

---

BRECHUNGSINDEXÄNDERUNGEN IN  
LITHIUMNIOBAT-KRISTALLEN  
DURCH STRAHLENSCHÄDEN

---

**Dissertation**

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

vorgelegt von

Mohammad Reza Zamani Meymian

aus

Mashhad

Mathematisch-Naturwissenschaftliche Fakultät der  
Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

Bonn 2007



Angefertigt mit Genehmigung der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

## **Eidesstattliche Erklärung**

Hiermit erkläre ich, die vorliegende Arbeit selbständig und ohne unerlaubte Hilfe verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet zu haben.

Bonn, 15. November 2007

Referent: Prof. Dr. Karl Maier  
Korreferent: Prof. Dr. Werner Mader

Tag der Einreichung: 15. November 2007  
Tag der Promotion: 18. Dezember 2007



Diese Arbeit widme ich

allen, die das Wohl anderen zu Herzen liegen und darin auch eine Erfüllung sehen; allen, die ihr Leben dem Frieden mit einer besonderen Leidenschaft gewidmet haben.

meiner Mutter, die mich immer ermutigt hat und mit Liebe erfüllte; meinem Vater, der durch seinen Lebensart mir die richtige Lebensweise gezeigt hat.

meiner Frau, die viele einsamen und schweren Zeiten hingenommen hat, damit ich dieses Ziel erreichen konnte.



# INHALTSVERZEICHNIS

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	LiNbO <sub>3</sub> . . . . .	3
2.2	Intrinsische Defekte . . . . .	5
2.3	Ionendurchgang durch Materie . . . . .	5
2.4	Energieverlust schneller Ionen in Festkörpern . . . . .	6
2.5	Strahlenschäden und Einfluss auf den Brechungsindex . . . . .	7
2.6	Aktivierung . . . . .	9
2.7	Wellenleitung . . . . .	9
2.8	Lichtabsorption . . . . .	11
<b>3</b>	<b>Experimentelle Methoden</b>	<b>13</b>
3.1	Proben und Probenpräparation für optische Untersuchungen . . . . .	13
3.2	Probenbestrahlung . . . . .	14
3.2.1	Allgemeine Parameter der Bestrahlungen . . . . .	14
3.2.2	Bestrahlung für die Messung der Brechungsindexänderungen . . . . .	16
3.3	Interferometrische Methode zur Messung der Brechungsindexänderung . . . . .	16
3.3.1	Messung der Gesamtphasenänderung . . . . .	18
3.3.2	Phasenbestimmung aus Interferenzbildern . . . . .	18
3.3.3	Messung der Oberflächendeformationen . . . . .	20
3.3.4	Messung der strahlungsinduzierten Brechungsindexänderung . . . . .	21
3.3.5	Abschätzung der Messgenauigkeit des Interferometrie-Verfahrens . . . . .	22

3.4	Geometrie von $\Delta n$ -Messungen . . . . .	23
3.5	Tiefenabhängigkeit von $\Delta n$ . . . . .	23
3.6	Einfluss der Stopptiefe auf $\Delta n$ und Korrektur-Maßnahmen . . . . .	24
3.7	Dosisbestimmung . . . . .	24
3.8	Thermische Behandlungen . . . . .	24
3.8.1	Isochrone Erholung . . . . .	25
3.8.2	Isotherme Erholung . . . . .	25
3.9	Langzeituntersuchungen . . . . .	25
3.10	TEM-Untersuchungen . . . . .	26
3.10.1	Probenvorbereitung . . . . .	26
3.10.2	Bestrahlung zur TEM-Untersuchungen . . . . .	26
3.10.3	TEM-Messmethoden . . . . .	27
3.11	XAS-Untersuchungen . . . . .	29
3.11.1	Probenbearbeitung zur XAS . . . . .	30
3.11.2	XAS-Messmethoden . . . . .	31
3.12	Wellenleiter . . . . .	31
3.12.1	Bestrahlung der Wellenleiter-Proben . . . . .	32
3.12.2	Optische Vermessung . . . . .	32
3.13	Lichtabsorption-Untersuchungen . . . . .	33
3.13.1	Bestrahlung zur Lichtabsorption-Untersuchungen . . . . .	33
3.13.2	Optische Vermessungen zur Lichtabsorption . . . . .	34
<b>4</b>	<b>Experimentelle Resultate</b>	<b>37</b>
4.1	Einfluss des Bragg-Peaks auf die Messungen der Brechungsindexänderung .	37
4.2	Reproduzierbarkeit der $\Delta n$ -Messung . . . . .	38
4.3	Dosisabhängigkeit von $\Delta n$ . . . . .	39
4.4	Tiefenaufgelöste Brechungsindexänderung . . . . .	41
4.5	Langzeitentwicklung der Brechungsindexänderung . . . . .	44
4.6	Thermische Behandlungen . . . . .	44
4.7	Messungen am vergrabenen Wellenleiter . . . . .	48
4.8	Messung des Absorptionskoeffizienten . . . . .	50
4.9	XAS-Messungen . . . . .	50
4.10	Resultate der TEM-Messungen . . . . .	51



<b>5</b>	<b>Diskussion</b>	<b>55</b>
5.1	Dosisabhängigkeit . . . . .	55
5.2	Vergleich der tiefenaufgelösten Brechungsindexänderung mit Modellrechnungen . . . . .	56
5.3	Thermische Ausheilung . . . . .	56
5.4	Wellenleiter . . . . .	58
5.5	XAS-Untersuchungen . . . . .	59
5.6	TEM-Messungen . . . . .	60
5.7	Ausblick . . . . .	62
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>63</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>65</b>



# KAPITEL 1

## EINLEITUNG

Zu den ältesten Naturwissenschaften gehört neben der Mechanik die Optik. Sowohl in Griechenland [1] als auch in China [2] waren vor 2500 Jahren Gesetze der geometrischen Optik bekannt und führten zu technischen Geräten wie abbildenden Linsen und Brennläser. Es war ein langer Weg von diesen Erkenntnissen bis zur Wellenvorstellung von Huygens (1690) und der elektromagnetischen Theorie von Maxwell (1855 – 1862). Heutzutage hat die Optik eine immense Bedeutung, sodass man die Optik als eine Schlüsseltechnologie im 21. Jahrhundert betrachten muss.

Als wichtigste Vorteile von Licht sind seine extrem hohe Frequenz (ca. 200 THZ) und seine Unempfindlichkeit gegenüber elektromagnetischen Störfeldern zu nennen [3]. Diese Eigenschaften machen aus Licht einen idealen Träger für Informationen mit einer hohen Übertragungskapazität. So wurde in den letzten Jahren die optische Datenspeicherung und die optische Nachrichten-Technik rasant entwickelt. Obwohl Signale heutzutage meistens optisch übertragen werden, ist Licht aber in vielen Bereichen noch mit geschwindigkeitsbegrenzender Elektronik wie die elektronische Schaltung und Umverteilung der Daten kombiniert. Aus diesem Grund wird sehr viel in die Entwicklung der mit Licht arbeitenden Technologien investiert. Zur Realisierung dieses Wunsches sind auf das Licht einflussnehmende optische Materialien wie Modulatoren, Schalter und Verteiler nötig; Lithiumniobat ( $\text{LiNbO}_3$ ) hat sich hierbei als gut geeignetes Ausgangsmaterial erwiesen. Aufgrund seiner zahlreichen physikalischen Eigenschaften ist dieser Kristall sehr interessant [4, 5]: Er ist mechanisch sehr stabil, optisch äußerst homogen und optisch nichtlinear. Zusätzlich ist er ferroelektrisch, elektrooptisch und photorefraktiv [5–10]. Insbesondere eignet  $\text{LiNbO}_3$  sich aufgrund seiner hohen nichtlinearen Koeffizienten zur Frequenzverdopplung [4, 8]; ferner können Modulatoren, integrierte Laser und Frequenzkonversionseinheiten hergestellt werden. Es wird auch als holographischer Wellenlängefilter [3, 5, 11–13] in optischen Kommunikationsnetzen genutzt. Außerdem kann  $\text{LiNbO}_3$  sowohl als Bauteil in Interferometern [14, 15] als auch als optischer Wellenleiter angewendet werden.

Um  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle in integriert-optischen Komponenten anwenden zu können, erzeugt man gezielt Brechungsindex-Strukturen [16]. Durch verschiedene Methoden kann man dies erreichen. Zum Beispiel kann Beleuchtung mit Licht im sichtbaren Spektralbereich zu Um-

ladungsprozessen und durch den Aufbau elektrischer Felder zu Brechungsindexänderungen führen (photorefraktiver Effekt). Neben dem photorefraktiven Effekt gibt es als Alternative die Möglichkeit, dass man Brechungsindexänderungen durch Ionenbeschuss erzeugt. Dass der Brechungsindex  $n$  von  $\text{LiNbO}_3$ -Kristallen mit Ionenbeschuss beeinflusst wird, ist schon seit längerem bekannt und dazu wurden mehrere Berichte über Ionenimplantation in Kristall mit relativ geringer Energie (bis einige MeV) veröffentlicht [14, 17–22]. Dabei handelt es sich um die Änderung von  $n$  im Bereich des Bragg-Peaks und die optischen Untersuchungen eines sehr begrenzten Bereiches, in dem Ionen im Kristall stecken bleiben und der Brechungsindex stark verringert wird. Dazu gibt es verschiedene Untersuchungen mit unterschiedlichen Resultaten zur Herstellung eines Wellenleiters im bestrahlten Bereich, wo die Ionen gestoppt werden [23, 24].

Nun stellt sich die Frage, wie die Brechungsindexänderung im durchflogenen Bereich eines  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalls verläuft. Eine Untersuchung dieses Effektes lässt sich mittels einer großvolumigen Bestrahlung mit sehr hochenergetischen schnellen Ionen ( $E \approx 40$  MeV) realisieren. Ziel ist eine langzeitbeständige und großvolumige Modifikationen des Brechungsindexes [ $\Delta n \approx 10^{-3}$ ] [25–27]. Dieser Effekt ist Gegenstand dieser Arbeit; diese Arbeit interessiert sich für die Untersuchung der Brechungsindexänderung im durchflogenen Bereich außerhalb des Bragg-Peaks. Aus diesem Grund werden hochenergetische  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen ( $E \approx 40$  MeV), bereitgestellt durch ein Zyklotron, zur Modifikation des Brechungsindexes verwendet [28, 29]. Es soll versucht werden, die Grundlagen der verantwortlichen strahlungsinduzierten Prozesse zu verstehen und anschließend diese Bestrahlungsmethode für die Herstellung eines vergrabenen Wellenleiters zu nutzen. Im Prinzip sind drei Schwerpunkte das Thema dieser Arbeit: Zuerst werden die beeinflussenden Parameter der strahlungsinduzierten Brechungsindexänderung von  $\text{LiNbO}_3$  makroskopisch untersucht; dann wird versucht, eine mikroskopische Erklärung für diese Brechungsindexänderung zu finden. Schließlich wird die Erzeugung eines vergrabenen Wellenleiters in  $\text{LiNbO}_3$  gezeigt.

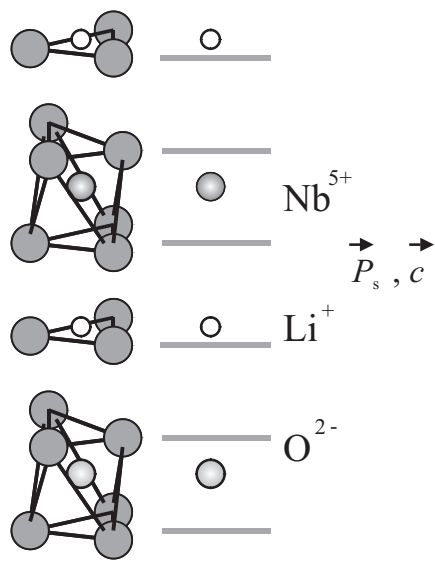
## KAPITEL 2

# GRUNDLAGEN

Die Bestrahlung mit hochenergetischen leichten Ionen wie z.B.  ${}^3\text{He}^{2+}$  hat einen erheblichen Einfluss auf die Materialeigenschaften von Lithiumniobat. So können z. B. langfristig stabile Schäden im Kristall und messbare Änderung des Brechungsindex hergestellt werden. Aus diesem Grund geht es in diesem Kapitel um grundlegende Überlegungen zum Einfluss schneller leichter Ionen auf den Brechungsindex  $n$  von  $\text{LiNbO}_3$ . Zuerst wird aber das Material Lithiumniobat vorgestellt. Es folgen dann die Effekte, die beim Durchgang der hochenergetischen Ionen durch Materie geschehen. Schließlich behandelt das Kapitel Lichtwellenleitung und Lichtabsorption in Materie.

### 2.1 $\text{LiNbO}_3$

Lithiumniobat ist ein künstlich hergestelltes Material, das seit 1928 bekannt ist [30]. Es ist ein relativ harter Kristall und transparent für sichtbares und infrarotes Licht. Aufgrund seiner interessanten Eigenschaften gibt es zahlreiche Einsatzgebiete für diese Kristalle wie Bandpassfilter (als Oberflächenwellenfilter in Mobiltelefonen und Fernsehen), Laser, Modulatoren, integrierte Optik, Frequenzverdopplung und Holographie [4, 31–33].  $\text{LiNbO}_3$  hat eine Dichte von  $4,64 \text{ g/cm}^3$  [5] und wird mit Hilfe des Czochralski-Verfahrens hergestellt. Hierbei zieht man die Kristalle bei einer Temperatur von  $1253^\circ \text{C}$  direkt aus der Schmelze von  $\text{Li}_2\text{O}$  und  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  [29, 33, 34]. Diese Temperatur ist knapp oberhalb der Schmelztemperatur, sodass die Mischung beim Mischungsdiagramm am Tripelpunkt entsteht. In diesem Fall spricht man von einer kongruent schmelzenden Zusammensetzung. Lithiumniobat-Kristalle sind optisch einachsig und befinden sich bei Zimmertemperatur in der ferroelektrischen Phase, die sich durch eine Spontanpolarisierung  $\vec{P}_s$  im Inneren des Kristalls auszeichnet. Es handelt sich um die spontane Verschiebung der Li- und Nb-Ionen entlang der  $c$ -Achse gegenüber ihren symmetrischen Positionen. Dies verursacht eine makroskopische, spontane Polarisierung des Kristalls in dieser Richtung. Nach außen bleibt der Kristall aber ladungsneutral, weil Ladungsträger für eine Ladungskompensation an den Oberflächen sorgen. Die optische  $c$ -Achse stimmt mit der Richtung dieser



**Abbildung 2.1:** Kristallographische Struktur von  $\text{LiNbO}_3$ -Kristall entlang der spontanen Polarisierung  $\vec{P}_s$  bzw. der optischen Achse  $\vec{c}$  in dem ferroelektrischen Zustand [4].

ferroelektrischen Spontanpolarisierung überein. Solange die Temperatur unterhalb der so genannten Curie-Temperatur ( $T_C$ ) liegt, ist der Kristall in der ferroelektrischen Phase. Oberhalb dieser Temperatur tritt ein Phasenübergang zu der paraelektrischen Phase auf. Hierbei verschwindet die spontane Polarisierung bzw. die Vorzugsrichtung  $c$ . Die Curie-Temperatur ist abhängig von der Defektstruktur des Kristalls und beträgt etwa  $1200^\circ \text{C}$  [4]. Die Kristallstruktur ist trigonal und verfügt neben der dreifachen Rotationsymmetrie um die  $c$ -Achse über eine Spiegelsymmetrie, so dass seine Kristallstruktur der Punktgruppe  $3m$  und der Raumgruppe  $R3c$  zuzuordnen ist (Abbildung 2.1 [4, 33]).

Entlang der optischen Achse bilden die Sauerstoff-Ionen ebene Lagen senkrecht zur  $c$ -Achse, die zu einer hexagonal dicht gepackten Struktur (hcp-Struktur) angeordnet sind. Daraus resultieren Sauerstoffoktaeder, die entlang der  $c$ -Achse durch eine Reihenfolge von Nb-Ionen, Leerstellen und Li-Ionen aufgefüllt werden. Im verwendeten Koordinatensystem zur Beschreibung eines Kristalls legt man die  $z$ -Achse im Allgemeinen entlang der optischen Achse. Als Konsequenz aus der Kristallstruktur ist  $\text{LiNbO}_3$  doppelbrechend. Der ordentliche Strahl, dessen elektrischer Feldvektor immer senkrecht zur optischen Achse des Kristalls steht, breitet sich wie in einem nicht doppelbrechenden Material aus. Ebenso ergibt sich das elektrische Feld des außerordentlichen Strahls, der senkrecht zum ordentlichen Strahl polarisiert ist, parallel zur optischen Achse. Man bezeichnet die Brechungsindizes für die ordentliche und außerordentliche Polarisation des Lichts mit  $n_o$  bzw.  $n_e$  und definiert die Doppelbrechung als

$$\delta n = n_e - n_o \quad , \quad (2.1)$$

wobei  $n_e$  und  $n_o$  von der Lichtwellenlänge  $\lambda$  und der Temperatur  $T$  abhängig sind:  $n = n(\lambda, T)$ . Zum Beispiel haben  $n_o$  und  $n_e$  für Licht eines He-Ne-Lasers ( $\lambda = 632.8 \text{ nm}$ ) den Wert  $n_o = 2.28$  und  $n_e = 2.20$  [4]. Die Doppelbrechung von  $\text{LiNbO}_3$  ist somit negativ d.h.  $\delta n < 0$ .  $\text{LiNbO}_3$  ist elektrooptisch: d.h. der Brechungsindex ist von einem äußeren oder

inneren elektrischen Feld linear abhängig (elektrooptischer Effekt). Diese Abhängigkeit wird durch den elektrooptischen Tensor  $r_{ijk}$  beschrieben [35]. Seien elektrische Felder nur entlang der  $z$ -Achse angelegt, dann lässt sich die Änderung von  $n$  wie folgenden ausrechnen:

$$\Delta n = -\frac{1}{2}n^3 r_{13} E_3 \quad , \quad (2.2)$$

wobei  $E_3$  das Feld in  $z$ -Richtung ist.

