

**Modifikation der Materialeigenschaften  
von Lithiumniobat durch  
Teilchenbestrahlung**

**von**

**Hilke Hattermann**

**Diplomarbeit in Physik  
angefertigt am  
Helmholtz-Institut für Strahlen- und Kernphysik  
vorgelegt der  
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät  
der  
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn  
im Januar 2007**



Ich versichere, dass ich diese Arbeit selbständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie die Zitate als solche kenntlich gemacht habe.

Referent: Prof. Dr. K. Maier  
Korreferent: Prof. Dr. M. Fiebig



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Lithiumniobat . . . . .	3
2.1.1	Allgemeine Eigenschaften . . . . .	3
2.1.2	Kristallstruktur und Polarisierung . . . . .	4
2.1.3	Optisches Verhalten . . . . .	6
2.2	Strahlenschäden . . . . .	7
<b>3</b>	<b>Experimentelle Methoden</b>	<b>11</b>
3.1	Bestrahlung am Zyklotron . . . . .	11
3.2	Interferometrische Messung der Brechungsindexänderung . . . . .	14
3.3	Polen der Kristalle . . . . .	18
<b>4</b>	<b>Untersuchung von <math>\text{LiNbO}_3:\text{Mg}</math></b>	<b>23</b>
4.1	Bestrahlung mit $^3\text{He}$ . . . . .	23
4.2	Messungen und Ergebnisse . . . . .	24
4.2.1	Gammapektrum . . . . .	24
4.2.2	Verfärbung der Kristalle . . . . .	27
4.2.3	Änderung von Brechungsindex und Probendicke . . . . .	27
4.2.4	Polen der Kristalle . . . . .	31
4.3	Diskussion der Ergebnisse . . . . .	35
<b>5</b>	<b>Erzeugung eines Beugungsgitters in <math>\text{LiNbO}_3</math></b>	<b>39</b>
5.1	Praktische Durchführung . . . . .	39
5.1.1	Bestrahlungsaufbau und Konstruktion der Blende . . . . .	39
5.1.2	Bestrahlung mit $^3\text{He}$ . . . . .	43
5.1.3	Messung des Beugungswirkungsgrades . . . . .	43
5.2	Ergebnisse . . . . .	45
5.2.1	Untersuchung mit dem Lichtmikroskop . . . . .	45
5.2.2	Brechungsindex- und Dickenänderung . . . . .	46
5.2.3	Beugungswirkungsgrad . . . . .	48
5.3	Diskussion . . . . .	49
<b>6</b>	<b>Ausblick</b>	<b>51</b>

7 Zusammenfassung	53
Literaturverzeichnis	55
Danksagung	59

# Kapitel 1

## Einleitung

Die rasant zunehmende Datenflut hat in den letzten Jahren dazu geführt, dass die schnelle optische Datenübertragung gegenüber der relativ langsamen Übermittlung auf elektrischem Wege immer mehr an Bedeutung gewinnt. Damit einher geht der Wunsch, die Signale auch mit optischen Methoden zu erzeugen, gezielt umzuwandeln und zu leiten. Neben den zur Signalübertragung verwendeten Glasfasern werden Komponenten zur Erzeugung und Steuerung des Lichtes, seiner Modifikation und Detektion benötigt. Ein vor etwa 80 Jahren erstmals hergestelltes [Wen05b], zuvor unbekanntes kristallines Material hat sich hierbei als gut geeignet erwiesen: Lithiumniobat. Seitdem wurde das neue Material gründlich erforscht und wird heute aufgrund seiner interessanten Eigenschaften und der verhältnismäßig kostengünstigen, großtechnisch möglichen Herstellung vielfältig genutzt. Beispiele sind die Erzeugung holographischer Speicher und optischer Wellenleiter, die Produktion von Bauteilen zur Frequenzverdopplung und Phasenanpassung sowie integrierte Laser und Interferometer [Cha87, Buc94]. Für den Bau derartiger optischer Komponenten ist es häufig erforderlich, den Brechungsindex und die spontane Polarisierung des Lithiumniobatkristalls gezielt zu verändern.

Diese Materialeigenschaften lassen sich durch die Bestrahlung mit schnellen, leichten Ionen beeinflussen [Tow94, Won02]. Die Verwendung von  $^3\text{He}$ -Ionen mit einer Energie von gut 40 MeV in den letzten Jahren führte so beispielsweise zu langzeitbeständigen und großvolumigen Modifikationen des Brechungsindex im Bereich von  $10^{-3}$  [And04, Pei06b] und der Erzeugung eines vergrabenen Wellenleiters [Pei06a]. Bisher ungeklärt ist die Frage, ob vergleichbare Brechungsindexänderungen auch in mit Magnesium dotiertem Lithiumniobat, welches aufgrund des stark unterdrückten photorefraktiven Effektes interessant für viele Anwendungen ist, erzeugt werden können und ob sich die ferroelektrischen Eigenschaften, insbesondere das Verhalten beim Umpolen von Domänen, durch die Bestrahlung verändern. Die Erzeugung einer periodischen Brechungsindexmodulation in kongruent schmelzendem Lithiumniobat wurde ebenfalls noch nicht realisiert. Diese zwei Aspekte werden in dieser Arbeit verfolgt.

Der erste Teil der Messungen besteht aus einer Untersuchung von mit 5% Magne-

sium dotiertem Lithiumniobat. Es soll zum einen ermittelt werden, wie durch eine Bestrahlung mit gut 40 MeV  $^3\text{He}$ -Ionen der Brechungsindex, die Kristalldicke und Färbung verändert werden - auch im Vergleich zum kongruent schmelzenden Material - und welche radioaktiven Isotope im Kristall erzeugt werden. Zum anderen werden bestrahlte  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Proben gepolt. Da die Nukleationskeime vorrangig an Defekten im Kristall entstehen, besteht die Erwartung, dass eine Bestrahlung des Kristalls und damit Erhöhung der Defektdichte zu einer Veränderung des Koerzitivfeldes führt. Diese Hypothese soll überprüft werden.

Der zweite Schwerpunkt liegt in der Erzeugung einer regelmäßigen Modulation des Brechungsindex in kongruent schmelzendem Lithiumniobat. Die verwendete Methode besteht aus der Bestrahlung des Kristalls durch eine Schlitzblende mit einigen Mikrometern Schlitzbreite und dem Verschieben des Kristalls in festen Zeitabständen, um so eine periodische Abfolge bestrahlter und unbestrahlter Bereiche zu erhalten. Bei einer Periode von wenigen Mikrometern kann eine derart erzeugte Struktur als Beugungsgitter für sichtbares Licht dienen.

# Kapitel 2

## Grundlagen

### 2.1 Lithiumniobat

#### 2.1.1 Allgemeine Eigenschaften

Lithiumniobat ist ein relativ harter und für sichtbares Licht transparenter Ionenkristall, bestehend aus Sauerstoff- ( $O^{2-}$ ), Lithium- ( $Li^+$ ) und Niob-Ionen ( $Nb^{5+}$ ). Die chemische Summenformel lautet  $LiNbO_3$  und die Dichte  $\rho$  beträgt  $4,64 \text{ g/cm}^3$  [Jaz02].

In der Regel wird Lithiumniobat mit Hilfe des so genannten Czochralski-Verfahrens hergestellt. Hierbei wird der Kristall bei ca.  $1253 \text{ }^\circ\text{C}$ , also knapp oberhalb der Schmelztemperatur, direkt aus einer Schmelze von  $Li_2O$  und  $Nb_2O_5$  gezogen [Won02, S. 25ff]. Das so erzeugte Lithiumniobat wird als kongruent schmelzend bezeichnet. Es besitzt gegenüber der stöchiometrischen Summenformel einen Mangel an ca. 6% Lithium, wobei für die Konzentrationen  $C_{Li}$  und  $C_{Nb}$  von Lithium und Niob gilt:  $\frac{C_{Li}}{C_{Li}+C_{Nb}}=48,5\%$  [Jaz02]. Die richtige Summenformel für eine solche Zusammensetzung lautet also eigentlich  $Li_{0,9405}Nb_{1,0119}O_3$ . Aus Gründen der Vereinfachung wird eine solche Verbindung jedoch im Allgemeinen als kongruent schmelzendes  $LiNbO_3$  bezeichnet. Auf Lithiumfehlstellen werden teilweise Niobionen eingebaut, die jedoch im Gegensatz zu den einfach geladenen Lithiumionen fünffach positiv geladen sind. Daher werden zur Ladungskompensation zusätzliche Niobfehlstellen erzeugt, so dass der Kristall am Ende insgesamt etwa 4,7% Niobfehlstellen enthält [Abr86, Won02, S. 3-7]. Damit sind diese Fehlstellen die im Kristall vorherrschende Art an Defekten, die beispielweise Diffusionsprozesse maßgeblich beeinflussen [Bir93]. Durch eine Veränderung der Zusammensetzung der Schmelze, aus der das Lithiumniobat gezogen wird, lässt sich auch stöchiometrisch zusammengesetztes Material sowie  $LiNbO_3$  mit einer anderen Lithiumkonzentration erzeugen. Bei der Herstellung von Lithiumniobat nach dem Czochralski-Verfahren erhält man zylindrische Boules, die in dünne Wafer geschnitten werden können. Die für diese Diplomarbeit verwendeten, kommerziell bezogenen Proben wurden aus derart hergestellten Wafern gesägt.

### 2.1.2 Kristallstruktur und Polarisierung

Die Kristallstruktur von Lithiumniobat besteht aus ebenen Lagen von Sauerstoffionen, die in einer verzerrten hcp-Struktur angeordnet sind. Dazwischen befinden sich die Niob- und Lithiumionen. Bei Raumtemperatur bewirken die elastischen Kräfte im Kristall dabei, dass die Anionen gegenüber dem Sauerstoff leicht aus ihren symmetrischen Positionen verschoben sind. In eine Richtung des Kristalls entsteht dadurch eine spontane Polarisierung  $\vec{P}_S$ . Abbildung 2.1 zeigt dies schematisch. Nach

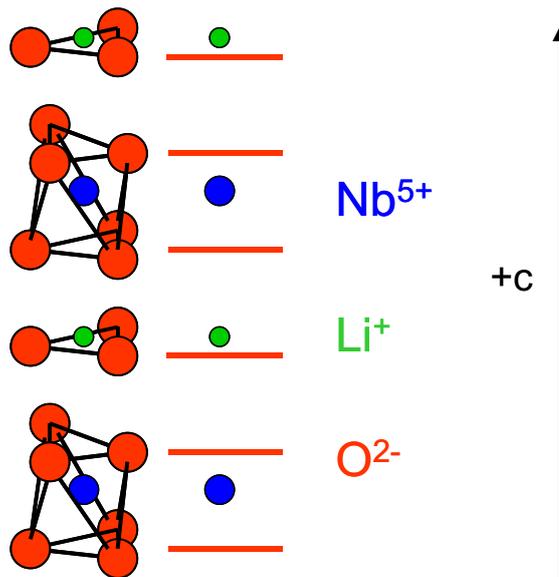


Abbildung 2.1: Spontane Polarisierung des Lithiumniobatkristalls unterhalb der Curie-Temperatur  $T_C$  (nach [Wei85])

außen bleibt der Kristall jedoch neutral, da frei bewegliche Ladungsträger für eine Ladungskompensation an den Oberflächen sorgen. Lithiumniobat ist zudem ein ferroelektrisches Material, wobei sich ähnlich wie bei einem Ferromagneten Bereiche gleicher Orientierung bilden können, die als Domänen bezeichnet werden. Die Richtung der Polarisierung wird hierbei durch die  $c$ -Achse angegeben. Um diese Achse herum besitzt Lithiumniobat eine dreizählige Rotationssymmetrie, so dass das Material zur Punktgruppe  $3m$  gehört [Wei85]. Wird ein Koordinatensystem zur Beschreibung eines Kristalls verwendet, so legt man die  $z$ -Achse im Allgemeinen parallel zur  $c$ -Achse. Bei dünnen Proben, die aus Wafern geschnitten wurden, wird zur Kennzeichnung die Achse, die senkrecht zu den großen Oberflächen liegt, angegeben. Bei einem  $z$ -cut Kristall zum Beispiel ist dies dann die  $z$ -Achse.

Die Kristallstruktur von Lithiumniobat ist temperaturabhängig. Steigt die Temperatur nämlich, so besitzen die Kationen irgendwann genügend Energie, um durch die Sauerstofflagen durchzuschwingen. Im Mittel nehmen sie dadurch eine symmetrische Position ein, was zu einem Verschwinden der Vorzugsrichtung  $c$  und damit der spontanen Polarisierung  $\vec{P}_S$  führt. Der Lithiumniobatkristall ist nun nicht mehr ferroelektrisch, sondern paraelektrisch. Die Übergangstemperatur heißt in Analogie zum Ferromagnetismus Curie-Temperatur. Die Curie-Temperatur  $T_C$  ist abhängig

von der genauen Zusammensetzung des Kristalls und beträgt für kongruent schmelzendes  $\text{LiNbO}_3$  etwa  $1210\text{ °C}$  [Wei85].

In Lithiumniobat kann der piezoelektrische Effekt beobachtet werden, bei dem eine Deformation des Kristalls eine zusätzliche Polarisierung erzeugt. Auch der umgekehrte piezoelektrische Effekt, der zu einer Verformung des Materials durch das Anlegen eines elektrischen Feldes führt, tritt auf. Zudem ist  $\text{LiNbO}_3$  pyroelektrisch, d. h. die Polarisierung des Kristalls ist temperaturabhängig.

Bei Temperaturen unterhalb der Curie-Temperatur kann die spontane Polarisierung um  $180\text{ °}$  gedreht werden. Man spricht dann vom Umpolen bzw. Polen des Kristalls. Praktisch geschieht dies durch Anlegen eines elektrischen Feldes, das mindestens so groß wie das erforderliche Koerzitivfeld  $E_C$  ist, welches für kongruent schmelzendes  $\text{LiNbO}_3$  etwa  $21\text{ kV/mm}$  beträgt [Wen04, Wen05a]. Dadurch werden die Lithiumionen durch die Sauerstoffebenen gedrückt und auch die Niobionen werden nun zur anderen Seite hin aus ihren symmetrischen Positionen verschoben. Das Umklappen der spontanen Polarisierung führt gleichzeitig zu einer Umverteilung der Kompensationsladungen, so dass sich der Polungsvorgang durch einen Stromfluss  $I$  bemerkbar macht. Die insgesamt umverteilte Ladung  $Q$  ergibt sich aus dem Betrag der spontanen Polarisierung  $P_S$  und der Größe der umgepolten Fläche  $A$ :

$$Q = 2P_S A \quad (2.1)$$

$$I = 2P_S \frac{dA}{dt} \quad (2.2)$$

Die Größe des Stromes ist also abhängig von  $\frac{dA}{dt}$  und damit von der Geschwindigkeit, mit der der Polungsprozess abläuft. Wird die Feldstärke  $E$  linear mit der Zeit erhöht, so beginnt der Polungsvorgang bereits vor Erreichen der Koerzitivfeldstärke, indem sich einzelne Nukleationskeime bestehend aus kleinen bereits umgeklappten Domänen bilden. Bei steigender Feldstärke wachsen diese Domänen und können miteinander verschmelzen, bis schließlich der gesamte Kristall umgepolt ist [Wen05b]. Im Allgemeinen können die Proben mehrfach hin- und zurückgepolt werden. Dabei ergibt sich, dass die Koerzitivfelder für die Polung in Vorwärtsrichtung  $E_C^v$  und die Rückpolung  $E_C^r$  unterschiedlich sind. Der Grund ist ein zusätzlich existierendes inneres Feld  $E_i = \frac{1}{2}(E_C^v - E_C^r)$ , welches durch im Kristall bereits vorhandene Defekte wie beispielsweise Fehlstellen entsteht [Gop98, Pat05]. Zudem ist das Koerzitivfeld beim ersten Polungsvorgang in der Regel ebenfalls erhöht und nimmt dann bei weiteren Polungszyklen noch leicht ab. Bei einer höheren Polungsgeschwindigkeit und größerem  $\frac{dU}{dt}$ , also einem rascheren Erhöhen der Spannung und damit des anliegenden elektrischen Feldes, misst man im Allgemeinen eine höhere Koerzitivfeldstärke, da die Nukleation und das Wachstum der Domänen eine gewisse Zeit benötigt. Bei einer langsameren Polungsgeschwindigkeit invertieren viele Domänen dagegen schon bei einer niedrigeren Feldstärke und Unterschiede im Polungsverhalten einzelner Bereiche des Kristalls werden deutlicher. Die Nukleationskeime entstehen hierbei vorrangig an Defekten im Kristall.

### 2.1.3 Optisches Verhalten

Aufgrund seiner Kristallstruktur ist Lithiumniobat doppelbrechend, d. h. der Brechungsindex  $n$  ist abhängig von der Polarisation des einfallenden Lichtes. Für Licht eines HeNe-Lasers mit einer Wellenlänge von  $\lambda=632,8$  nm beträgt der Brechungsindex nach [Wei85] für ordentliche Polarisation, d. h. Polarisation senkrecht zur  $c$ -Achse,  $n_o=2,2866$ . Ist das Licht dagegen parallel zur  $c$ -Achse polarisiert, so beträgt der außerordentliche Brechungsindex  $n_e$  nur 2,2028. Die Doppelbrechung  $n_e - n_o$  ist somit negativ, wobei der absolute Wert nicht nur von der Wellenlänge des Lichtes, sondern auch von der Temperatur abhängig ist [Wei85].

Der Brechungsindex  $n$  von Lithiumniobat kann über den so genannten elektrooptischen Effekt beeinflusst werden. Dabei ändert sich  $n$  durch das Anlegen eines elektrischen Feldes. Eine Änderung des Brechungsindexes ist auch mittels des photorefraktiven Effektes möglich [Ash66, Che68]. Dieser tritt in  $\text{LiNbO}_3$ -Kristallen auf, die z. B. mit Eisen oder Kupfer dotiert bzw. verunreinigt sind. Eine punktuelle Beleuchtung des Kristalls erzeugt bewegliche Ladungsträger, die durch den Kristall wandern und an einer anderen Stelle eingefangen werden können [Kuk76, Kuk79]. Durch die resultierende Verlagerung von Ladungsträgern entstehen Raumladungsfelder, die über den elektrooptischen Effekt zu einer Änderung des Brechungsindexes führen, was auch als optischer Schaden bezeichnet wird. Dieser kann auf verschiedene Weisen eliminiert werden [Pei00]. Eine Methode stellt die Dotierung des Lithiumniobatkristalls mit Fremdionen wie beispielsweise Magnesium, Zink oder Indium dar. Dabei verhindert die resultierende Erhöhung der Leitfähigkeit den Bestand statischer Raumladungsfelder. Allerdings muss zur wirksamen Reduktion des optischen Schadens die Dotierung eine bestimmte Schwelle überschreiten [Swe84]. Diese hängt vom Lithiumgehalt des Kristalls ab und liegt bei kongruent schmelzendem  $\text{LiNbO}_3$  für Magnesium bei etwa 4,6%-4,9% [Wen05b]. Bei der Dotierung besetzen die Magnesiumionen zuerst vorrangig die Lithiumfehlstellen und verdrängen daher die sonst dort als Fremdatome eingebauten Niobionen. Da die Magnesiumionen  $\text{Mg}^{2+}$  weniger stark als die Niobionen  $\text{Nb}^{5+}$  geladen sind, muss die Ladungskompensation durch die Erzeugung weiterer Fehlstellen nicht so stark ausfallen, so dass die Zahl der Niobfehlstellen abnimmt. Bei der Schwellldotierung sind alle vorherigen  $\text{Nb}_{\text{Li}}$  mit Magnesium besetzt, so dass bei steigender Dotierung auch die normalen Niobplätze mit Magnesium gefüllt werden [Swe84, Che05]. Eine Dotierung von kongruent schmelzendem  $\text{LiNbO}_3$  mit Magnesium verändert einige weitere Materialeigenschaften. So sinkt beispielsweise bei einer 5 prozentigen Dotierung die für das Polen nötige Koerzitivfeldstärke von 21 auf 6,5 kV/mm deutlich ab, da die  $\text{Mg}_{\text{Li}}$ -Ionen einfacher durch die Sauerstoffebenen zu drücken sind als die  $\text{Nb}_{\text{Li}}$ -Ionen [Wen05b]. Ein Teil der für diese Arbeit verwendeten Lithiumniobatproben wurde mit 5% Magnesium dotiert und befindet sich daher oberhalb des Schwellwertes.

Desweiteren ist Lithiumniobat optisch nichtlinear, d. h. das bei Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes  $\vec{E}$  im Kristall entstehende  $\vec{D}$ -Feld hängt nicht nur linear von  $\vec{E}$ , sondern auch von Termen höherer Ordnung von  $\vec{E}$  ab [Wei85]. Dieses Verhalten ermöglicht viele Anwendungen, insbesondere die Frequenzverdopplung durch

Quasiphasenanpassung in periodisch gepoltem  $\text{LiNbO}_3$ . Außerdem ist das Material photoelastisch und besitzt gute akustische und akustooptische Eigenschaften.

## 2.2 Strahlenschäden

Bei der Bestrahlung von Lithiumniobat mit hochenergetischen leichten Ionen wie z. B.  $^3\text{He}^{2+}$  kommt es zu langfristig stabilen Schäden im Kristall und messbaren Änderungen des Brechungsindex.

