen (5a)—(5e) in (4a)—(4d) ein und berücksichtigt dabei die Bedingungen

$$\omega_S = \omega_L - \omega, \quad \omega_A = \omega_L + \omega \tag{6a}$$

für die Frequenzen ω_L, ω, ω_S, ω_A und

$$K_S{}^* = K_L - K, \quad K_A = K_L + K \tag{6b}$$

für die Wellenvektoren K_L, K, K_S, K_A, so erhält man im Rahmen der parametrischen Näherung das lineare Gleichungssystem:

$$(-\omega^2 - i\omega\Gamma)Q = B^{11}Q + B^{12}E + (D_Q E_L) E_S{}^* + (D_Q E_L) E_A, \tag{7a}$$

$$P = B^{12}Q + B^{22}(\omega) E + (D_E E_L) E_S{}^* + (D_E E_L) E_A, \tag{7b}$$

$$P_S = B^{22}(\omega_S) E_S + (D_E E_L) E^* + (D_Q E_L) Q^*, \tag{7c}$$

$$P_A = B^{22}(\omega_A) E_A + (D_E E_L) E + (D_Q E_L) Q. \tag{7d}$$

Dabei wurde angenommen, daß E_L eine reelle Größe ist. Die Gln. (7a)—(7d) entsprechen den Gln. (6a)—(6d) in [1].

Eliminiert man schließlich wie in [3] die Normalkoordinate Q und führt statt P, P_S und P_A die dielektrischen Verschiebungen

$$D = E + 4\pi P, \tag{8a}$$

$$D_S = E_S + 4\pi P_S, \tag{8b}$$

$$D_A = E_A + 4\pi P_A \tag{8c}$$

ein, so ergeben sich Ausdrücke der Form:

$$D = \varepsilon_1 E + \varepsilon_2 E_S{}^* + \varepsilon_2 E_A, \tag{9a}$$

$$D_S = \varepsilon_2{}^* E^* + \varepsilon_{S,3}^* E_S + (\varepsilon_3')^* E_A{}^*, \tag{9b}$$

$$D_A = \varepsilon_2 E + \varepsilon_3' E_S{}^* + \varepsilon_{A,3} E_A. \tag{9c}$$

Ersetzt man $B^{22}(\omega)$, $B^{22}(\omega_S)$ und $B^{22}(\omega_A)$ nach (1b), (1d) bzw. (1e) durch $\varepsilon(\omega)$, $\varepsilon(\omega_S) = \varepsilon(\omega_L - \omega)$ bzw. $\varepsilon(\omega_A) = \varepsilon(\omega_L + \omega)$ und beachtet, daß $B^{11} = -\omega_{TO}^2$, wobei ω_{TO} die Frequenz der transversalen optischen Phononen bedeutet, so werden ε_1, ε_2, $\varepsilon_{S,3}$, $\varepsilon_{A,3}$ und ε_3' dargestellt durch:

$$\varepsilon_1(\omega) \equiv \varepsilon(\omega) + \frac{4\pi (B^{12})^2}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2}, \tag{10a}$$

$$\varepsilon_2(\omega, E_L) \equiv 4\pi(D_E E_L) + \frac{4\pi(B^{12} D_Q) E_L}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2} = F(\omega) E_L, \tag{10b}$$

$$\varepsilon_{S,3}(\omega, \omega_L, E_L) \equiv \equiv \varepsilon(\omega_L - \omega) + \frac{4\pi (D_Q E_L)^2}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2} = \varepsilon(\omega_L - \omega) + G(\omega) E_L{}^2, \tag{10c}$$

$$\varepsilon_{A,3}(\omega, \omega_L, E_L) \equiv \equiv \varepsilon(\omega_L + \omega) + \frac{4\pi (D_Q E_L)^2}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2} = \varepsilon(\omega_L + \omega) + G(\omega) E_L{}^2, \tag{10d}$$

$$\varepsilon'(\omega, E_L) = \frac{4\pi (D_Q E_L)^2}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2} = G(\omega) E_L{}^2. \tag{10e}$$

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

$$F(\omega) \equiv 4\pi D_E + \frac{4\pi B^{12} D_Q}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2}, \tag{10f}$$

$$G(\omega) \equiv \frac{4\pi D_Q{}^2}{\omega_{TO}^2 - i\omega\Gamma - \omega^2}. \tag{10g}$$