Die Dotierung des LiNbO<sub>3</sub>-Kristalls kann auch zu einer Brechungsindexänderung des Kristalls führen (sogenannte photorefraktiver Effekt), [6, 12].

## 2.2 Intrinsische Defekte

Ein idealer Lithiumniobat-Kristall hat stöchiometrische Zusammensetzung, d.h. es existieren keine Li-Fehlstellen im Kristall und es gilt das Verhältnis  $[\text{Li}]/[\text{Nb}]=1$ . In der Realität ist es nur näherungsweise möglich [36]. Kongruent schmelzende LiNbO<sub>3</sub>-Kristalle haben keine stöchiometrische Summenformel und weisen ein ca. vierprozentiges Lithium-Defizit [37, 38] auf. Solche Defekte wie z. B. Fehlstellen oder Versetzungen werden als intrinsische Defekte bezeichnet. Der Grund dafür ist, dass die Nb<sup>5+</sup>-O<sup>2-</sup>-Bindung stärker als Li<sup>+</sup>-O<sup>2-</sup>-Bindung ist und es führt zur Erzeugung vermehrter Lithiumfehlstellen [39]. Diese Li-Defizite werden teilweise durch den Einbau von Niobionen auf Lithiumfehlstellen ausgeglichen [5, 40]. Die O<sup>2-</sup>-Fehlstellen können aufgrund Ladungskompensation der Li<sup>+</sup>-Fehlstellen nicht vorkommen. Die “verkehrt” eingebauten Nb-Ionen werden als Nb-Antisite-Defekte (Nb<sub>Li</sub>)<sup>4+</sup> bezeichnet. Energetisch liegen diese Störstellen knapp unter den Leitungsband und treten in den Valenzzuständen Nb<sup>4+</sup> und Nb<sup>5+</sup> auf [41]. Diese flachen Zentren kommen im thermischen Gleichgewicht bei Raumtemperatur praktisch nur im Zustand Nb<sup>5+</sup> vor und können Elektronen einfangen. Ein eingefangenes Elektronen lässt ein kleines gebundenes Polaron entstehen [39, 42]. Als Polaron wird eine Kombination aus Elektronen und Gitterverzerrung bezeichnet. Durch Simulation wird festgestellt, dass Li<sup>+</sup>-Fehlstellen energetisch günstiger als Nb<sup>5+</sup>-Fehlstellen sind [43]. Es führt zu einem Lithiumfehlstellenmodell mit der chemischen Formel  $[\text{Li}_{0.95}\square_{0.04}\text{Nb}_{0.01}]\text{NbO}_3$  [38, 44]. Diese Komposition wird für das Simulationsprogramm SRIM-2006 benutzt (siehe Kapitel 2.4).

## 2.3 Ionendurchgang durch Materie

Strahlung aus geladenen Teilchen ionisiert durch Stoßprozesse die Materie. Dabei geben die Teilchen ihre Energie nach und nach an die Atome ab, auf die sie treffen, bis ihre Energie schließlich auf den Wert der thermischen Energie gesunken ist. Der Weg, den die Teilchen bis dorthin zurücklegen, heißt Reichweite. Die Reichweite ist abhängig von der Teilchenart, von der Anfangsenergie und von dem Material, das die Teilchen durchqueren. Auch die Energieübertragung pro Weglängeneinheit (so genannte Bremsvermögen, engl. “stopping power”) an die durchquerte Materie ist abhängig von der Teilchenart, vom

Material und von der augenblicklichen Energie. Meistens steigt die Energieübertragung pro Weglängeneinheit während des Weges an, den das Teilchen zurücklegt. Die Kurve, die dies beschreibt, heißt Bragg-Kurve. Kurz vor dem Ende des Weges durchläuft die Energieübertragung ein Maximum (sogenannter Bragg-Peak) und fällt dann abrupt auf null ab (Abbildung 2.2).

Bei Ionendurchgang von Monokristallinen besteht die Möglichkeit auch, dass Ionen aufgrund der gleichmäßigen Kristallstruktur durch die Zwischenräume der Atome nahezu ungebremst in das Substrat eindringen und erhalten eine hohe Reichweite. Dieser Effekt wird als Channeling bezeichnet.

## 2.4 Energieverlust schneller Ionen in Festkörpern

Dringt ein Ion in einen Festkörper ein, so verliert es auf seiner Bahn auf der Strecke  $\Delta x$  infolge von Wechselwirkungen mit dem Festkörper die Energie  $\Delta E$ . Die Energieverlust  $\frac{dE}{dx}$  wird für Energien bis einige MeV in nichtrelativistischem Bereich durch zwei Prozesse bewirkt: erstens durch elastische Stöße mit den Atomrümpfen (oder Kernen), zweitens durch inelastische Stöße mit den Targetelektronen (Anregung und Ionisation).

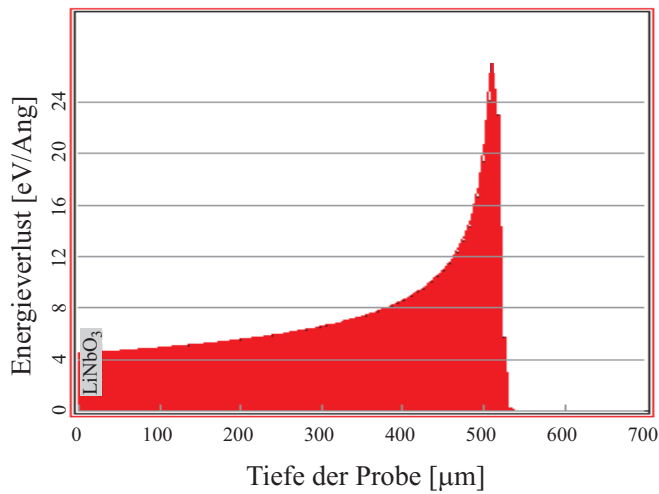
Bei hohen Ionengeschwindigkeiten wird der Energieverlust überwiegend durch die Wechselwirkung der Ionen mit den Hüllenelektronen der Atome des Materials bestimmt. Diese Wechselwirkung führt zur Anregung oder zur Ionisation der Atome [45]. Dadurch erleidet das durchquerende Teilchen einen Energieverlust pro Weglängeneinheit, welcher durch die Bethe-Bloch-Formel beschrieben wird (Gleichung (2.3)), [28, 45, 46].

$$\frac{dE}{dx} = \frac{4\pi}{m_e c^2} \cdot \frac{nz^2}{\beta^2} \cdot \left(\frac{e^2}{4\pi\epsilon_0}\right)^2 \left[ \ln\left(\frac{2m_e c^2 \beta^2}{I(1-\beta^2)}\right) - \beta^2 - U - \frac{\delta}{2} \right], \quad (2.3)$$

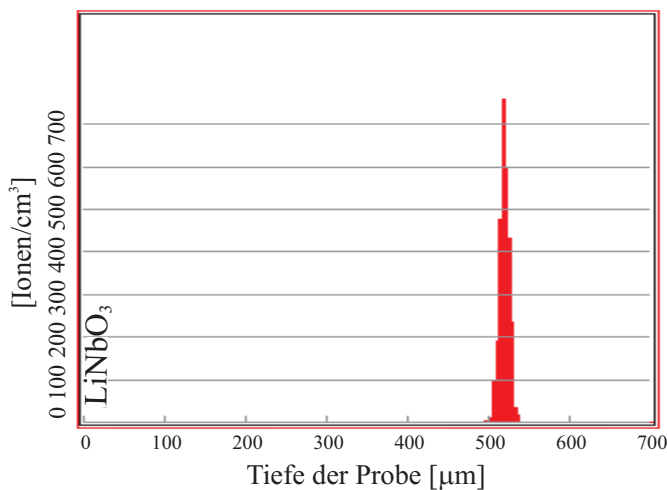
wobei  $\beta = \frac{v}{c}$ ,  $v$  Geschwindigkeit des Teilchens,  $c$  Lichtgeschwindigkeit,  $z$  Anzahl der Ladungen des Teilchens ( $z \cdot e$  Ladung des Teilchens),  $e$  die Ladung des Elektrons,  $n$  die Elektronendichte des Materials,  $m_e$  die Ruhmasse des Elektrons,  $I$  die mittlere Ionisationsenergie der Targetatome,  $U$  der Innerschalen-Korrekturterm und  $\frac{\delta}{2}$  der Korrekturterm der relativistische Dichte-Effekte sind. Die Elektronendichte lässt sich dabei mit  $n = Z \cdot N_A \cdot \frac{\rho}{M_A}$  berechnen. Dabei ist  $\rho$  die Dichte des durchdrungenen Materials,  $Z$  die Ordnungszahl,  $M_A$  die Molmasse eines Atoms und  $N_A$  die Avogadro-Zahl.

Mittels dieser Formel und mit Berücksichtigung anderer entscheidender Parameter wie z. B. Kollisionskaskaden und Wirkungsquerschnitt der einzelnen Elemente kann der Energieverlust durch die Monte-Carlo-Simulation simuliert werden [45]. Durch das Programm SRIM 2006 [45–47] kann diese Simulation erfüllt werden. In Abbildung 2.2 wurde durch das SRIM-Programm der Energieverlust von  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen beim Durchgang durch einen  $\text{LiNbO}_3$ -Kristall mit einer kinetischen Anfangsenergie von 40 MeV dargestellt. In der Abbildung ist zu sehen, dass dort, wo die Ionen langsamer werden, der Energieverlust ansteigt und kurz vor der Stopptiefe maximal wird. Durch das Programm SRIM 2006 kann man auch die Stopptiefe der Strahlteilchen in dem Material simulieren. In Abbildung 2.3





**Abbildung 2.2:** Simulation des Energieverlusts  $\frac{\Delta E}{E}$  von 40 MeV  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen in  $\text{LiNbO}_3$  entlang der Eindringtiefe mit dem Programm SRIM 2006.

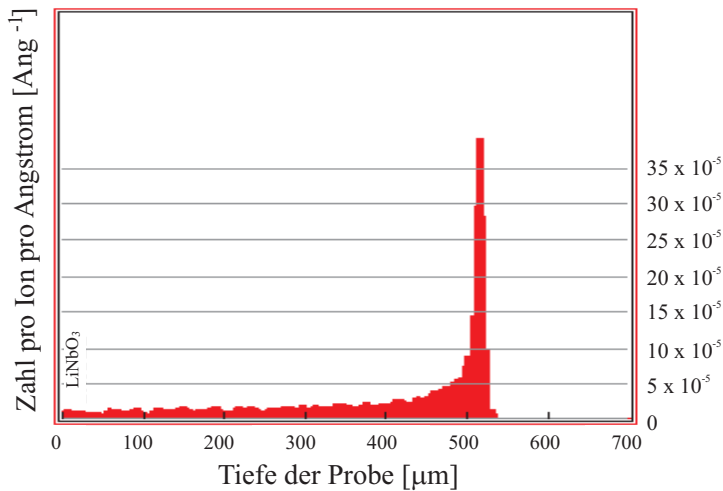


**Abbildung 2.3:** Simulierte Reichweite bzw. Stopptiefe von 40 MeV  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen in  $\text{LiNbO}_3$  durch das SRIM-Programm. Die Simulation wurde für 13000 Ionen durchgeführt und wie man sieht, bleibt der größte Anteil der Ionen in Tiefe von ca. 520  $\mu\text{m}$  stecken. Die maximale Reichweite beträgt ca. 530  $\mu\text{m}$ .

wurde die Stopptiefe der  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen mit Anfangsenergie 40 MeV beim Durchgang durch  $\text{LiNbO}_3$  dargestellt. Wie man erkennt, bleiben die  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen in der Tiefe von 520  $\mu\text{m}$  in  $\text{LiNbO}_3$  stecken und der größte Teil der Ionen wird in der Zone des Bragg-Peaks gestoppt.

## 2.5 Strahlenschäden und Einfluss auf den Brechungsindex

Beim Durchgang durch Materie ionisieren hochenergetische geladenen Teilchen entlang ihrer Flugbahn die Targetatome. Daraus resultieren aufgrund der Coulomb-Abstoßungen eine Verlagerung der durch Ionisation positiv geladenen Atomrümpfe. Dadurch und nach Relaxation entsteht die Verzerrung im Kristall [48]. Entlang der Ionen-Trajektorie bleiben aber zahlreiche Fehlstellen zurück und dadurch werden eine Reihe von stabilen struktu-

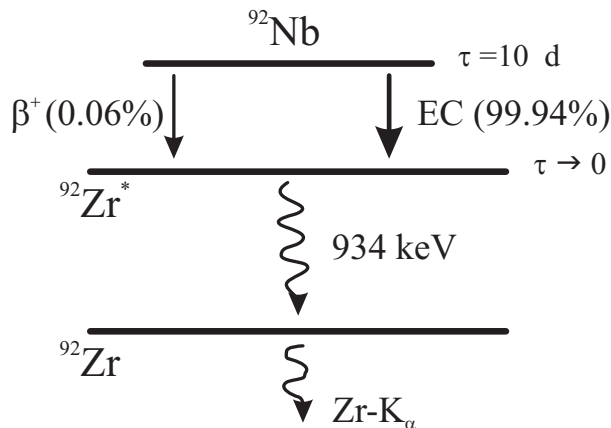


**Abbildung 2.4:** Ausrechnung der Fehlstellen-Konzentrationen beim Durchgang von 40 MeV  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen durch  $\text{LiNbO}_3$  mit SRIM 2006. Das Histogramm zeigt die Zahl der erzeugten Fehlstellen pro Ionenbeschuss pro Angstrom abhängig von Eindringtiefe.

rellen Schäden erzeugt [49–51]. Außerdem verursachen die elastischen Stöße zwischen den schnellen Ionen und der Target-Atome noch mehrere Defekte in Target. Für die genauere Abschätzung der Defektbildungen muss man ganze Kollisions-Kaskaden berücksichtigen [28, 45]. Sie finden am meistens im Bereich des Bragg-Peaks statt und liegen außerhalb des Interesses dieser Arbeit.

Grundsätzlich ist die Defektdichte durch Strahlenschäden abhängig von der Ionensorte bzw. Ionendosis [41]. Die Abbildung 2.4 zeigt die simulierte Fehlstellen-Konzentration von 40 MeV  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen in  $\text{LiNbO}_3$  durch das SRIM-Programm. Am meisten ergeben sich Strahlenschäden in der Tiefe von ca. 520  $\mu\text{m}$  und wo der Energieverlust maximal ist, liegt hier auch das Maximum der Fehlstellen-Konzentration. Nach der Ionenbestrahlung bei einer ausreichend hohen Dosis entstehen die Strahlenschäden und dadurch Brechungsindexänderungen und auch eine Verfärbung des  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalls. Bisher konnte man keine genaue Ursache für die entstehenden Strahlenschäden durch hochenergetische Ionen präsentieren, aber als mögliche Ursachen dafür bzw. für Brechungsindexänderung des Kristalls können die folgenden Gründe beteiligt sein: Verlagerung von  $\text{Li}^+$  [19], die Erzeugung von Sauerstofffehlstellen [52, 53], Diffusion in den durchstrahlten Bereich [21], die Ausdehnung des Kristalls durch die Verringerung der kristallinen Ordnung [54], Verzerrung des Kristallgitters, Materialverspannungen, Massedichteänderung, geänderte Polarisierbarkeiten und Verfärbung des Kristalls durch Farbzentren. [25].

In der Region des Braggpeaks kurz vor der Stopptiefe ist die Brechungsindexänderung am größten und in dem durchflogenen Bereich geringer. Für die Verfärbung des Kristalls können die elektronischen Defekte Rolle spielen, z. B. die Elektronen werden durch Bestrahlung fortgerissen und hiermit bilden Lochpolaronen und Farbzentren an Sauerstofffehlstellen [55, 56].



**Abbildung 2.5:** Schematische Darstellung eines der möglichen Übergänge für  $^{92}\text{Nb}$ . Durch  $\beta^+$ -Emission und Elektroloneinfang (EC) kommt  $^{92}\text{Zr}^*$  zustande. Anschließend folgt durch den Übergang auf den Grundzustand  $^{92}\text{Zr}$  eine Energieemission bei 934 keV ( $\gamma$ -Linie), [57]

## 2.6 Aktivierung

Im Abschnitt 2.5 wurde beschrieben, dass der hochenergetische Ionenstrahl die Ionisation bzw. Erzeugung der Fehlstellen im Kristall verursacht. Somit führt die Bestrahlung von  $\text{LiNbO}_3$  mit schnellen  $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen zu einer nuklearen Wechselwirkung zwischen  $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen mit den Targetatomen und dadurch zur Aktivierung des  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalls, die von der Ionendosis abhängt. Prinzipiell können bei Bestrahlung der Probe langlebige radioaktive Isotope entstehen. Es verhindert, dass die Probe aufgrund der Aktivität zügig ausgebaut und untersucht werden kann. Mit dieser Berücksichtigung wählt man in dieser Arbeit  $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen statt anderer Teilchen wie  $\alpha$ -Teilchen aus. Dadurch wird die Probe weniger aktiv und entstehen keine langlebigen radioaktiven Isotope.