Wenn die Ionen in den Kristall eindringen, so verlieren sie zu Beginn ihre Energie hauptsächlich über elektronische Wechselwirkungen. Die Energieabgabe über die Eindringtiefe kann deshalb durch die Bethe-Bloch-Gleichung beschrieben werden [Tow94, S. 32f]. Mit steigender Flugstrecke nimmt dabei die Energieabgabe zu, wobei sie kurz vor Erreichen der Stoptiefe im so genannten Braggpeak maximal wird. Entlang der Flugbahn der Ionen entsteht dadurch eine Ionisierung der Targetatome (s. Abb. 2.2), die aufgrund der Coulombabstoßung zu Verzerrungen im Kristall führen kann, bevor es zu einer teilweisen Relaxation kommt. Entlang der Flugbahn

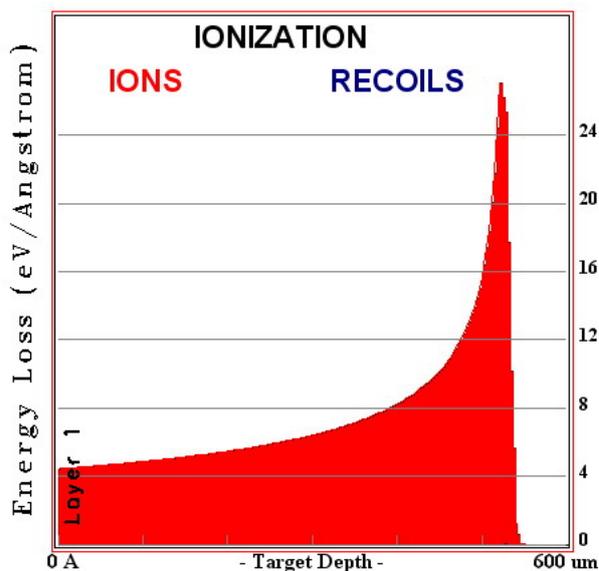


Abbildung 2.2: Mit dem Programm SRIM 2006 erzeugte Simulation der entstehenden Ionisierung im  $\text{LiNbO}_3$ -Kristall entlang der Eindringtiefe von Heliumionen mit einer Energie von 40,5 MeV

bleibt jedoch eine erhöhte Fehlstellendichte zurück, während in der umgebenden Zone die Zahl der Zwischengitteratome steigt [Kas05, S. 257ff]. Je langsamer die Ionen werden, desto größer wird der Anteil an Stößen mit den Kernen des Targets. Dadurch entsteht am Ende der Ionenbahn ein deutlich stärkerer struktureller Schaden [Hu01, Ben02], der stark von der Ionensorte und -dosis abhängt [Oli06]. Abhängig von der Ionendosis ist auch die Stärke der Aktivierung der Lithiumniobatprobe durch Kernreaktionen der  $^3\text{He}$ -Ionen mit den Kernen der Targetatome. Zusätzlich zum direkten Energieübertrag der Projektile auf die Targetatome und -elektronen kann es zu weiteren Kollisionskaskaden kommen, wenn diese ihre überschüssige Energie an andere Atome im Gitter abgeben [Tow94, S. 12ff]. Nachdem so die kristalline Ordnung des Lithiumniobats stark gestört wurde, kommt es zu einer teilweisen Restrukturierung

[Cha87]. Die Bestrahlung von Lithiumniobat mit schnellen leichten Ionen wird daher mathematisch relativ komplex, kann aber mit Hilfe des Programms SRIM 2006 (Version 2006.01, [Zie85, Zie06]) simuliert werden. Abbildung 2.2 zeigt so beispielsweise eine Simulation der Ionisierung im Kristall.

Die nach der Bestrahlung des  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalls bleibenden Schäden sind noch nicht genau bekannt. Vorgeschlagen werden eine Verlagerung von Lithium  $\text{Li}^+$  [Gla88], insbesondere eine Diffusion in den durchstrahlten Bereich hinein [Zha91], die Erzeugung von Sauerstofffehlstellen [Hod88, Ubi00], sowie trotz teilweiser Relaxation eine Gitterverzerrung und damit einhergehende Spannungsfelder im Kristall [Zha91]. Durch die Verringerung der kristallinen Ordnung kann sich der Kristall ebenfalls etwas ausdehnen [Alm05] sowie die spontane Polarisierung des Kristalls gesenkt werden. Die strukturellen Modifikationen im Kristall führen zu einer Änderung des Brechungsindex  $\Delta n$ . Diese Änderung ist in der Zone des Braggpeaks kurz vor Erreichen der Stopptiefe am größten, während der durchflogene Bereich davor eine deutlich geringere, nahezu konstante Änderung aufweist. Durch eine Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen mit einer Energie von ca. 40 MeV lässt sich aber auch hier eine Änderung in der Größenordnung von etwa  $3 \cdot 10^{-3}$  erreichen [And04]. Diese Brechungsindexänderung wird jedoch stark von der Ionendosis beeinflusst, wie Abbildung 2.3 zeigt. Die

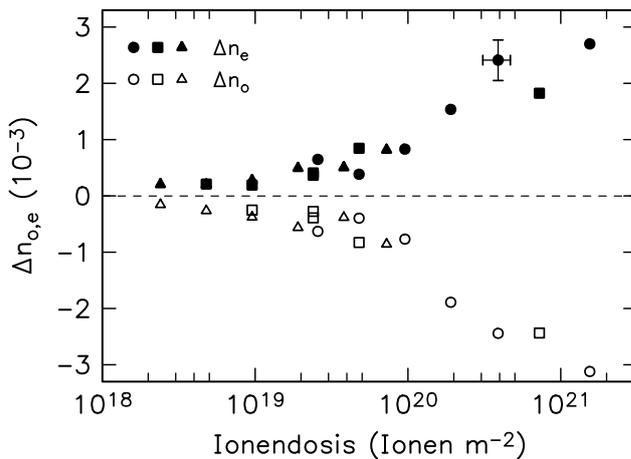


Abbildung 2.3: Brechungsindexänderung in kongruent schmelzendem Lithiumniobat vor Erreichen des Braggpeaks in Abhängigkeit von der Ionendosis [Pei06b]

Ionendosis oder kurz Dosis  $D$  gibt die Zahl der auftreffenden Ionen pro Fläche an. Sie hängt stark von der Bestrahlungsdosis und der Größe des bestrahlten Bereiches ab. Der ordentliche Brechungsindex  $n_o$  wird durch die Bestrahlung verringert, während sich der außerordentliche Brechungsindex  $n_e$  vergrößert [Pei06b]. Der Betrag der Doppelbrechung  $n_e - n_o$  verkleinert sich dadurch, was ebenfalls anzeigt, dass sich die Ordnung im Kristall verringert. Bei Raumtemperatur bleibt die erzeugte Brechungsindexänderung lange stabil.

Durch die Ionenbestrahlung kommt es bei einer genügend hohen Dosis neben der Änderung des Brechungsindex auch zu einer Braunfärbung des  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalls. Diese Verfärbung des Kristalls verschwindet bei einer Lagerung bei Raumtemperatur innerhalb weniger Monate von allein, sie kann aber auch durch leichtes Tempern rasch beseitigt werden [And04]. Als Ursache für die Verfärbung gelten elektronische

Defekte, wie die Bildung von Lochpolaronen, d. h. Elektronen werden fortgerissen, und von Farbzentren an Sauerstofffehlstellen [And05, Mat03].



# Kapitel 3

## Experimentelle Methoden

### 3.1 Bestrahlung am Zyklotron

Die Materialeigenschaften von Lithiumniobatkristallen können durch die Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen gezielt verändert werden. Die in dieser Arbeit verwendeten Proben werden hierzu mit  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen bestrahlt, die im Bonner Isochron-Zyklotron des Helmholtz-Institutes für Strahlen- und Kernphysik auf eine Energie von 40 bis 41 MeV beschleunigt wurden.

Die Dicke der verwendeten Proben ist so gewählt, dass bei dieser Teilchenenergie die Ionen nicht im Kristall steckenbleiben, sondern durch die Probe hindurchtreten. Somit befindet sich der Braggpeak der Energieabgabe nicht oder höchstens teilweise innerhalb des Kristalls, um große mechanische Spannungen in dieser Zone, die zu einer erhöhten Brüchigkeit der Probe führen können, zu vermeiden. Eine Abschätzung der optimalen Probendicke kann vor der Bestrahlung durch eine Simulation mit dem Programm SRIM 2006 gewonnen werden. Sowohl für kongruent schmelzendes  $\text{LiNbO}_3$  als auch für mit 5% Magnesium dotiertes Lithiumniobat ergibt sich, dass 500  $\mu\text{m}$  dicke Proben gut geeignet sind (siehe Abb. 3.1). Alle verwendeten Kristalle weisen daher diese Dicke auf.

Prinzipiell ist auch eine Bestrahlung mit anderen leichten Ionen, z. B. Deuteronen oder  $\alpha$ -Teilchen, möglich [And04]. Bei der verwendeten Strahlenergie von über 13 MeV/Nukleon kommt es jedoch aufgrund von Kernreaktionen immer auch zu einer Aktivierung der  $\text{LiNbO}_3$ -Probe. Dabei sollte die Entstehung langlebiger radioaktiver Isotope möglichst vermieden werden, damit die Probe zügig ausgebaut und untersucht werden kann.  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen haben sich hierbei als günstig erwiesen.

Die Bestrahlung der Lithiumniobatkristalle erfolgt am Bonner Isochron-Zyklotron am Strahlplatz 8 (siehe Abb. 3.2). Die Proben werden in einem Probenhalter aus Aluminium direkt in eine Vakuumkammer am Ende des Strahlrohres eingebaut. Der Kontakt zwischen Probenrückseite und Probenhalter wird durch Wärmeleitpaste hergestellt, um während der Bestrahlung entstehende Wärme sofort abzuführen. Dadurch werden Spannungen im Kristall aufgrund inhomogener Bestrahlung und daraus resultierender ungleichmäßiger Temperaturverteilung vermieden. Ein eventueller Einfluss durch den Channeling-Effekt wird nicht näher berücksichtigt. Wenn

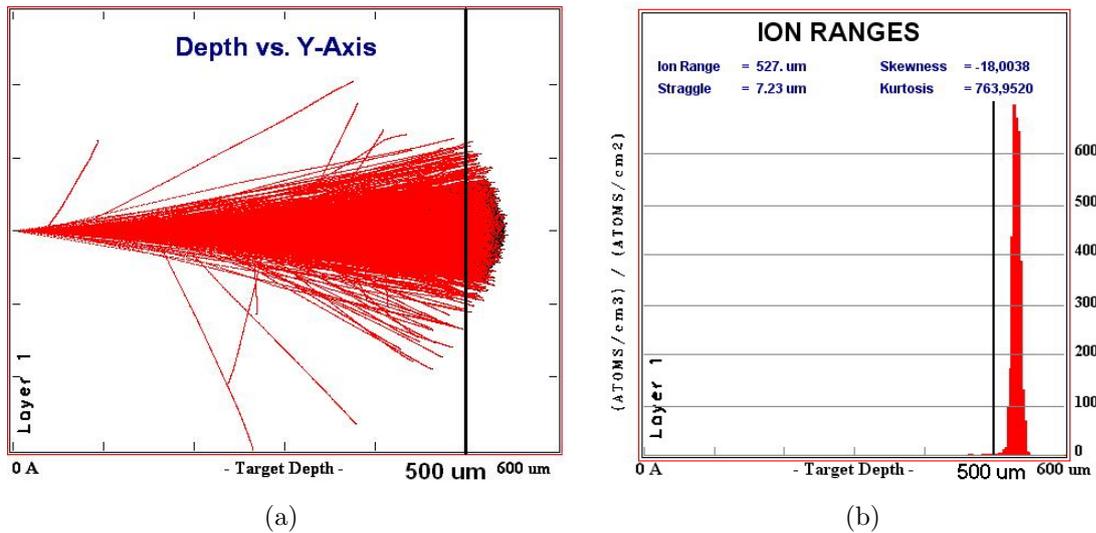


Abbildung 3.1: SRIM-Simulation der Reichweite von  $40,5 \text{ MeV } ^3\text{He}$ -Ionen in Lithiumniobat, (a): von der Seite betrachtet, (b): als Verteilung.

der Ionenstrahl sehr parallel ausgerichtet ist, beträgt sein Durchmesser etwa 4 mm. Durch den Einsatz zusätzlicher Quadrupolmagnete und eines Steerer-Feldes direkt vor dem Strahlplatz 8 kann er jedoch noch stärker fokussiert werden, so dass der

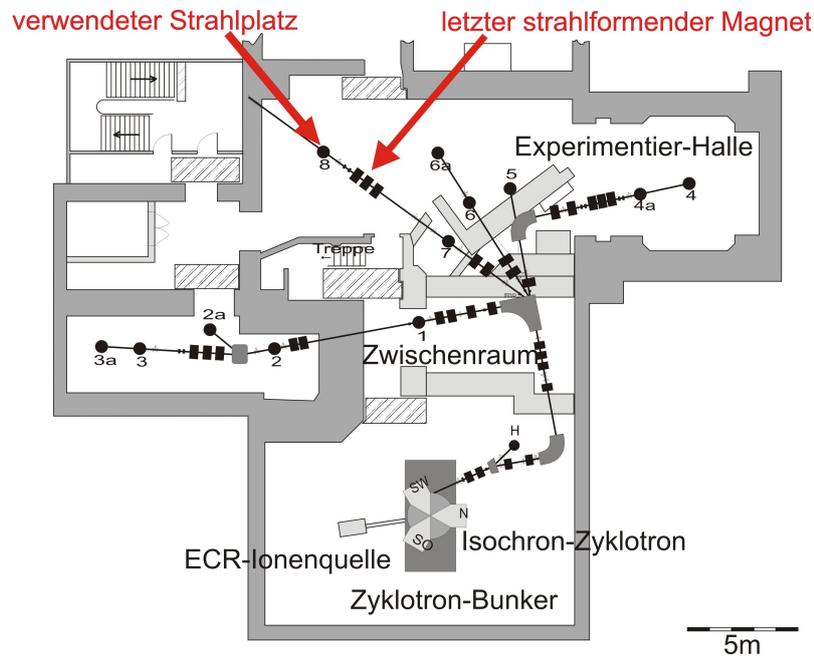


Abbildung 3.2: Strahlführung am Bonner Zyklotron (nach [Zyk06]). Die Bestrahlung der für diese Diplomarbeit verwendeten Proben geschieht am Strahlplatz 8.

Durchmesser unter 3 mm beträgt. Da die Strahlposition während einer Strahlzeit wandern kann und häufiger korrigiert werden muss, befindet sich in knapp 1 cm Abstand vor der  $\text{LiNbO}_3$ -Probe eine Schlitzblende aus Graphit, wie in Abb. 3.3 gezeigt. Sie sorgt dafür, dass auch bei unruhiger Strahlage nur ein ausgewählter Bereich des

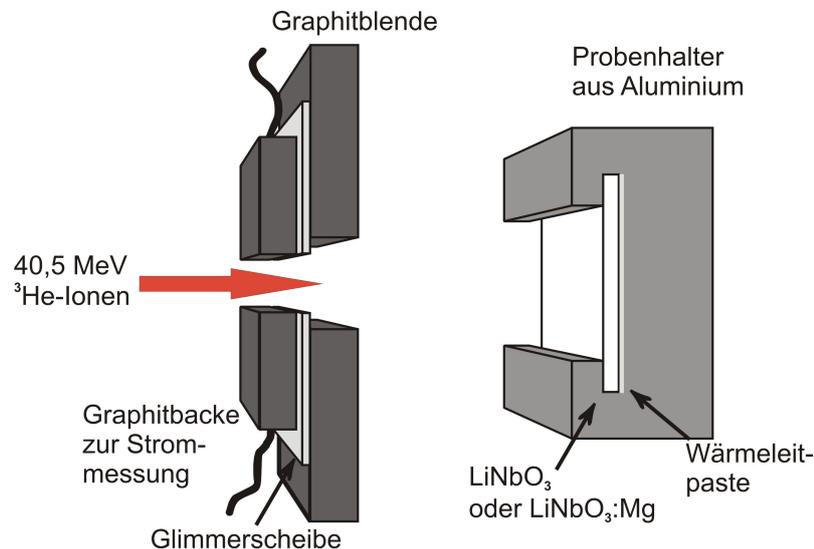


Abbildung 3.3: *Bestrahlung mit  $^3\text{He}$  am Zyklotron: Die Probe wird in einem Aluminiumhalter direkt ins Vakuum eingebaut, wobei der Wärmekontakt durch Wärmeleitpaste hergestellt wird. Eine Schlitzblende aus Graphit dient der Abschirmung und Bestimmung der Strahlage, indem über zwei isolierte Graphitbacken oberhalb und unterhalb des Schlitzes der auftreffende Strom gemessen wird.*

Kristalls bestrahlt wird. Die Größe des Schlitzes beträgt dabei etwa  $1,6 \times 6,4 \text{ mm}^2$ . Die grobe Positionierung des Strahls erfolgt vor der eigentlichen Bestrahlung, indem die Lage des Strahlflecks auf einem vor die Graphitblende gedrehten Leuchtschirm sichtbar gemacht und der Strahl auf den zuvor markierten Zielbereich justiert wird. Der Schirm wird anschließend aus dem Strahl herausgedreht und die Feineinstellung erfolgt dann während der Bestrahlung selbst. Dazu ist auf der Graphitblende oberhalb und unterhalb des Schlitzes jeweils eine kleine Backe aus Graphit mit einer Fläche von circa  $0,5 \times 1,0 \text{ cm}^2$  mit 2-Komponentenkleber aufgeklebt. Dieser Klebstoff hat den Vorteil, dass er Erwärmungen bis über  $200 \text{ }^\circ\text{C}$  problemlos aushält und beim Einsatz im Vakuum nicht ausdampft. Ferner wird er unter Strahlenbelastung nicht zersetzt. Zur elektrischen Isolierung befindet sich zwischen der Blende und den beiden Backen je eine dünne Glimmerscheibe. Somit kann der auf die Backen auftreffende Strom über aufgeklebte Elektroden gemessen werden. In horizontaler Richtung wird die Strahlposition nun so optimiert, dass der Strom auf beiden Backen maximal wird. Für die vertikale Ausrichtung erfolgt die Einstellung des Strahles derart, dass der Strom auf beide Backen gleich groß wird. Der gesamte zur Verfügung stehende Strom kann durch Einfahren eines Stoppers in das Strahlrohr in 7 m Entfernung vor dem Strahlplatz 8 gemessen werden, es besteht jedoch leider keine Möglichkeit, den

direkt auf die Probe auftreffenden Strom zu ermitteln. Der Gesamtstrom während der Bestrahlungen beträgt etwa 150 nA, so dass auf der Probe geschätzte 40-60 nA auftreffen.

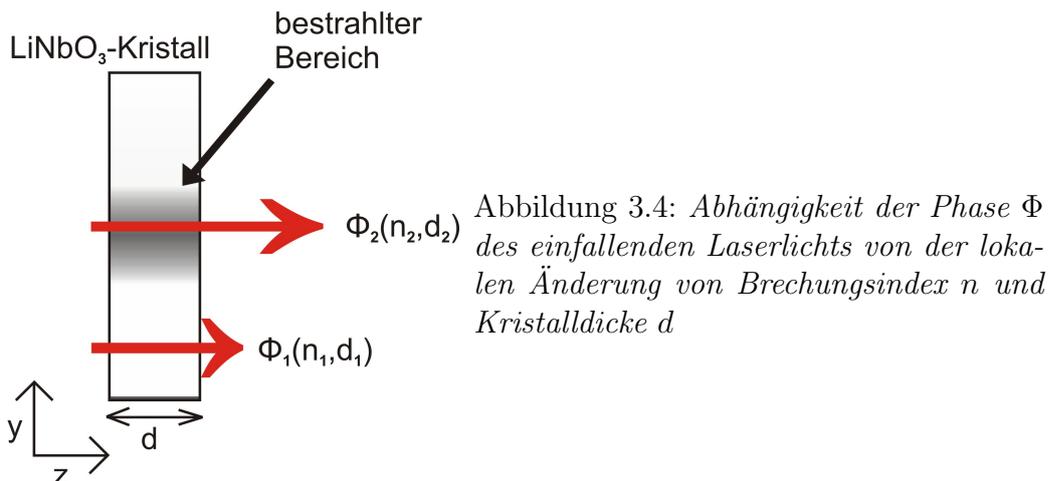
### 3.2 Interferometrische Messung der Brechungsindexänderung

Durch die Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen erzeugte Brechungsindexänderungen im Lithiumniobat können mit Hilfe interferometrischer Methoden gemessen werden.

Wenn Licht mit der Wellenlänge  $\lambda$  durch einen Kristall hindurchtritt, ändert sich die Phase  $\Phi$  des Lichtes in Abhängigkeit von der Dicke  $d$  und dem Brechungsindex  $n$  der Probe gemäß

$$\Phi = \frac{2\pi}{\lambda}nd \quad (3.1)$$

Die Brechungsindexänderung in Folge der Bestrahlungen wird im Folgenden mit  $\Delta n$  bezeichnet. Zusätzlich kann es zu einer leichten Verformung des Kristalls im durchstrahlten Bereich, insbesondere einem Verbiegen in oder gegen die Strahlrichtung [And04], und damit lokal zu einer Änderung seiner Dicke  $\Delta d$  kommen. Auch eine bereits zuvor vorhandene ungleichmäßige Kristalldicke kann hier eine Rolle spielen; dieser Effekt ist jedoch relativ klein, was dadurch überprüft wird, dass bei der Untersuchung einer unbestrahlten Probe mit dem Interferometer die Fabry-Perot-Streifen, die durch Interferenz von mehrfach an den Kristalloberflächen reflektierten Lichtstrahlen entstehen, deutlich ausgeprägt sind. Darauf fußend wird im Folgenden die Annahme gemacht, dass die zwei großen Flächen des Kristalls parallel zueinander sind. Sowohl  $\Delta n$  als auch  $\Delta d$  sind lokal im Kristall unterschiedlich und beeinflussen die Phase des Lichtes (siehe Abb. 3.4). Die Strahlrichtung des Lichtes wird im



Folgenden mit der  $z$ -Richtung identifiziert, während die großen Oberflächen des Kristalls in der  $x$ - $y$ -Ebene liegen. Obwohl  $\Delta n$  von allen drei Raumrichtungen abhängt, ermöglicht der vorhandene interferometrische Aufbau nur die Auflösung in  $x$ - und

$y$ -Richtung, während über die Brechungsindexänderung in  $z$ -Richtung, also über die Probendicke, gemittelt wird. Daher gilt für eine mögliche lokale Phasenänderung

$$\Delta\Phi(x, y) = \frac{\partial\Phi}{\partial n}\Delta n(x, y) + \frac{\partial\Phi}{\partial d}\Delta d(x, y) \quad (3.2)$$

$$= \frac{2\pi}{\lambda}d_0\Delta n(x, y) + \frac{2\pi}{\lambda}(n_o - n_L)\Delta d(x, y) \quad (3.3)$$

wobei  $d_0$  die ursprüngliche Probendicke von 0,5 mm ist,  $n_L = 1$  der Brechungsindex von Luft und  $n_o = 2,2866$  [Wei85] der ordentliche Brechungsindex von Lithiumniobat. Für die Brechungsindexänderung ergibt sich somit:

$$\Delta n(x, y) = \frac{\lambda}{2\pi d_0}\Delta\Phi(x, y) - \frac{n_o - 1}{d_0}\Delta d(x, y) \quad (3.4)$$

Um die Änderung des Brechungsindex  $\Delta n$  bestimmen zu können, muss der verwendete experimentelle Aufbau also die Möglichkeit bieten, sowohl die Gesamtphasenänderung  $\Delta\Phi$  als auch die Dickenänderung  $\Delta d$  zu messen. Dies geschieht wie in [And05a, And05b] beschrieben mit Hilfe einer Kombination aus Mach-Zehnder- und Michelson-Interferometer.