Offensichtlich bestehen die Beziehungen:

$$\varepsilon_{S,3}(\omega, \omega_L, E_L) - \varepsilon'(\omega, E_L) = \varepsilon(\omega_L - \omega), \tag{10h}$$

$$\varepsilon_{A,3}(\omega, \omega_L, E_L) - \varepsilon'(\omega, E_L) = \varepsilon(\omega_L + \omega). \tag{10i}$$

Statt D_S benötigen wir im folgenden:

$$D_S{}^* = \varepsilon_2 E + \varepsilon_{S,3} E_S{}^* + \varepsilon_{A,3} E_A. \tag{9b'}$$

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

Zur Bestimmung der Koeffizienten $a_{j,0}(\omega, \omega_L)$ betrachten wir wie in [3] zunächst den Grenzfall $E_L = 0$ (ungekoppelte Wellen). In diesem Grenzfall verschwinden das zweite und dritte Glied in (3). Berücksichtigt man noch, daß

$$\varepsilon_{S,3}(\omega, \omega_L, 0) = \varepsilon(\omega_S) = \varepsilon(\omega_L - \omega), \tag{11}$$

$$\varepsilon_{A,3}(\omega, \omega_L, 0) = \varepsilon(\omega_A) = \varepsilon(\omega_L + \omega), \tag{12}$$

so reduziert sich Gl. (3) in [3] auf

$$(n_{\mathrm{P,j}}^2 - \varepsilon_1(\omega))(n_{\mathrm{S,j}}^{*2} - \varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} - \omega)) \times (n_{\mathrm{A,j}}^2 - \varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} + \omega)) = 0\,, \tag{13}$$

d.h. es ergeben sich die drei Gleichungen

$$n_{\mathrm{P,j}}^2 - \varepsilon_1(\omega) = \frac{c^2 K_j{}^2}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega) = 0\,, \quad j = 1, 2\,, \tag{14a}$$

$$n_{\mathrm{S,j}}^{*2} - \varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} - \omega) = \tag{14b}$$
$$= \frac{c^2 (K_{\mathrm{L}} - K_j)^2}{(\omega_{\mathrm{L}} - \omega)^2} - \varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} - \omega) = 0\,, \quad j = 3, 4\,,$$

$$n_{\mathrm{A,j}}^2 - \varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} + \omega) = \tag{14c}$$
$$= \frac{c^2 (K_{\mathrm{L}} + K_j)^2}{(\omega_{\mathrm{L}} + \omega)^2} - \varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} + \omega) = 0\,, \quad j = 5, 6\,.$$

Die Lösungen von (14a) sind die Dispersionsfunktionen der ungekoppelten Polariton-Wellen

$$K_1(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, 0) = \frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_1(\omega)}\,, \tag{15a}$$

$$K_2(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, 0) = -\frac{\omega}{c} \sqrt{\varepsilon_1(\omega)}\,. \tag{15b}$$

Die Lösungen von (14b) sind die Dispersionsfunktionen der ungekoppelten Stokes-Wellen. Unter Beachtung von

$$\omega_{\mathrm{L}} = \left(c/\sqrt{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}})}\right) K_{\mathrm{L}} \tag{16}$$

lassen sie sich in der Form schreiben:

$$K_3(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, 0) = K_{\mathrm{L}} - \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_{\mathrm{S}})}}{c} (\omega_{\mathrm{L}} - \omega) = \left(1 - \sqrt{\frac{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} - \omega)}{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}})}}\right) K_{\mathrm{L}} + \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} - \omega)}}{c}\, \omega\,, \tag{17a}$$

$$K_4(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, 0) = K_{\mathrm{L}} + \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_{\mathrm{S}})}}{c} (\omega_{\mathrm{L}} - \omega) = \left(1 + \sqrt{\frac{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} - \omega)}{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}})}}\right) K_{\mathrm{L}} - \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} - \omega)}}{c}\, \omega\,. \tag{17b}$$