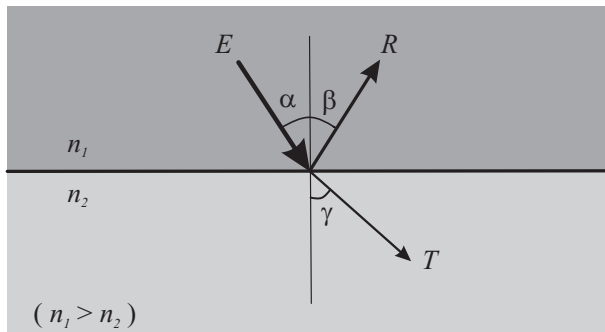
Der  $^3\text{He}^{2+}$ -Beschluss von  $\text{LiNbO}_3$  kann zu einer Kernreaktion führen, in der ein  $^{93}\text{Nb}$ -Atom von  $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen getroffen wird. Dadurch wird ein  $\alpha$ -Teilchen emittiert und folglich wird das aktive  $^{92}\text{Nb}$  mit Halbwertszeit von ca. 10 Tage erzeugt. Diese Reaktion bezeichnet man so:  $^{93}\text{Nb}(^3\text{He}^{2+}, \alpha)^{92}\text{Nb}$ . Dieses aktive  $^{92}\text{Nb}$  kann hauptsächlich durch EC-Reaktion in einem stabilen Zustand wandern. Die Abbildung 2.5 zeigt eine schematische Darstellung einer der möglichen Reaktionen für  $^{92}\text{Nb}$ . Bei Aktivitätsmessungen wird hier für die Bestimmung der relativen Dosis die  $\gamma$ -Linie bei 934 keV gewählt.

## 2.7 Wellenleitung

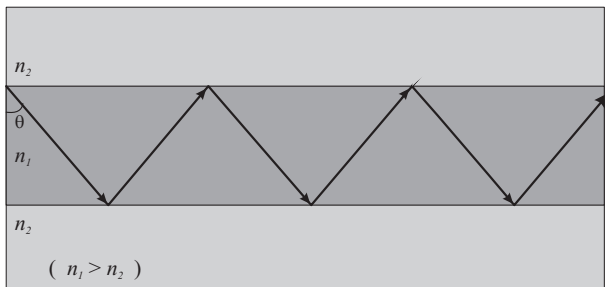
Fallen Lichtstrahlen auf die Grenzfläche zweier Medien, so wird ein Teil der Strahlung reflektiert und verbleibt damit im 1. Medium; die übrige Strahlung dringt in das 2. Medium ein. Die Reflexion passiert unter dem Reflexionsgesetz und für den übrigen gilt das Snelliussche Brechungsgesetz

$$n_1 \sin \alpha = n_2 \sin \gamma \quad , \quad (2.4)$$

wobei  $n_1$  und  $n_2$  der Brechungsindex der Medien 1 und 2,  $\alpha$  der Einfallswinkel,  $\gamma$  der Austrittswinkel und  $\beta = \alpha$  der Reflexionswinkel sind (Abbildung 2.6), [31,58]. Käme ein



**Abbildung 2.6:** Schematische Darstellung von Reflexion bzw. Brechung des Lichtes an der Grenzfläche zwischen einem optisch dichten und einem optisch dünnen Medium mit dne Brechungsindizes  $n_1$  und  $n_2$ .



**Abbildung 2.7:** Prinzip der Lichtleitung in einem Wellenleiter durch Totalreflexion.

Lichtstrahl aus einem optisch dichteren Medium und fällt auf die Grenzfläche zu einem optisch dünneren Medium (d.h.  $n_2 < n_1$ ), dann wird er vollständig reflektiert, wenn der Winkel des einfallenden Lichts  $\alpha$  größer als der Grenzwinkel der Totalreflexion  $\theta_c$  ist (sogenannte Totalreflexion), [31, 58].

$$\theta_c = \arcsin \left( \frac{n_2}{n_1} \right) \quad \text{mit } n_2 < n_1 \quad . \quad (2.5)$$

Das Prinzip der Wellenleitung beruht auf der Totalreflexion des Lichts im Grenzbereich des Lichtleiters. Ein Bereich mit größerem Brechungsindex  $n_1$  wird umgeben von einem Bereich mit niedrigerem Index  $n_2$  (Abbildung 2.7). Solange die Totalreflexionsbedingung für  $\theta$  erfüllt ist, wird das Licht im Leiter ohne größere Verluste geführt. Als Bedingung für den Einkopplungswinkel  $\theta$  in den Wellenleiter ergibt sich

$$\theta \geq \arcsin \sqrt{n_1^2 - n_2^2} \quad . \quad (2.6)$$

Ein Beispiel für die Wellenleitung ist die Glasfaser. Sie spielt als Leiter für Laserlicht in der Nachrichtentechnik eine große Rolle [58, 59].

Bei Wellenleitern ist die Dämpfung sehr wichtig. Sie erfasst alle Lichtverluste beim Lichttransport. Sie ist in Dezibel (dB) durch folgende Gleichung definiert:

$$a = 10 \log \left( \frac{P_1}{P_2} \right) \text{ [dB]} \quad , \quad (2.7)$$

wobei  $a$  die Dämpfung des transportierten Lichts,  $P_1$  die Eingangsleistung und  $P_2$  die Ausgangsleistung sind.

## 2.8 Lichtabsorption

Der Durchgang von Licht durch Materie kann zu einer Schwächung der Strahlungsintensität führen. Der Grund dafür ist die Absorption von monochromatischem Licht mit der Weglänge beim Durchgang durch das Medium und mit der Konzentration des absorbierenden Mediums. Die Abhängigkeit der Intensitätsschwächung von der Weglänge wird durch das Lambertsche Gesetz beschrieben und das Beersche Gesetz stellt die Abhängigkeit von Konzentration des Mediums her. Durch Vereinigung dieser beiden Gesetze ergibt sich das Lambert-Beersche Gesetz [60]:

$$I(x) = I_0 e^{-\alpha x} \quad , \quad (2.8)$$

wobei  $I_0$  und  $I$  die Eingangsintensität bzw. Intensität des transmittierten Lichts sind und  $\alpha$  bezeichnet die Absorptionskoeffizient.

Mit dieser Gleichung kann der lineare Intensitätsverlust innerhalb des Mediums dargestellt werden.



## KAPITEL 3

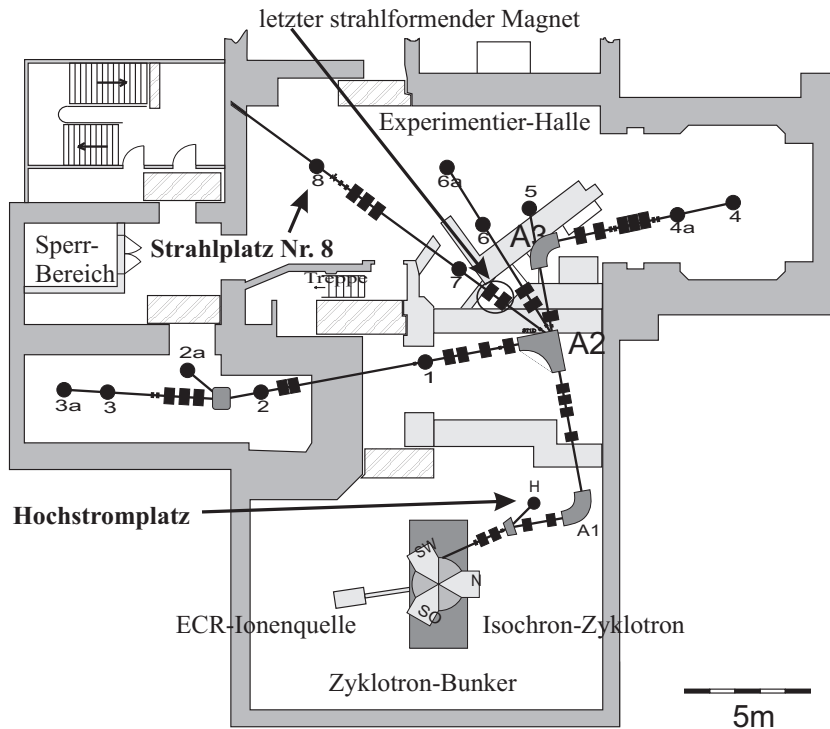
# EXPERIMENTELLE METHODEN

Dieser Abschnitt beschäftigt sich zunächst mit den verwendeten Kristallen und der Probenpräparation. Dann werden der experimentelle Aufbau zur Bestrahlung, die Messmethoden zur Bestimmung der Brechungsindexänderungen, Absorptionsänderungen sowie thermische Behandlungen der bestrahlten Kristalle vorgestellt. Es folgt eine kurze Beschreibung der experimentellen Methoden zur Transmissions-Elektronenspektroskopie und Röntgen-Absorptionsspektroskopie. Als Anwendung dieser Untersuchungen wird die Herstellung optischer Wellenleiter vorgestellt.

### 3.1 Proben und Probenpräparation für optische Untersuchungen

Alle verwendeten  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle sind mittels des Czochralski-Verfahren gezogen worden. Sie sind kongruent schmelzend und stammen als undotierte  $\text{LiNbO}_3$ -Wafer vom Hersteller "Crystal Technology Inc.", USA.  $\text{LiNbO}_3$  ist doppelbrechend und hat für Licht der Wellenlänge  $\lambda = 633 \text{ nm}$ , für ordentliche und außerordentliche Polarisation, folgende Brechungsindizes [4, 61]:  $n_o = 2.28$ ,  $n_e = 2.20$ .

Gegeben ist ein Kristall mit den Kristallachsen  $a, b, c$ , sodass die optische Achse entlang der  $c$ -Achse liegt. Im Allgemeinen wird die  $z$ -Achse eines zur Beschreibung des Kristalls verwendeten Koordinatensystems parallel zur  $c$ -Achse gelegt. Somit nennt man die senkrecht zur  $x$ -Achse herausgesägten Wafer  $x$ -cut Wafer, dies gilt genauso für die  $y$ - und  $z$ -Achsen, die im folgenden  $y$ - bzw.  $z$ -cut Wafer genannt werden. Für die optischen Untersuchungen werden die Kristall-Wafer  $x$ -cut bzw.  $z$ -cut verwendet. Sie sind beidseitig optisch poliert und die Oberflächen sind so gut parallel zueinander, dass die Winkelabweichung wegen Keiligkeit vernachlässigbar ist. Die Proben werden von diesen Wafern in Formen von  $0.5 \times 9 \times 10 \text{ mm}^3$  bzw.  $1 \times 1 \times 6 \text{ mm}^3$  herausgesägt. Bei Bedarf können die Proben im Haus bis auf eine bestimmte Dicke geschliffen und optisch poliert werden. Für die  $x$ -cut-Proben sind die  $yz$ -Fläche und für  $z$ -cut-Proben die  $xy$ -Fläche optisch poliert.



**Abbildung 3.1:** Schematische Darstellung der Strahlführung am Bonner Zyklotron. Die in dieser Arbeit verwendeten Strahlplätze sind der Hochstromplatz H und Strahlplatz Nr. 8 [62].

## 3.2 Probenbestrahlung

Die Bestrahlung aller Proben mit hochenergetischen Ionen wird am Bonner Zyklotron im Helmholtz-Institut für Strahlen- und Kernphysik durchgeführt. In diesem Abschnitt werden zuerst die allgemeinen Eigenschaften der Bestrahlungen erklärt. Dann wird die Bestrahlung für optische Untersuchungen detailliert beschrieben. Die Bestrahlung für andere Untersuchungen wie z. B. TEM, XAS usw. wird später getrennt dargestellt.

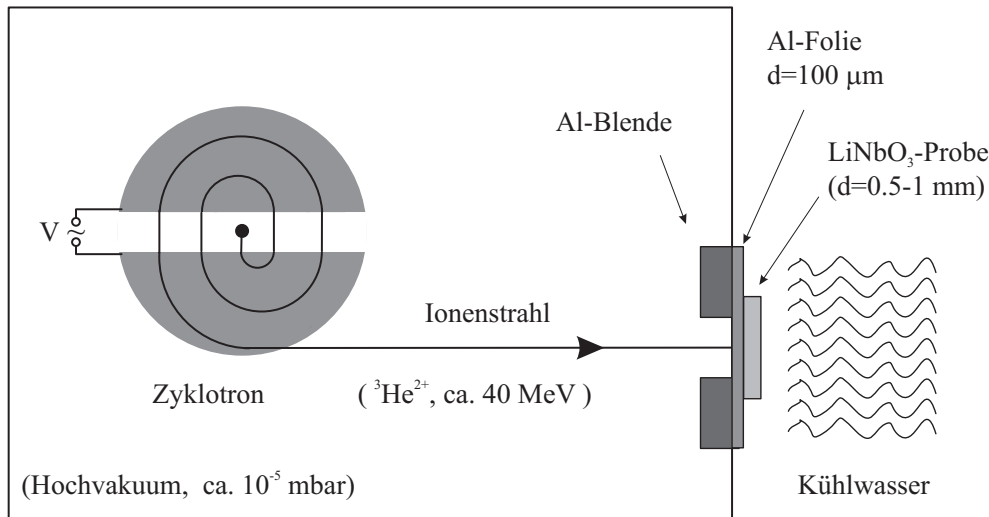
### 3.2.1 Allgemeine Parameter der Bestrahlungen

In dieser Arbeit werden als Ionen grundsätzlich  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen mit einer Energie von ca. 40 MeV benutzt. Die Ionenstrahlintensität ist näherungsweise gaußförmig verteilt. Benutzt werden zwei Strahlplätze, der sogenannte Hochstromplatz und Strahlplatz 8 (Abbildung 3.1). Die Ionenstrahlintensität hat in Hochstromplatz einen  $\frac{1}{e}$ -Durchmesser von ca. 5 mm und bei Strahlplatz 8 ca. 7 mm.

Am Hochstromplatz ("H" in Abbildung 3.1) ist der Strahl fokussiert und der Strahlstrom kann bis zu  $1 \mu\text{A}$  erreichen. Hier werden die Proben folglich bei relativ hohem Ionenstrom bestrahlt. Der Strahl läuft im Vakuum und eine dünne Al-Folie mit Dicke  $100 \mu\text{m}$  isoliert das Vakuum im Zyklotron von der Proben-Umgebung. Um während der Bestrahlung die thermischen Einflüsse zu minimieren und Schäden zu verhindern, wird die Probe mittels Kühlwasser-Durchlaufs abgekühlt. Die Abbildung 3.2 stellt diesen Aufbau schematisch



dar.



**Abbildung 3.2:** Schematische Darstellung der Bestrahlapparatur am Hochstromplatz für die Erzeugung der relativ hohen Strahlströme. Hier ist der Strahl fokussiert und der Strahlstrom kann im besten Zustand bis  $1\ \mu\text{A}$  erreichen. Die Probe wird im direkten Kontakt mit Kühlwasser abgekühlt. Eine dünne Alu-Folie trennt das Hochvakuum im Zyklotron von der Probe.

Dagegen ist am Strahlplatz 8 der Strahlstrom geringer (Maximum ca. 100-150 nA) und nicht fokussiert, sondern fast parallel. Es liegt daran, dass der letzte strahlformende Quadrupol-Magnet sehr weit vom Strahlplatz 8 entfernt ist (ca. 9 m), deswegen trifft der Strahl den Strahlplatz 8 fast parallel. Die Probe kann in einem Graphit- oder Aluminiumhalter festgeklebt oder festgeklemmt werden. Der verwendete Klebstoff ist 2-Komponentenkleber und kann bei über  $200^\circ\text{C}$  Erwärmungen problemlos aushalten. Er hat noch den Vorteil, dass er im Vakuum nicht ausdampft und unter Strahlenblastung nicht zersetzt. Die Probe wird im Luft oder Vakuum bestrahlt. Sie kann im Vakuum durch direkten Kontakt mit einem Material mit hoher Wärmeleitung (hier Graphit oder Aluminium) und in Luft zusätzlich durch einen Ventilator gekühlt werden. Mittels zweier Graphit-Backen kann man die Strahlrichtung bzw. Strahlstrom vor der Probe kontrollieren. Um diese Backen von der Blende, die vor der Probe steht, elektrisch zu isolieren, wird eine dünne Glimmerscheibe zwischen den Backen und Blende festgeklebt. In Abhängigkeit der Ziele der jeweiligen Untersuchungen werden unterschiedliche Bestrahlungsmethoden durchgeführt. Sie werden im Folgenden beschrieben.