Mit Hilfe des Mach-Zehnder-Interferometers lässt sich die Gesamtphasenänderung eines Lichtstrahls beim Durchtritt durch den Kristall bestimmen. Abb. 3.5 zeigt den experimentellen Aufbau. Der aufgeweitete Strahl eines HeNe-Lasers mit einer Wel-

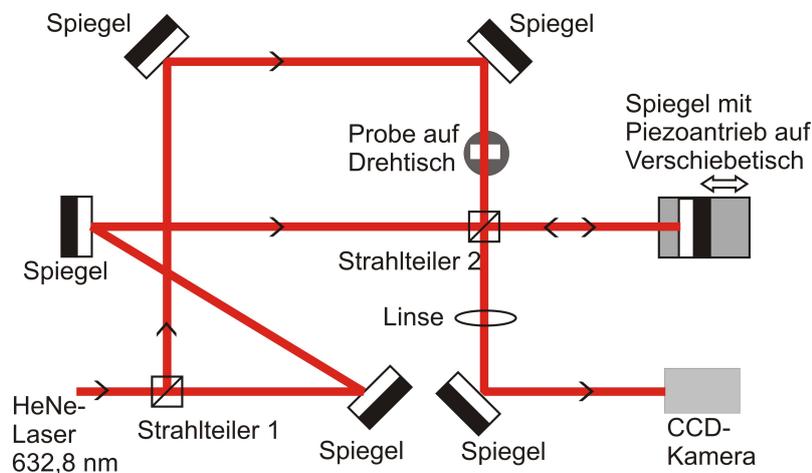


Abbildung 3.5: *Mach-Zehnder-Interferometer zur Messung der Gesamtphasenänderung (nach [And05a])*

lenlänge  $\lambda = 632,8$  nm wird mit Hilfe des Strahlteilerwürfels 1 geteilt. Ein Teilstrahl wird mit Hilfe von Spiegeln auf die Rückseite der Probe gelenkt und tritt durch den Kristall sowie einen zweiten Strahlteilerwürfel hindurch. Das Licht wird mit Hilfe einer Sammellinse und eines Spiegels auf die CCD-Kamera gebündelt. Der zweite Teilstrahl wird über feste Spiegeln so umgelenkt, dass er durch den zweiten Strahlteilerwürfel hindurchtritt und auf einen beweglichen Spiegel trifft. Dieser befindet sich

auf einem Verschiebetisch, der mittels eines Schrittmotors verfahren werden kann. Außerdem kann der Spiegel selbst noch durch einen Piezoantrieb bewegt werden. Der reflektierte Strahl wird anschließend im Strahlteilerwürfel umgelenkt, durch die Linse gebündelt und über den letzten Spiegel ins Kameraobjektiv gelenkt. Dort interferieren beide Teilstrahlen miteinander. Die Kamera verfügt über eine 8-Bit-Intensitätsauflösung und erzeugt ein Bild mit der Größe von  $1280 \times 1024$  Pixeln, wobei ein Pixel einer Fläche von  $12,6 \mu\text{m}^2$  auf der Probenoberfläche entspricht. Das Kamerabild kann live auf einem Computer betrachtet werden. Damit die Position der  $\text{LiNbO}_3$ -Probe im Laserstrahl verändert werden kann, befindet sich die Probe in einem Halter, der auf einem dreh- und kippbaren Sockel befestigt ist. Die Schrittweite beträgt dabei in horizontaler wie vertikaler Richtung  $1,6 \times 10^{-3} \text{ }^\circ$ . Falls beispielweise im Interferogramm zusätzliche Fabry-Perot-Interferenzen durch Licht auftreten, welches mehrfach in der Probe reflektiert wurde, so kann der Kristall leicht verdreht werden. Den transmittierten Strahl beeinflusst dies kaum, während die Störreflexe wegfallen.

Die Messung erfolgt nun dadurch, dass der bewegliche Spiegel über den Piezoantrieb schrittweise verfahren wird und für 20 verschiedene Positionen jeweils ein Interferogramm aufgenommen wird. Durch die Verschiebung des Spiegels wird die Phase des reflektierten Strahls um den Betrag  $\Theta$  verändert. Jedes Interferogramm besitzt so eine Intensitätsverteilung  $I_i(x, y, (i - 1)\Theta)$ . Von den 20 aufgenommenen Bildern werden drei ausgewählt. Man erhält damit die drei Intensitätsverteilungen

$$I_1 = a + b \cos(\Delta\Phi) \quad (3.5)$$

$$I_2 = a + b \cos(\Delta\Phi + \Theta) \quad (3.6)$$

$$I_3 = a + b \cos(\Delta\Phi + 2\Theta) \quad (3.7)$$

wobei  $a$  die Hintergrundintensität und  $b$  die Amplitude des interferierenden Laserlichts ist. Hieraus ergibt sich für die Gesamtphasenänderung [And05a]:

$$\Delta\Phi = \arctan \left( \frac{(I_3 - I_1)[\cos(\Theta - 1)] - (I_2 - I_1)[\cos(2\Theta - 1)]}{\sin \Theta(I_3 - I_1) - \sin 2\Theta(I_2 - I_1)} \right) \quad (3.8)$$

Um den Einfluss des Grundjustagefehlers eliminieren zu können, wird die Messung einmal ohne die Probe als so genannte Nullmessung wiederholt.

Eine Dickenänderung kann durch die Verwendung eines Michelson-Interferometers bestimmt werden (Abb. 3.6). Dazu wird statt des HeNe-Lasers eine LED mit einer Wellenlänge von 650 nm und einer Kohärenzlänge von nur ca.  $15 \mu\text{m}$  [Bre04] verwendet. Der Lichtstrahl wird mit einem Strahlteilerwürfel geteilt und der erste Teilstrahl fällt auf die Vorderseite der Probe, wo er teilweise reflektiert wird. Der zweite Teilstrahl wird vom beweglichen Spiegel auf dem Piezotranslator reflektiert und im Strahlteilerwürfel so umgelenkt, dass beide Teilstrahlen wieder auf der CCD-Kamera interferieren. Eine Verformung der Oberfläche  $\Delta d_v$  erzeugt im ersten Teilstrahl eine Phasendifferenz von

$$\Delta\Phi_v = 2 \frac{2\pi}{\lambda} \Delta d_v \quad (3.9)$$

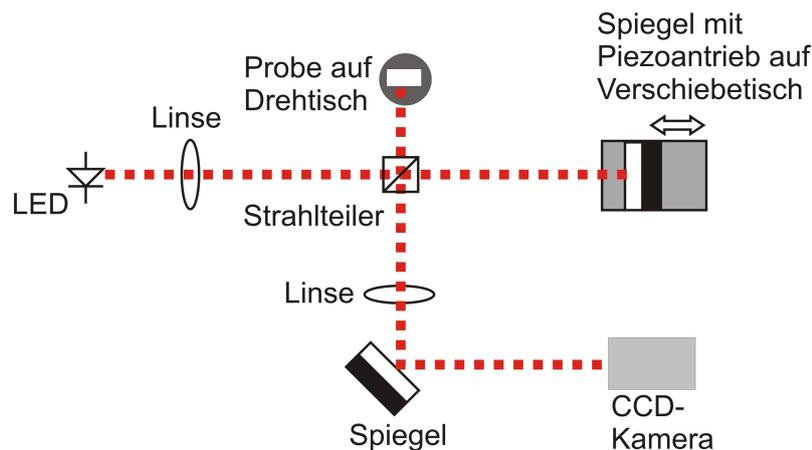


Abbildung 3.6: *Michelson-Interferometer zur Messung der Oberflächendeformation (nach [And05a])*

wobei der Faktor 2 dadurch zu Stande kommt, dass das Licht den Weg von der Probenvorderseite bis zum Strahlteilerwürfel zweimal zurücklegen muss. Der Vorteil der LED gegenüber einem herkömmlichen Laser bei dieser Messung besteht hierbei darin, dass Licht, welches an der Rückseite der Probe reflektiert wird, aufgrund der geringen Kohärenzlänge nicht mit dem an der Vorderseite reflektierten Licht interferiert und daher die Messung nicht beeinflussen kann. Die Messung selbst besteht wie zuvor aus der Aufnahme von Interferogrammen für unterschiedliche Positionen des verschiebbaren Spiegels. Nachdem so die Phasenänderung aufgrund der Deformation der Vorderseite ermittelt wurde, wird die Probe um  $180^\circ$  gedreht und die Messung wiederholt. Man erhält dadurch auch eine Information über die Deformation der Rückseite  $\Delta d_r$ .

Die drei Interferogramme, die bei jeder Messung erzeugt werden, müssen nun zu einem Phasenbild verarbeitet werden. Dies geschieht mit Hilfe des Programmes FRAN von T. R. Judge [Jud02]. Da der Arkustangens nur Werte innerhalb des Intervalls von  $-\frac{\pi}{2}$  und  $\frac{\pi}{2}$  annimmt, muss das Programm die resultierende Phasenverteilung noch verstetigen. Abbildung 3.7 zeigt ein typisches Interferogramm und ein daraus und aus zwei weiteren Intensitätsverteilungen erzeugtes verstetigtes Phasenbild.

Man erhält somit am Ende vier verstetigte Phasenbilder:

- Gesamtphasenänderung in Transmission
- Gesamtphasenänderung während der Nullmessung in Transmission
- Phasenänderung bei Reflexion an der Vorderseite (LED)
- Phasenänderung bei Reflexion an der Rückseite (LED)

Mit Hilfe des Programms Matlab kann nun aus den vier Phasenbildern die Änderung des Brechungsindexes sowie der Probendicke ermittelt werden. Dazu müssen

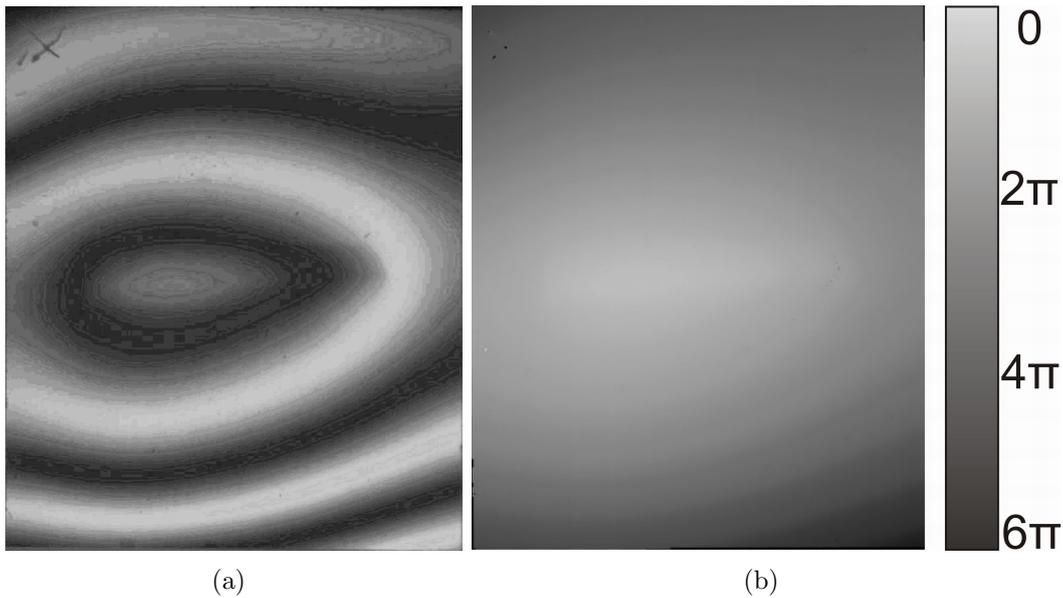


Abbildung 3.7: Typisches Interferogramm (a) und mit dem Programm Fran erzeugtes verstetigtes Phasenbild  $\Delta\Phi(x,y)$  (b). Die Phasenverschiebung vom oberen Rand zur Mitte beträgt etwa  $4\pi$ .

der ordentliche Brechungsindex  $n_o=2,2866$  und die ursprüngliche Dicke der Probe  $d_0=0,5$  mm angegeben werden. Nun berechnet das Programm Werte  $\widetilde{\Delta n}$  und  $\widetilde{\Delta d}$ , aus denen sich die tatsächliche Brechungsindexänderung  $\Delta n$  und die Dickenänderung  $\Delta d$  als Differenz der Werte für  $\widetilde{\Delta n}$  und  $\widetilde{\Delta d}$  im bestrahlten und unbestrahlten Bereich ergibt. Absolute Werte für  $n$  und  $d$  können nicht bestimmt werden, da nur  $\Delta\Phi$  und nicht  $\Phi$  gemessen wird. Zusätzlich erhält man ein Interferogramm, welches die Phasenunterschiede der zwei interferierenden Laserstrahlen in der Transmissionsmessung abzüglich des Untergrundes enthält.

Die Genauigkeit der Methode beträgt für die  $\Delta n$ -Messung etwa  $1 \cdot 10^{-4}$  bis  $2 \cdot 10^{-4}$  und für  $\Delta d$  ca.  $1 \mu\text{m}$  bei einer Kristalldicke von  $0,5$  mm. Mögliche Fehlerquellen sind Abweichungen des ursprünglichen Brechungsindex sowie der Ausgangsdicke der Probe, ungleichmäßiges Verfahren des Piezotranslators und Drift des Interferometers zwischen den einzelnen Messungen z. B. aufgrund von Temperaturschwankungen. Außerdem kann es zu Problemen beim Verstetigen der Phasenbilder kommen, insbesondere durch Kratzer oder Schmutz auf der Probe, wobei letzteres durch gründliches Reinigen des Kristalls vor der Messung mit Aceton weitestgehend vermieden werden kann. (Hierzu auch: [Bre04, And05])

### 3.3 Polen der Kristalle

Die spontane Polarisierung der Lithiumniobatkristalle kann durch das Anlegen eines äußeren elektrischen Feldes umgekehrt werden. In dieser Arbeit werden hierfür ausschließlich mit 5% Magnesium dotierte Proben verwendet, da bei ihnen die Koer-

zitivfeldstärke von 21 kV/mm auf 6,5 kV/mm reduziert ist [Wen05b]. Auch wenn die Feldstärke gegenüber dem undotierten Material bereits stark verringert ist, ist es wichtig, dass die experimentelle Methode Spannungsdurchschläge verhindert. Für den bestrahlten Bereich des Kristalls ist aufgrund der erhöhten Defektdichte zu erwarten, dass sich leichter Nukleationskeime bilden und die Koerzitivfeldstärke dadurch sinkt. Der verwendete Aufbau muss es also ermöglichen, die Koerzitivfeldstärken des bestrahlten und unbestrahlten Gebietes im Kristall zu bestimmen, was durch ein langsames Erhöhen des anliegenden elektrischen Feldes und gleichzeitiger Messung des fließenden Stromes gelingt.

Abbildung 3.8 zeigt den verwendeten Aufbau für das Umpolen der  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Proben. Die zuvor mit Aceton gründlich gereinigte Probe wird in einem zweiteiligen

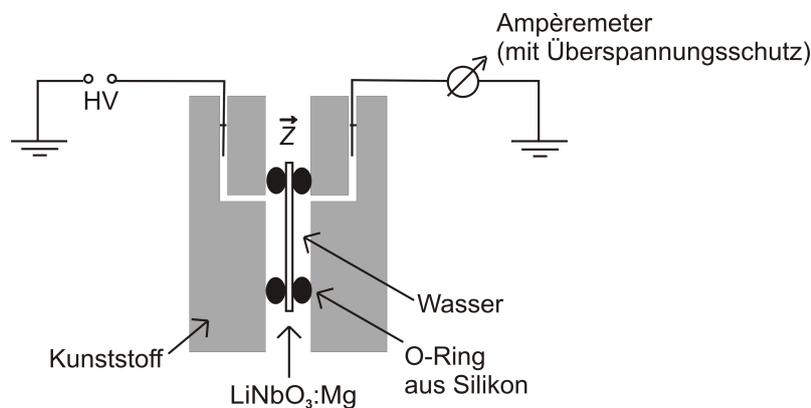


Abbildung 3.8: Aufbau zum Polen der Kristalle (nach [Wen05b])

Halter aus transparentem Kunststoff eingeklemmt. Als Elektroden werden nun Wasserelektroden benutzt. Dabei ist normales Leitungswasser ausreichend leitfähig, um die hohe Feldstärke zu gewährleisten. Flüssigkeitselektroden haben den Vorteil, über eine relativ große Fläche eine homogene Feldverteilung zu ermöglichen. Auf jeder Seite bildet ein O-Ring aus Silikon die äußere Begrenzung der Wasserelektroden. Auf der Außenseite werden die Ringe mit etwas Silikonöl benetzt, um einen besseren Kontakt zum Kunststoff zu erzeugen. Im nicht zusammengedrückten Zustand beträgt die Dicke der Ringe 2 mm bei einem Innendurchmesser von 8 mm. Da die O-Ringe im Halter etwas flach gedrückt werden, kann sich der Durchmesser etwas vergrößern bis auf etwa 8,2 mm. Der Kristall wird daher auf einer Fläche von ca. 50 bis 52 mm<sup>2</sup> umgepolt. Bei den bestrahlten Kristallen wird dabei darauf geachtet, dass sich der bestrahlte Bereich weitestgehend innerhalb des O-Ringdurchmessers befindet. Durch die senkrechten Öffnungen in den Kunststoffteilen wird das Wasser in die Elektroden gefüllt und die Hochspannung angelegt, die über ein PC-Programm gesteuert werden kann. Um den Kristall langsam umzupolen und somit auch den Prozess des Polens beobachten und die Koerzitivfeldstärke messen zu können, wird die Spannung linear mit der Zeit erhöht. Die Geschwindigkeit, mit der die Spannung steigt, kann dabei variiert werden, wobei in dieser Arbeit sowohl 50 V/s als

auch eine niedrige Geschwindigkeit mit 5 V/s verwendet werden. Während des gesamten Polungsvorgangs wird gleichzeitig der Polungsstrom gemessen, der aus einer Umverteilung der Kompensationsladungsträger herrührt. Das verwendete Ampèremeter ist dabei mittels eines Überspannungsschutzes vor zu hohen Spannungsspitzen geschützt (s. Abb. 3.8).

Normalerweise ist die Koerzitivfeldstärke  $E_C$  als die Feldstärke definiert, bei der die Hälfte des Kristalls bereits umgepolt ist. Da dieser Punkt sich nur schwer bestimmen lässt, verwende ich stattdessen wie in [Wen05b] eine etwas andere Definition des Koerzitivfeldes, die mit dem Polungsstrom verknüpft ist. Das Koerzitivfeld sei immer dann erreicht, wenn der Polungsstrom einen Schwellwert von  $1 \mu\text{A}$  erreicht. Die Höhe der Schwelle ist dabei so gewählt, dass der Polungsvorgang gerade erst beginnt, aber eine klare Unterscheidung vom Untergrund bereits möglich ist. Man muss bei einem solchen Vorgehen berücksichtigen, dass das solcherart bestimmte Koerzitivfeld abhängig von der Größe des verwendeten O-Ringes und der Polungsgeschwindigkeit ist. Der Fehler bei einer solchen Bestimmung des Koerzitivfeldes liegt bei mindestens  $0,2 \text{ kV/mm}$ . Neben Messfehlern bei der Strom- und Spannungsmessung aufgrund von geräteinternen Limitierungen spielt die Genauigkeit der Korrektur einer bei der Strommessung auftretenden Nullverschiebung eine Rolle. Desweiteren ist die Koerzitivfeldstärke eine relativ weiche Größe, die bei verschiedenen Polungen durchaus leicht unterschiedlich auftreten kann, da sowohl die Nukleation als auch das anschließende Domänenwachstum jedes Mal anders ablaufen. Der Polungsstrom überschreitet den Schwellwert daher unterschiedlich früh, so dass zur Bestimmung der Koerzitivfeldstärke über mehrere Polungszyklen gemittelt werden sollte.

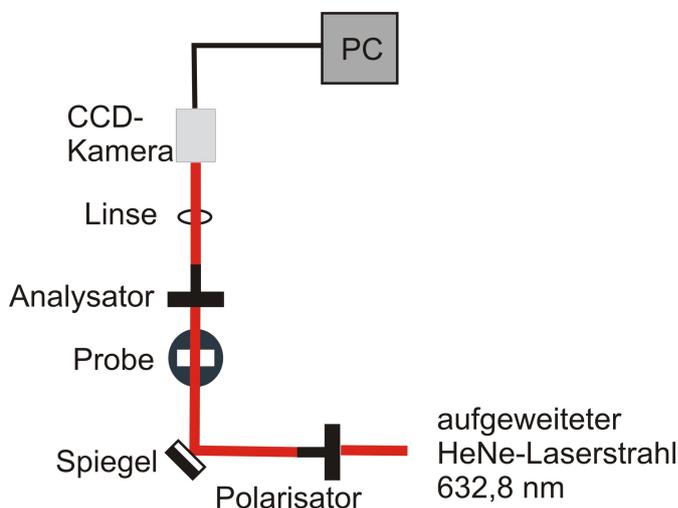


Abbildung 3.9: *Visualisierung der Spannungsdoppelbrechung während des Polungsvorgangs mittels zweier gekreuzter Polarisatoren*

Der Vorgang des Polens und das Umklappen einzelner Domänen kann zeitgleich ortsaufgelöst sichtbar gemacht werden. Dies ist möglich, da an den Domänenwänden eine erhöhte Spannung herrscht und dadurch Spannungsdoppelbrechung entsteht. Zur Visualisierung wird experimentell ein Aufbau mit zwei gekreuzten Polarisatoren verwendet, wie in Abbildung 3.9 dargestellt. Der aufgeweitete Strahl eines HeNe-Lasers wird mittels eines Polarisators polarisiert und trifft auf den Kristall.

Das durchgehende Licht wird vom Analysator, der um  $90^\circ$  gegenüber dem ersten Polarisator gedreht ist, analysiert. Die Kristallrückseite wird dann über eine Linse auf eine CCD-Kamera abgebildet. Wenn nun an Domänenwänden aufgrund von Spannungsdoppelbrechung die Polarisationsrichtung des Lichtes verändert wurde, so ist dies im Kamerabild sichtbar. Der obere Abschnitt des gepolten Bereiches wird dabei allerdings aufgrund der mit Wasser gefüllten senkrechten Öffnungen im Probenhalter verdeckt. Man kann mit dieser Methode also feststellen, an welcher Stelle im Kristall der Polungsvorgang während der Erhöhung der Spannung beginnt und beobachten, wie sich die bereits umgepolten Domänen vergrößern und die Domänenwände durch die Probe wandern. Insbesondere ist es bei einem teilweise bestrahlten Kristall möglich, direkt zu sehen, ob der bestrahlte Bereich bei einer anderen Größe des elektrischen Feldes umpolt als der unbestrahlte.