Die Lösungen von (14c) schließlich sind die Dispersionsfunktionen der ungekoppelten Anti-Stokes-Wellen:

$$K_5(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, 0) = -K_{\mathrm{L}} + \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_{\mathrm{A}})}}{c} (\omega_{\mathrm{L}} + \omega) = -\left(1 - \sqrt{\frac{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} + \omega)}{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}})}}\right) K_{\mathrm{L}} + \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} + \omega)}}{c}\, \omega\,, \tag{18a}$$

$$K_6(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, 0) = -K_{\mathrm{L}} - \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_{\mathrm{A}})}}{c} (\omega_{\mathrm{L}} + \omega) = -\left(1 + \sqrt{\frac{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} + \omega)}{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}})}}\right) K_{\mathrm{L}} - \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_{\mathrm{L}} + \omega)}}{c}\, \omega\,. \tag{18b}$$

Die Lösungen $K_j(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, 0)$ nach (15), (17) und (18) sind offensichtlich die gesuchten Koeffizienten $a_{j,0}(\omega, \omega_{\mathrm{L}})$ in der Entwicklung (5) der Arbeit [3]:

$$a_{j,0}(\omega, \omega_{\mathrm{L}}) = K_j(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, 0)\,. \tag{19}$$

3. Berechnung der Koeffizienten $a_{j,2}(\omega, \omega_{\mathrm{L}})$

Wir betrachten zunächst die Wellen 1 und 2, deren Dispersionsfunktionen im Grenzfall $E_{\mathrm{L}} = 0$ durch (15a) und (15b) gegeben werden. Ausgangsgleichung zur Berechnung von $a_{1,2}(\omega, \omega_{\mathrm{L}})$ und $a_{2,2}(\omega, \omega_{\mathrm{L}})$ ist die Dispersionsgleichung (12) in [3]. Sie läßt sich, wenn wir wie in [3] den Faktor

$$P \equiv n_{\mathrm{P}}{}^2 - \varepsilon_1(\omega) \tag{20a}$$

als Polariton-Faktor, den Faktor

$$S \equiv n_{\mathrm{S}}{}^{*2} - \varepsilon_{\mathrm{S},3}(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, E_{\mathrm{L}}) \tag{20b}$$

als Stokes-Faktor und den Faktor

$$A \equiv n_{\mathrm{A}}{}^2 - \varepsilon_{\mathrm{A},3}(\omega, \omega_{\mathrm{L}}, E_{\mathrm{L}}) \tag{20c}$$

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

$$PSA - P(\varepsilon_3{}')^2 - [S + A + 2\varepsilon_3{}']\,\varepsilon_2{}^2 = 0\,. \tag{21}$$

Aus ihr bilden wir die Gleichung erster Ordnung in $E_{\mathrm{L}}{}^2$:

$$P^{(1)} S^{(0)} A^{(0)} - (S^{(0)} + A^{(0)})\,\varepsilon_2{}^2 = 0\,. \tag{22}$$

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

Der weitere Beweisgang ist ganz entsprechend dem in [3], S. 129/130. Das Ergebnis ist:

$$a_{1,2} = (\omega/2c)\, R_1(\omega, \omega_L) \left(F^2(\omega)/\sqrt{\varepsilon_1(\omega)}\right) \quad (23a)$$

und

$$a_{2,2} = (-\,\omega/2c)\, R_2(\omega, \omega_L) \left(F^2(\omega)/\sqrt{\varepsilon_1(\omega)}\right). \quad (23b)$$

Unter Berücksichtigung, daß nach (11) und (12)

$$\varepsilon^{(0)}_{S,3}(\omega, \omega_L) \equiv \varepsilon_{S,3}(\omega, \omega_L, 0) = \varepsilon(\omega_S) = \varepsilon(\omega_L - \omega)$$

und

$$\varepsilon^{(0)}_{S,3}(\omega, \omega_L) \equiv \varepsilon_{A,3}(\omega, \omega_L, 0) = \varepsilon(\omega_A) = \varepsilon(\omega_L - \omega)$$

gilt, ergibt sich jedoch für $R_1(\omega, \omega_L)$ und $R_2(\omega, \omega_L)$ die allgemeinere Form:

$$R_1(\omega, \omega_L) \equiv \frac{1}{S_1^{(0)}(\omega, \omega_L)} + \frac{1}{A_1^{(0}(\omega, \omega_L)} = \frac{1}{\dfrac{c^2 (K_L(\omega_L) - a_{1,0}(\omega))^2}{(\omega_L - \omega)^2} - \varepsilon(\omega_L - \omega)} + \frac{1}{\dfrac{c^2 (K_L(\omega_L) + a_{1,0}(\omega))^2}{(\omega_L + \omega)^2} - \varepsilon(\omega_L + \omega)} \quad (24a)$$

und

$$R_2(\omega, \omega_L) \equiv \frac{1}{S_2^{(0)}(\omega, \omega_L)} + \frac{1}{A_2^{(0)}(\omega, \omega_L)} = \frac{1}{\dfrac{c^2 (K_L(\omega_L) - a_{2,0}(\omega))^2}{(\omega_L - \omega)^2} - \varepsilon(\omega_L - \omega)} + \frac{1}{\dfrac{c^2 (K_L(\omega_L) + a_{2,0}(\omega))^2}{(\omega_L + \omega)^2} - \varepsilon(\omega_L + \omega)}. \quad (24b)$$

Ein Unterschied gegenüber den in [3] gewonnenen Beziehungen (s. (16a) und (16b)) besteht offensichtlich nur in Änderungen der Faktoren $R_1(\omega, \omega_L)$ und $R_2(\omega, \omega_L)$: ε^∞ ist durch $\varepsilon(\omega_L - \omega)$ bzw. $\varepsilon(\omega_L + \omega)$ ersetzt, außerdem sind für $a_{1,0}(\omega)$ und $a_{2,0}(\omega)$ die Ausdrücke (15a) bzw. (15b), kombiniert mit (19), statt der Ausdrücke (7a) bzw. (7b) in [1] (zusammen mit (10)) einzusetzen.

Wegen einer numerischen Auswertung der Gln. (23) für einige charakteristische Grenzfälle sei auf die Arbeit [4] verwiesen.

Für die Berechnung der Dispersionsfunktion $K_3(\omega, \omega_L, E_L)$ der Welle 3 ist im Gegensatz zu [3] zu beachten, daß die Wellen 3 und 5 jetzt im allgemeinen Fall nicht mehr entartet sind. Die Gleichung erster Ordnung (in E_L^2) der Dispersionsgleichung stellt daher bereits eine Bestimmungsgleichung für $a_{3,2}(\omega, \omega_L)$ dar:

$$P_3^{(0)} S_3^{(1)} A_3^{(0)} - A_3^{(0)} \varepsilon_2^2 = 0\,, \quad (25a)$$

d.h.

$$S_3^{(1)} = \varepsilon_2^2/P_3^{(0)} = F^2/P_3^{(0)} E_L^2\,. \quad (25b)$$

Für $S_3^{(1)}$ ergibt sich andererseits aus (20b), (7c) und (12)

$$S_3^{(1)} = \left(\frac{c^2 K^{*2}_{S,3}}{\omega_S^2} - \varepsilon_{S,3}\right)^{(1)} = -\frac{2c^2}{(\omega_L - \omega)^2} (K_L(\omega_L) - a_{3,0}) a_{3,2} E_L^2 - G(\omega) E_L^2 = -\,(\tilde{S}_3(\omega, \omega_L)\, a_{3,2} + G(\omega))\, E_L^2\,. \quad (26)$$

Dabei wurde zur Abkürzung gesetzt:

$$\tilde{S}_3(\omega, \omega_L) \equiv \frac{2c^2}{(\omega_L - \omega)^2} (K_L(\omega_L) - a_{3,0}(\omega, \omega_L)) = \frac{2c\sqrt{\varepsilon(\omega_L - \omega)}}{\omega_L - \omega}\,, \quad (27)$$

letzteres wegen (19) und (17a). Aus (25b) und (26) ergibt sich daher:

$$-\,\tilde{S}_3(\omega, \omega_L)\, a_{3,2}(\omega, \omega_L) - G(\omega) = F^2(\omega)/P_3^{(0)}(\omega, \omega_L)\,, \quad (28a)$$

d.h.

$$a_{3,2}(\omega, \omega_L) = -\frac{1}{\tilde{S}_3(\omega, \omega_L)} \left(G(\omega) + \frac{F^2(\omega)}{P_3^{(0)}(\omega, \omega_L)}\right). \quad (28b)$$