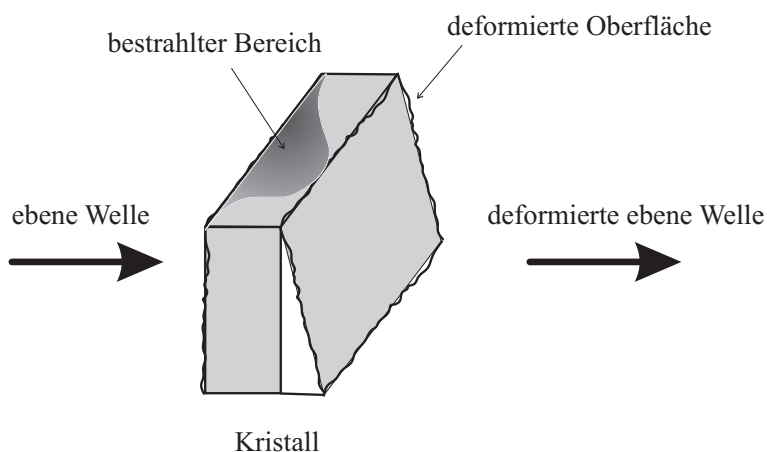
### 3.2.2 Bestrahlung für die Messung der Brechungsindexänderungen

Dieses Experiment findet am Hochstromplatz statt. Die Proben werden allgemein mit einem Strahlstrom zwischen 30 bis 500 nA (bzw. einer Strahldosis zwischen  $4.8 \times 10^{15}$  bis  $0.8 \times 10^{17}$  Ionen/m<sup>2</sup>s im Strahlzentrum) und einer Bestrahlungsdauer von 10 Sekunden bis 4 Stunden bestrahlt, die meisten der Proben werden aber typischerweise ca. 30 Minuten mit einem Strahlstrom von 500 nA behandelt. Oberhalb einer Bestrahlungsdauer von 4 Stunden bei einem Strahlstrom von 500 nA steigt diese Gefahr, dass die Probe zerstört wird. In diesen Untersuchungen trifft der Strahl die Probe senkrecht zur optischen Achse ( $c$ -Achse) und parallel zur  $x$ - oder  $y$ -Richtung die Probe. Nach der Bestrahlung werden die Proben etwa vier Wochen bei Tageslicht und Raumtemperatur gelagert.

### 3.3 Interferometrische Methode zur Messung der Brechungsindexänderung

Nach der Bestrahlung soll die Probe optisch untersucht werden. Diese Untersuchung wird mittels interferometrischer Methoden durchgeführt. Hier wird zunächst das Prinzip dieser Methode beschrieben.

Dringt eine monochromatische Lichtwelle der Wellenlänge  $\lambda$  ein Medium ein, tritt eine ortabhängige Phasenänderung ( $\Delta\Phi(x, y)$ ) der einfallenden Lichtwelle auf. Zwei Parameter tragen zu  $\Delta\Phi$  bei: einerseits hängt die Phasenänderung  $\Delta\Phi(x, y)$  vom Brechungsindex des Mediums ab und auf anderer Seite ist sie verbunden mit Schwankungen der Probendicke im Ort  $(x, y)$ , d.h. die Dickenänderung  $\Delta L(x, y)$  der Probe in der Stelle  $(x, y)$ , verursacht durch Deformationen der Probenoberflächen. In Abbildung 3.3 ist dieses Phänomen schematisch dargestellt.



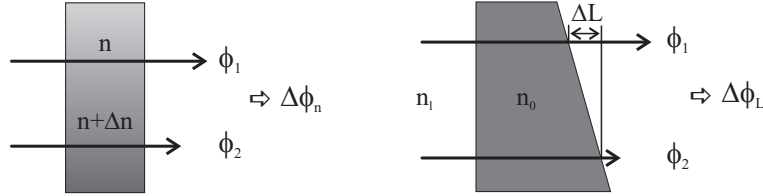
**Abbildung 3.3:** Darstellung der allgemeinen Geometrie einer typischen Probe. Die nicht parallelen Oberflächen der Vorder- bzw. Rückseite der Probe, ebenso die Deformation der Oberflächen führen zu einer Deformation der Phase der durchdringenden ebenen Welle.

Die Phase  $\Phi$  ist eine Funktion von  $n$  und  $L$  (d.h.  $\Phi = \Phi(n(x, y), L(x, y))$ ). Somit gilt für

das totale Differential der Phasenänderung im Ort  $(x, y)$  die folgende Gleichung:

$$d\Phi(x, y) = \Delta\Phi_n(x, y) + \Delta\Phi_L(x, y) = \frac{\partial\Phi}{\partial n}\Delta n(x, y) + \frac{\partial\Phi}{\partial L}\Delta L(x, y) . \quad (3.1)$$

Die Abbildung 3.4 zeigt schematisch, wie man zu dieser Gleichung kommt.



**Abbildung 3.4:** Zwei ebene Wellen durchdringen die Probe bei verschiedenen Orten  $(x_1, y_1)$  und  $(x_2, y_2)$ . Die Beiträge  $\Delta\Phi_n(x, y)$  und  $\Delta\Phi_L(x, y)$  ergeben sich für die lokale Phasenänderung  $\Delta\Phi(x, y)$ .

Läuft eine monochromatische Lichtwelle der Wellenlänge  $\lambda$  in ein Medium mit dem Brechungsindex  $n$  eine Strecke von  $L$ , dann lässt sich die Phase  $\Phi$  dieser Lichtwelle wie folgt berechnen:

$$\Phi = \frac{2\pi}{\lambda}nL . \quad (3.2)$$

Ist das äußere Medium Luft mit Brechungsindex  $n_1$ , dann kann man, wie Abbildung 3.4 schematisch zeigt, für die Beiträge  $\Delta\Phi_n(x, y)$  und  $\Delta\Phi_L(x, y)$  schreiben:

$$L = L_0 = const \implies \Delta\Phi_n(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda}L_0\Delta n(x, y) \quad (3.3)$$

$$n = n_0 = const \implies \Delta\Phi_L(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda}(n_0 - n_1)\Delta L(x, y) , \quad (3.4)$$

addiert man diese Gleichungen, dann ergibt sich die gesamte lokale Phasenänderung:

$$\Delta\Phi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda}[L_0 \Delta n(x, y) + (n_0 - n_1)\Delta L(x, y)] . \quad (3.5)$$

Man erhält einen Ausdruck für die Brechungsindexänderung, wenn man die obere Gleichung einfach nach  $\Delta n$  umstellt:

$$\Delta n(x, y) = \frac{\lambda}{2\pi L_0}\Delta\Phi(x, y) - \frac{(n_0 - n_1)}{L_0}\Delta L(x, y) . \quad (3.6)$$

Diese Gleichung zeigt, dass die Messung der Gesamtphasenänderung  $\Delta\Phi(x, y)$  und der Gesamtdickenänderung  $\Delta L(x, y)$  zur Bestimmung der ortaufgelösten Brechungsindexänderung  $\Delta n(x, y)$  führt. Der nächste Schritt ist, mittels geeigneter Methoden die Dickenänderung (Deformation der Vorder- und Rückseite) und die Gesamtphasenänderung einer

durch die Probe transmittierten ebenen Welle zu messen. Einsatz der Interferometrie erfüllt dieses Ziel. Wie gesagt, gibt es vier Parameter zu bestimmen und Aufbau eines Interferometers mit drei Konfigurationen ermöglicht die Messung dieser Parameter. Ein kombiniertes Mach-Zehnder-Michelson-Interferometer, welches im Folgenden beschrieben wird, erfüllt die Anforderungen.

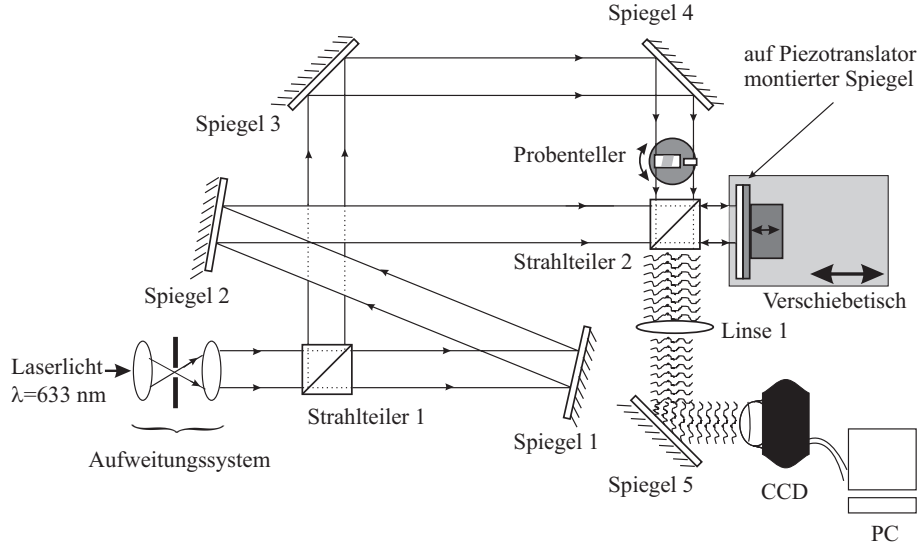
### 3.3.1 Messung der Gesamtphasenänderung

Es ist so, dass man die Bestimmung der Gesamtphasenänderung der Probe  $\Delta\Phi(x, y)$  gewinnt, wenn man das Interferogramm eines kohärenten durch die Probe transmittierten Lichtes mit dessen Referenzlicht aufnimmt. Das ist Prinzip eines **Mach-Zehnder-Interferometers** (Abbildung 3.5). Durch zwei Linsen und eine Blende wird Licht eines He-Ne-Lasers ( $\lambda = 633 \text{ nm}$ ) aufgeweitet und in das Interferometer geleitet. Ein Strahlteiler (Nr. 1) teilt das Licht zwei Teile: der erste Teil vom Signalstrahl läuft über zwei Spiegel 3 und 4 durch die Probe. Dann tritt er über zweiten Strahlteiler (Nr. 2), die Linse 1 und anschließend den Spiegel 5 auf das Objektiv einer monochromen CCD-Kamera. Der zweite Teil des Lichtes (Referenzlicht) tritt über zwei Spiegel 1 und 2 und den Strahlteiler 2 und dann wird von einem dritten Spiegel reflektiert. Dieser Spiegel steht auf einem Piezotranslator, dessen Position elektrisch verstellbar ist. Das vom Spiegel auf den Piezotranslator reflektierte Licht tritt durch Strahlteiler 2 über Linse 1 und den Spiegel 5 in das Objektiv der CCD-Kamera, wo Referenz- und Signallicht auf dem CCD-Chip der Kamera interferieren. Die Kamera hat  $1280 \times 1024$  Pixel und 12 Bit Intensitätsauflösung. Ein CCD-Pixel hat eine Auflösung von  $18.6 \times 18.6 \mu\text{m}^2$  des Interferenzbildes. Dieses Interferenzbild wird im Rechner gespeichert und dann für weitere Auswertungen bearbeitet.

Aufgrund des Einflusses von Oberflächenreflektion im Interferenzbild in der Kamera muss man die Probe leicht verkippen, so dass diese reflektierten Strahlen außerhalb des Raumwinkelbereichs der Abbildungsoptik liegen. Mit dieser Maßnahme gibt es hierdurch eine kleine Versetzung für das transmittierte Licht. Sie ist aber vernachlässigbar.

### 3.3.2 Phasenbestimmung aus Interferenzbildern

Aus dem durch das Mach-Zehnder-Interferometer abgebildeten Interferogramm soll die Gesamtphasenänderung  $\Delta\Phi$  bestimmt werden. Durch den Piezotranslator kann eine gezielte Phasenverschiebung zwischen Referenz- und Signallicht eingestellt werden. Die Verschiebung des auf den Piezotranslator montierten Spiegels verursacht eine Phasenänderung zwischen Referenzlicht und durch die Probe transmittiertem Licht. Das ist der Grund, dass die Phase des Interferogramms um den Phasenwinkel  $\theta$  verschoben wird. Der Piezotranslator wird so gestellt, dass der Spiegel schrittweise verfahren und die Phase des Interferogramms pro Schritt um den festen Betrag  $\theta$  verschoben wird. Die Intensität eines Interferogramms im Ort  $(x, y)$  ist dann eine Funktion von  $x, y$  und  $\theta$  :



**Abbildung 3.5:** Interferometrischer Aufbau im Transmission-Modus (Mach-Zehnder-Interferometer) zur Messung der Gesamtphasenänderung  $\Delta\Phi(x, y)$ . Ein Teil des aufgeweiteten Laserlichts wird durch die Probe bzw. Referenzplatte geleitet. Er interferiert den zweiten Teil des Strahls, der als Referenzlicht vom Spiegel auf dem Piezotranslator reflektiert wird. Die Linse 1 bildet das Interferenzmuster auf den CCD-Chip der Kamera ab.

$$I(x, y) = a(x, y) + b(x, y) \cos(\Delta\Phi(x, y) + \theta) , \quad (3.7)$$

wobei  $a(x, y)$  die Hintergrundintensität und  $b(x, y)$  die Amplitude der Interferenzstreifen sind. Die Aufnahme von drei Interferogrammen, die jeweils um die Phase  $\theta$  gegeneinander verschoben sind, führt zu drei folgenden Gleichungen:

$$I_1(x, y) = a(x, y) + b(x, y) \cos(\Delta\Phi(x, y)) , \quad (3.8)$$

$$I_2(x, y) = a(x, y) + b(x, y) \cos(\Delta\Phi(x, y) + \theta) , \quad (3.9)$$

$$I_3(x, y) = a(x, y) + b(x, y) \cos(\Delta\Phi(x, y) + 2\theta) . \quad (3.10)$$

Löst man diese drei Gleichungen nach  $\Delta\Phi$  auf, dann ergibt sich:

$$\Delta\Phi = \arctan\left[\frac{(I_3 - I_1)(\cos(\theta - 1)) - (I_2 - I_1)(\cos(2\theta - 1))}{\sin\theta(I_3 - I_1) - \sin 2\theta(I_2 - I_1)}\right] . \quad (3.11)$$

Es gibt Mehrfach-Reflexionen durch Vorder- und Hinterseiten der Probe ("Fabry-Perot"-Streifen). Sie beeinflussen das Interferenzbild in der Kamera, aber fallen bei der

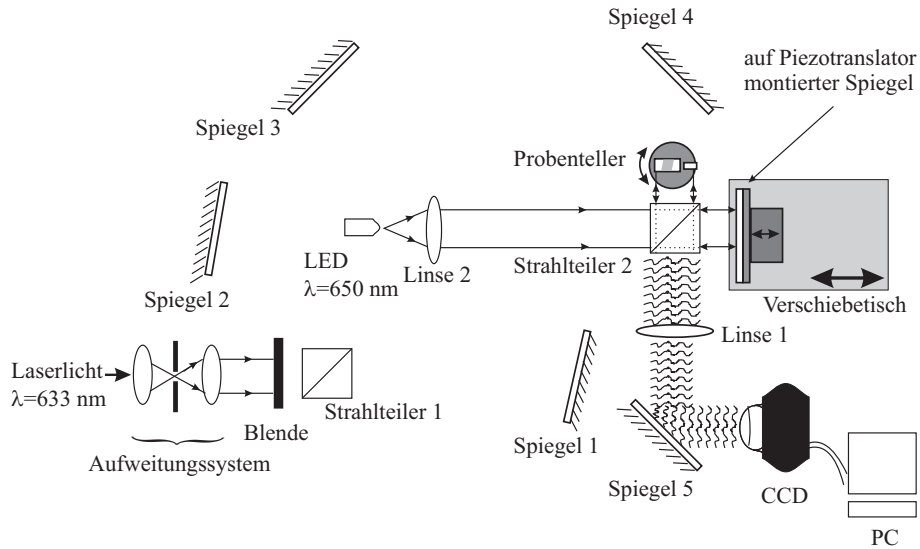
Auswertungen durch die Gleichung (3.11) heraus. Es ist klar, dass die Werte des Arkustangens nur in einem Intervall zwischen  $-\frac{\pi}{2}$  und  $\frac{\pi}{2}$  liegen. Es führt zu Unstetigkeiten im berechneten Phasenbild; zwischen Phasensprüngen  $\pm\pi$  und Effekten kann nicht unterschieden werden. Es gibt verschiedene Algorithmen, womit man eine Verstetigung dieser Unstetigkeiten herstellen kann. Eine davon ist das sogenannte Unwrap-Verfahren [63] und kann für Beseitigung dieses Problems benutzt werden. Um die  $\Delta\Phi$  aus der Gleichung (3.11) zu berechnen und die Phasensprung zu verstetigen, wird das Program FRAN verwendet. Es wurde von T.R. Judge von der Universität Warwick für MS Windows geschrieben [64–66]. Im nächsten Schritt wird dasselbe Verfahren (d.h. Aufnahme des Interferogramms) wieder durchgeführt, aber dieses Mal ohne Probe (sogenante Nullmessung). Mit Subtrahieren des Phasenbilds der Nullmessung von der Messung mit der Probe werden Fehler der Justage des Interferometers berücksichtigt. Wie die Gleichung (3.11) zeigt, braucht man den Winkel  $\theta$ , um  $\Delta\Phi$  bestimmen zu können. Dazu misst man mit einem Photodetektor die Intensität an einer Stelle des Interferogramms, während die Steuerspannung des Spiegels auf Piezotranslator in 1 V-Schritten variiert. Aus Darstellung der Intensität gegen Steuerspannung in einem Graph kann  $\theta$  bestimmt werden. In dieser Arbeit wird ein He-Ne-Laser als Lichtquelle verwendet. Für den in dieser Arbeit verwendeten Interferometer-Aufbau besitzt  $\theta$  folgenden Wert:  $\theta = 21,6^\circ$  pro 1 V Spannungsänderung.

### 3.3.3 Messung der Oberflächendeformationen

Die Bestimmung der Oberflächendeformation wird in einem Michelson-Interferometer durchgeführt. Das Interferometer ist integriert ins Mach-Zehnder-Interferometer vom letzten Abschnitt und bietet daher denselben Abbildungsmaßstab der Probe auf den CCD-Chip. Beim Umbau des Interferometers zum Michelson-Interferometer bleiben die Probe und das Abbildungssystem wie vorher komplett gleich und werden nicht bewegt. Es wird allerdings statt Laserlicht eine LED ( $\lambda = 650$  nm) als Lichtquelle verwendet (Abbildung 3.6). Für diesen Aufbau besitzt  $\theta$  folgenden Wert:  $\theta = 20,7^\circ$  pro 1 V Spannungsänderung.

