

Erzwungener Raman-Effekt an ausgedehnten Defektstrukturen in LiF

G. HEILMANN

Pädagogische Hochschule Eichstätt

(Z. Naturforsch. 25 a, 980 [1970]; eingegangen am 9. Mai 1970)

Raman-Effekt des idealen Kristallgitters von LiF tritt auf, wenn die 632,8 nm-Strahlung eines He-Ne-Lasers auf ausgedehnte Defektstrukturen mit Durchmessern in der Größenordnung von 10μ und darüber fokussiert wird¹. Die wichtigsten Merkmale dieser Spektren sind

1. das Auftreten von Linien, die Ein-, Zwei- und Dreiphononen-Prozessen zugeordnet werden können,
2. die geringe Intensität im Spektralbereich bis 1000 cm^{-1} ,
3. das Verschwinden von Einzelheiten ihrer Struktur mit wachsender Intensität der anregenden Strahlung, das auf einen Schwellwert hindeutet,
4. ihr Fehlen in der vorwärts gestreuten Strahlung und
5. ihr Fehlen, wenn sich keine Defektstruktur der genannten Art im Fokus der anregenden Strahlung befindet.

Die Raman-Streuung im ungestörten Kristallinneren hat also nach 5. einen anderen Anregungsmechanismus als die hier beschriebene an Defektstrukturen.

Eine solche Defektstruktur im Kristallinneren erscheint bei ultramikroskopischer Beobachtung meist als nahezu kugelförmiger Kristallit. In ² zeigen Abb. 1 und Abb. 2 einen besonders ausgedehnten Defekt, der auch zur Anregung von Raman-Spektren benutzt wurde. Ähnliche, als „negative Kristalle“ bezeichnete Defekte gibt es z. B. auch in Cu_2O -Einkristallen³. Wie erst jetzt bekannt wird⁴, ist der zur Messung verwandte, farblose LiF-Einkristall Teilstück eines im Vakuum gezogenen größeren, der zur Erzeugung von Farbzentren mit kurzwelliger Röntgen-Strahlung bestrahlt worden ist.

Die Defekte sind nach dem Herstellungsverfahren der Kristalle wahrscheinlich Hohlräume. Wegen der Röntgen-Bestrahlung können sie auch F_2 enthalten⁵. Ihre in den Kristall hineingewachsenen Oberflächen bleiben so vor äußeren Einwirkungen geschützt und sind daher als besonders gut zu bezeichnen. Damit ist gemeint, daß sich dort die Störung des idealen Kristall-

gitters auf viel weniger Atomlagen beschränkt, als das an freien Oberflächen der Fall sein kann.

Fast gleichzeitig zeigten GAVRIKOV, KATS und KONTOROVICH⁶ mit einer klassischen Theorie, daß an der Trennfläche zweier Medien, die groß ist im Vergleich zur Wellenlänge der anregenden Strahlung, bei genügender Intensität mit einem Schwellwert eine nicht-lineare erzwungene Raman-Streuung zu erwarten ist, die in allen Teilen den Beobachtungen entspricht. Solche Trennflächen sind an den genannten Defekten realisiert.

Auf einer solchen Trennfläche existieren bekanntlich Oberflächenwellen, die durch die angrenzenden Medien bestimmt sind⁷. Die anregende Strahlung veranlaßt dort eine Streuung mit Verschiebungen um diese Frequenzen. An der Trennfläche entsteht durch den mit dieser Streuung verbundenen Energieverlust ein Lichtdruck. Bei ausreichender Intensität schaukeln sich Schwingungen der Trennfläche auf, wenn die elastischen Konstanten nicht zu große Werte haben. Damit kommt es bei Kristallen zur Kopplung mit den Gitterschwingungen. Es entsteht ein erzwungener Raman-Effekt höherer Intensität, als beim gewöhnlichen Raman-Effekt im ungestörten Kristallinneren zu erwarten ist.

Die komplexe Amplitude des elektrischen Feldes des gestreuten Lichtes ist nach⁶

$$E = -\frac{1}{2} i \zeta^* (\epsilon - 1) (C E_1 + B H_1).$$

Dabei bedeutet ζ die Amplitude der Oberflächenwelle, E_1 und H_1 die elektrische und magnetische Feldstärke der anregenden Strahlung, C und B von den Wellenzahlvektoren der anregenden und gestreuten Strahlung abhängende Konstanten und ϵ das Verhältnis der Dielektrizitätskonstanten vom ersten und zweiten Medium. Bei LiF hat die Dielektrizitätskonstante im Spektralbereich von 300 bis 1000 cm^{-1} einen sehr großen, mit wachsender Wellenzahl abnehmenden Imaginärteil⁸, der dort eine starke Absorption zur Folge hat. Schließlich verschwinden die Konstanten C und B bei streifendem Einfall und verhindern damit Raman-Licht in Vorwärtssreuung.

Die mit dem Raman-Effekt an ausgedehnten Defekten verbundenen Erscheinungen sind also alle in dieser Theorie enthalten. Er hat damit seine theoretische Deutung gefunden.

¹ G. HEILMANN, Z. Physik **214**, 402 [1968]; **215**, 431 [1968]; Physics Letters (Neth.) **28 A**, 222 [1968].

² G. HEILMANN, Z. Angew. Phys. **17**, 482 [1964].

³ S. NIKITINE, Laboratoire de Spectroscopie et d'Optique du Corps Solide, Strasbourg, Frankreich: private Mitteilung.

⁴ E. E. SCHNEIDER, School of Physics, Solid State Group, Newcastle upon Tyne, England: private Mitteilung.

⁵ I. V. TELEGINA u. E. V. KOLONTOVA, Sov. Phys. Dokl. **14**, 714 [1969].

⁶ V. K. GAVRIKOV, A. V. KATS u. V. M. KONTOROVICH, Sov. Phys. Dokl. **14**, 564 [1969].

⁷ R. FUCHS u. K. L. KLIWER, J. Opt. Soc. Amer. **58**, 319 [1968]. — R. F. WALLIS u. D. C. GAZIS, Lattice Dynamics, Oxford 1965, Pergamon.

⁸ G. HEILMAN, Z. Physik **152**, 368 [1958].