# Kapitel 4

## Untersuchung von $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$

Der erste praktische Teil dieser Arbeit besteht aus einer Untersuchung von mit 5 mol % Magnesium dotiertem Lithiumniobat. Dieses Material ist aufgrund des stark unterdrückten photorefraktiven Effektes interessant für viele Anwendungen, wie z. B. der Erzeugung von Hologrammen. Es wird der Frage nachgegangen, ob auch in  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$  nach einer Bestrahlung mit hochenergetischen Heliumionen eine Änderung des Brechungsindex  $\Delta n$  zu beobachten ist und ob diese Änderung in derselben Größenordnung liegt wie beim kongruent schmelzenden  $\text{LiNbO}_3$ . Außerdem wird das Gammaspektrum einer bestrahlten  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Probe analysiert, um Aufschluss über die durch Kernreaktionen erzeugten radioaktiven Isotope zu erhalten; ferner wird die Polbarkeit von bestrahlten Kristallen untersucht.

### 4.1 Bestrahlung mit $^3\text{He}$

Insgesamt vier Bestrahlungen von  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Kristallen mit  $^3\text{He}$ -Ionen werden am Zyklotron durchgeführt. Dabei werden als Probenmaterial  $(x \times y \times z) = 14,5 \times 15,5 \times 0,5 \text{ mm}^3$  große, aus Wafern gesägte  $z$ -cut Kristalle verwendet, die von der Firma Yamaju Ceramics Co. Ltd., Japan, hergestellt wurden und mit 5% Magnesium dotiert sind. Die Bestrahlung der Kristalle erfolgt jeweils in Richtung der kurzen Achse, also hier in  $z$ -Richtung. Zweimal werden zudem kommerziell erhältliche Proben aus kongruent schmelzendem, undotiertem Lithiumniobat bestrahlt. Bei Bestrahlung 2 wird ein  $x$ -cut Kristall der Größe  $0,5 \times 10 \times 10 \text{ mm}^3$  verwendet, bei Bestrahlung 3 eine  $z$ -cut Probe mit den Abmessungen  $15,5 \times 16,5 \times 0,5 \text{ mm}^3$ .

Tabelle 4.1 enthält im Überblick die durchgeführten Bestrahlungen. Nacheinander werden bei jeder Bestrahlung jeweils zwei Kristalle bestrahlt, wobei zwischen dem Ausbau der ersten Probe aus dem Strahlrohr und dem Einbau der zweiten Probe bis zu drei Stunden gewartet wird, um ein Abklingen der kurzlebigen radioaktiven Strahlung zu gewährleisten. Die Energie der Heliumionen liegt bei allen Bestrahlungen zwischen 40,6 und 40,8 MeV. Dagegen wird die Dauer der Bestrahlungen gesteigert, um auch die Abhängigkeit der Brechungsindexänderung hiervon zu sehen. Eine zusätzliche Fokussierung des Ionenstrahls wird in den ersten zwei Bestrahlungen nicht verwendet, so dass die Ionen hier in einem schön parallelen Strahl auftreffen. In

Bestrahlung	Probenmaterial	Dauer [min]	Dosis [Ionen/mm <sup>2</sup> ]	Energie [MeV]	Strahlfokussierung
1	$\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$	10	$1 \cdot 10^{13}$	40,6	nein
	$\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$	20	$2 \cdot 10^{13}$	40,6	nein
2	$\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$	50	$4 \cdot 10^{13}$	40,6	nein
	$\text{LiNbO}_3$	40	$4 \cdot 10^{13}$	40,6	nein
3	$\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$	120	$3 \cdot 10^{14}$	40,8	stark
	$\text{LiNbO}_3$	120	$1 \cdot 10^{14}$	40,8	größtenteils nein
4	$\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$	120	$1 \cdot 10^{14}$	40,6	in Blendenform
	$\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$	120	$1 \cdot 10^{14}$	40,6	in Blendenform

Tabelle 4.1: Bestrahlungen von  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$  und zum Vergleich  $\text{LiNbO}_3$  mit  ${}^3\text{He}^{2+}$ 

Bestrahlung 3 wird der Strahl dagegen kreisförmig fokussiert und in der vierten Bestrahlung wird die Form des Strahls der länglich, ovalen Form der Graphitblende angepasst. Während bei Bestrahlung 1 und 4 jeweils zwei mit Magnesium dotierte Proben verwendet werden, wird bei Bestrahlung 2 und 3 je eine dotierte Probe und eine Probe aus kongruent schmelzendem Lithiumniobat eingesetzt. Um eine bessere Vergleichbarkeit der Ergebnisse zu erhalten, ist die Bestrahlungsdauer bei Bestrahlung 3 für beide Proben identisch, allerdings verschwindet die zusätzliche Strahlfokussierung während der Bestrahlung der kongruent schmelzenden Lithiumniobatprobe. Während Bestrahlung 2 sinkt bei der mit Magnesium dotierten Probe der ursprüngliche Strahlstrom von 150 nA zwischenzeitlich, so dass daher die Dauer um 10 Minuten verlängert wird, um auch hier eine vergleichbare Ionendosis auf beiden Kristallen zu erhalten.

Nach der Bestrahlung werden die Proben einige Tage bei Raumtemperatur gelagert, bis ihre Aktivierung so weit abgeklungen ist, dass eine gefahrlose Untersuchung der Kristalle möglich ist.

## 4.2 Messungen und Ergebnisse

### 4.2.1 Gammaspektrum

#### Aufnahme des Spektrums

Um zu ermitteln, welche radioaktiven Isotope durch die Bestrahlung mit hochenergetischen  ${}^3\text{He}$ -Ionen im mit Magnesium dotierten Lithiumniobatkristall erzeugt werden, wird das Gammaspektrum der in Bestrahlung 1 für 20 Minuten bestrahlten Probe aufgenommen. Die Messung mit einem Germaniumdetektor dauert 15 Stunden und beginnt 8 Tage nach der Bestrahlung. Folglich werden kurzlebige Isotope, deren Halbwertszeit nur Minuten oder noch weniger beträgt, nicht mehr nachgewiesen. Am nächsten Tag erfolgt eine ebenfalls 15-stündige Untergrundmessung. Nach Abzug des Untergrundes wird das Spektrum mit Hilfe des Programmes MSPEC

von M. Haaks [Haa06] geeicht. Hierzu werden die drei in Tabelle 4.2 aufgeführten  $\gamma$ -Energien verwendet. Die Energieeichung erfolgt mit einer Genauigkeit von  $\pm 0,2$  keV.

Energie [keV]	Isotop
204,1170	$^{95}\text{Tc}$
477,5950	$^7\text{Be}$
934,4600	$^{92\text{m}}\text{Nb}$

Tabelle 4.2: *Eichung des Gammaskentrums mittels des Programms MSPEC und diesen drei Energien*

Neben den klar zu erkennenden Gammalinien ermöglicht das Programm MSPEC die Ermittlung weiterer, weniger intensiver Linien. Den bestimmten Energien werden dann die im Kristall erzeugten radioaktiven Isotope zugeordnet. Hierzu verwende ich die Datenbank der Lunds Universität, Schweden [Eks99].

### Ergebnis

Das resultierende Energiespektrum zeigt Abbildung 4.1, während die identifizierten Isotope in Tabelle 4.3 enthalten sind.

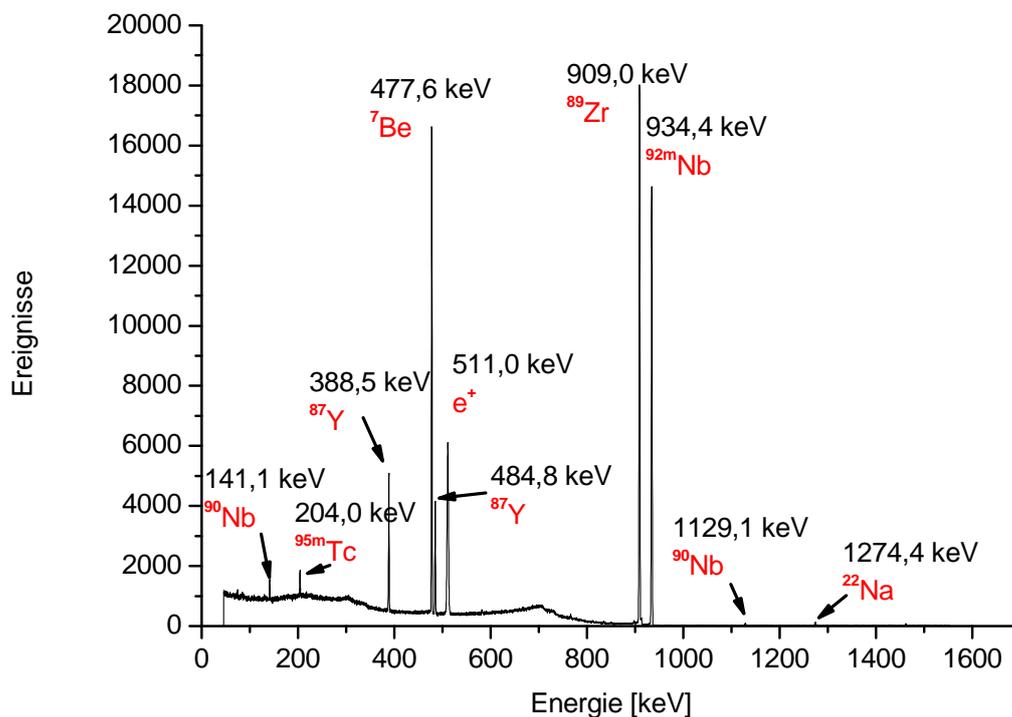


Abbildung 4.1: *Gammasktrum von  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$  8 Tage nach der Bestrahlung mit  $40,6$  MeV  $^3\text{He}$ -Ionen*

Isotop	$T_{1/2}$	$E_\gamma$ (Literaturwert) [keV]	$E_\gamma$ (Messwert) [keV]
$^7\text{Be}$	10,15 d	912,6	912,8
		934,44	934,4
$^{22}\text{Na}$	2,6019 y	1274,53	1274,4
$e^+$		510,99906	510,9
$^{81}\text{Rb}$	4,576 h	190,46	190,6
		446,15	445,8
$^{87}\text{Kr}$	76,3 min	402,589	401,6
$^{87}\text{Y}$	79,8 h	388,531	388,5
		484,805	484,8
$^{88}\text{Y}$	106,65 d	898,042	898,0
$^{89}\text{Zr}$	78,41 h	908,96	909,0
$^{90}\text{Nb}$	14,60 h	132,716	132,9
		141,178	141,1
		1129,224	1129,1
$^{91\text{m}}\text{Nb}$	60,86 d	104,62	104,4
$^{92\text{m}}\text{Nb}$	10,15 d	912,6	912,8
		934,44	934,4
$^{94}\text{Tc}$	293 min	702,622	703,6
		849,74	849,8
$^{95}\text{Tc}$	61 d	204,117	204,0
		582,082	581,9
		835,149	835,2
$^{95\text{m}}\text{Tc}$	20 h	204,12	204,0
		765,789	765,8
$^{96}\text{Tc}$	4,28 d	316,50	317,1
		778,22	777,7
		849,86	849,8

Tabelle 4.3: Identifizierte Isotope aus dem Gammaspektrum von  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ 

Es fällt auf, dass von den bestimmten Isotopen der Großteil auf Kernreaktionen des Niobs mit dem Helium zurückzuführen ist. Neben mehreren Technetium- und Niobisotopen entstehen beispielsweise auch  $^{87}\text{Y}$  und  $^{89}\text{Zr}$ . Reaktionen mit Sauerstoff erzeugen keine langlebigen radioaktiven Isotope und aus dem  $^7\text{Li}$  entsteht nur  $^7\text{Be}$  mit einer Halbwertszeit von gut 10 Tagen. Die Dotierung des Lithiumniobatkristalls mit Magnesium trägt lediglich zu einer einzigen Linie im Gammaspektrum bei, nämlich durch das entstandene  $^{22}\text{Na}$ . Da mehrere der produzierten radioaktiven Isotope wie z. B.  $^{89}\text{Zr}$  und  $^{22}\text{Na}$  einen  $\beta^+$ -Zerfall erleben, wird auch die für Positronenannihilation typische Linie von 511 keV nachgewiesen.

### 4.2.2 Verfärbung der Kristalle

Bei den zwei mit Magnesium dotierten Lithiumniobatkristallen, die in Bestrahlung 1 verwendet wurden, lässt sich nach der Bestrahlung keine Verfärbung beobachten. Ebenso ist auch bei beiden Proben aus Bestrahlung 2 - sowohl bei dem kongruent schmelzenden Material als auch bei der dotierten Probe - keine Farbänderung sichtbar. Dagegen sind die vier in Bestrahlung 3 und 4 eingesetzten Proben hinterher im bestrahlten Bereich braun verfärbt. Diese Verfärbung verblasst mit der Zeit und ist nach einigen Wochen nur noch schwach zu erahnen. Abbildung 4.2 zeigt die Braunfärbung einer der  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Proben, die in Bestrahlung 4 für 2 h bestrahlt wurden. Die Aufnahme wurde eine Woche nach der Bestrahlung gemacht. Man erkennt deutlich die Form der länglichen Schlitzblende.

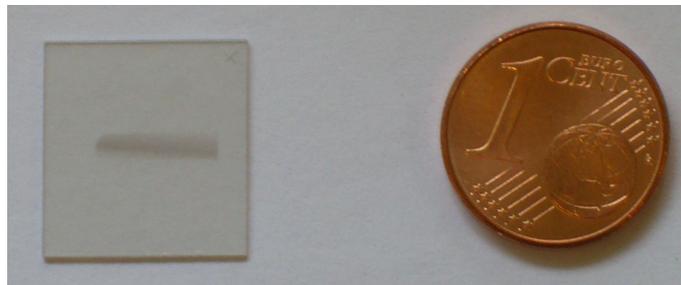


Abbildung 4.2: Bräunliche Verfärbung eines  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Kristalls nach zweistündiger Bestrahlung mit  $40,6 \text{ MeV } ^3\text{He}$ -Ionen

### 4.2.3 Änderung von Brechungsindex und Probendicke

Je nach Stärke der Aktivierung werden die Proben etwa 1-3 Wochen nach der Bestrahlung interferometrisch auf Änderungen im Brechungsindex untersucht.

#### Bestrahlung 1

Die Untersuchung der für 10 bzw. 20 Minuten bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ -Proben ergibt keine messbare Änderung des Brechungsindex oder der Probendicke. Ebenso ist im Interferogramm der bestrahlte Bereich nicht zu sehen.

#### Bestrahlung 2

Auch die zweite Bestrahlung führt zu keiner messbaren Veränderung des Brechungsindex oder der Probendicke. Dafür lässt sich sowohl im Interferogramm der kongruent schmelzenden Probe als auch ganz schwach im Interferogramm der dotierten Probe der bestrahlte Bereich erkennen.

### Bestrahlung 3

Die dritte, jeweils zweistündige Bestrahlung führt zu einer Veränderung des Brechungsindex bei beiden Proben. Abbildung 4.3 zeigt  $\Delta n$  der mit Magnesium dotierten Probe, wobei der Strahlfleck in der Mitte deutlich zu sehen ist. Der Bereich

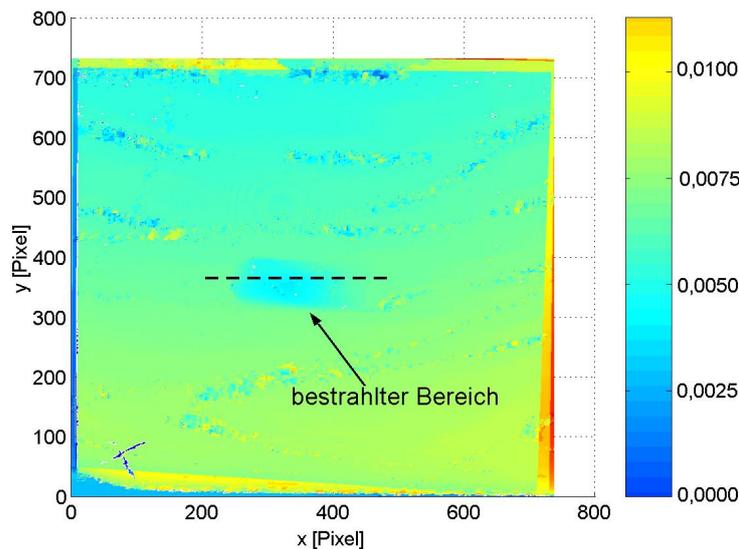


Abbildung 4.3: Änderung des Brechungsindexes  $\Delta n_o$  des  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Kristalls aus Bestrahlung 3 über der Fläche

der Brechungsindexänderung ist aufgrund der starken Strahlfokussierung kleiner als die Fläche der Schlitzblende und beträgt etwa  $3,5 \text{ mm}^2$ . Da es sich um eine  $z$ -cut Probe handelt und bei der interferometrischen Untersuchung das Laserlicht auch parallel zur  $z$ -Achse eingestrahlt wird, ist diese Änderung eine Modifikation des ordentlichen Brechungsindex. Insgesamt lässt sich in der Mitte des bestrahlten Bereichs ein maximales  $\Delta n_o$  von  $(-2,5 \pm 0,2) \cdot 10^{-3}$  ermitteln. In Abb. 4.4 ist die Brechungsindexänderung entlang eines Schnitts durch den bestrahlten Bereich zu sehen.

Durch die Bestrahlung ändert sich die Dicke des Kristalls nur sehr geringfügig. Die Abweichung der Dicke in Metern von den eigentlichen  $0,5 \text{ mm}$  ist in Abb. 4.5 dargestellt. Zwar ist im Bereich des Strahlflecks die Dicke um ca.  $(0,2 \pm 0,1) \mu\text{m}$  erhöht, doch scheint der Kristall bereits zuvor eine recht ungleichmäßige Stärke gehabt zu haben. So variiert die Dicke insgesamt um etwa  $2 \mu\text{m}$  und insbesondere der unterste Bereich der Probe, der mit dem Rand des ursprünglichen Wafers übereinstimmt, erscheint dünner als der Rest.

Für die kongruent schmelzende Lithiumniobatprobe ergibt sich eine deutlich geringere Änderung des Brechungsindex. Insgesamt erhält man ein maximales  $\Delta n$  von etwa  $(-0,3 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$ , also eine gegenüber der dotierten Probe um eine Größenordnung kleinere Modifikation. Dafür ist der Bereich mit verändertem Brechungsindex vermutlich aufgrund der während der Bestrahlung verlorengegangenen Fokussierung des Strahls mit rund  $8,8 \text{ mm}^2$  etwa so groß wie die Fläche der Schlitzblende. Eine Änderung der Probendicke kann nicht sicher festgestellt werden, sie liegt unter  $0,2 \mu\text{m}$ .

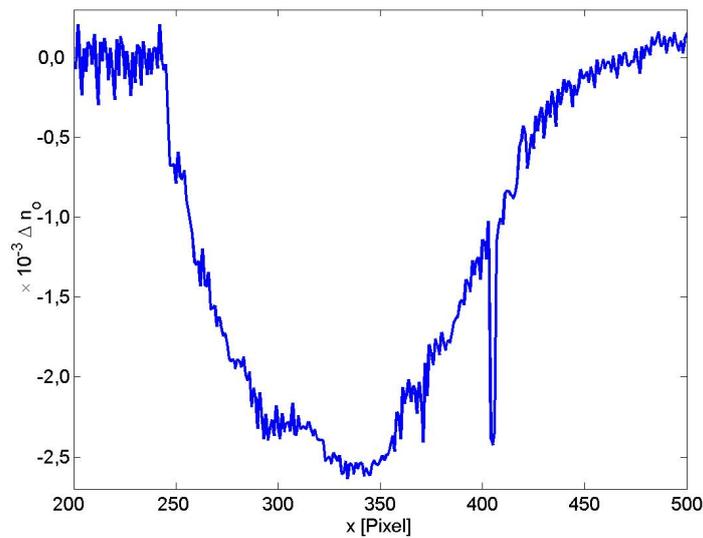


Abbildung 4.4:  $\Delta n_o$ : Schnitt durch den bestrahlten Bereich entlang der gestrichelten Linie aus Abbildung 4.3

Da die bei der Bestrahlung der  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Probe eingesetzte Strahlfokussierung bei der anschließenden Bestrahlung der kongruent schmelzenden Probe nachließ und sich der Ionenstrahl stark verbreiterte, sind die beiden Proben vermutlich mit unterschiedlicher Dosis  $D$  bestrahlt worden. Um dies zu überprüfen, wird die Aktivierung  $A$  der zwei Kristalle untersucht. Wenn man davon ausgeht, dass die Aktivierung proportional zur Zahl der einfallenden Ionen ist, so sollte das Verhältnis der Aktivierungen pro bestrahltem Bereich der zwei Proben etwa dem Verhältnis der Bestrahlungsdosen entsprechen. Als bestrahlte Fläche  $F$  wird dabei der Bereich mit einer messbaren Änderung des Brechungsindex angenommen.

Von beiden bestrahlten Proben wird zur Bestimmung der Aktivität ein Gamma-

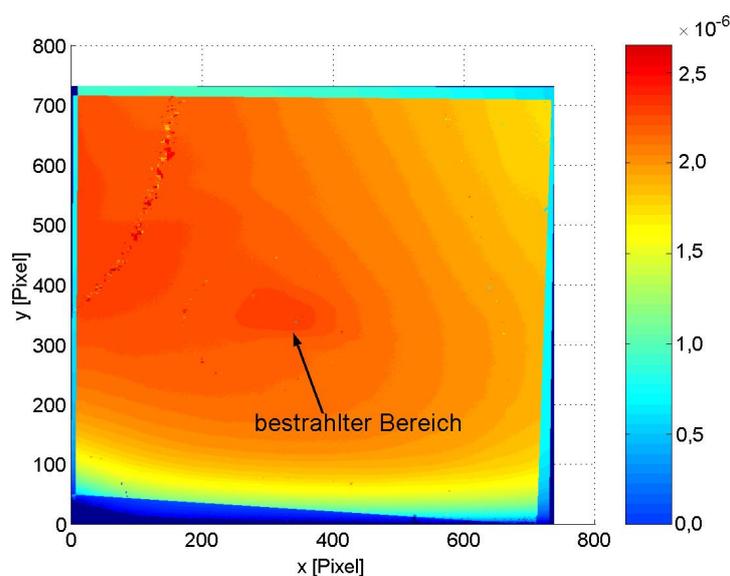


Abbildung 4.5: Änderung der Dicke (in Metern) des  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Kristalls aus Bestrahlung 3 über der Fläche: Neben einer leichten Veränderung im Bereich des Strahlflecks scheint die Probe bereits zuvor ungleichmäßig dick gewesen zu sein.

spektrum aufgenommen. Dann wird die Anzahl der registrierten Gammaquanten  $N(t)$  in den drei folgenden Peaks bestimmt:  $^{95\text{m}}\text{Tc}$  mit  $E_\gamma=204,12$  keV,  $^{92\text{m}}\text{Nb}$  mit  $E_\gamma=934,44$  keV und  $^7\text{Be}$  mit  $E_\gamma=912,6$  keV. Da die beiden Proben nicht zeitgleich sondern mit einem Tag Unterschied ausgemessen werden, müssen die Halbwertszeiten  $T_{1/2}$  der drei radioaktiven Isotope berücksichtigt werden. Folglich wird so die Aktivität  $A_0$  der Proben direkt nach der Bestrahlung berechnet und auf die bestrahlte Fläche  $F$  normiert.

$$\frac{A_0}{F} = \frac{\ln 2}{T_{1/2}} N(t) e^{\frac{t \ln 2}{T_{1/2}}} \quad (4.1)$$

Tabelle 4.4 zeigt die Ergebnisse. Das Verhältnis von  $\frac{A_0}{F}(\text{LiNbO}_3)$  und  $\frac{A_0}{F}(\text{LiNbO}_3:\text{Mg})$  liegt bei etwa 11 und damit in der selben Größenordnung wie das Verhältnis der Brechungsindexänderungen.