Das Licht wird durch die Linse 2 aufgeweitet und erreicht Strahlteiler 2. Die von der Probenoberfläche und vom Spiegel auf den Piezotranslator reflektierten Lichtstrahlen interferieren und bilden ein Interferenzbild am Ort des CCD-Chips. Bei dieser Messung wird das Licht sowohl von Vorder- als auch Rückseite der Probe reflektiert und es führt zu einer Überlagerung ihrer Interferenzbilder und deren Folge zu einer Störung im Interferogramm. Um diese Störung zu verhindern, wurde hier eine LED statt des Lasers verwendet. Im Vergleich zum Laserlicht ist die Kohärenzlänge der LED viel kleiner (ca.  $15 \mu\text{m}$ ). Außerdem ist die Dicke der Probe so groß ( $\geq 0.4$  mm), dass der Weglängenunterschied für die Reflex von Vorder- und Rückseite viel größer als  $15 \mu\text{m}$  ist. Nun wird durch den Piezotranslator die Phase des Referenzlichts variiert und gleichzeitig werden die Interferogramme aufgenommen. Wird die wegen Oberflächendeformation der Vorderseite der Probe verursachte Phasenänderung  $\Delta\Phi_{d1}$  aus der Interferenzbilder bestimmt, dann gilt:

$$\Delta L_{d1}(x, y) = \frac{\lambda_{\text{LED}}}{4\pi} \Delta\Phi_{d1} \quad , \quad (3.12)$$



**Abbildung 3.6:** Interferometrischer Aufbau im Michelson-Modus mit einer LED als Lichtquelle zur Messung der Oberflächendeformationen der Probe. Hier interferieren die reflektierten Lichtstrahl von der Oberfläche der Probe und dem Spiegel auf dem Piezotranslator.

wobei  $\Delta L_{d1}(x, y)$  Deformation der Probenoberfläche der Vorderseite ist. Durch einen Schrittmotor wird der Probenteller  $180^\circ$  um die vertikale Achse verdreht und die gleiche Messung wird wiederholt. Dadurch erhält man die Oberflächendeformation  $\Delta L_{d2}$  für die Rückseite der Probe. Mit Berücksichtigung, dass  $\Delta d_1(x, y)$  bzw.  $\Delta d_2(x, y)$  positive oder negative Werte haben können, lässt sich die gesamte Oberflächendeformation ermitteln:

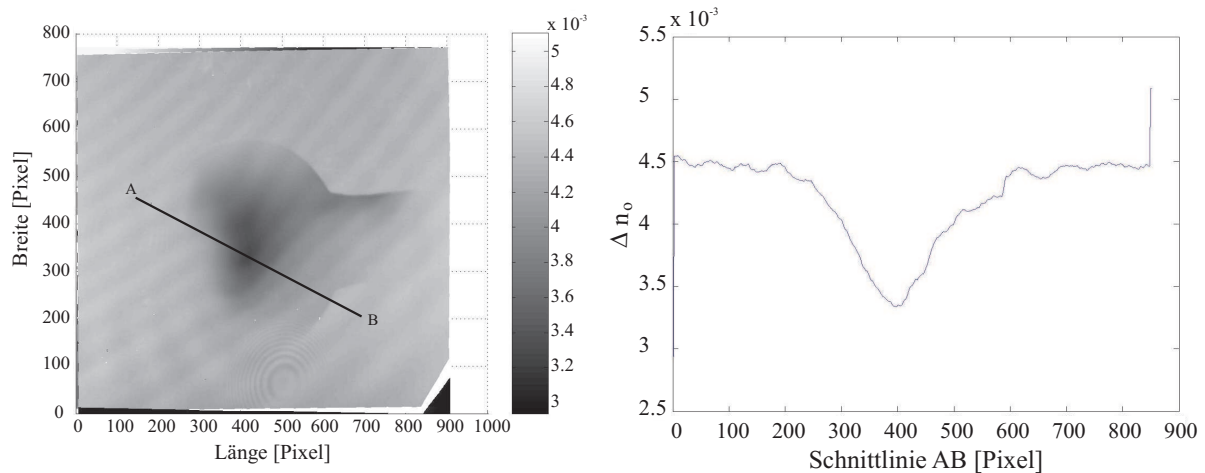
$$\Delta L(x, y) = \Delta L_{d1}(x, y) + \Delta L_{d2}(x, y) \quad . \quad (3.13)$$

### 3.3.4 Messung der strahlungsinduzierten Brechungsindexänderung

Mit den vorgestellten Methoden können die gesamte Phasenänderung  $\Delta\Phi(x, y)$  und die gesamte Dickenänderung  $\Delta L(x, y)$  bestimmt werden. Damit kann von der Gleichung (3.6) die Brechungsindexänderung  $\Delta n(x, y)$  geliefert werden. Vergleicht man den ort aufgelösten Brechungsindex der bestrahlten Bereiche mit dem unbestrahlten Bereich, dann kommt man zur relativen bzw. strahlungsinduzierten Brechungsindexänderung. Zum Beispiel lässt sich die von  $y$  abhängige strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung ergeben:

$$\Delta n_x(y) = \Delta n(x_b, y) - \Delta n(x_u, y) \quad , \quad (3.14)$$

wobei  $x_b$  und  $x_u$  die  $x$ -Koordinaten zweier Punkte im bestrahlten bzw. unbestrahlten Bereich der Probe sind. Die Abbildung 3.7 zeigt ein typisches Ergebnis einer interferometrischen Bestimmung von  $\Delta n$  für die ordentliche Lichtpolarisation in zweidimensionaler



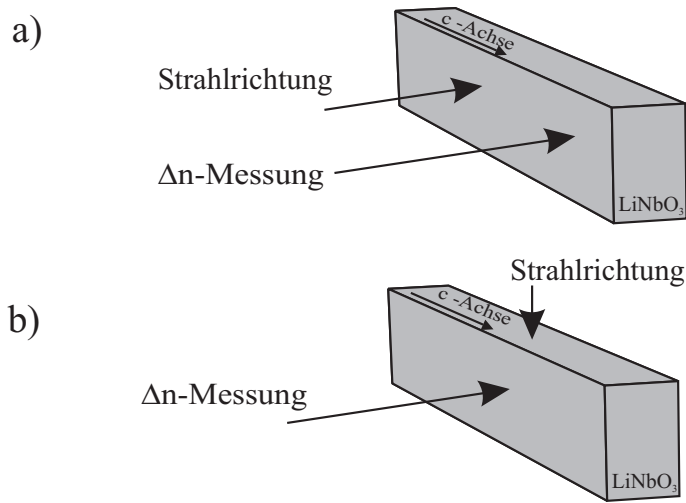
**Abbildung 3.7:** Typisches  $\Delta n$ -Bild für ordentliche Lichtpolarisation (das linke Bild). Das Bild gehört zu einer Probe, die 10 min bei einem totalen Strahlstrom von ca. 500 nA bestrahlt wurde. Der bestrahlte Bereich sieht dunkel aus. Die Schnittlinie AB ist eine beliebige Linie durch das Maximum von  $\Delta n_0$  im bestrahlten Bereich. Auswertung der  $\Delta n$ -Messdaten entlang der Schnittlinie AB wird im rechten Bild gezeht.

Darstellung. Um die  $\Delta n$ -Messdaten auswerten zu können, zieht man eine beliebige direkte Linie, so dass dadurch das Maximum des Brechungsindex im bestrahlten Bereich mit einem beliebigen Punkt im unbestrahlten Bereich verbunden wird. Die Messdaten werden lediglich in einer Dimension entlang dieser Schnittlinie ausgewertet.

### 3.3.5 Abschätzung der Messgenauigkeit des Interferometrie-Verfahrens

Für die Ungenauigkeit der  $\Delta n$ -Bestimmung in diesem Verfahren sind verschiedene Dinge maßgeblich. Die verwendeten Komponenten im Aufbau sind nicht ideal und ihre Eigenschaften weichen von Idealität ab. Zwischen der Transmissions- und der Nullmessungen gibt es einen Zeitabstand. Er kann zu einer Abweichung (z.B. Drift des Interferometers) bzw. zu einem Fehler für  $\Delta\Phi$ -Messung führen. Somit muss man mit einem Rauschen von  $\Delta(\Delta n) \approx 0.1 \times 10^{-3}$  rechnen. Eine ungleichmäßige Ausdehnung des Piezotranslators beeinflusst auch den Phasenwinkelfehler  $\delta\theta$ . Dieser Einfluss ist aber gering und bei  $20^\circ\text{C}$  Ausdehnung ergibt sich nur ein kleiner Wert von etwa  $\pm 0.5$  für  $\delta\Delta\Phi$ . Um die Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung zu bestimmen, betrachtet man  $\Delta n$  entlang einer Linie zwischen un- und bestrahlten Bereichen. Die Situation dieser Linie kann höchstens einen  $\Delta n$ -Fehler von  $\pm 0.1 \times 10^{-3}$  verursachen. Ebenfalls, im Fall der maximalen Abweichung





**Abbildung 3.8:** Schematische Darstellung der Geometrie von  $\Delta n$ -Messungen. Bei der Standard-Methode (Abb. a) ist die Richtung der  $\Delta n$ -Messungen parallel zur Strahlrichtung und  $\Delta n$  wird auf der bestrahlten Fläche gemessen. Bei Geometrie (b) ist die Richtung der  $\Delta n$ -Messungen senkrecht zur Strahlrichtung; Somit kann  $\Delta n$  entlang der Strahlrichtung räumlich aufgelöst gemessen werden.

von  $\pm \frac{\pi}{2}$  bei der Messung von  $\Delta\Phi$  kann sich unter Verwendung von Gleichung (3.6) ein Fehler von  $\Delta(\Delta n) = \pm 3 \times 10^{-4}$  ergeben. Mit Berücksichtigung auf die  $18.6 \mu\text{m}$  Auflösung von einem CCD-Pixel und die maximale Fehler für  $\Delta n$  lässt sich schließlich die maximal messbare Abweichung  $\frac{\Delta n}{\Delta d(x,y)} \approx 1.7 \times 10^{-2} \text{ mm}^{-1}$  abschätzen.

### 3.4 Geometrie von $\Delta n$ -Messungen

Um die Brechungsindexänderung einer bestrahlten Probe zu bestimmen, gibt es zwei Methoden: In der ersten Methode wird  $\Delta n$  ortaufgelöst entlang der Strahlrichtung gemessen, d.h. man misst die integrierte Brechungsindexänderung entlang des Ionenstrahls (Abbildung 3.8-a). Obwohl  $\Delta n$  sich eigentlich mit zunehmender Tiefe ändert, aber kann man es mit der ersten Methode nicht messen (siehe nächstes Kapitel) und was damit gemessen wird, ist der Mittelwert davon (integriertes  $\Delta n$ ).

Bei der zweiten Methode handelt es sich um die räumlich aufgelöste Messung von Absatz  $\Delta n$ . Es wird erfüllt, wenn man die ortaufgelöste Brechungsindexänderung senkrecht zur Strahlrichtung misst (Abbildung 3.8-b).

In dieser Arbeit wird mit einer Ausnahme (“Geometrie b”) für alle  $\Delta n$ -Messungen die erste Methode verwendet, bzw. auf der bestrahlten Fläche der Probe wird  $\Delta n$  bestimmt.

### 3.5 Tiefenabhängigkeit von $\Delta n$

Um die Abhängigkeit der Brechungsindexänderung von Tiefe der Probe zu untersuchen, wird die räumlich aufgelöste Brechungsindexänderung bestimmt (“Geometrie b”). Es bedeutet, dass mit zunehmende der Tiefe der Probe  $\Delta n$  gemessen wird. Diese Messmethode wird als tiefenaufgelöste  $\Delta n$ -Messung bezeichnet.

Die verwendeten Proben dieser Untersuchung sind  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle im Schnitt  $x$ -cut mit

Abmessungen  $1 \times 1 \times 6 \text{ mm}^3$ , sie werden am Hochstromplatz senkrecht zur  $c$ -Achse bestrahlt.

### 3.6 Einfluss der Stopptiefe auf $\Delta n$ und Korrekturmaßnahmen

SRIM-Rechnungen (vgl. Grundlagen) zeigen, dass 40 MeV  $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen eine Eindringtiefe von  $520 \mu\text{m}$  besitzen, also sie können die Probe der Dicke  $d = 0.5 \text{ mm}$  komplett durchdringen. Befindet sich jedoch die Al-Folie zum Abtrennen des Vakuums von dem Kristall, sinkt die Eindringtiefe auf  $470 \mu\text{m}$ . Das ist der Grund, dass die Strahlteilchen in die  $0.5 \text{ mm}$  dicke Probe nicht vollständig durchfliegen können und kurz vor der Rückseite (etwa  $30 \mu\text{m}$  vor der Rückseite der Probe) in der Probe gestoppt werden (siehe Kapitel 2.5). Bei diesen Messungen muss dieses Problem berücksichtigt werden.

Um Einfluss der Stopptiefe auf  $\Delta n$  zu untersuchen, wird zuerst die Brechungsindexänderung der Probe nach der Bestrahlung gemessen, dann wird die Rückseite der Probe etwa  $100 \mu\text{m}$  heruntergeschliffen und wieder  $\Delta n$  gemessen. Der Vergleich dieser Werte von  $\Delta n$  kann als ein Maß für die Korrektur der Stopptiefe in der Probe angenommen werden.

### 3.7 Dosisbestimmung

Ein entscheidender Parameter bei der Bestrahlung ist die Dosis, die auf die Probe auftrifft. Aufgrund der zeitlichen und örtlichen Schwankungen des Ionenstroms während der Bestrahlung ist es schwierig, exakt die wirkliche Dosis zu bestimmen. Man kann aber mit Messung der Aktivität der durch die Bestrahlung hergestellten Isotopen die relative Dosis abschätzen. Wenn die aktive Isotope und ihre Lebensdauer bekannt sind, dann kann die Messung der Aktivität zur Bestimmung der Anfangsaktivität führen. Ebenfalls kann man aus den interferometrischen Messungen die Größe der bestrahlten Fläche bestimmen. Somit wird die Anfangsaktivität auf die bestrahlte Fläche normiert ( $N_0$ ). In dieser Arbeit misst man die Aktivität mit einem Ge-Detektor mit angeschlossenem Mehrkanal-Analysator. Als ein radioaktives Isotop wird das aktive  $^{92}\text{Nb}$  mit Halbwertszeit ca. 10 Tage ausgewählt. Es entsteht durch die Kernreaktion  $^{93}\text{Nb}(^3\text{He}, \alpha)^{92}\text{Nb}$  (siehe Kapitel 2.6). Bei Aktivitätsmessungen wird hier für die Bestimmung der relativen Dosis die  $\gamma$ -Linie bei  $934 \text{ keV}$  ausgenutzt.

### 3.8 Thermische Behandlungen

Die thermische Behandlung (Tempern) wird benutzt, um die Stabilität der Brechungsindexänderungen  $\Delta n$  zu untersuchen. Hierzu wird für eine bestrahlte Probe zuerst bei

Raumtemperatur  $\Delta n$  gemessen und dann bei unterschiedlichen Temperaturen bzw. Temperdauern die Probe getempert. Nach jedem Tempern wird die Brechungsindexänderung der Probe bei Raumtemperatur erneut untersucht. Der in dieser Arbeit verwendete Ofen ist ein CARBOLITE, Typ CWF 13/13 und arbeitet bei Normalatmosphäre. Die Temperatur ist auf  $\pm 1$  K stabil und wird nahe am Probenort per Thermoelement überwacht. Der Ofen wird auf Temperatur gebracht und bei jedem Tempern wird die Probe in den heißen Ofen eingelegt. Die Probe liegt in einem kleinen Gefäß aus einer dünnen Aluminiumplatte. Beim Temperstart bzw. Temperende wird dieses Gefäß schnell in den Ofen gestellt oder herausgenommen. So wird ein großer Wärmeverlust bzw. eine große Temperaturschwankung im Ofen verhindert. Nach Temperaturschwankungen muss man in einem Zeitraum von bis zu 3 Minuten mit einer bis zu  $5^\circ\text{C}$  erhöhten Temperatur rechnen, da die Temperaturregelung träge ist.

Im Rahmen dieser Arbeit werden zwei Ausheilverfahren verwendet:

### 3.8.1 Isochrone Erholung

Bei dieser Methode wählt man ein festes Zeitintervall  $\Delta t$  und führt eine Reihe von Behandlungen damit durch. Nach der Bestrahlung und der ersten  $\Delta n$ -Messung bei Raumtemperatur wird die Probe für die Zeit  $\Delta t$  in einem Ofen gestellt, wobei die Start-Temperatur mit  $T=50^\circ\text{C}$  höher als Raumtemperatur gewählt wird. Nach dem Zeitablauf bringt man die Probe aus dem Ofen heraus und bei Raumtemperatur wird  $\Delta n$  bestimmt. Bei der Wiederholung des Temper-Prozesses bleiben alle Voraussetzungen gleich und nur die Temperatur wird jedes Mal um einen gleichen Wert erhöht ( $\Delta T$  von  $25^\circ\text{C}$ ). Die Auswertung dieser Mess-Reihe liefert eine Beziehung zwischen  $\Delta n$  und  $T$ .