$P_3^{(0)}$ ist darin nach (20a), (17a) und (16) gegeben durch:

$$P_3^{(0)}(\omega, \omega_L) = (n^2_{P,3})^{(0)} - \varepsilon_1(\omega) = \frac{c^2 K_3^2(\omega, \omega_L, 0)}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega) = \frac{c^2 \left(K_L - \dfrac{\sqrt{\varepsilon(\omega_L - \omega)}}{c} (\omega_L - \omega)\right)^2}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega)$$
$$= \left((\sqrt{\varepsilon(\omega_L)} - \sqrt{\varepsilon(\omega_L - \omega)}) \frac{\omega_L}{\omega} + \sqrt{\varepsilon(\omega_L - \omega)}\right)^2 - \varepsilon_1(\omega)\,. \quad (29)$$

Der Koeffizient $a_{4,2}(\omega, \omega_L)$ ergibt sich ganz entsprechend aus:

$$P_4^{(0)} S_4^{(1)} A_4^{(0)} - A_4^{(0)} \varepsilon_2^2 = 0\,, \quad (30a)$$

d.h.

$$S_4^{(1)} = \varepsilon_2{}^2/P_4{}^{(0)} = F^2/P_4{}^{(0)}\,E_L{}^2 \tag{30b}$$

und

$$S_4^{(1)} = \left(\frac{c^2\,K^{*2}_{S,4}}{\omega_S{}^2} - \varepsilon_{S,3}\right)^{(1)} = -\frac{2c^2}{(\omega_L-\omega)^2} \times (K_L(\omega_L) - a_{4,0})\,a_{4,2}\,E_L{}^2 - G(\omega)\,E_L{}^2 = -(\tilde S_4(\omega,\omega_L)\,a_{4,2} + G(\omega))\,E_L{}^2. \tag{31}$$

Dabei wurde die Abkürzung gesetzt:

$$\tilde S_4(\omega,\omega_L) \equiv \frac{2c^2}{(\omega_L-\omega)^2}(K_L(\omega_L) - a_{4,0}(\omega,\omega_L)) = \frac{-2c\sqrt{\varepsilon(\omega_L-\omega)}}{\omega_L-\omega}, \tag{32}$$

letzteres nach (19) und (17b). Durch Kombination von (30b) und (31) ergibt sich also:

$$-\tilde S_4(\omega,\omega_L)\,a_{4,2}(\omega,\omega_L) - G(\omega) = \frac{F^2(\omega)}{P_4{}^{(0)}(\omega,\omega_L)} \tag{33a}$$

$$a_{4,2}(\omega,\omega_L) = -\frac{1}{\tilde S_4(\omega,\omega_L)} \times \left(G(\omega) + \frac{F^2(\omega)}{P_4{}^{(0)}(\omega,\omega_L)}\right). \tag{33b}$$

$P_4{}^{(0)}(\omega,\omega_L)$ ist darin nach (20a), (17b) und (16) gegeben durch:

$$P_4{}^{(0)}(\omega,\omega_L) = (n^2_{P,4})^{(0)} - \varepsilon_1(\omega) = \frac{c^2\,K_4{}^2(\omega,\omega_L,0)}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega) = \frac{c^2\left(K_L + \frac{\sqrt{\varepsilon(\omega_L-\omega)}}{c}(\omega_L-\omega)\right)^2}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega)$$
$$= \left((\sqrt{\varepsilon(\omega_L)} + \sqrt{\varepsilon(\omega_L-\omega)})\frac{\omega_L}{\omega} - \sqrt{\varepsilon(\omega_L-\omega)}\right)^2 - \varepsilon_1(\omega). \tag{34}$$