Probe	$\frac{A_0}{F}$ ( $^{95\text{m}}\text{Tc}$ ) [ $\frac{1}{\text{smm}^2}$ ]	$\frac{A_0}{F}$ ( $^7\text{Be}$ ) [ $\frac{1}{\text{smm}^2}$ ]	$\frac{A_0}{F}$ ( $^{92\text{m}}\text{Nb}$ ) [ $\frac{1}{\text{smm}^2}$ ]
$\text{LiNbO}_3$	$7,54 \cdot 10^{-4}$	$229 \cdot 10^{-4}$	$1.973 \cdot 10^{-4}$
$\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$	$83,3 \cdot 10^{-4}$	$2.457 \cdot 10^{-4}$	$21.782 \cdot 10^{-4}$
Verhältnis	11,0	10,7	11,0

Tabelle 4.4: Bestimmung der relativen Dosis der zwei Proben aus Bestrahlung 3

#### Bestrahlung 4

Die zwei dotierten Proben aus Bestrahlung 4 zeigen beide eine messbare Änderung des Brechungsindex. Der bestrahlte Bereich entspricht relativ genau der Form der Schlitzblende wie in Abbildung 4.6 für die zweite Probe zu sehen ist. Die maximale

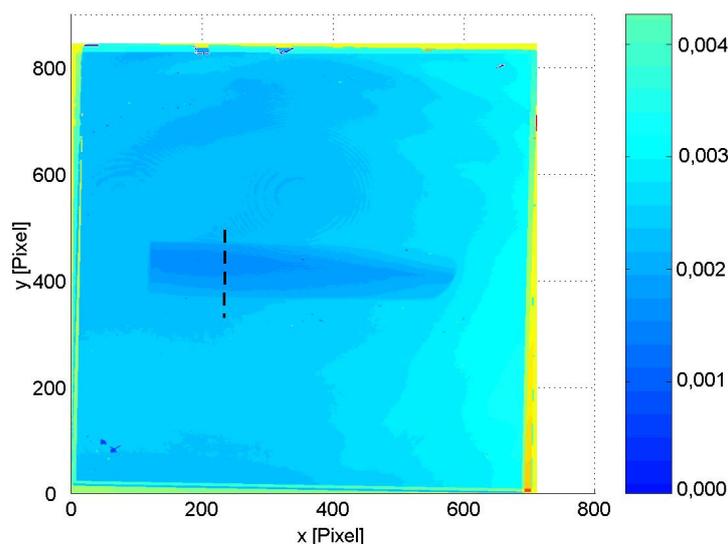


Abbildung 4.6: Änderung des Brechungsindex  $\Delta n_o$  einer Probe aus Bestrahlung 4 über der Fläche

Brechungsindexänderung  $\Delta n_o$  beträgt für die erste Probe etwa  $(-0,3 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$  und

für die zweite Probe  $(-0,6 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$ . Der Unterschied in der Brechungsindexänderung der zwei Proben aus Bestrahlung 4 liegt wahrscheinlich daran, dass die Höhe des Strahlstroms während der Bestrahlung schwankte und die Position des Strahls etwas variierte.

Die Brechungsindexänderung erscheint im bestrahlten Bereich relativ gleichmäßig. Abbildung 4.7 zeigt  $\Delta n_o$  entlang eines Schnitts quer durch den bestrahlten Bereich. Eine Änderung der Kristalldicke kann bei beiden Proben nicht festgestellt werden.

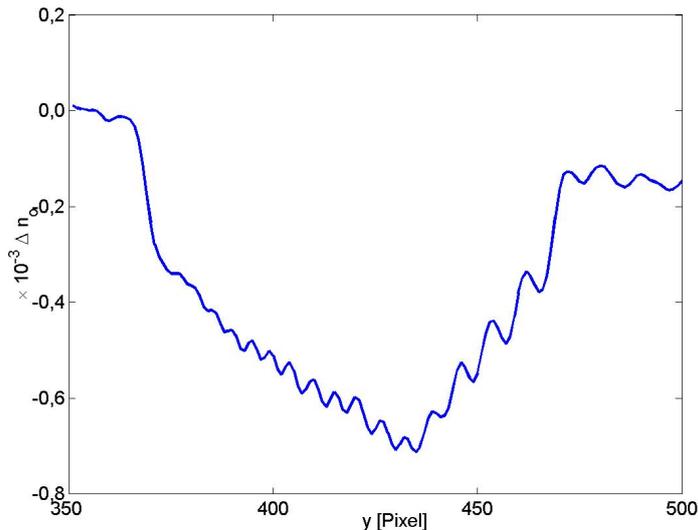


Abbildung 4.7:  $\Delta n_o$  einer Probe aus Bestrahlung 4: Schnitt entlang der gestrichelten Linie aus Abb. 4.6

#### 4.2.4 Polen der Kristalle

Um zu ermitteln, ob sich durch die Bestrahlung und die einhergehende Defekterhöhung im bestrahlten Bereich des Kristalls das Koerzitivfeld verändert, werden mehrere mit Magnesium dotierte Proben gepolt. In einer ersten Messung wird eine Polungsgeschwindigkeit von 50 V/s verwendet und eine unbestrahlte Probe, die für 20 Minuten in Bestrahlung 1 bestrahlte Probe sowie die  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Proben aus Bestrahlung 2 und 3 untersucht und bis zu siebenmal umgepolt. Die erhaltenen Strom-Spannungskurven ähneln sich stark, wobei jeweils nur ein Strompeak zu erkennen ist. Auch bei den bestrahlten Kristallen enthält die Stromkennlinie kein zusätzliches Maximum bei einer anderen Spannung. Abbildung 4.8 zeigt dies beispielhaft für die in Bestrahlung 3 für 2 Stunden bestrahlte  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Probe.

Über die Grenzstrom-Methode (siehe Kapitel 3.3) wird nun die Koerzitivfeldstärke ermittelt. Tabelle 4.5 enthält die Ergebnisse für den ersten Polungsvorgang, der ja in der Regel etwas abweicht, sowie die Mittelwerte der Koerzitivfelder  $E_C^v$  und  $E_C^r$  für die weiteren Vorwärts- und Rückpolungen. Die Genauigkeit der so bestimmten Koerzitivfelder liegt bei  $\pm 0,2$  kV/mm. Man erkennt, dass die Werte alle nicht stark voneinander abweichen. Zwar nehmen die Koerzitivfelder der bestrahlten Proben je nach Grad der Bestrahlung ab, doch liegen die Mittelwerte der unbestrahlten Probe

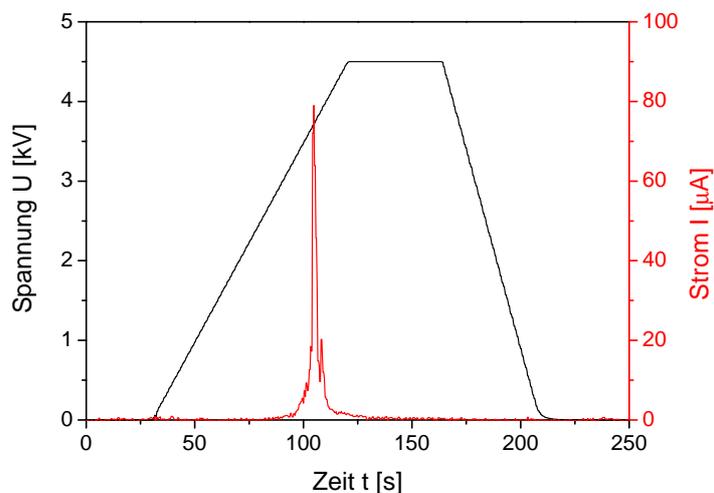


Abbildung 4.8: Probe aus Bestrahlung 3: Verlauf des Polungsstromes bei einer Polungsgeschwindigkeit von 50 V/s. Es ergibt sich nur ein Strommaximum.

Probe	$E_C$ 1. Polung [kV/mm]	Mittel $E_C^v$ [kV/mm]	Mittel $E_C^r$ [kV/mm]
unbestrahlt 1	9,2	6,6	-5,8
B 1	7,1	6,9	-6,0
B 2	8,0	6,8	-5,8
B 3	8,0	6,1	-5,5

Tabelle 4.5: Polen von  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Kristallen mit einer Geschwindigkeit von 50 V/s

mit 6,6 kV/mm bzw. -5,8 kV/mm zwischen denen für die Proben aus Bestrahlung 2 und 3. Ein klarer Zusammenhang zwischen Bestrahlung und Koerzitivfeld ergibt sich also bei dieser Messung nicht.

Da das Polungsverhalten stark von der Geschwindigkeit, mit der die Spannung erhöht wird, abhängt, wird die Polungsmessung noch einmal mit einem langsameren Spannungsanstieg einige Male wiederholt. Nun wird eine Polungsgeschwindigkeit von 5 V/s verwendet. Zusätzlich wird der Polungsvorgang über Ausnutzung der Spannungsdoppelbrechung in situ visualisiert. Neben den bereits in der ersten Messung untersuchten Proben wird noch eine weitere unbestrahlte Probe gepolt, um zu überprüfen, ob die Ergebnisse in Messung 1 nicht von den speziellen Eigenarten der anderen unbestrahlten Probe herrühren, sowie die zwei in Bestrahlung 4 bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle eingesetzt.

Während die erhaltenen Stromkurven der unbestrahlten Proben und der Proben aus den Bestrahlungen 1, 2 und 3 wieder nur aus einem einzelnen Strompeak je Polungsvorgang bestehen, lassen sich bei den in Bestrahlung 4 bestrahlten Proben klar zwei Peaks erkennen. Abbildung 4.9 zeigt beispielhaft eine Polungskurve. Man erkennt ein frühes kleines Strommaximum, welches vom bestrahlten Abschnitt des Kristalls herrührt, sowie einen größeren Peak aufgrund des Umklappens des unbestrahlten

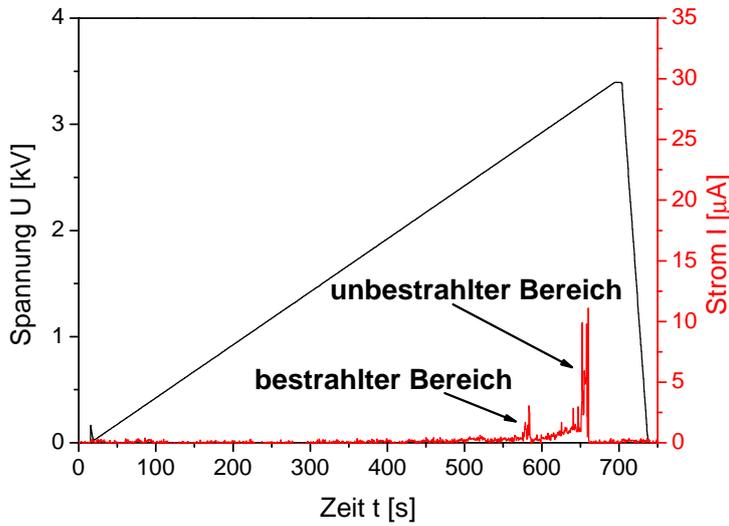


Abbildung 4.9: Polungsstrom einer Probe aus Bestrahlung 4 bei einer Polungsgeschwindigkeit von 5 V/s: Man erkennt zwei getrennte Peaks für den bestrahlten und unbestrahlten Bereich.

Bereiches.

Die aus den Stromkurven ermittelten Koerzitivfeldstärken enthält Tabelle 4.6, wobei der Fehler 0,2 kV/mm beträgt. Gegenüber den Ergebnissen aus Messung 1 nimmt die Koerzitivfeldstärke im unbestrahlten Bereich aufgrund der geringeren Polungsgeschwindigkeit wie erwartet generell ab. Bis auf die Proben aus Bestrahlung 4 lässt

Probe	$E_C$ der 1. Polung [kV/mm]	Mittel $E_C^v$ [kV/mm]	Mittel $E_C^r$ [kV/mm]
unbestrahlt 1	-	6,0	-5,1
unbestrahlt 2	7,2	6,1	-4,9
B 1	-	5,9	-5,3
B 2	-	5,8	-5,1
B 3	-	5,9	-5,0
<i>B 4a bestrahlt</i>	5,7	5,6	-5,0
B 4a unbestrahlt	6,7	6,0	-5,3
<i>B 4b bestrahlt</i>	5,6	5,5	-4,6
B 4b unbestrahlt	6,8	6,0	-5,0

Tabelle 4.6: Polen von  $LiNbO_3:Mg$ -Kristallen mit einer Geschwindigkeit von 5 V/s

sich wiederum nur eine Koerzitivfeldstärke für den gesamten Kristall bestimmen, wobei die Streuung der Werte sehr gering ist. Bei den zwei Proben aus Bestrahlung 4 ergibt sich jedoch ein Unterschied der Koerzitivfeldstärken des bestrahlten und unbestrahlten Bereiches von etwa 0,4 kV/mm. Das innere Feld, also  $\frac{1}{2}(E_C^v - E_C^r)$ , bleibt jedoch in beiden Fällen gleich. Dagegen liegt die Koerzitivfeldstärke beim ersten Polungsvorgang im unbestrahlten Bereich wie zuvor deutlich über den Werten

für nachfolgende Polungen in Vorwärtsrichtung, während sie im bestrahlten Bereich etwa genauso groß wie bei den späteren Polungen ist.

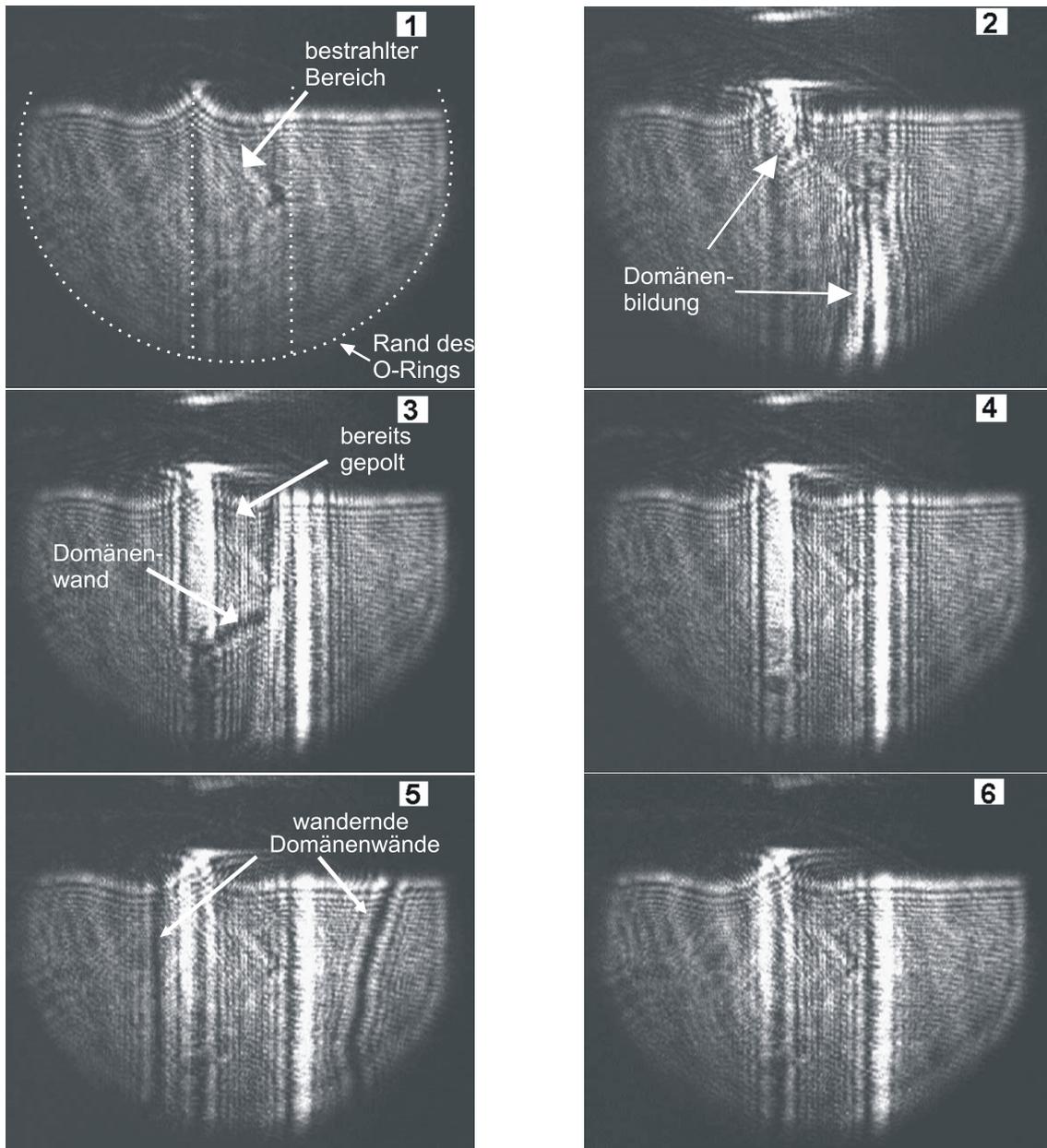


Abbildung 4.10: Polung einer Probe aus Bestrahlung 4, wobei sich der bestrahlte Bereich senkrecht in der Mitte befindet.

(1) Kristall vor Polungsbeginn, (2) Keimbildung und erste Domänen am Rand des bestrahlten Bereichs, (3) bestrahlter Bereich teilweise umgepolt, (4) vollständige Umpolung des bestrahlten Bereiches, (5) Umpolen des unbestrahlten Bereiches durch Domänenwachstum, (6) nach vollständiger Umpolung: An den Rändern des bestrahlten Bereichs herrscht weiterhin eine hohe mechanische Spannung im Kristall.

Dass bei den Proben aus Bestrahlung 4 der bestrahlte Bereich des Kristalls und nicht der unbestrahlte Abschnitt früher umpolt und die niedrigere Koerzitivfeldstärke besitzt, lässt sich anhand der Videoaufnahmen des Polungsvorgangs belegen. Abbildung 4.10 enthält Fotos einzelner Abschnitte eines Polungsvorgangs.

Der bestrahlte Bereich befindet sich senkrecht in der Mitte des O-Rings. Man erkennt, dass sich zuerst an den Rändern des bestrahlten Bereiches einzelne Keime bilden (Bild 2), die dann wachsen und zu einem Umpolen des bestrahlten Abschnitts führen (Bild 3&4). Dies verursacht den ersten Peak in der Stromkurve. Erst nachdem der gesamte bestrahlte Bereich umgepolt wurde, wandern die Domänenwände langsam von den Rändern dieses Bezirkes ausgehend in den unbestrahlten Bereich hinein (Bild 5), bis schließlich der gesamte Kristall umgepolt ist (Bild 6). Das Umpolen des unbestrahlten Kristallbereiches, der deutlich größer als der bestrahlte Bereich ist, führt nun zum zweiten, größeren Strommaximum. Solange das äußere Feld weiterhin anliegt, herrscht nach Beendigung des Polungsvorgangs an den Rändern des bestrahlten Bereiches eine hohe mechanische Spannung, was sich in den hellen Streifen im Kamerabild zeigt. Diese werden ja durch Spannungsdoppelbrechung erzeugt. Wird das äußere elektrische Feld langsam wieder gesenkt, so verschwindet diese Spannungsdoppelbrechung wieder.

Bei den unbestrahlten und den nur schwach bestrahlten Proben aus Bestrahlung 1 und 2 beginnt der Polungsvorgang dagegen am Rand der Wasserelektroden. Die dort entstehenden Domänen breiten sich dann über den gesamten Kristall aus. Eine Sonderstellung nimmt der Kristall aus Bestrahlung 3 ein: Hier findet Keimbildung am O-Ring sowie gleichzeitig im bestrahlten Bereich statt. Da jedoch der Einfluss des Randes dominiert, ist in der Stromkurve trotzdem nur ein Peak enthalten.

## 4.3 Diskussion der Ergebnisse

Die erhaltenen Ergebnisse zeigen zum einen, dass die Magnesiumdotierung die Eigenschaften des Lithiumniobats bei der Bestrahlung gegenüber denen des kongruent schmelzenden Materials bezüglich des Gammaskpektrums, der Verfärbung und der Brechungsindexänderung wenig verändert. Zum anderen kann durch die Bestrahlung das Polungsverhalten beeinflusst werden.

### Gammaskpektrum

Das Gammaskpektrum ergibt, dass aus dem zur Dotierung verwendeten Magnesium bei der Bestrahlung mit 40,6 MeV  $^3\text{He}$ -Ionen nur ein langlebiges radioaktives Isotop, nämlich  $^{22}\text{Na}$  mit einer Halbwertszeit von gut 2,6 Jahren, entsteht. Es wird vermutlich noch eine Reihe kurzlebiger Isotope erzeugt, die jedoch in der durchgeführten Messung nicht mehr nachgewiesen werden können. Bei einer Verwendung des bestrahlten Kristalls frühestens einige Tage nach der Bestrahlung trägt die Dotierung so jedoch nur geringfügig zur Gesamtaktivität der Probe bei.