### 3.8.2 Isotherme Erholung

Hier wird eine Reihe von Behandlungen bei einer konstanten Temperatur durchgeführt und bei jeder Behandlung wird das Zeitintervall für das Tempern der Probe erhöht. Wie bei der isochronen Erholung wird für die Probe zwischen den Behandlungen eine  $\Delta n$ -Messung bei Raumtemperatur gemacht. Es sei darauf hingewiesen dass alle verwendeten Proben bei dieser Untersuchung vor der thermischen Behandlung ca. 30 min mit einem totalen Strahlstrom von ca. 500 nA bestrahlt wurden.

## 3.9 Langzeituntersuchungen

Um herauszufinden, wie stabil die strahlungsinduzierten Brechungsindexänderungen in der Zeit nach der Bestrahlung sind, werden Langzeitmessungen durchgeführt. Am Hochstromplatz wird eine  $0.5 \times 9 \times 10 \text{ mm}^3$  LiNbO<sub>3</sub>-Probe (Bezeichnung "LNHEP 32") bei einem Strahlstrom von 500 nA ca. 4 Min bestrahlt. Danach befindet sich die Pro-

be immer bei Raumtemperatur und an Tageslicht. Im Laufe der Zeit werden die Brechungsindexänderungen dann in regelmäßigen zeitlichen Abständen von einigen Monaten gemessen.

## 3.10 TEM-Untersuchungen

TEM ist eine Abkürzung für **T**ransmissions-**E**lektronen-**M**ikroskopie [67–69]. Die Transmissionselektronenmikroskopie stellt mit ihren vielfältigen Möglichkeiten eine hervorragende Methode zur Strukturaufklärung auf einer mikroskopischen Skala dar. Die Kristallstruktur und mögliche Kristalldefekte können durch die hochauflösende TEM direkt abgebildet werden. Mittels der hochauflösenden TEM ist es möglich, lokal begrenzte Bereiche eines Festkörpers im Nanometerbereich zu untersuchen.

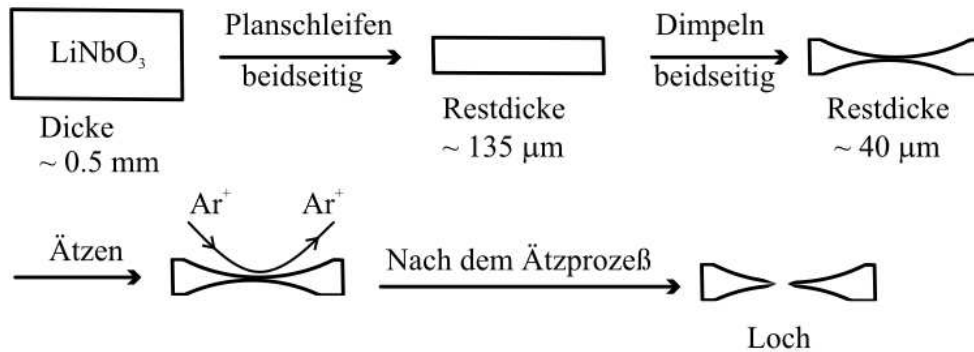
Für die Untersuchungen mit einem Transmissionselektronenmikroskop müssen die  $\text{LiNbO}_3$ -Proben als dünne Scheiben vorliegen, um elektronentransparent zu sein. Für die hochauflösende Elektronenmikroskopie muss die Probendicke sehr gering sein ( $< 20$  nm). Um diese Dicke zu erreichen, wird eine spezielle Methode verwendet, die im Folgenden beschrieben wird.

### 3.10.1 Probenvorbereitung

Zuerst werden vom  $x$ -cut-Kristall-Wafer die Proben auf die erforderliche Größe von  $0.5 \times 1.8 \times 1.8 \text{ mm}^3$  geschnitten und auf einen ringförmigen Probenhalter aus Korund geklebt. Sie werden dann beidseitig planparallel auf eine Dicke von ca.  $135 \mu\text{m}$  geschliffen (vgl. Abbildung 3.9). Zur weiteren Probenvorbereitungen für die TEM wird in die beiden Seiten der Probe eine Vertiefung mit Hilfe eines Muldenschleifgerätes (“Dimplers”) geschliffen. Eine beidseitig konkave Mulde mit einer Restdicke von ca.  $40 \mu\text{m}$  im Zentrum wird hiermit erzeugt. In einem abschließenden Arbeitsschritt wird die Probe in ihrem Zentrum durch Beschuss mit beschleunigten Argon-Ionen bis zum Auftreten eines Loches in der Probenmitte abgetragen (sog. Ionenätzen). Das Loch hat typischerweise einen Durchmesser von ca.  $200 \mu\text{m}$  und am Rand des Loches mit der Dicke einiger  $10 \text{ nm}$  ist die Probe dann elektronentransparent. Das Ätz-Verfahren kann in Abhängigkeit von den verschiedenen Messungen vor oder nach der Bestrahlung durchgeführt werden. Diese Prozesse sind in Abbildung 3.9 schematisch dargestellt. Eine präparierte Probe nach dem Ätzen ist in Abbildung 3.10 zu sehen.

### 3.10.2 Bestrahlung zur TEM-Untersuchungen

Die Durchführung dieses Experiments findet am Strahlplatz 8 in Luft statt. Der Strahl trifft die Probe senkrecht zur optischen Achse und parallel zu  $x$ -Koordinaten der Probe. Die Probe ist zwischen einer Graphitblende und einem Probenhalter auch aus Graphit



**Abbildung 3.9:** Schematische Darstellung der Präparation von  $\text{LiNbO}_3$ -TEM-Proben (Seitenansicht). In einem ersten Präparationsschritt wird die 0,5 mm dicke Probe in einer Schleifmaschine auf eine Restdicke von ca. 135  $\mu\text{m}$  herunter geschliffen. Dann wird durch Muldenschleifen (Dimpeln) eine Vertiefung in beide Seiten der Probe eingebracht (bis auf eine Restdicke von ca. 40  $\mu\text{m}$ ). Zur abschließenden Dünnung der Probe wird diese mit beschleunigten Argon-Ionen beschossen (Ätzprozeß).

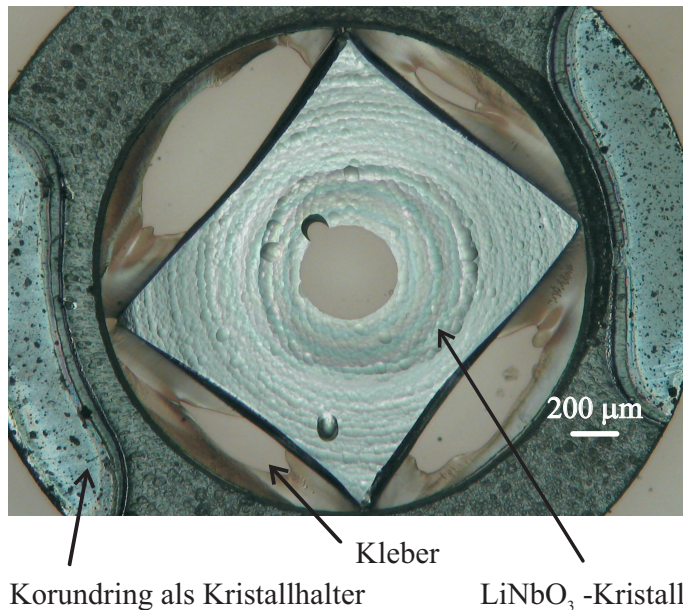
festgehalten und wird wegen der guten Wärmeleitung von Graphit abgekühlt; zusätzlich hilft ein Ventilator, die Probe abzukühlen (Abbildung 3.11).

Eine dünne Al-Folie mit Dicke 30  $\mu\text{m}$  trennt das Vakuum im Strahlrohr von der Umgebung. Der Abstand zwischen Probe und Al-Folie beträgt etwa 10 cm und eine 3 mm dicke Graphit-Platte dient als Blende vor der Probe. Durch ein Loch mit Durchmesser 1 mm im Graphit trifft der Strahl die Probe. Eine dünne Al-Folie mit einer Dicke zwischen 530 – 600  $\mu\text{m}$  oder eine Graphitscheibe mit der Dichte 1,75  $\text{g/cm}^3$  und Dicke 850  $\mu\text{m}$  vor der Graphitblende (bzw. vor der Probe) bremsen den Ionenstrahl (Restenergie ca. 19 MeV) und erhöhen so die Wahrscheinlichkeit von Stößen zwischen den Ionen und den Atomen der Probe. Bei der Bestrahlung wird die Probe senkrecht zur Strahlrichtung so gestellt, dass die Hälfte der gedimplten Mulde bzw. des Randes vom durch Ätzen erzeugten Loch in der Probe den Strahl erhält (Abbildung 3.12). Durch eine elektrisch isolierte Graphitbacke, welche hinter die Probe gestellt wurde, wird der durch die Probe transmittierte Strahlstrom gemessen.

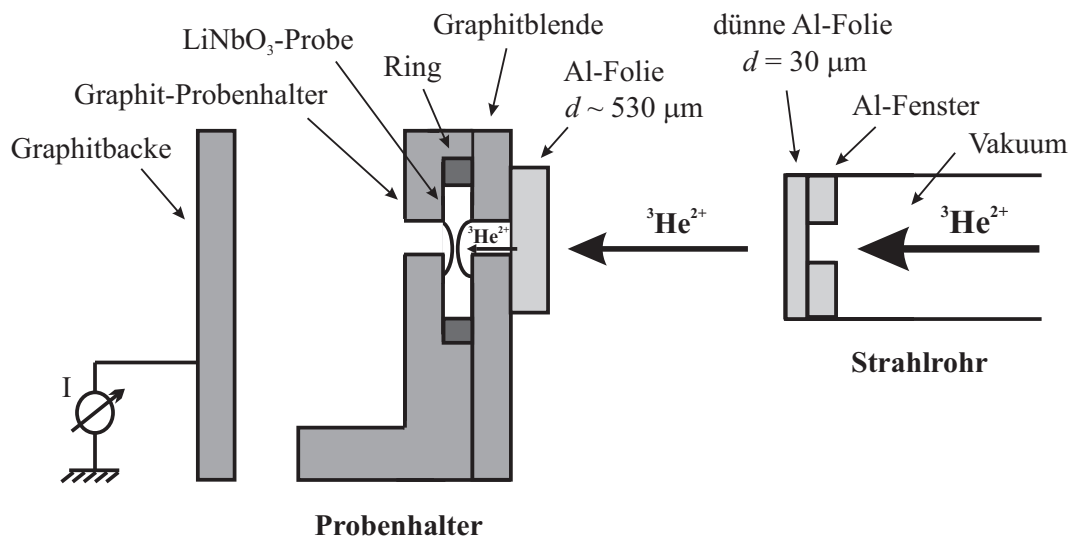
### 3.10.3 TEM-Messmethoden

Nach der Bestrahlung der Probe soll durch die TEM-Messungen eine Strukturaufklärung für die Probe durchgeführt werden. Für das Leistungsvermögen eines Mikroskops ist das Auflösungsvermögen als der geringste erkennbare Abstand zweier Objektdetails definiert. Dieses lässt sich durch die Formel

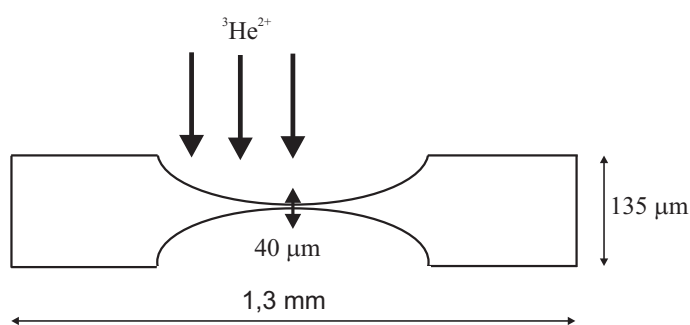
$$d = 0,6 \frac{\lambda}{n \sin \alpha} \quad (3.15)$$



**Abbildung 3.10:** Foto einer präparierten  $\text{LiNbO}_3$ -Probe zur TEM-Messung. Die Probe hat die Maße  $140 \times 1300 \times 1500 \mu\text{m}^3$  und das mittlere Loch hat ein Durchmesser von ca.  $370 \mu\text{m}$ .



**Abbildung 3.11:** Bestrahlungsaufbau zur Herstellung von Proben für TEM-Messungen. Die Probe ist in der Mitte ca.  $40 \mu\text{m}$  dick und ist zwischen zwei Graphitplatten befestigt. Eine  $530 \mu\text{m}$  dicke Al-Folie reduziert die Energie des Teilchenstrahls auf ca.  $19 \text{ MeV}$ . Mit der Beobachtung des transmittierten Strahlstroms hinter der Probe durch eine Graphitbacke kann man die Strahlrichtung so einstellen, dass der Strahl die Probe so gut wie möglich trifft.



**Abbildung 3.12:** Schematische Darstellung der TEM-Probenbestrahlung. Die bestrahlten  ${}^3\text{He}$ -Ionen durchdringen die Hälfte des gedimpelten Bereiches der Probe.

berechnen, wobei sind  $\alpha$  der Öffnungswinkel der Objektivlinse und  $n$  der Brechungsindex. Die Größe  $\lambda$  ist die Wellenlänge der zu Abbildung verwendeten Strahlung. Die Wellenlänge von Elektronen ist die de-Broglie-Wellenlänge

$$\lambda = \frac{2\pi\hbar}{p}, \quad (3.16)$$

wenn  $p$  der Impuls der Elektronen ist. Unter Berücksichtigung von relativistischen Korrekturen lautet die Wellenlänge der Elektronen mit der Ruheenergie  $E = m_0c^2$  und einer kinetischen Energie von  $E_{\text{kin}} = eU$ :

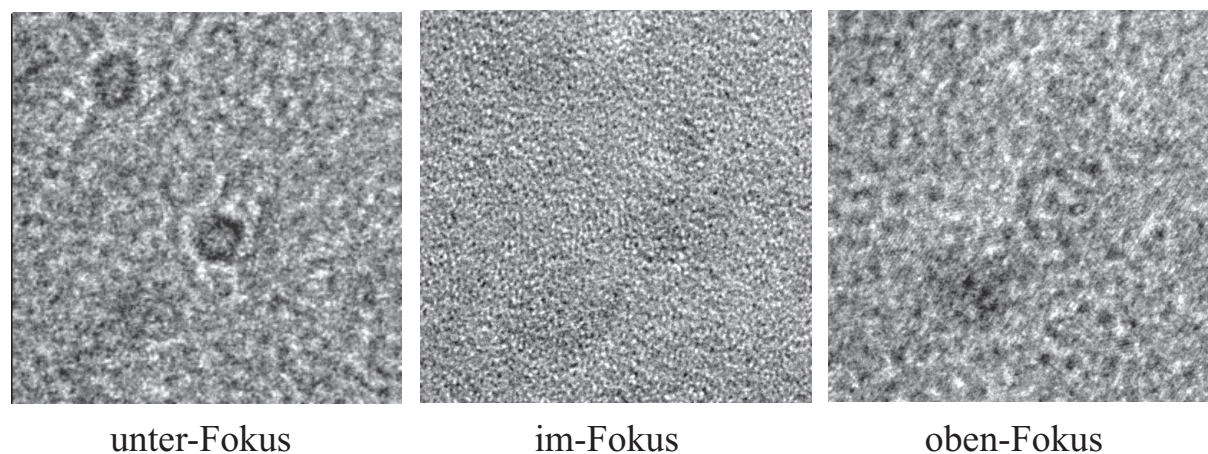
$$\lambda = \frac{2\pi\hbar c}{\sqrt{2E_{\text{kin}}E_0 + E_{\text{kin}}^2}}. \quad (3.17)$$

Die TEM-Messungen dieser Arbeit werden durch die Arbeitsgruppe von Prof. W. Mader am Institut für Anorganische Chemie an der Universität Bonn durchgeführt. Verwendet werden zwei Philips Elektronenmikroskope von Typ CM30 und CM300 mit einer maximalen Beschleunigungsspannung von 300 kV und einer Elektronenwellenlänge von 1.97 pm. Bei guter Justage liegt die Auflösungsvermögen des Mikroskops im Bereich von 1.8 Å. Die Proben werden seitlich über eine Vakuumschleuse in den Probenraum eingeführt. Im Probenraum herrscht ein Vakuum von ca.  $10^{-7}$  mbar vor.

Der in dieser Arbeit verwendete TEM-Betriebsart heißt Hellfeldabbildung im Abbildungsmodus. Im Prinzip werden hier die TEM-Messungen unter drei verschiedenen Fokus-Einstellungen (unter-Fokus, im-Fokus und oben-Fokus) durchgeführt [70]. Abbildung 3.13 ist ein Beispiel für eine TEM-Messung mit diesen drei Einstellungen.

### 3.11 XAS-Untersuchungen

Röntgenabsorptionsspektroskopie (**X**-Ray Absorption Spectroscopy) ist ein Oberbegriff für mehrere röntgenspektroskopische Messverfahren, darunter XANES und EXAFS (Abbildung 3.14). Dadurch können Auskünfte über unbesetzte Elektronenzustände (Orbitale) für das untersuchte chemische Element, die chemische Zusammensetzung einer zu untersuchenden Probe, die elektronische und geometrische Struktur des Absorberatoms bzw.