Die Berechnung von $a_{5,2}(\omega,\omega_L)$ und $a_{6,2}(\omega,\omega_L)$ für die Wellen 5 und 6, die für $E_L = 0$ mit den ungekoppelten Anti-Stokes-Wellen identisch sind, erfolgt ganz analog. Wir können uns daher darauf beschränken, die Ergebnisse anzugeben:

$$a_{5,2}(\omega,\omega_L) = \frac{1}{\tilde A_5(\omega,\omega_L)}\left(G(\omega) + \frac{F^2(\omega)}{P_5{}^{(0)}(\omega,\omega_L)}\right) \tag{35a}$$

und

$$a_{6,2}(\omega,\omega_L) = \frac{1}{\tilde A_6(\omega,\omega_L)}\left(G(\omega) + \frac{F^2(\omega)}{P_6{}^{(0)}(\omega,\omega_L)}\right), \tag{35b}$$

wobei

$$\tilde A_5(\omega,\omega_L) \equiv \frac{2c^2}{(\omega_L+\omega)^2}(K_L(\omega) + a_{5,0}(\omega,\omega_L)) = \frac{2c\sqrt{\varepsilon(\omega_L+\omega)}}{\omega_L+\omega}, \tag{35c}$$

$$\tilde A_6(\omega,\omega_L) \equiv \frac{2c^2}{(\omega_L+\omega)^2}(K_L(\omega) + a_{6,0}(\omega,\omega_L)) = \frac{-2c\sqrt{\varepsilon(\omega_L+\omega)}}{\omega_L+\omega} \tag{35d}$$

und

$$P_5{}^{(0)}(\omega,\omega_L) = \left((\sqrt{\varepsilon(\omega_L)} - \sqrt{\varepsilon(\omega_L+\omega)})\frac{\omega_L}{\omega} - \sqrt{\varepsilon(\omega_L+\omega)}\right)^2 - \varepsilon_1(\omega), \tag{35e}$$

$$P_6{}^{(0)}(\omega,\omega_L) - \left((\sqrt{\varepsilon(\omega_L)} + \sqrt{\varepsilon(\omega_L+\omega)})\frac{\omega_L}{\omega} + \sqrt{\varepsilon(\omega_L+\omega)}\right)^2 - \varepsilon_1(\omega). \tag{35f}$$

Damit sind die Dispersionsgleichungen im Rahmen der hier behandelten Näherung für alle sechs gekoppelten Wellen vollständig bestimmt.

Abschließend sei noch der Spezialfall betrachtet, daß die (lineare) dielektrische Funktion keine Dispersion zeigt. Dies entspricht dem in [3] behandelten Fall. In diesem Fall gilt:

$$\varepsilon(\omega_L) = \varepsilon(\omega_A) = \varepsilon(\omega_S) = \varepsilon(\omega) = \varepsilon^\infty. \tag{36}$$

Wir betrachten zunächst die Wellen 4 und 6: Gl. (34) geht offensichtlich über in:

$$P_4{}^{(0)}(\omega,\omega_L) = \left(2\sqrt{\varepsilon^\infty}\frac{\omega_L}{\omega} - \sqrt{\varepsilon^\infty}\right)^2 - \varepsilon_1(\omega) = \varepsilon^\infty\frac{(2\omega_L-\omega)^2}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega) \tag{37a}$$

und (35f) über in:

$$P_6{}^{(0)}(\omega,\omega_L) = \left(2\sqrt{\varepsilon^\infty}\frac{\omega_L}{\omega} + \sqrt{\varepsilon^\infty}\right)^2 - \varepsilon_1(\omega) = \varepsilon^\infty\frac{(2\omega_L+\omega)^2}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega). \tag{37b}$$

Nach (24), (8b) und (10) in [3] ist andererseits

$$P_4{}^{(0)}(\omega,\omega_L) = \frac{c^2}{\omega^2}a^2_{4,0}(\omega,\omega_L) - \varepsilon_1(\omega) \tag{38}$$
$$= \frac{c^2}{\omega^2}\left(2K_L(\omega_L) - \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c}\omega\right)^2 - \varepsilon_1(\omega)$$

oder, wenn man noch

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

berücksichtigt:

$$P_4{}^{(0)}(\omega, \omega_L) = \varepsilon^\infty \frac{(2\omega_L - \omega)^2}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega)\,. \tag{40}$$