### Brechungsindex- und Dickenänderung

Ein wichtiges Ergebnis ist die Beobachtung, dass auch im dotierten Material die Bestrahlung zu einer erheblichen Änderung des Brechungsindex führt. Ebenso wie die Verfärbung ist  $\Delta n$  abhängig von der Ionendosis. Die unterschiedlich große Brechungsindexänderung der zwei Proben aus Bestrahlung 3 ist vermutlich auf das Nachlassen der Strahlfokussierung während der Bestrahlung der kongruent schmelzenden Probe zurückzuführen. Die erhaltenen Ionendosen unterscheiden sich um etwa den Faktor 11, was deutlich zeigt, dass die dotierte Probe stärker bestrahlt wurde. Ein genauer quantitativer Vergleich für  $\Delta n$  zwischen kongruent schmelzendem Lithiumniobat und mit Magnesium dotiertem Material steht so zwar noch aus, doch scheint sich das dotierte Lithiumniobat bei Bestrahlung mit hochenergetischen Heliumionen qualitativ ähnlich zu verhalten. Die messbaren Änderungen des Brechungsindex liegen auch etwa in den schon aus früheren Versuchen bekannten Größenordnungen [And04, Pei06]. Dies deutet darauf hin, dass die für die Änderung des Brechungsindex verantwortlichen Schäden im Kristall nicht von den vielen intrinsischen Fehlstellen im kongruent schmelzenden Lithiumniobat abhängen.

Eine Änderung der Kristalldicke kann nur bei dem  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Kristall aus Bestrahlung 3 festgestellt werden, der für zwei Stunden mit einem stark fokussierten Strahl bestrahlt wurde. Doch auch hier bleibt der Effekt sehr klein. Für eine deutliche Dickenänderung wird also eine kräftige Ionendosis benötigt.

### Polung der Kristalle

Bei der Polung der Kristalle liegen die Ergebnisse für die Koerzitivfeldstärke bei den unbestrahlten  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Proben mit  $E_C=(6,0\pm 0,2)$  kV/mm bei einer linearen Erhöhung der Spannung um 5 V/s im erwarteten Bereich früherer Ergebnisse (siehe [Wen05a, Wen05b] mit einem Koerzitivfeld  $E_C=(6,5\pm 0,2)$  kV/mm bei einer Spannungserhöhung um 30 V/s). Dass die Umpolung am Rand des O-Rings anfängt, lässt sich damit erklären, dass hier leicht Inhomogenitäten im anliegenden elektrischen Feld auftreten. Für die stärker bestrahlten Proben zeigt sich, dass in der Tat der bestrahlte Kristallabschnitt rascher umpolt als der unbestrahlte. Allerdings ist der Unterschied der Koerzitivfeldstärken mit 0,4 kV/mm relativ klein, so dass er bei großen Polungsgeschwindigkeiten leicht übersehen werden kann. Interessanterweise beginnt die Domäneninversion nicht in der Mitte des bestrahlten Bereiches, wo die Brechungsindexänderung und damit vermutlich die Defekthöhe am größten ist, sondern im Übergangsbereich zwischen dem bestrahlten und unbestrahlten Abschnitt. Eine Ursache hierfür könnte sein, dass neu entstehende Domänen üblicherweise eine streng hexagonale Form aufweisen [Wen05b]. Diese Form lässt sich in der Übergangszone, wo einerseits im unbestrahlten Bereich eine große Ordnung im Kristall herrscht und andererseits im bestrahlten Bereich viele Defekte vorliegen, vermutlich einfacher erzeugen als in der Mitte des bestrahlten Bereiches, wo die Ausgangsstruktur des Kristalls stärker zerstört ist. Dafür spricht auch, dass der Effekt besonders gut in den zwei Proben aus Bestrahlung 4 zu beobachten ist. Bei ihnen wurde ein relativ großer Bereich nahezu homogen bestrahlt, wobei der Übergang zum unbestrahlten

Teil des Kristalls recht scharf verläuft. An diesen Rändern beginnt die Domäneninversion. Im Gegensatz dazu wurde die gleich lang bestrahlte  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Probe aus Bestrahlung 3 von einem fokussierten Strahl getroffen, wobei der Übergangsbereich vom Strahlfleck zum unbestrahlten Teil des Kristalls weiter ist. Dies könnte erklären, warum sich im bestrahlten Bereich erst spät und zeitgleich mit der Zone am Rand des O-Rings Keime bilden. Eine andere mögliche Erklärung besteht darin, dass die Art der Defekte entscheidend ist und dass am Rand des bestrahlten Bereiches ein anderer, für die Keimbildung günstigerer Defektyp als in der Mitte überwiegt. Die nach Beendigung des Polungsvorgangs vorhandene Doppelbrechung und damit mechanische Spannung an den Rändern des bestrahlten Bereiches deutet darauf hin, dass es im bestrahlten Bereich unter dem Einfluss des äußeren elektrischen Feldes zu einer zumindest teilweisen Neuordnung kommt. Im Übergangsbereich zum unbestrahlten und dadurch nicht modifizierten Abschnitt könnten so Spannungsfelder im Kristall entstehen.



# Kapitel 5

## Erzeugung eines Beugungsgitters in $\text{LiNbO}_3$

Der zweite Schwerpunkt dieser Arbeit besteht aus der Erzeugung einer periodischen Brechungsindexmodulation in kongruent schmelzendem Lithiumniobat, die als Beugungsgitter für sichtbares Licht dienen kann, was eine Periode von nur wenigen Mikrometern erfordert. Das Ziel der hier beschriebenen Experimente liegt daher in der Herstellung von Beugungsgittern mit einigen Mikrometern Periodenlänge.

### 5.1 Praktische Durchführung

Die verwendete Methode zur Produktion des Beugungsgitters besteht aus der Bestrahlung eines Lithiumniobatkristalls mit hochenergetischen  $^3\text{He}$ -Ionen durch eine Schlitzblende mit einigen Mikrometern Schlitzbreite. Regelmäßig wird der Kristall dabei um eine feste Strecke automatisch verschoben, so dass sich ein Muster aus bestrahlten und unbestrahlten Streifen bildet.

#### 5.1.1 Bestrahlungsaufbau und Konstruktion der Blende

Der Aufbau zur Erzeugung des Gitters besteht aus drei Komponenten: Einem Verschiebetisch, auf dem der Lithiumniobatkristall befestigt ist, einer davor eingebauten Schlitzblende aus Tantal und wie in Kapitel 4 einer Blende aus Graphit. Alle Bauelemente werden auf einem Flansch befestigt, der direkt in das Vakuum des Zyklotron-Strahlrohres eingebaut werden kann. Abbildung 5.1 zeigt die Anordnung schematisch. Im Folgenden sollen die einzelnen Komponenten des Aufbaus nun näher beschrieben werden.

#### Probe und Verschiebetisch

Die verwendeten Kristalle bestehen aus kongruent schmelzendem  $x$ -cut Lithiumniobat mit den Maßen  $x \times y \times z = 0,5 \times 15 \times 10 \text{ mm}^3$ . Die jeweilige Probe wird mit Hilfe von zwei Haltebacken aus Aluminium auf einem vakuumtauglichen Verschiebetisch der

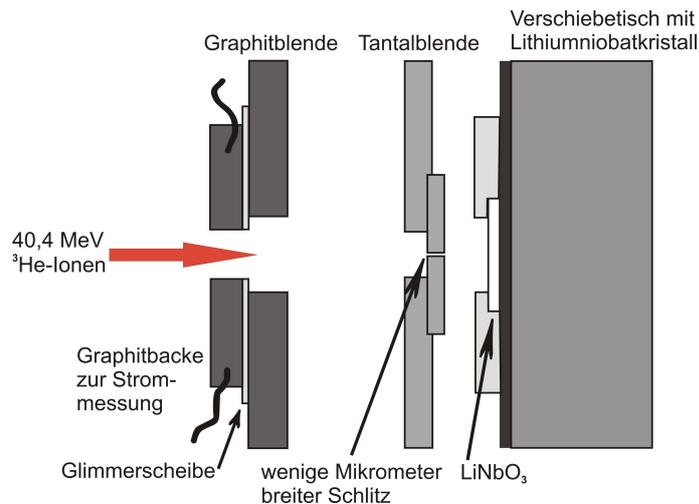


Abbildung 5.1: Aufbau zur Erzeugung einer periodischen Brechungsindexmodulation: Der  $\text{LiNbO}_3$ -Kristall wird durch eine Tantalblende mit einigen Mikrometern Schlitzbreite bestrahlt, wobei er regelmäßig verschoben wird. Die Graphitblende dient zur Abschirmung der Strahlung und der Kontrolle der Strahlposition.

Firma Newport befestigt. Der Wärmekontakt zwischen dem  $\text{LiNbO}_3$ -Kristall und dem Tisch wird durch Wärmeleitpaste erreicht. Der Verschiebetisch kann mittels einer Stellschraube bewegt werden. Dazu ist die Schraube über eine Schnecke mit einer Welle verbunden, die von einem außen am Flansch angebrachtem Schrittmotor angetrieben wird. Dieser kann automatisch mit Hilfe eines PC-Programms gesteuert werden. Eine Verschiebung des Tisches und somit der Probe um  $1 \mu\text{m}$  entspricht dabei einem Weiterdrehen des Motors um 16 Schritte.

### Schlitzblende aus Tantal

Als Material für die Schlitzblende wird Tantal gewählt. Neben großer Härte und Temperaturbeständigkeit hat es den Vorteil, hochenergetische Heliumionen relativ gut zu absorbieren. Nur etwa  $300 \mu\text{m}$  Stärke reichen aus, um Ionen mit einer Energie von  $40,4 \text{ MeV}$  vollständig zu stoppen. Ferner kann durch mechanisches Bearbeiten eine gute Kanten- und Oberflächenbeschaffenheit erreicht werden. Damit eine kurze Gitterperiode erreicht werden kann, ist es sehr wichtig, dass der Schlitz der Tantalblende selbst nur einige Mikrometer breit ist. Für diese Arbeit werden insgesamt zwei Blenden hergestellt.

Der Bau einer Blende erfolgt in mehreren Schritten. Als Ausgangsbasis dient ein etwa  $900 \mu\text{m}$  dickes,  $1 \text{ cm}$  breites und  $3 \text{ cm}$  langes Tantalplättchen. In dieses wird mittig ein gut  $3 \times 3 \text{ mm}^2$  großes Loch sowie längs eine  $4 \text{ mm}$  breite und etwa  $150 \mu\text{m}$  tiefe Nut gefräst, wie in Abb. 5.2(a) gezeigt. In die Nut werden mit 2-Komponentenkleber zwei  $3 \times 10 \times 0,3 \text{ mm}^3$  große Tantalbacken geklebt, deren Abstand nur einige Mikrometer beträgt und die somit den Schlitz bilden (Abb. 5.2(b)). Um diesen geringen

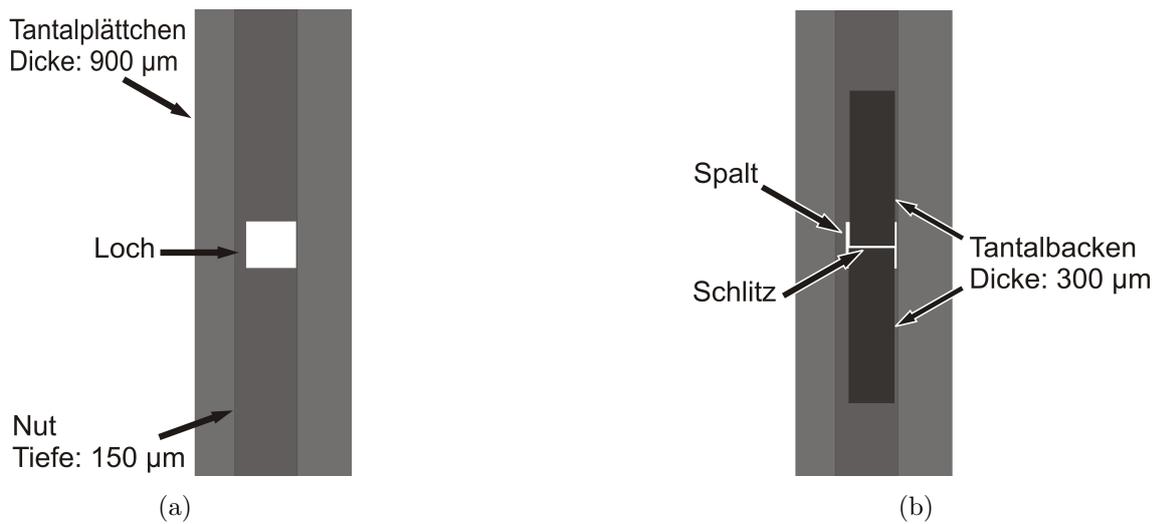


Abbildung 5.2: Bau der Schlitzblende aus Tantal: (a) In ein  $900\ \mu\text{m}$  dickes Plättchen werden ein gut  $3 \times 3\ \text{mm}^2$  großes Loch und eine etwa  $150\ \mu\text{m}$  tiefe Nut geätzt. (b) In die Nut werden zwei  $300\ \mu\text{m}$  dicke Tantalbacken geklebt, die zusammen den einige Mikrometer breiten Schlitz formen.

Abstand zu erreichen, wird bei den zwei gebauten Blenden leicht unterschiedlich vorgegangen. Beim Bau der ersten Blende wird zuerst eine Backe in der Nut mit 2-Komponentenkleber so festgeklebt, dass das Loch zur Hälfte überdeckt ist. Nach Aushärten des Klebstoffs wird die zweite Backe dicht daneben ebenfalls festgeklebt, wobei sie mit einer Klemme stabilisiert wird. Zwischen die beiden Backen wird dabei ein  $3\ \mu\text{m}$  dickes Stück Tantalfolie als Abstandshalter geklemmt, das nach dem Trocknen des Klebers wieder herausgezogen wird. Die Untersuchung mit dem Mikroskop ergibt, dass sich die zweite Backe während des Trocknens leicht verschoben hat und somit ein dreieckiger Schlitz mit einer von 0 auf  $15\ \mu\text{m}$  zunehmenden Breite und insgesamt etwa  $3\ \text{mm}$  Länge erzeugt wurde. Beim Bau der zweiten Blende wird das Verfahren daher dahingehend modifiziert, dass die zweite Backe während des Härstens des 2-Komponentenklebers nicht nur festgeklebt, sondern zusätzlich noch mit Schnellfest-Klebstoff fixiert wird. Zudem werden statt eines Tantalfolienschnipsels nun zwei Stücke der  $3\ \mu\text{m}$  dicken Folie jeweils oben und unten im Schlitz als Abstandshalter eingefügt. Nach Aushärten des 2-Komponentenklebers lassen sich diese nicht mehr entfernen, so dass der resultierende Schlitz lediglich eine Länge von gut  $1\ \text{mm}$ , aber eine Breite von nur ca.  $3\text{-}4\ \mu\text{m}$  aufweist. Da der Schnellfest-Klebstoff im Vakuum ausdampfen kann, wird er vorsichtig wieder abgekratzt. Bei beiden Blenden sind die zwei Tantalbacken etwas schmaler als das in das Ausgangsplättchen geätzte Loch, wodurch sich links und rechts der Backen noch zwei senkrechte, freie Spalten befinden (siehe Abb. 5.2(b)). Bei einer Bestrahlung gelangen die Ionen somit nicht nur durch den Schlitz, sondern auch durch diese zwei breiten Randspalten.

Damit die gewünschte Blende am Flansch montiert werden kann, wird sie an beiden Längsenden auf einen Aluminiumhalter geklebt, welcher dann festgeschraubt wird.

Die zwei Tantalbacken befinden sich hierbei auf der Seite des Lithiumniobatkristalls, wobei darauf geachtet wird, dass der Abstand zwischen Probe und Blende weniger als 0,1 mm beträgt, um die Aufstreuung der Ionen hinter der Schlitzblende möglichst gering zu halten. Abbildung 5.3 zeigt den Flansch mit eingebauter Tantalblende und dem dahinter befindlichen Lithiumniobatkristall.

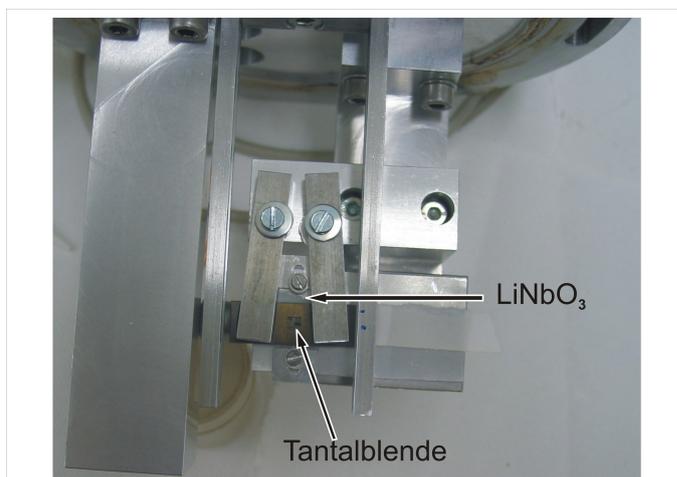


Abbildung 5.3: Montage des Flansches: Die Tantalblende und der Kristall sind bereits eingebaut.

### Graphitblende

Da sich der Durchmesser des Ionenstrahls am Strahlplatz 8 bei parallelem Strahl nicht wesentlich kleiner als 4 mm einstellen lässt, muss ein Großteil der Ionen durch eine vorgeschaltete Blende abgefangen werden, um eine zu starke Aktivierung der Tantalblende zu vermeiden. Somit wird in gut 1 cm Abstand zur Tantalblende eine Blende aus Graphit eingebaut. Diese entspricht vom Bauprinzip der in Kapitel 3.1 für die Bestrahlung der mit Magnesium dotierten  $\text{LiNbO}_3$ -Proben beschriebenen Blende. Die Maße des Schlitzes betragen nun  $1 \times 3 \text{ mm}^2$ , wobei oberhalb und unterhalb des Schlitzes wieder jeweils eine Backe zur Messung des auftreffenden Stroms angebracht ist.

### Justierung des Aufbaus

Nachdem alle Komponenten auf dem Flansch befestigt wurden, wird der Aufbau justiert. Hierbei wird zuerst überprüft, ob die zwei Blenden exakt hintereinander liegen. Dies geschieht, indem mit einem HeNe-Laser Licht durch den Schlitz der Graphitblende gesandt wird. Die Blende wird nun gegebenenfalls noch so verrückt, bis die Mitte des durchgelassenen Laserstrahls genau den Schlitz der Tantalblende trifft. Danach wird der Flansch ins Strahlrohr des Zyklotrons eingebaut. Die exakt senkrechte Ausrichtung der Probe wird ebenfalls mit einem Laser überprüft. Dazu wird auf die Rückseite des Verschiebetisches ein kleines Stück Lithiumniobat geklebt, welches im Folgenden als sehr planparalleler Spiegel dient. Ein von hinten kommender Laserstrahl, der genau in der Mitte des Strahlrohres und entgegen der späteren

Ionenflugrichtung ausgerichtet ist, wird mit Hilfe dieses Spiegels in sich selbst reflektiert, wenn der Flansch richtig ausgerichtet ist. Vorausgesetzt wird dabei, dass der Verschiebetisch und die Tantalblende hinreichend planparallel sind.

### 5.1.2 Bestrahlung mit $^3\text{He}$

Die Durchführung der Bestrahlung erfolgt wieder am Strahlplatz 8 des Bonner Isochron-Zyklotrons unter Verwendung von  $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen mit einer Energie von etwa 40,4 MeV bei einer Gesamtstromstärke von 150 nA und einem Strom auf die beiden Graphitbacken von jeweils etwa 30 nA. Die zuerst konstruierte Tantalblende wird einmal eingesetzt, die zweite zweimal.

Mit der ersten Blende mit dem 0...15  $\mu\text{m}$  breiten Schlitz werden insgesamt 70 bestrahlte Streifen in der Probe senkrecht zur  $c$ -Achse erzeugt, d. h. der Kristall wird 70 Mal verschoben. Die Bestrahlungsdauer pro Streifen beträgt 8 Minuten, wobei der Kristall jeweils um 12  $\mu\text{m}$  verschoben wird. Dies entspricht einem Weiterdrehen des Motors und damit einer Verschiebung des Lithiumniobats um 192 Schritte.

In zwei weiteren Bestrahlungen wird die Blende mit dem schmalen Schlitz mit einer Breite von 3 bis 4  $\mu\text{m}$  verwendet. Hierbei beträgt die Dauer der Bestrahlung pro Streifen nur zwei Minuten und die regelmäßige Verschiebung des Kristalls 7  $\mu\text{m}$ , was einer Veränderung der Position des Verschiebetisches um 112 Schritte bedeutet. Insgesamt wird die erste bestrahlte Probe dabei 300 Mal verschoben, während bei der zweiten Bestrahlung durch diese Tantalblende 200 Verschiebungen des Kristalls erfolgen.

Die bestrahlten Proben werden nach einigen Tagen Abklingzeit aus dem Strahlplatz ausgebaut und können knapp eine Woche nach der Bestrahlung näher untersucht werden.

### 5.1.3 Messung des Beugungswirkungsgrades

Um das durch die Bestrahlung erzeugte optische Phasengitter näher zu untersuchen, wird der Beugungswirkungsgrad gemessen. Er gibt an, wie effizient das Gitter eingestrahktes Licht beugt. Bei Vernachlässigung von Absorption und Fresnel-Reflexion ist der Beugungswirkungsgrad  $\eta$  als Verhältnis der Intensität des abgebeugten Strahles  $I_a$  zur Summe der Intensitäten  $I_a + I_t$  des abgebeugten und des transmittierten Strahles definiert (siehe Abb. 5.4).

$$\eta = \frac{I_a}{I_a + I_t} \quad (5.1)$$

Hierbei ist  $\eta$  für ein ideales, sinusförmiges, dickes Phasengitter durch folgende Beziehung gegeben [Kog69]:

$$\eta = \frac{\nu^2}{\nu^2 + \xi^2} \sin^2 \sqrt{\nu^2 + \xi^2} \quad (5.2)$$

Die Größen  $\nu$  und  $\xi$  hängen von der Periode  $g$ , der Dicke  $d$  und der Brechungsindexänderung  $\Delta n$  des Gitters sowie von der Vakuumwellenlänge  $\lambda_v$  des eingestrahnten Lichtes ab.

$$\nu = \frac{\Delta n \pi d}{\lambda_v \cos(\Theta)} \quad (5.3)$$

$$\xi = \frac{Kd}{2}(\Theta - \Theta_B) \quad (5.4)$$

$$K = \frac{2\pi}{g} \quad (5.5)$$

Hierbei ist  $\Theta$  der Winkel zwischen dem eingestrahnten Licht und der Gitternormalen innerhalb des Kristalls. Wird die Braggbedingung

$$\sin \Theta_B = \pm m \frac{\lambda}{g} \quad (5.6)$$

für ein Beugungsmaximum mit der Ordnung  $m$  erfüllt, so vereinfacht sich die Beziehung für  $\eta$  zu

$$\eta = \sin^2 \left( \frac{\Delta n \pi d}{\lambda \cos \Theta_B} \right) \quad (5.7)$$

Dabei ist  $\Theta_B$  der Braggwinkel [Kog69, Pei00]. Für ein Gitter mit einer sehr großen Brechungsindexänderung  $\Delta n$  kann hierbei das Argument der Sinusfunktion auch größer als  $\pi$  werden.