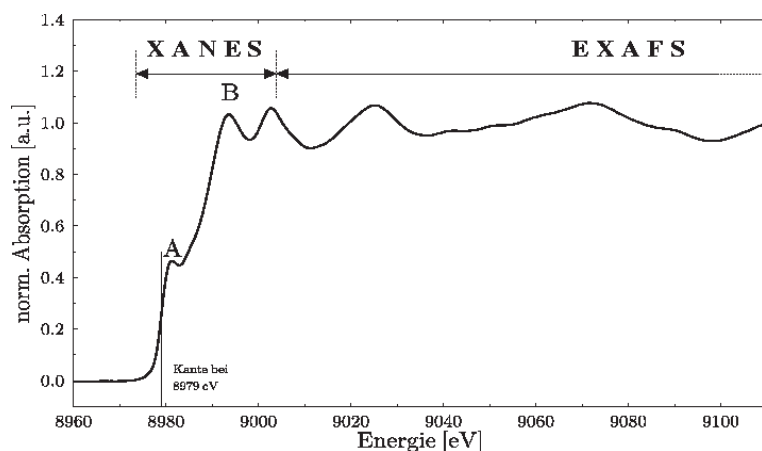


**Abbildung 3.13:** Eine TEM-Aufnahme der Probe B10 mit drei Fokus-Einstellungen: unter-Fokus, im-Fokus und oben-Fokus.

die Koordinatinsgeometrie, die Symmetrie unbesetzter elektronischer Zustände, die effektive Ladung des absorbierenden Atoms und die Bindungsabstände in einer Probe geliefert werden [71–73].

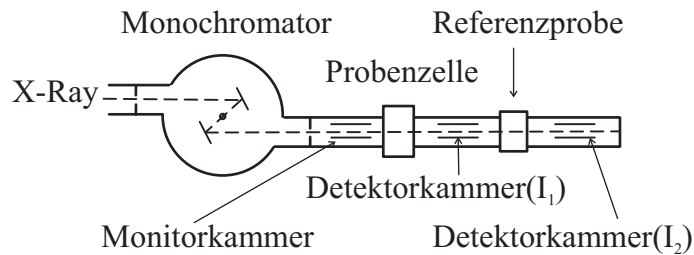
### 3.11.1 Probenbearbeitung zur XAS

Für die XAS-Untersuchungen werden die  $x$ -cut- bzw.  $z$ -cut-Proben mit Maßen  $0.5 \times 9 \times 10 \text{ mm}^3$  bzw.  $6 \times 5 \times 1 \text{ mm}^3$  mit einem Strahlstrom von 500 nA am Hochstromplatz für unterschiedliche Zeiten (z. B. 30 – 180 min) bestrahlt. Ein grundsätzliches Problem bei den XAS-Messungen (siehe nächster Abschnitt) besteht darin, eine



**Abbildung 3.14:** Einteilung eines Absorptionsspektrums in den XANES- und EXAFS-Bereich.





**Abbildung 3.15:** Experimenteller Aufbau des Röntgenabsorptionsspektroskopie

Probe geeigneter Homogenität und Dicke herzustellen. Bei zu dicken Proben wird erstens das Signal-Rausch-Verhältnis schlechter und zweitens zeigt sich eine Dämpfung von scharfen Resonanzen im Kantenbereich und von EXAFS-Oszillationen. Um diesen Effekt zu verringern, ist die Probendicke  $d$  so zu wählen, dass  $\mu(E) \cdot d \approx 1$  gilt, wobei  $\mu(E)$  die Absorptionskoeffizient der Probe ist [74]. Aus diesem Grund werden die bestrahlten Bereiche der Proben entweder gemört und möglichst homogen auf selbstklebende Kapton-Folie aufgebracht, oder die Probe wird bis auf eine dünne Dicke von ca.  $40 \mu\text{m}$  heruntergeschliffen.

### 3.11.2 XAS-Messmethoden

Der experimentelle Aufbau ist in der Abbildung 3.15 schematisch dargestellt. Der monochromatisierte Röntgenstrahl gelangt in die Ionisationskammern und in die Probenzelle. Die Intensität  $I_0$  des Primärstrahls wird in der Monitorkammer registriert. In den beiden Detektorkammern werden die Intensitäten des durch die Absorption der Probe  $I_1$  und durch die Absorption der Referenzprobe  $I_2$  geschwächten Strahls gemessen. Die Absorptionskoeffizient der Probe  $\alpha$  und Referenzprobe berechnen sich nun nach dem Lambert-Beerschen-Gesetz (Gleichung (2.8)). Diese Messungen werden in der AG Prof. Hormes im Physikalischen Institut der Universität Bonn durchgeführt.

## 3.12 Wellenleiter

Als Anwendung der strahleninduzierten Modifikation des Brechungsindex wird die Herstellung eines vergrabenen Wellenleiters im Kristall betrachtet. Im folgenden werden die verwendeten Methoden zur Bestrahlung und zum optischen Vermessen der Probe als Wellenleiter beschrieben.

### 3.12.1 Bestrahlung der Wellenleiter-Proben

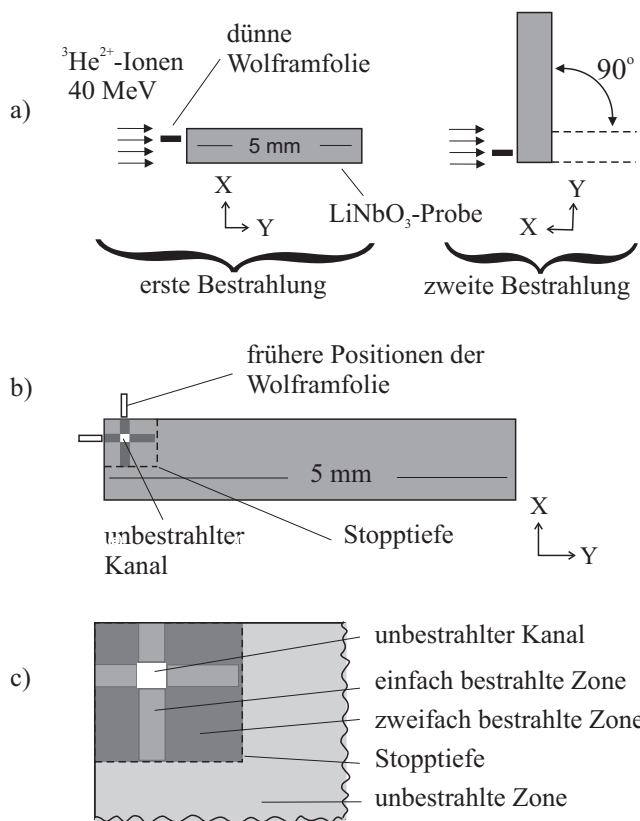
Um einen vergrabenen Wellenleiter im Kristall zu schaffen, soll ein nichtbestrahlter Kanal innerhalb von bestrahlten Bereichen erzeugt werden. Dazu wird dünne Wolfram-Folie ( $b=25\ \mu\text{m}$ ,  $t = 1\ \text{mm}$  in Strahlrichtung) vor der zu bestrahlenden Probenfläche parallel zur  $z$ -Richtung gestellt. Die Voraussetzung ist, dass die Wolfram-Folie komplett innerhalb des Strahlbereichs liegt und die bestrahlten Ionen können an beiden Seiten von der Folie auf den Kristall treffen. Somit wird ein nichtbestrahlter Schatten im bestrahlten Bereich hergestellt (Abbildung 3.16-(a)).

Die verwendeten Proben sind  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle im Schnitt  $x$ -cut mit den Abmessungen  $1 \times 5 \times 6\ \text{mm}^3$ . Die lange Seite der Probe ist parallel zur optischen Achse. Die Probe wird auf einem Graphit-Block festgeklebt und wird somit während der Bestrahlung durch die gute Wärmeleitung des Graphits gekühlt. Die Wolfram-Folie wird etwa  $200\ \mu\text{m}$  unter der oberen Kante der Probe montiert. Somit liegt der Schatten der Bestrahlung  $200\ \mu\text{m}$  unterhalb der oberen Kante der Probe. Die Bestrahlung wird am Strahlplatz 8 im Vakuum durchgeführt. Der Strahlstrom beträgt vor der Probe ca.  $40\ \text{nA}$  und wird in einer Tiefe von ca.  $530\ \mu\text{m}$  in der Probe gestoppt. Diese Stopptiefe befindet sich außerhalb des interessanten Bereichs.

Die Bestrahlung der Probe wird nacheinander zu zwei getrennten Zeiten in zwei Proben-Koordinatensystemen durchgeführt, zunächst parallel zur  $y$ -Achse und dann parallel zur  $x$ -Achse (Abbildung 3.16). Bei beiden Bestrahlungen wird die zu bestrahlende Probenfläche entlang der  $z$ -Richtung in verschiedene Bereiche eingeteilt und jeder Abschnitt wird ca. 10 Minuten bestrahlt, um die gesamte Probenlänge gleichmäßig zu beaufschlagen. Die Geometrie der zweiten Bestrahlung entspricht der ersten Bestrahlung, aber der Kristall wird um  $90^\circ$  um die  $z$ -Richtung gedreht. Somit kreuzen zwei unbestrahlte Bereiche; dadurch wird ein nichtbestrahlter Kanal hergestellt, der von einfach- oder zweifach bestrahlten Volumen umgeben ist. In Abbildung 3.16-(c) ist dieser Prozess als Draufsicht schematisch dargestellt.

### 3.12.2 Optische Vermessung

Nach der Bestrahlung werden die Proben optisch untersucht. Die Messungen werden durch Einkopplung von Licht aus einem Glasfaserende in den Kristall durchgeführt (Abbildung 3.17). Das Licht eines He-Ne-Lasers ( $\lambda = 632.8\ \text{nm}$ ) wird in eine Glasfaser eingekoppelt und am Glasfaserende wird kegelförmig divergentes nichtpolarisiertes Licht emittiert. Der Kristall wird hinter das Faserende auf einen Verschiebetisch gestellt ("Fiber-to-waveguide"-Aufbau). Das Licht tritt durch den Kristall hindurch und verlässt ihn an der Ausgangsseite. Die Fläche der Ausgangsseite wird auf eine CCD-Kamera abgebildet. Somit kann die räumliche Verteilung des Lichtes an der Ausgangsfläche bestimmt werden. Die Polarisation des detektierten Lichtes kann durch einen Polarisator vor der Kamera gezielt gewählt werden.



**Abbildung 3.16:** Schematische Darstellung der Herstellung eines vergrabenen Wellenleiters. Die erste Bestrahlung läuft entlang der  $y$ -Achse des Proben-Koordinatensystems, dann wiederholt sich die Bestrahlung, nachdem die Probe  $90^\circ$  um die  $z$ -Achse gedreht wird (Abb. a). Eine dünne Wolframfolie dient als Blende zur Bereitstellung eines Schattens im Ionenstrom; dies verursacht einen unbestrahlten Kanal im bestrahlten Bereich (Abb. b). Vergrößerte Ansicht der bestrahlten Zone im Kristall (Abb. c).

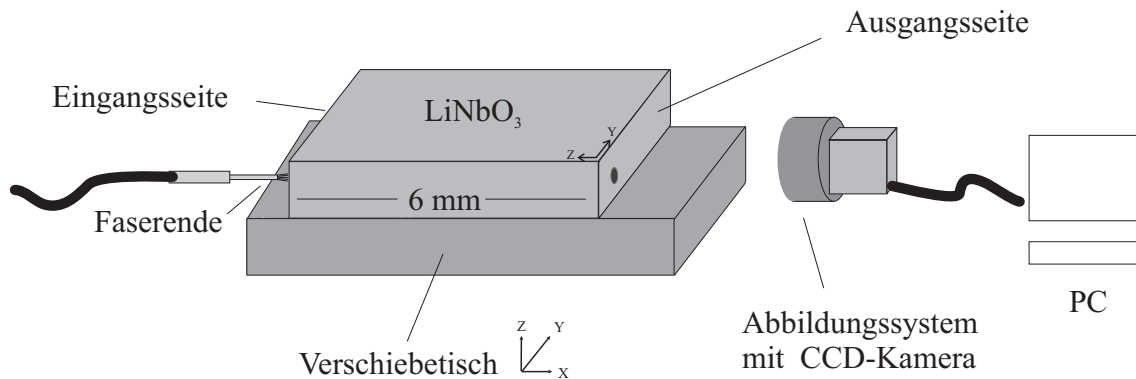
### 3.13 Lichtabsorption-Untersuchungen

Die Bestrahlung des  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalls mit  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen hinterlässt eine Farbveränderung im bestrahlten Bereich des Kristalls [25]. Diese Farbveränderung verschwindet langsam bei Raumtemperatur.

Hier wird die Abhängigkeit der Farbveränderung von der Temperatur untersucht, deshalb soll die Temperatur der Probe während der Bestrahlung und danach, bis die Lichtabsorptionsmessungen durchgeführt werden, tief gehalten werden. Um diese Voraussetzung zu erfüllen, wird die Probe in einen Kühlstator, der mit flüssigem Stickstoff befüllt wird, gestellt und bis auf ca.  $-190^\circ\text{C}$  abgekühlt (Abbildung 3.18).

#### 3.13.1 Bestrahlung zur Lichtabsorption-Untersuchungen

Bei Lichtabsorptionsmessungen wird die  $x$ -cut-Probekörper mit Abmessungen  $0,5 \times 9 \times 10 \text{ mm}^3$  ca. 13 Stunden bestrahlt. Die Bestrahlung findet am Strahlplatz 8 statt und der Strahl läuft senkrecht zur optischen Achse der Probe. Der Probenhalter wird an einem Kupferblock befestigt, in dem flüssiger Stickstoff fließt. Das Vakuum dient zur Isolierung des Abkühlsystems von der Umgebung. Bevor der Strahl auf die Probe trifft, trifft er durch

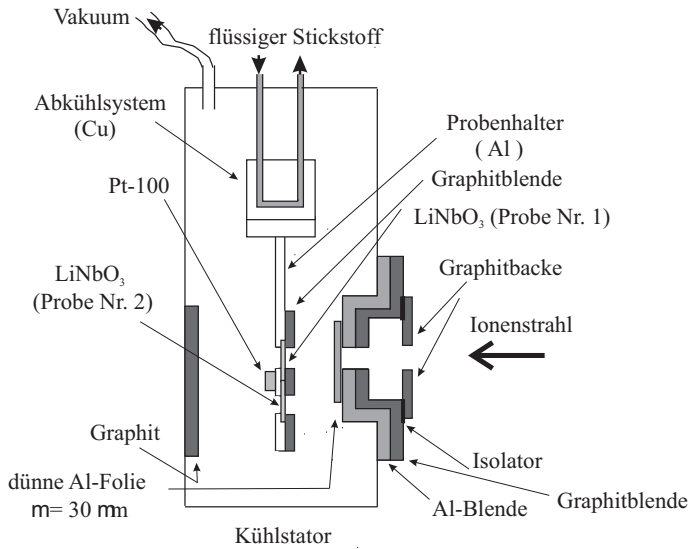


**Abbildung 3.17:** Schematische Darstellung der Messmethode zur Untersuchung von Wellenleitern. Das Licht aus einem Faserende wird in den Kristall an verschiedenen Stellen eingekoppelt und eine CCD-Kamera sammelt dieses Licht auf der Ausgangsseite des Kristalls.

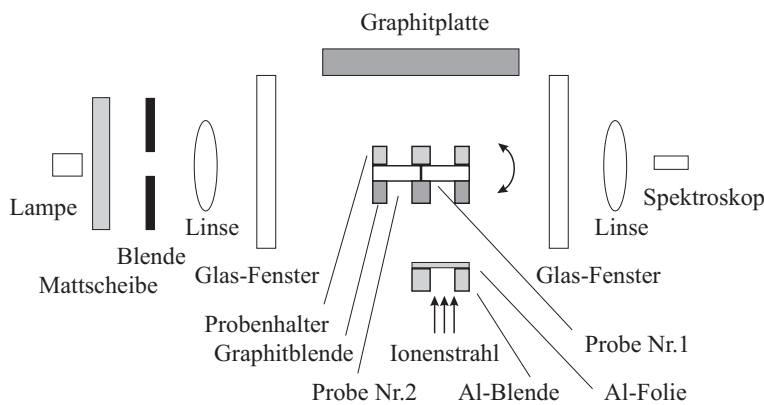
ein 5 mm großes Loch (in einer Aluminiumblende) auf 30  $\mu\text{m}$  Al-Folie, die das Vakuum von der Umgebung trennt. Der Strahl läuft ca. 10 cm in Luft, bis er diese Al-Folie trifft, ebenso ist zwischen Al-Folie und der Probe ca. 15 mm Abstand. Vor der Aluminiumblende ist eine Graphitschicht angebracht, die verhindern soll, dass Aluminium durch den Strahl aktiviert wird. Zwei weitere elektrisch isolierte Graphitbacken dienen zur Messung des Strahlstroms. Diese werden benötigt, um sicher zu gehen, dass der Strahl das Loch in den Blenden trifft. Der Probenhalter wurde so konstruiert, dass man an ihm zwei Proben nebeneinander befestigen kann (Abbildung 3.18). Eine Graphitblende mit zwei Löchern erzwingt, dass nur eine der beiden Proben (Probe Nr. 1) bestrahlt werden kann. Die unbestrahlte Probe dient als Referenz-Probe zur Nullmessung. Auf der Rückseite des Probenhalters ist ein Pt-100-Element mit Sekundenkleber aufgeklebt. Die Position wird so gewählt, dass sich das Pt-100-Element so nah wie möglich am jedoch nicht direkt im bestrahlten Bereich befindet. Durch Messung seines Widerstands wird die Temperatur der Probe während des Experimentes bestimmt. In 4 cm Abstand befindet sich eine Graphitplatte, die den Reststrahl absorbieren kann. Auf der Rückseite des Probenhalters befinden sich zwei Löcher mit Durchmesser 5 mm. Ebenfalls ist der Kühlstator nur von der Seite durchsichtig. Aus diesen Gründe lässt sich der Probenhalter nach der Bestrahlung in Kühlstator unter Vakuum und bei tiefer Temperatur um 90° drehen. Es ermöglicht uns die Durchführung einer Lichtabsorptionsmessung (Abbildung 3.19).