Entsprechend ergibt sich nach (30), (9b) und (10) in [3]

$$\begin{aligned} P_6{}^{(0)}(\omega, \omega_L) &= \frac{c^2}{\omega^2}\, a_{6,0}^2(\omega, \omega_L) - \varepsilon_1(\omega) \\ &= \frac{c^2}{\omega^2}\left(2K_L(\omega_L) + \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c}\,\omega\right)^2 \\ &\quad - \varepsilon_1(\omega) \end{aligned} \tag{41}$$

oder unter Berücksichtigung von (39)

$$P_6{}^{(0)}(\omega, \omega_L) = \varepsilon^\infty \frac{(2\omega_L + \omega)^2}{\omega^2} - \varepsilon_1(\omega)\,. \tag{42}$$

Die Gln. (37a) und (37b) stimmen also mit (40) bzw. (42) überein. Da die Faktoren $G(\omega)$ und $F(\omega)$ nicht von der dielektrischen Funktion abhängen, stimmt daher die runde Klammer in (33b) mit der eckigen Klammer in (22c) aus [3] und die runde Klammer in (35b) mit der eckigen Klammer in (28c) aus [3] überein.

Zusätzlich ist jedoch noch der erste Faktor $-1/\tilde{S}_4(\omega, \omega_L)$ in (33b) bzw. $1/\tilde{A}_6(\omega, \omega_L)$ in (35b) zu betrachten. Aus (32) bzw. (35d) folgt unter der Annahme (36) offensichtlich:

$$-\frac{1}{\tilde{S}_4(\omega, \omega_L)} = \frac{\omega_L - \omega}{2c\sqrt{\varepsilon^\infty}} \tag{43}$$

bzw.

$$\frac{1}{\tilde{A}_6(\omega, \omega_L)} = -\frac{\omega_L + \omega}{2c\sqrt{\varepsilon^\infty}}\,. \tag{44}$$

Die beiden Faktoren sind jedoch identisch mit dem ersten Faktor in (22c) in [3]:

$$\frac{K_L(\omega_L) - \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c}\,\omega}{2\varepsilon^\infty} = \frac{\omega_L - \omega}{2c\sqrt{\varepsilon^\infty}} \tag{45}$$

bzw. dem ersten Faktor in (28c) in [3]:

$$\frac{K_L(\omega_L) + \frac{\sqrt{\varepsilon^\infty}}{c}\,\omega}{2\varepsilon^\infty} = \frac{\omega_L + \omega}{2c\sqrt{\varepsilon^\infty}}\,, \tag{46}$$

wobei für $K_L(\omega_L)$ wieder der Ausdruck (39) eingesetzt wurde.

Damit ist gezeigt, daß die Dispersionsfunktionen der Wellen 4 und 6 mit den Dispersionsfunktionen der Wellen 4 und 6 in [3] für den Spezialfall einer dispersionsfreien (linearen) dielektrischen Funktion übereinstimmen.

Für die Wellen 3 und 5 sind jedoch die in dieser Arbeit hergeleiteten Ausdrücke für die Dispersionsfunktionen im Spezialfall einer dispersionsfreien dielektrischen Funktion nicht anwendbar. Dies hängt damit zusammen, daß die Wellen 3 und 5 in diesem Spezialfall miteinander entarten. Für die entarteten Wellen sind die in [3], Abschnitt 5, hergeleiteten Ausdrücke zu benutzen. Der Beweis hierfür soll im Zusammenhang mit der numerischen Auswertung der Dispersionsgleichungen für spezielle Substanzen [4] gegeben werden.

Wir danken der Deutschen Forschungsgemeinschaft für finanzielle Unterstützung der Arbeit.

Berichtigung

1. In Gl. (6), S. 127, in [3] fehlt der Index j zu n_S und n_A. Die Gleichung lautet richtig:

$$(n_{P,j}^2 - \varepsilon_1(\omega))(n_{S,j}^{*2} - \varepsilon^\infty)(n_{A,j}^2 - \varepsilon^\infty) = 0\,. \tag{6}$$

2. Gl. (35a), S. 132, in [3] lautet richtig:

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

[1] J. Wenk u. L. Merten, phys. stat. sol. (b) **93**, 175 (1979).
[2] G. Borstel, L. Merten u. R. Rath, Z. Naturforsch. **30a**, 1233 (1975).
[3] L. Merten u. J. Wenk, Z. Naturforsch. **34a**, 126 (1979).
[4] J. Wenk u. L. Merten, phys. stat. sol. (b), in Vorbereitung.