Die Messung des Beugungswirkungsgrades erfolgt über eine Messung der Intensitäten  $I_a$  und  $I_t$  mit Hilfe von zwei Photodioden (Abb. 5.4). Dazu wird der  $\text{LiNbO}_3$ -Kristall senkrecht auf einem Drehtisch befestigt und der Gitterbereich mit einem polarisierten, unaufgeweiteten Laserstrahl eines HeNe-Lasers mit der Wellenlänge  $\lambda=632,8$  nm beleuchtet. Die erste Photodiode misst dann die Intensität des transmitten Laserlichtes  $I_t$ , während die zweite Photodiode die Intensität  $I_a$  eines abgebeugten Strahles, z. B. eines Strahls des 1. Beugungsmaximums, misst. Die

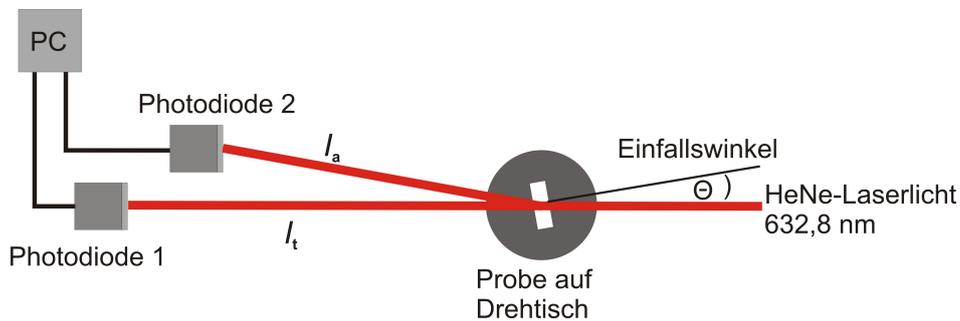


Abbildung 5.4: Aufbau zur Messung des Beugungswirkungsgrades

Probe wird nun über einen Winkelbereich  $\Theta$  von typischerweise  $-10^\circ$  bis  $+10^\circ$

gedreht. Man erhält so  $\eta$  in Abhängigkeit des Winkels  $\Theta$ . Da Lithiumniobat doppelbrechend ist, hängt  $\Delta n$  und damit auch  $\eta$  von der Polarisation des eingestrahlten Laserlichtes ab. Der Beugungswirkungsgrad  $\eta$  wird daher sowohl für Licht, welches parallel zur  $c$ -Achse polarisiert ist, als auch für Licht, welches senkrecht zur  $c$ -Achse polarisiert ist, gemessen.

## 5.2 Ergebnisse

### 5.2.1 Untersuchung mit dem Lichtmikroskop

Eine Untersuchung der verwendeten  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle auf eine mögliche Verfärbung im bestrahlten Bereich kann einen ersten Hinweis liefern, ob eine periodische Struktur erzeugt wurde.

4 Tage nach der Bestrahlung wird die erste Probe, die durch die Tantalblende mit dem  $0\text{...}15\ \mu\text{m}$  breiten Schlitz bestrahlt wurde, untersucht. Schon mit bloßem Auge ist eine braune Verfärbung zu erkennen (siehe Abbildung 5.5), wobei der direkt durch den Schlitz bestrahlte Bereich teilweise verfärbt ist und links und rechts davon jeweils ein senkrechter „Randstreifen“ zu sehen ist. Letztere sind entstanden aufgrund einer Bestrahlung durch die Zwischenräume neben den zwei Tantalbacken, die den Schlitz bilden.



Abbildung 5.5: *Durch die Tantalblende mit  $0\text{...}15\ \mu\text{m}$  Schlitzbreite bestrahlter Kristall: Der bestrahlte Bereich ist braun verfärbt, wobei der mittlere Abschnitt das eigentliche Gitter darstellt, während die vertikalen Streifen links und rechts durch eine Bestrahlung durch die Spalte neben dem Schlitz entstanden sind.*

Von eigentlichem Interesse ist aber der periodisch bestrahlte Bereich. Bei näherer Untersuchung mit dem Lichtmikroskop weist dieser auch eine periodische Braunfärbung auf, die aus horizontalen, parallelen Streifen besteht. Abbildung 5.6 zeigt eine mit Hilfe des Mikroskops gemachte Aufnahme. Die Höhe der Streifen nimmt von links nach rechts ab, während die Periode durchgängig etwa  $12\ \mu\text{m}$  beträgt. Die Form der Streifen entspricht dabei etwa der Form des dreieckigen Schlitzes, wobei die Verfärbung relativ scharfe Kanten aufweist. Die Intensität der Braunfärbung ist nicht konstant. Teile des periodisch bestrahlten Bereiches weisen sogar keinerlei erkennbare Verfärbung auf.

Der erste durch die 2. Tantalblende mit einer Schlitzbreite von  $3\text{ bis }4\ \mu\text{m}$  bestrahlte Lithiumniobatkristall wird eine Woche nach der Bestrahlung ebenfalls mit dem

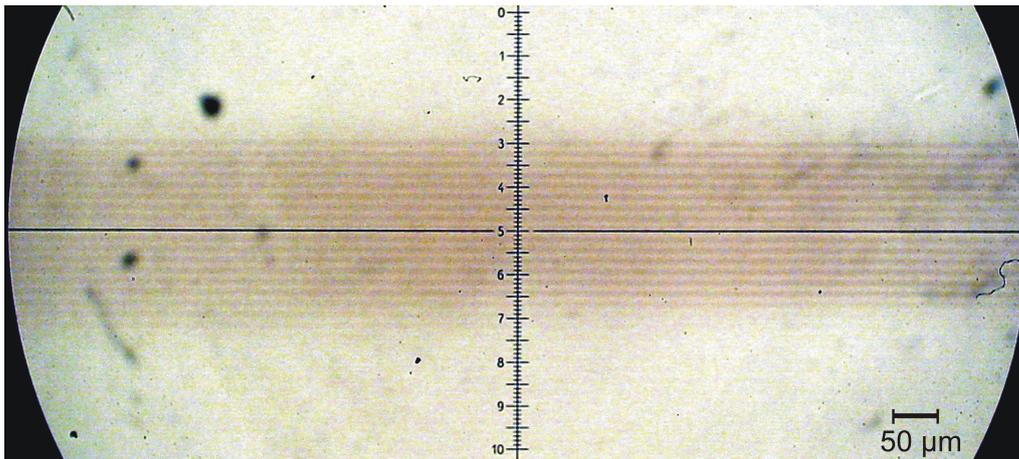


Abbildung 5.6: Aufnahme des ersten periodisch bestrahlten Lithiumniobatkristalls mit dem Lichtmikroskop. Man erkennt im bestrahlten Bereich eine Braunfärbung bestehend aus parallelen Streifen.

Lichtmikroskop untersucht. Eine periodische Braunfärbung bzw. generell eine Verfärbung im Bereich des zu erwartenden Gitters ist nicht zu beobachten. Dagegen ist senkrecht zum eigentlich durch den Schlitz bestrahlten Gebiet ein dunkel verfärbter „Randstreifen“ zu erkennen. Die zweite Probe, die durch den 3 bis 4  $\mu\text{m}$  breiten Schlitz bestrahlt wurde, weist dagegen keinerlei erkennbare Verfärbung auf. Sie ist zudem nur äußerst schwach aktiviert.

### 5.2.2 Brechungsindex- und Dickenänderung

Ebenso wie bei der Untersuchung der dotierten Kristalle in Kapitel 4 erfolgt auch nun die Messung der erzeugten Brechungsindexänderung  $\Delta n$  und Dickenänderung  $\Delta d$  mit dem Interferometer. Da nun jedoch  $x$ -cut Kristalle vermessen werden und der Laserstrahl parallel zur  $z$ -Achse polarisiert ist, ist die resultierende gemessene Brechungsindexänderung eine Modifikation des außerordentlichen Brechungsindex  $n_e$  und damit positiv. Zuerst wird das durch die erste Tantalblende mit dem Schlitz der Breite 0...15  $\mu\text{m}$  bestrahlte Lithiumniobat untersucht. Abbildung 5.7 zeigt die resultierende Brechungsindexänderung. Sowohl im periodisch bestrahlten Bereich als auch in den zwei Randstreifen senkrecht dazu auf beiden Seiten ist eine Erhöhung von  $n_e$  zu beobachten. In den Randstreifen erreicht diese bis zu  $(2,2 \pm 0,2) \cdot 10^{-3}$ , während sie im Gitterbereich stark schwankt und einen Maximalwert von  $(2,0 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$  besitzt. Das mittlere  $n_e$  liegt bei etwa  $1,0 \cdot 10^{-3}$ . Zu der Seite, bei der der Schlitz geschlossen war (im Bild links), geht  $\Delta n_e$  dabei komplett auf Null zurück. Eine periodische Struktur kann mit dieser Messmethode aufgrund des begrenzten Auflösungsvermögens des Interferometers nicht mehr aufgelöst werden. Stattdessen ist das Ergebnis für  $\Delta n_e$  eine Mittelung über die bestrahlten und unbestrahlten Streifen. Abbildung 5.8 stellt einen Schnitt durch den periodisch bestrahlten Bereich parallel

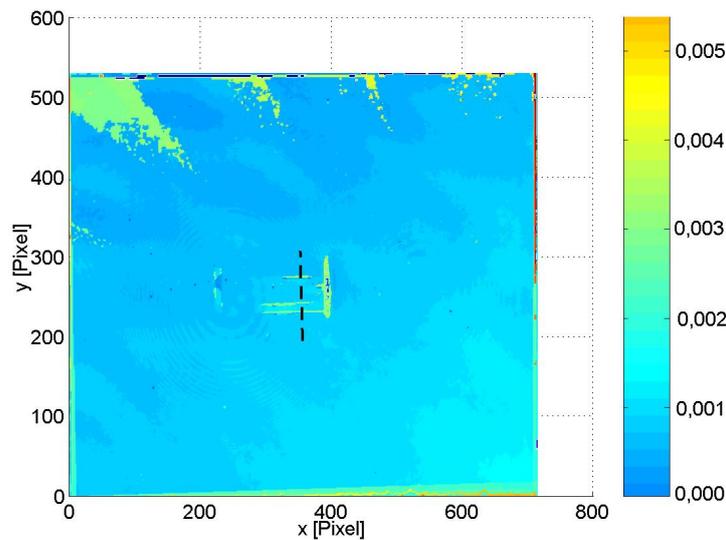


Abbildung 5.7: Brechungsindexänderung  $\Delta n_e$  des periodisch durch die Tantalblende mit  $0 \dots 15 \mu\text{m}$  Schlitzbreite bestrahlten Lithiumniobatkristalls über der Fläche

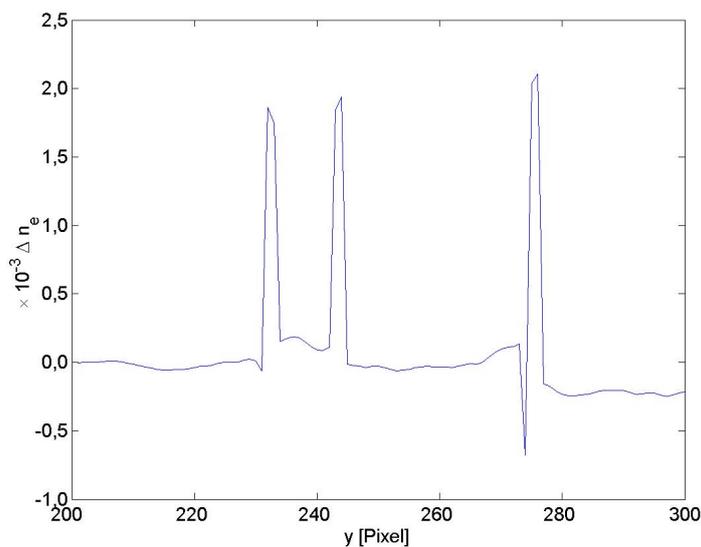


Abbildung 5.8:  $\Delta n_e$ : senkrechter Schnitt durch den periodisch bestrahlten Bereich entlang der gestrichelten Linie aus Abbildung 5.7

zur Gitternormalen dar. Man erkennt, dass  $\Delta n_e$  nicht homogen ist, sondern über der Höhe des Gitters kräftig schwankt.

Neben einer Veränderung des Brechungsindexes lässt sich in dem Bereich mit großem  $\Delta n_e$  auch eine geringfügige Erhöhung der Probendicke ermitteln. Insgesamt beträgt die Dickenänderung durch die Bestrahlung bis zu  $(1,0 \pm 0,1) \mu\text{m}$  und ist damit etwa genauso groß wie bereits zuvor vorhandene Unterschiede in der Kristallstärke.

Auch die durch die zweite Schlitzblende mit einer Schlitzbreite von  $3\text{--}4 \mu\text{m}$  bestrahlten Lithiumniobatkristalle werden mit dem Interferometer untersucht. Bei der zuerst bestrahlten Probe ist im eigentlichen Gitterbereich jedoch keine Brechungsindexänderung  $\Delta n_e$  bzw. Dickenänderung  $\Delta d$  messbar. Ebenso wie bei der Untersuchung mit dem Lichtmikroskop ist nur eine Modifikation in einem Streifen senkrecht dazu

festzustellen. Dabei beträgt  $\Delta n_e$  etwa  $(1,0 \pm 0,2) \cdot 10^{-3}$  und  $\Delta d$  maximal  $0,1 \mu\text{m}$ . Bei der zweiten bestrahlten Probe ist mit dem Interferometer keinerlei Änderung des Brechungsindex oder der Kristalldicke messbar.

### 5.2.3 Beugungswirkungsgrad

Wird der durch die Blende mit  $0 \dots 15 \mu\text{m}$  Schlitzbreite bestrahlte Lithiumniobatkristall mit einem fokussierten HeNe-Laserstrahl der Wellenlänge  $\lambda = 632,8 \text{ nm}$  beleuchtet, so erzeugt er ein Beugungsmuster. Dabei sind symmetrische Maxima 1. und 2. Ordnung klar zu erkennen. Um die Beugungseffizienz näher zu bestimmen, wird der Beugungswirkungsgrad  $\eta$  gemessen. Da der Durchmesser des Laserstrahls größer als der Bereich des erzeugten Gitters ist, kann  $\eta$  allerdings nur qualitativ und nicht in absoluten Werten ermittelt werden.

Zuerst wird der Beugungswirkungsgrad für die beiden ersten Beugungsmaxima bestimmt, wobei die Ergebnisse für das linke und das rechte Maximum etwa gleich sind. Bei beiden Messungen wird das Licht einmal parallel zur  $c$ -Achse und einmal senkrecht dazu polarisiert. Abbildung 5.9 zeigt  $\eta$  für das rechte erste Beugungsmaximum und parallel zur  $c$ -Achse polarisiertes Licht in Abhängigkeit vom Drehwinkel  $\Theta$ . Die

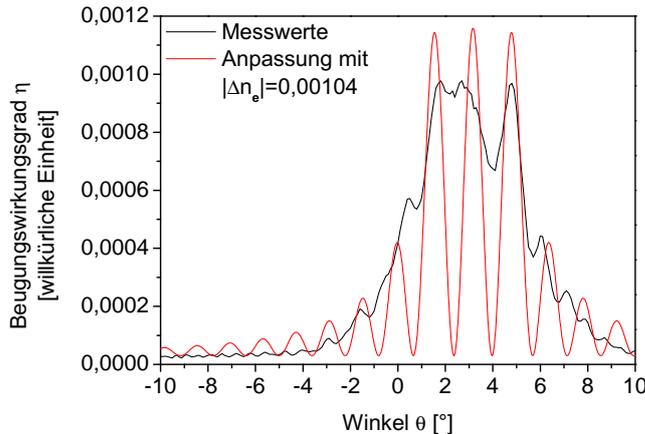


Abbildung 5.9: *Beugungswirkungsgrad  $\eta$  in Abhängigkeit vom Drehwinkel  $\Theta$  für das rechte 1. Beugungsmaximum und parallel zur  $c$ -Achse bzw. senkrecht zum Gitter polarisiertes Licht*

Kurve enthält ein Hauptmaximum, welches bei einem Winkel  $\Theta_B^1 = 3,2^\circ$  liegt. Wird der Winkel  $\Theta_B^1$  in die Braggbedingung eingesetzt, so kann die dazugehörige Gitterperiode  $g$  berechnet werden. Für den gemessenen Winkel ergibt sich  $g \approx 11 \mu\text{m}$ . Dies ist nur geringfügig kleiner als die einzelnen Verschiebestrecken von  $12 \mu\text{m}$  der Probe während der Bestrahlung. Zudem enthält der Peak noch einen Abfall bei einem Winkel von etwa  $4^\circ$ . Dies ist ein Hinweis darauf, dass die Modifikation des Brechungsindex  $n_e$  recht groß ist.

Für senkrecht zur  $c$ -Achse polarisiertes Licht ergibt sich die in Abbildung 5.10 enthaltene Kurve. Das maximale  $\eta$  liegt wieder bei einem Winkel von etwa  $3,2^\circ$ . Die Form dieser Kurve entspricht hierbei eher einem einzelnen Peak als bei dem mit dem parallel zur  $c$ -Achse polarisierten Laserstrahl gemessenen  $\eta$ .

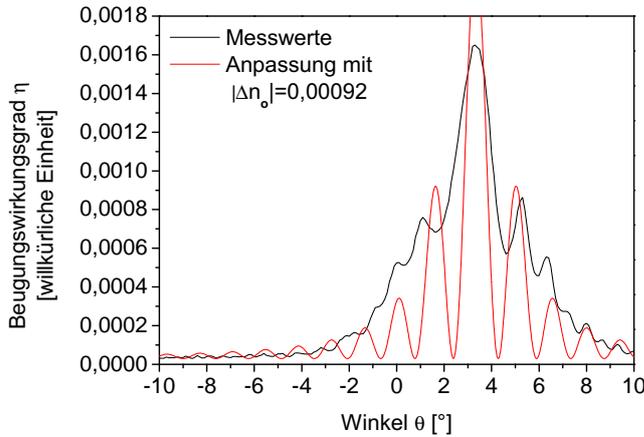


Abbildung 5.10: *Beugungswirkungsgrad  $\eta$  in Abhängigkeit vom Drehwinkel  $\Theta$  für das rechte 1. Beugungsmaximum und senkrecht zur  $c$ -Achse bzw. parallel zum Gitter polarisiertes Licht*

Zum Schluss wird der Beugungswirkungsgrad noch einmal für ein zweites Beugungsmaximum jeweils für beide Polarisationsrichtungen gemessen. Das resultierende maximale  $\eta$  liegt um zwei Größenordnungen unter den Werten für das erste Maximum. Der Winkel  $\Theta_B^2$ , unter dem das zweite Beugungsmaximum erscheint, beträgt etwa  $5,4^\circ$ . Setzt man diesen Wert in die Braggbedingung ein und bestimmt die dazugehörige Gitterperiode  $g$ , so ergibt sich  $g \approx 13 \mu\text{m}$ .

Die zwei LiNbO<sub>3</sub>-Kristalle, die durch den 3-4  $\mu\text{m}$  breiten Schlitz bestrahlt wurden, erzeugen im Laserstrahl keinerlei Beugungseffekte.

### 5.3 Diskussion

Für die erste LiNbO<sub>3</sub>-Probe, die durch den 0...15  $\mu\text{m}$  breiten Schlitz bestrahlt wurde, zeigen die periodische Verfärbung und das Auftreten von Beugungseffekten klar, dass die periodische Bestrahlung geglückt ist. Die Heliumionen scheinen im Kristall nicht zu stark aufzustreuen, wofür insbesondere auch spricht, dass die sichtbaren braunen Streifen die zu einer Seite zulaufende Form des Schlitzes der Tantalblende besitzen und deutlich erkennbare Ränder aufweisen. Allerdings ist nicht klar, ob die Periodizität durch die gesamte Probe reicht oder nur teilweise. Die Messung der Brechungsindexänderung  $\Delta n_e$  im periodisch bestrahlten Bereich mit dem Interferometer zeigt, dass  $\Delta n_e$  mit bis zu  $(2,0 \pm 0,1) \cdot 10^{-3}$  relativ groß werden kann. Die Schwankungen über der Höhe des Gitters sind vermutlich auf Schwankungen der Stärke des Strahlstromes während der Bestrahlung zurückzuführen. Die Bestimmung des Beugungswirkungsgrades  $\eta$  liefert ebenfalls Hinweise auf eine relativ große Änderung des Brechungsindex. Die leicht unterschiedliche Kurvenform deutet darauf hin, dass der ordentliche und der außerordentliche Brechungsindex dabei durch die Bestrahlung unterschiedlich stark verändert wurden.

Durch eine Anpassung der Messkurven für  $\eta$  entsprechend Gleichung 5.2 (multipliziert mit einer Konstante zur Anpassung der Amplitude) kann die Brechungs-

indexänderung näher bestimmt werden. Im Allgemeinen setzt ein solches Vorgehen voraus, dass das zu untersuchende Phasengitter einem idealen, sinusförmigen, dicken Gitter sehr nahe kommt. In wieweit diese Annahme hier gerechtfertigt ist, ist nicht bekannt. Die Anpassung stellt somit nur einen ersten Versuch der Interpretation der Daten dar. Man erhält die in Abb. 5.9 und 5.10 eingezeichneten roten Kurven. Ihre Form entspricht etwa dem Verlauf der Messwerte. Für den außerordentlichen Brechungsindex ergibt sich ein Wert für  $|\Delta n_e|$  von  $1,04 \cdot 10^{-3}$  und für den ordentlichen Brechungsindex von  $|\Delta n_o| = 0,92 \cdot 10^{-3}$ . Dieses Ergebnis liegt etwa in der Größenordnung des mit dem Interferometers gemessenen Wertes und bestätigt die Erwartung, dass  $\Delta n_e$  stärker modifiziert wurde. Ein ähnlicher Unterschied für  $\Delta n_e$  und  $\Delta n_o$  wurde bereits in früheren Untersuchungen beobachtet (siehe Abb. 2.3, [Pei06b]). Aufgrund des insgesamt großen  $\Delta n$  war die Bestrahlungsdauer von 8 Minuten pro Streifen sehr großzügig gewählt und sollte bei weiteren Bestrahlungen verkürzt werden.

Beim ersten der zwei Lithiumniobatkristalle, die durch die Tantalblende mit der Schlitzbreite von 3-4  $\mu\text{m}$  bestrahlt wurden, zeigen die Ergebnisse, dass durch den Schlitz der Tantalblende selbst keine nennenswerte Bestrahlung erfolgte. Stattdessen gelangten die Heliumionen nur durch den senkrechten Spalt daneben. Ein Grund hierfür könnte sein, dass beim Einbau des fertig montierten Flansches ins Strahlrohr am Zyklotron der Aufbau nicht gründlich genug justiert wurde und die Tantalblende so keine völlig aufrechte Position einnahm, sondern gegenüber dem einfallenden Strahl leicht verkippt war. Eine weitere mögliche Ursache könnte der Einsatz des letzten Steerer-Feldes vor dem Strahlplatz 8 zur Strahlformung und -positionierung sein. Eventuell hat dies dazu geführt, dass der Ionenstrahl nicht senkrecht zur Tantalblende verlief, sondern in vertikaler Richtung unter einem anderen Winkel auftraf und daher den Schlitz nicht passieren konnte. Beim zweiten Kristall, der durch diese Blende bestrahlt wurde, legen die nicht auftretende Verfärbung und Brechungsindexänderung sowie die geringe Aktivierung nahe, dass der Kristall insgesamt kaum bestrahlt wurde und insbesondere auch durch die Randspalten der Blende kaum Ionen die Probe erreichten. Dies deutet darauf hin, dass die Graphitblende vermutlich so ungünstig platziert war, dass die durchgelassenen Ionen sowohl den Schlitz der Tantalblende als auch die Randspalten nicht passieren konnten.

# Kapitel 6

## Ausblick

Die in dieser Arbeit erfolgte Untersuchung von zwei Aspekten zur Modifikation der Materialeigenschaften von Lithiumniobat durch Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen bietet vielfältige Anknüpfungspunkte für weitere Messungen.

Beim mit Magnesium dotiertem Lithiumniobat steht ein genauer quantitativer Vergleich der beobachteten Brechungsindexänderung mit dem kongruent schmelzenden Material noch aus. Ebenso sollte der genaue Ablauf der Polung des teilweise bestrahlten Kristalls ebenfalls näher analysiert werden. Ein früheres Umpolen des bestrahlten Bereiches lässt sich auch dadurch verifizieren, dass der Polungsvorgang nach dem Umklappen der Domänen im bestrahlten Gebiet beendet wird. Die Probe kann dann mit Flusssäure geätzt werden, wodurch bereits gepolte Zonen sichtbar gemacht werden, da die Kristalloberfläche je nach Richtung der jeweiligen Polarisierung unterschiedlich stark durch die Säure angegriffen wird. Außerdem könnten Unterschiede in der Koerzitivfeldstärke im bestrahlten und unbestrahlten Bereich auch durch das Polen einer teilweise bestrahlten und dünn geschliffenen  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Probe mit dem Rasterkraftmikroskop nachgewiesen werden. Interessant wäre ferner die Polung eines periodisch bestrahlten Kristalls. Da hier viele Übergänge von bestrahlten zu unbestrahlten Bereichen vorliegen, ist zu erwarten, dass eine solche Probe besonders schnell umgepolzt werden kann. Eventuell lässt sich so auch mit Hilfe von nur zwei homogenen Elektroden ein periodisch gepolter Kristall erzeugen, wenn der Polungsvorgang rechtzeitig unterbrochen wird. Ansonsten wäre auch die periodische Polung eines homogen bestrahlten Kristalls interessant. Wenn sich herausstellt, dass durch ein Absinken der Koerzitivfeldstärke ein solcher Kristall leichter gepolzt werden kann als ein unbestrahlter, so liegt hier ein Bereich für eine mögliche spätere Anwendung, da periodisch gepoltes Lithiumniobat beispielsweise zur Frequenzverdopplung und Phasenanpassung verwendet werden kann.

Die Erzeugung der periodischen Brechungsindexmodulation mit Hilfe der Tantalblende mit dem 3-4  $\mu\text{m}$  breiten Schlitz sollte noch einmal wiederholt werden. Wenn so eine Gitterstruktur mit einer Periode von etwa 6  $\mu\text{m}$  erzeugt wird, bietet sich eine Messung des Beugungswirkungsgrades im Vergleich zu einem photorefraktiven Gitter mit gleicher Periode an. Desweiteren kann statt einer Tantalblende, die nach einer Bestrahlung stark mit langlebigen Isotopen aktiviert und zudem teuer und

aufwändig herzustellen ist, auch eine Blende aus anderen Materialien wie z. B. Stahl verwendet werden. Bei dieser müssen zwar die zwei Plättchen, die den Spalt formen, eine Stärke von mindestens  $400\ \mu\text{m}$  aufweisen, was die Justierung erschwert, doch ist ein solches Material kostengünstiger und einfacher zu verarbeiten. Allerdings müsste zuvor überprüft werden, wie stark eine solche Blende durch die Bestrahlung mit  ${}^3\text{He}$ -Ionen mit einer Energie von 40 MeV aktiviert wird und ob langlebige radioaktive Isotope entstehen.

Prinzipiell wäre der verwendeten Methode zur Gittererzeugung durch Bestrahlung des Lithiumniobats durch eine Schlitzblende und dem regelmäßigen Verschieben des Kristalls eine Bestrahlung durch eine periodische Maske vorzuziehen, da so lange Strahlzeiten vermieden werden können. Bisher waren Versuche, dies durch die Bestrahlung einer  $\text{LiNbO}_3$ -Probe durch einen Folienstapel aus alternierend Aluminium, welches die Heliumionen durchlässt, und Tantal, welches die Ionen absorbiert, jedoch noch nicht erfolgreich [Hau06]. Generell bietet die Erzeugung einer periodischen Brechungsindexmodulation in Lithiumniobat durch die Bestrahlung mit schnellen, hochenergetischen Ionen die Möglichkeit, bei genügend kleiner Periode als Wellenlängenfilter für sichtbares Licht zu dienen. Gegenüber einem herkömmlichen, photorefraktiven Gitter hätte eine solcherart hergestellte Struktur den Vorteil der größeren Beständigkeit.

# Kapitel 7

## Zusammenfassung

Lithiumniobat wird heute in der optischen Nachrichtentechnik und in Bauteilen der integrierten Optik vielfältig verwendet. Dabei werden häufig stabile Änderungen des Brechungsindex  $\Delta n$  benötigt. Diese können zum Beispiel durch die Bestrahlung mit hochenergetischen, leichten Ionen gut erzielt werden. In dieser Arbeit werden Lithiumniobatkristalle mit  $^3\text{He}$ -Ionen mit einer Energie von über 40 MeV, die in einem Zyklotron beschleunigt wurden, bestrahlt und dadurch die Materialeigenschaften verändert. Dotiertes Material mit 5% Magnesiumgehalt zeigt dabei ein ähnliches Verhalten wie kongruent schmelzendes  $\text{LiNbO}_3$ : Bei einer genügend starken Bestrahlung, d. h. ausreichender Dosis, tritt wie beim kongruent schmelzenden Material eine bräunliche Kristallverfärbung, eine Änderung des Brechungsindex  $\Delta n$  und eventuell auch eine leichte Änderung der Probendicke  $\Delta d$  auf. Das mit einem interferometrischen Aufbau gemessene maximale  $\Delta n$  beträgt für  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$   $(-2,5 \pm 0,2) \cdot 10^{-3}$  und liegt damit in einer ähnlichen Größenordnung wie frühere Ergebnisse für kongruent schmelzendes  $\text{LiNbO}_3$ . Die Änderung des Brechungsindex hängt also nicht von den vielen intrinsischen Fehlstellen ab, die im kongruent schmelzenden Lithiumniobat auftreten.

Der Einfluss der Bestrahlung auf das Polen ferroelektrischer Domänen wird untersucht: Bei der Polung teilweise bestrahlter  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Proben mit Hilfe eines langsam und linear mit der Zeit ansteigenden äußeren elektrischen Feldes wird durch Messung des Polungsstromes und der Visualisierung der Domäneninversion über zwei gekreuzte Polarisatoren beobachtet, dass der bestrahlte Bereich des Kristalls bereits bei einem kleineren Koerzitivfeld  $E_C$  umpolt als der unbestrahlte. Bei einer Erhöhung der anliegenden Spannung um 5 V/s ergibt sich ein Unterschied der Koerzitivfeldstärken von etwa  $(0,4 \pm 0,1)$  kV/mm. Dabei beginnt die Keimbildung, d. h. die Bildung von Bereichen mit bereits umgekehrter Polarisierung, und die Domäneninversion an den Rändern des bestrahlten Gebietes. Eine mögliche Ursache könnte darin liegen, dass in der Mitte des bestrahlten Bereiches die strukturelle Unordnung bereits zu groß ist oder dass dort ein für die Keimbildung ungünstiger Defekttyp vorherrscht. Für die Zukunft bieten sich insbesondere die Polung periodisch bestrahlter Kristalle oder die Herstellung von periodisch gepoltem, bestrahltem  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$  an.

In kongruent schmelzendem Lithiumniobat lässt sich durch eine periodische Bestrahlung mit 40,4 MeV  $^3\text{He}$ -Ionen eine regelmäßige Variation des Brechungsindex und eine streifenförmige Braunfärbung erzielen. Die periodische Bestrahlung wird erreicht, indem ein Kristall durch eine Tantalblende mit einer Schlitzbreite von 0...15  $\mu\text{m}$  bestrahlt und regelmäßig um 12  $\mu\text{m}$  verschoben wird. Die so entstandene Brechungsindexmodulation mit einer Periode von 12  $\mu\text{m}$  beugt HeNe-Laserlicht der Wellenlänge  $\lambda=632,8$  nm. Außerdem wurde bereits eine Tantalblende mit 3-4  $\mu\text{m}$  breitem Schlitz hergestellt, wobei die Erzeugung eines periodisch bestrahlten Kristalls hiermit noch aussteht. Beugungsgitter mit noch kleinerer Periode könnten beispielsweise als Wellenlängenfilter für sichtbares Licht dienen.

Die durch die Bestrahlung von Lithiumniobat mit schnellen Heliumionen erzielten Veränderungen der Materialeigenschaften, wie z. B. die verbesserte Polbarkeit von mit Magnesium dotierten Kristallen oder eine auch periodisch mögliche Variation des Brechungsindex im kongruent schmelzenden  $\text{LiNbO}_3$ , könnten somit zukünftig zu einer Verbesserung der Einsatzmöglichkeiten von Lithiumniobat als optischem Bauteil führen.

# Literaturverzeichnis

## Wissenschaftliche Artikel

- [Abr86] S. C. Abrahams, P. Marsh, *Defect structure dependence on composition in lithium niobate*, Acta Cryst. B **42**, 61-68 (1986).
- [Alm05] P. de Almeida, N. Franco, J. C. Soares, J. Räisänen, *Irradiation-assisted photoelastic domain wall formation in X- and Y-cut lithium niobate*, Solid State Communications **137**, 296-300 (2006).
- [And04] B. Andreas, K. Peithmann, K. Buse, K. Maier, *Modification of the refractive index of lithium niobate crystals by transmission of high-energy  $^4\text{He}^{2+}$  and  $\text{D}^+$  particles*, Appl. Phys. Lett. **84**, 3813-3815 (2004).
- [And05a] B. Andreas, I. Breunig, K. Buse, *Modeling of X-ray-Induced Refractive Index Changes in Poly(methyl methacrylate)*, ChemPhysChem **6**, 1-11 (2005).
- [Ash66] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein, K. Nassau, *Optically-induced refractive index inhomogeneities in  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$* , Appl. Phys. Lett. **9**, 72-74 (1966).
- [Ben02] G. G. Bentini, M. Bianconi, M. Chiarini, L. Correr, C. Sada, P. Mazzoldi, N. Argiolas, M. Bazzan, R. Guzzi, *Effect of low dose high energy  $\text{O}^{3+}$  implantation on refractive index and linear electro-optic properties in X-cut  $\text{LiNbO}_3$ : Planar optical waveguide formation and characterization*, J. Appl. Phys. **92**, 6477-6483 (2002).
- [Bir93] D. P. Birnie III, *Review. Analysis of diffusion in lithium niobate*, J. of Materials Sci. **28**, 302-315 (1993).
- [Buc91] C. Buchal, *Ion beam modification of electro-optical crystals*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **59/60**, 1142-1146 (1991).
- [Cha87] P. J. Chandler, P. D. Townsend, *Detailed analysis of refractive index effects produced by ion implantation*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **19**, 921-926 (1987).

- [Che68] F. S. Chen, J. T. LaMacchia, D. B. Fraser, *Holographic storage in lithium niobate*, Appl. Phys. Lett. **13**, 223-225 (1968).
- [Che05] Y. Chen, W. Yan, J. Guo, S. Chen, G. Zhang, Z. Xia, *Effect of Mg concentration on the domain reversal of Mg-doped LiNbO<sub>3</sub>*, Appl. Phys. Lett. **87**, 212904 (2005).
- [Gla88] E. Glavas, L. Zhang, P. J. Chandler, P. D. Townsend, *Thermal stability of ion implanted LiTaO<sub>3</sub> and LiNbO<sub>3</sub> optical waveguides*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **32**, 45-50 (1988).
- [Gop98] V. Gopalan, T. E. Mitchell, Y. Furukawa, K. Kitamura, *The role of non-stoichiometry in 180° domain switching of LiNbO<sub>3</sub> crystals*, Appl. Phys. Lett. **72**, 1981-1983 (1998).
- [Hod88] E. R. Hodgson, F. Agulló-López, *Displacement damage in LiNbO<sub>3</sub>*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **32**, 42-44 (1988).
- [Hu01] H. Hu, F. Lu, F. Chen, B.-R. Shi, K.-M. Wang, D.-Y. Shen, *Extraordinary refractive-index increase in lithium niobate caused by low-dose ion implantation*, Appl. Optics **40**, 3759-3761 (2001).
- [Jaz02] M. Jazbinšek, M. Zgonik, *Material tensor parameters of LiNbO<sub>3</sub> relevant for electro- and elasto-optics*, Appl. Phys. B **74**, 407-414 (2002).
- [Kog69] H. Kogelnik, *Coupled wave theory for thick hologram gratings*, Bell Syst. Tech. J. **48**, 2909-2947 (1974).
- [Kuk76] N. V. Kukhtarev, *Kinetics of hologram recording and erasure in electro-optic crystals*, Sov. Tech. Phys. Lett. **2**, 438-440 (1976).
- [Kuk79] N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odoulov, M. S. Soskin, V. L. Vinetskii, *Holographic storage in electrooptic crystals*, Ferroelectrics **22**, 949-964 (1979).
- [Mat03] A. Matkovskii, P. Potera, D. Sugak, Y. Zhydachevskii, V. Pankratov, D. Millers, L. Grigorjeva, I. Pracka, T. Lukasiewicz, *Transient and stable color centers in pure and Cu-doped LiNbO<sub>3</sub>*, Cryst. Res. Technol. **38**, 388-393 (2003).
- [Oli06] J. Olivares, G. García, F. Agulló-López, F. Agulló-Rueda, J. C. Soares, A. Kling, *Optical investigation of the propagation of the amorphous-crystalline boundary in ion-beam irradiated LiNbO<sub>3</sub>*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **242**, 534-537 (2006).
- [Pat05] M. Paturzo, P. F. Ferraro, S. Grilli, D. Alfieri, P. De Natale, M. de Angelis, A. Finizio, S. De Nicola, G. Pierattini, F. Caccavale, D. Callejo, A. Morbiato, *On the origin of internal field in lithium niobate crystals directly observed by digital holography*, Optics Express **13**, 5416-5423 (2005).

- [Pei06a] K. Peithmann, M.-R. Zamani-Meymian, M. Haaks, K. Maier, B. Andreas, K. Buse, H. Modrow, *Fabrication of embedded waveguides in lithium-niobate crystals by radiation damage*, Appl. Phys. B **82**, 419-422 (2006).
- [Pei06b] K. Peithmann, M.-R. Zamani-Meymian, M. Haaks, K. Maier, B. Andreas, I. Breunig, *Refractive-index changes in lithium-niobate crystals by high-energy particle radiation*, J. Opt. Soc. Am. B **23**, 2107-2113 (2006).
- [Swe84] K. L. Sweeney, L. E. Halliburton, D. A. Bryan, R. R. Rice, R. Gerson, H. E. Tomaschke, *Threshold effect in Mg-doped lithium niobate*, Appl. Phys. Lett. **45**, 805-807 (1984).
- [Ubi00] S. B. Ubizskii, A. O. Matkovskii, N. A. Mironova-Ulmane, V. Skvortsova, A. Suchocki, Y. A. Zhydachevskii, P. Potera, *Radiation displacement defect formation in some complex oxide crystals*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **166-167**, 40-46 (2000).
- [Wei85] R. S. Weis and T. K. Gaylord, *Lithium niobate: summary of physical properties and crystal structure*, Appl. Phys. A **37**, 191-203 (1985).
- [Wen04] M. C. Wengler, B. Fassbender, E. Soergel, K. Buse, *Impact of ultraviolet light on coercive field, poling dynamics and poling quality of various lithium niobate crystals from different sources*, J. of Appl. Phys. **96**, 2816-2820 (2004).
- [Wen05a] M. C. Wengler, U. Heinemeyer, E. Soergel, K. Buse, *Ultraviolet light-assisted domain inversion in magnesium-doped lithium niobate*, J. of Appl. Phys. **98**, 064104/1-7 (2005).
- [Zha91] L. Zhang, P. J. Chandler, P. D. Townsend, *Optical analysis of damage profiles in ion implanted LiNbO<sub>3</sub>*, Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B **59/60**, 1147-1152 (1991).

## Diplom- und Examensarbeiten, Dissertationen

- [And05b] B. Andreas, *Modifikation des Brechungsindexes von Dielektrika mit Hilfe ionisierender Strahlung*, Dissertation Universität Bonn 2005.
- [Bre04] I. Breunig, *Messung und Modellierung röntgeninduzierter Brechungsindexänderungen in Polymethylmethacrylat*, Diplomarbeit Universität Rostock 2004.
- [Hau06] S. Haubrich, *Strukturierung eines optisch aktiven Materials durch Partikelbeschuss*, Examensarbeit Universität Bonn 2006.

- [Pei00] K. Peithmann, *Eisen- und kupferdotiertes Lithiumniobat als holographisches Speichermaterial: Grenzen und Anwendungen*, Dissertation Universität Osnabrück 2000.
- [Wen05b] M. C. Wengler, *Lichtinduzierte Inversion ferroelektrischer Domänen in Lithiumniobat-Kristallen*, Dissertation Universität Bonn 2005.

## Bücher

- [Kas05] R. Kassing (Hrsg.), *Bergmann-Schaefer. Lehrbuch der Experimentalphysik. Band 6: Festkörper*, 2. Auflage, Walter de Gruyter, Berlin·New York 2005.
- [Won02] K. K. Wong (Hrsg.), *Emis. Datareview series No.28. Properties of lithium niobate*, INSPEC, The Institute of Electrical Engineers, London 2002.
- [Tow94] P. D. Townsend, P. J. Chandler, L. Zhang, *Cambridge Studies in Modern Optics. Optical Effects of Ion Implantation*, Cambridge University Press, Cambridge 1994.
- [Zie85] J. R. Ziegler, J. P. Biersack, U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*, Pergamon Press, New York 1985.

## Internetseiten

- [Eks99] L. P. Ekström, R. B. Fireston, *WWW Table of Radioactive Isotopes*, Datenbankversion 2/28/99 der URL <http://ie.lbl.gov/toi/> .
- [Haa06] M. Haaks, *M\_Spec 2*, Programm und Informationen unter <http://www.iskp.uni-bonn.de/gruppen/material/software/MSpec.php> (2004-2006).
- [Jud02] T. R. Judge, P. J. Bryanston-Cross, *Automatic Fringe Analysis (FRAN)*, Programm und Informationen unter <http://www.eng.warwick.ac.uk/oel/previous/fran.htm> (letzte Aktualisierung 26.11.2002) sowie den dort genannten Referenzen.
- [Zie06] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, J. P. Biersack, *Particle Interactions with Matter*, Programm SRIM und Informationen unter <http://www.SRIM.org> sowie den dort genannten Referenzen (2006).
- [Zyk06] *Das Bonner Isochron-Zyklotron*, Zyklotron-Homepage mit der URL <http://www.zyklotron.iskp.uni-bonn.de/zyklo/index.html> (letzte Aktualisierung: 30.06.2006).

# Danksagung

Zum Gelingen dieser Diplomarbeit haben viele Personen durch ihre Hilfe und Ratschläge beigetragen, denen ich herzlich danken möchte. Besonders danke ich Prof. Maier für die Aufnahme in seine Arbeitsgruppe, die angenehme Arbeitsatmosphäre und die freundliche Unterstützung.

Prof. Fiebig danke ich für die Übernahme des Korreferates.

Ganz besonders möchte ich mich bei Konrad Peithmann für die ausgezeichnete Betreuung während der gesamten Diplomarbeit bedanken. Ohne seine vielen Ideen, Geduld und guten Tipps wäre diese Arbeit wohl so nicht möglich gewesen. Herzlichen Dank!

Den zwei anderen Lithiumniobatlern in der Gruppe Reza-Mohammed Zamani-Meymian und Stefanie Haubrich danke ich für ihre Hilfe und die vielen Ratschläge. Dank gebührt auch Matz Haaks, insbesondere für seine Unterstützung beim Kleben der Tantalblende.

Prof. Buse ermöglichte mir freundlicherweise die Mitnutzung der Laboreinrichtung seiner Arbeitsgruppe. Auch die verwendeten  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle stammen aus den Beständen seiner Gruppe. Für die ausführliche Einführung in die Arbeit mit dem Interferometer danke ich Ingo Breunig. Michael Kösters führte mit mir das Polen der  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Proben durch sowie die Messung des Beugungswirkungsgrades, wofür ich ihm zu großem Dank verpflichtet bin. Außerdem bedanke ich mich bei Ulrich Hartwig und Helge Eggert für die Tipps und Vorschläge zum Polen. PD Elisabeth Soergel und Tobias Jungk danke ich für die Untersuchung einer bestrahlten Probe mit dem Rasterkraftmikroskop.

Bei den Mitarbeitern der Feinmechanik-, Elektronik- und Polierwerkstatt sowie dem Zyklotronteam bedanke ich mich für die gelungene Zusammenarbeit.

Zu guter Letzt ein ganz herzlicher Dank an alle noch nicht genannten Mitglieder der Arbeitsgruppe Maier für die große Hilfsbereitschaft, tolle Arbeitsatmosphäre und das schöne Jahr!