### 3.13.2 Optische Vermessungen zur Lichtabsorption

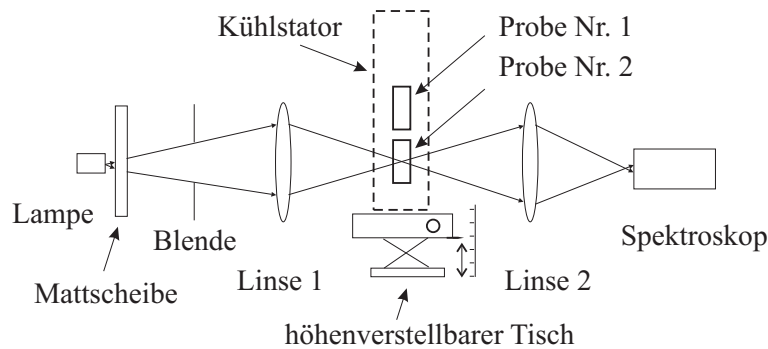
Das Ziel der optischen Vermessungen ist die Lichtabsorption der Probe in Abhängigkeit von der Temperatur der Probe zu vermessen. Die Abbildung 3.20 stellt den verwendeten



**Abbildung 3.18:** Bestrahlungsaufbau zur Lichtabsorptionsmessung. Der Probenhalter befindet sich in einem Kühlstator und wird bis auf  $-190^{\circ}\text{C}$  abgekühlt. Der Strahl trifft eine von zwei Proben (Probe Nr. 1) durch eine  $30\ \mu\text{m}$  dünne Al-Folie und die Temperatur der Probe wird durch einen PT-100-Widerstand während des Prozesses bestimmt. Eine zweite eingebaute Probe (Probe Nr. 2) bleibt unbestrahlt zur Nullmessung der Lichtabsorption.



**Abbildung 3.19:** Schematische Darstellung der Aufbau für Lichtabsorption mit Ansicht von oben.



**Abbildung 3.20:** Schematische Darstellung der Aufbau zur optischen Vermessung der Lichtabsorption

Aufbau dar.

Eine konvexe Linse mit  $f = 10$  cm fokussiert das Licht einer Halogenlampe ( $P = 20$  W,  $V = 12$  V) auf die Probe im Kühlstator. Das Licht geht durch die Probe und wird von einer zweiten konvexen Linse mit  $f = 10$  cm gesammelt und am Brennpunkt der Linse fokussiert, wo ein OceanOptics Spektrometer vom Typ HR 2000 CG-UV-NIR platziert ist. Durch ein stabilisiertes Netzgerät wird die Intensität des Lichtes der Lampe konstant gehalten. Der Kühlstator wird auf einen höhenverstellbaren Tisch gestellt und die richtige Tischposition für die bestrahlte bzw. unbestrahlte Probe wird markiert. Durch ein Ohmmeter wird der Widerstand der PT-100 während der Spektroskopie gemessen, somit kann man den entsprechenden Widerstand bzw. die Temperatur der Probe für jedes aufgenommene Spektrum bestimmen.

## KAPITEL 4

# EXPERIMENTELLE RESULTATE

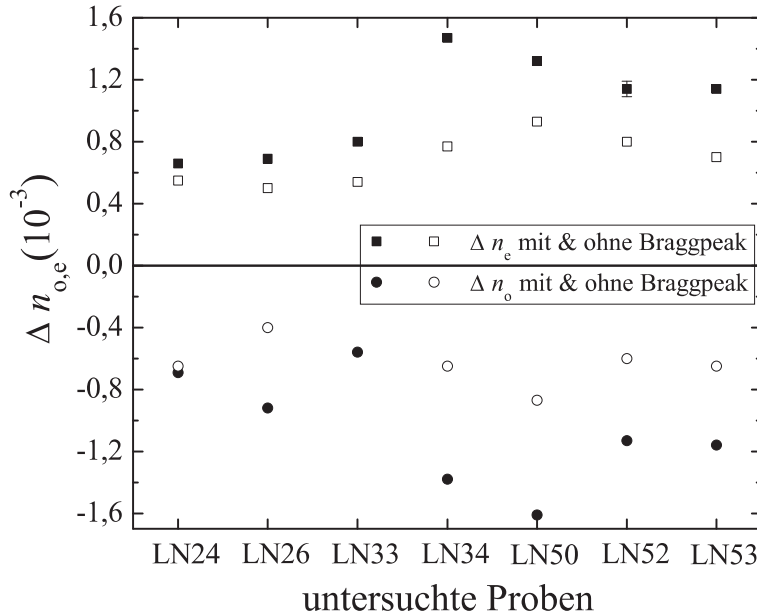
Zunächst werden in diesem Abschnitt die Ergebnisse der makroskopischen Untersuchungen gezeigt. Als erstes wird der Einfluss des Bragg-Peaks bei der Bestimmung der Brechungsindexänderung betrachtet, dann wird die Reproduzierbarkeit der  $\Delta n$ -Messungen untersucht. Ebenfalls wird gemessen, welchen Einfluss Parameter wie Strahldosis, Strahlstrom und thermische Behandlungen auf die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung haben. Außerdem wird die zeitliche Entwicklung der Änderungen  $\Delta n$  nach der Bestrahlung beobachtet. Nachfolgend kommen die Ergebnisse über die Herstellung vergrabener Wellenleiter als Anwendung der vorgestellten Methoden, Lichtabsorptions- und XAS-Messungen. Abschließend werden schließlich die Resultate der TEM-Messungen als mikroskopischer Einblick in das Thema vorgestellt.

### 4.1 Einfluss des Bragg-Peaks auf die Messungen der Brechungsindexänderung

Hier wird der Einfluss des Bragg-Peaks auf die gemessenen Werte für  $\Delta n$  bestimmt. Dazu wird zunächst die integrierte Brechungsindexänderung einer Probe mit  $d = 0.5$  mm einschließlich Bragg-Peak gemessen. Indem die 0.5 mm dicke Probe anschließend ca.  $100 \mu\text{m}$  dünner geschliffen wird und der Bragg-Peak aus der Probe entfernt ist, wird die zweite  $\Delta n$ -Messung ohne Einfluss des Bragg-Peaks durchgeführt (vgl. Kapitel 3.6).

Abbildung 4.1 zeigt die Ergebnisse für einige Proben, die zwischen 5 und 80 min bei einem totalen Ionenstrom von ca. 500 nA bestrahlt sind. Aufgetragen ist die insgesamt gemessene strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung für ordentliche und außerordentliche Polarisation vor und nach dem Schleifen. Es ist zu erkennen, dass die Werte für  $\Delta n$  für beide Polarisationen ohne Einfluss des Bragg-Peaks zwischen 20 – 50% geringer als unter Einschluss des Bragg-Peaks sind.

Damit man die Angaben der Abbildung 4.1 besser versteht, wird für diese Proben das Verhältnis  $\frac{\Delta n(\text{ohne Bragg-Peak})}{\Delta n(\text{mit Bragg-Peak})}$  für ordentliche und außerordentliche Polarisation ermit-



**Abbildung 4.1:** Die integrierte Brechungsindexänderung mit und ohne Bragg-Peak. Um den Bragg-Peak zu entfernen, werden die Proben ca. 100  $\mu\text{m}$  an der zu Bragg-Peak nah stehenden Seite geschleift. Aufgetragen ist  $\Delta n$  vor und nach Schleifen gegen der jeweiligen Proben.

Probe	LN24	LN26	LN33	LN34	LN50	LN52	LN53
$\frac{\Delta n_e \text{ ohne BP}}{\Delta n_e \text{ mit BP}} (\%)$	83	72	68	52	70	70	61
$\frac{\Delta n_o \text{ ohne BP}}{\Delta n_o \text{ mit BP}} (\%)$	94	43	-	47	54	53	56

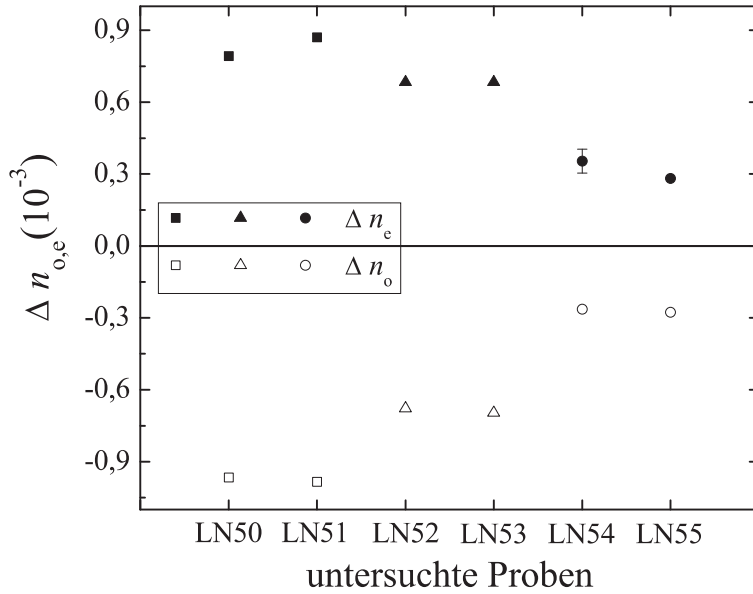
**Tabelle 4.1:** Das ausgerechnete Verhältnis  $\frac{\Delta n \text{ (ohne Bragg-Peak)}}{\Delta n \text{ (mit Bragg-Peak)}}$  aus der obigen Abbildung.

telt und in Tabelle 4.1 dargestellt. Insgesamt stellt sich heraus, dass die Integration des Bragg-Peaks in  $\Delta n$  im Mittel ca. 40% vom gesamten Effekt verursacht. Es sei darauf hingewiesen, dass für alle Messergebnisse in dieser Arbeit diese Korrektur berücksichtigt ist, alle folgenden Werte werden also normiert auf eine Materialdichte von 0.4 mm ohne Bragg-Peak angegeben.

## 4.2 Reproduzierbarkeit der $\Delta n$ -Messung

Es ist sehr wichtig zu wissen, wie reproduzierbar die  $\Delta n$ -Messung im Rahmen dieser Arbeit ist. Um diese Frage zu beantworten, werden bei einem totalen Ionenstrom von ca. 500 nA die Proben LNHEP54-55 ca. 5, LNHEP52-53 ca. 10 und LNHEP50-51 ca. 20 min bestrahlt. Eine  $\Delta n$ -Messung dieser Proben ist für ordentliche und außerordentliche Polarisation in Abbildung 4.2 dargestellt. Gezeigt ist  $\Delta n$  für jede Probe. Der Fehler von  $\Delta n$  ist jeweils nur für eine der Messreihen exemplarisch angegeben. Für beide Polarisationen gibt es bei  $\Delta n$ -Messungen im Rahmen des Messfehlers an alle Messpunkten keinen signifikanten Unterschied.





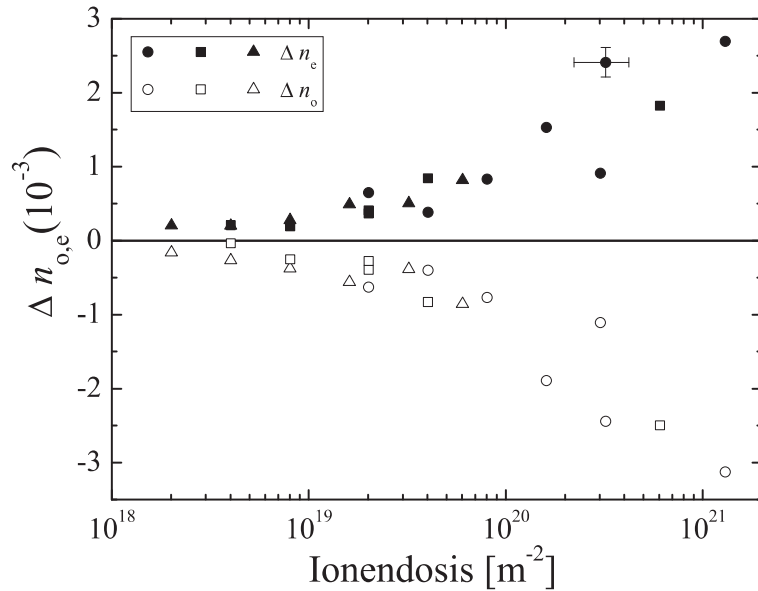
**Abbildung 4.2:** Reproduzierbarkeit der Brechungsindexänderung für die Proben LNHEP50-55. Aufgetragen ist  $\Delta n$  für ordentliche und außerordentliche Polarisation gegen der jeweiligen Proben.

### 4.3 Dosisabhängigkeit von $\Delta n$

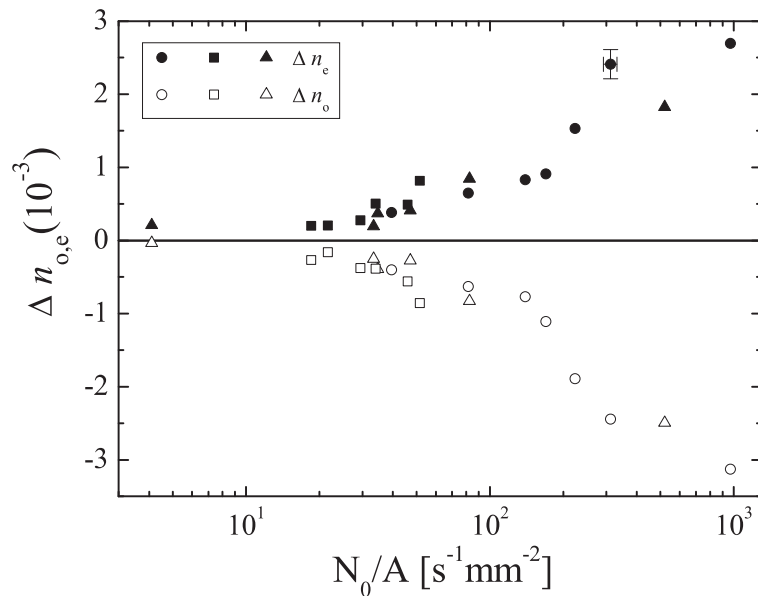
Die Brechungsindexänderung wird für verschiedene Proben mit unterschiedlicher Strahldosis gemessen. Alle Proben werden mit einem totalen Strahlstrom von ca. 500 nA mit unterschiedlicher Dosis (bzw. unterschiedlicher Bestrahlungsdauer) bestrahlt. Abbildung 4.3 zeigt die Ergebnisse für ordentliche und außerordentliche Polarisation (bezeichnet mit  $\Delta n_o$  und  $\Delta n_e$ ) für drei verschiedene Messreihen, dargestellt mit drei verschiedenen Symbolen. Aufgetragen ist  $\Delta n_{o,e}$  über der Ionendosis auf einer halblogarithmischen Skala. In Abbildung 4.3 ist der Einfluss des Bragg-Peaks berücksichtigt (vgl. Abschnitt 4.1). Man sieht, dass die durch Ionen erzeugten Strahlenschäden eine Abnahme des ordentlichen Brechungsindex  $n_o$  und eine Zunahme des außerordentlichen Brechungsindex  $n_e$  hervorrufen, die einen stark nichtlinearen Verlauf haben. Folglich lässt die Doppelbrechung des Materials ( $n_e - n_o$ ) nach. Ferner ist zu erkennen, dass die absoluten Werte für  $\Delta n_o$  und  $\Delta n_e$  fast gleich sind und sich bereits bei der niedrigsten Dosis eine erhebliche Brechungsindexänderung ergibt. Sogar bei einer kleinen Dosis unter  $10^{19} \text{ m}^{-2}$  kann ein großer Wert von ca.  $5 \times 10^{-4}$  für  $\Delta n$  erreicht werden. Er wird erzielt, wenn man die Probe mit einem Ionenstrom von ca. 500 nA etwa 200 Sekunden bestrahlt. Für höhere Dosen erreicht  $\Delta n$  Werte bis zu ca.  $3 \times 10^{-3}$ . Ferner zeigt Abbildung 4.3, dass im Bereich kleiner Dosen, mit Zunahme der Ionendosis,  $\Delta n$  nicht sehr stark steigt, aber in der Mitte, wo die Dosis ca.  $2 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$  beträgt, ergibt sich eine charakteristische steilere Zunahme für  $\Delta n$  mit steigender Dosis. Für größte Dosis nimmt die Steigung wieder ab.

Trägt man die Messdaten für  $\Delta n$  von Abbildung 4.3 über der normierten Aktivität  $N_0$  auf, dann ergibt sich für diese Messungen die Abbildung 4.4. Man erkennt, dass ab  $N_0 \approx 30 \text{ s}^{-1} \text{ m}^{-2}$  eine erhebliche Änderung für  $n_o$  bzw.  $n_e$  erzielt wird. Bei  $N_0 \approx 180 \text{ s}^{-1} \text{ mm}^{-2}$  knickt  $\Delta n$ -Kurve und die Steigung ist steiler.

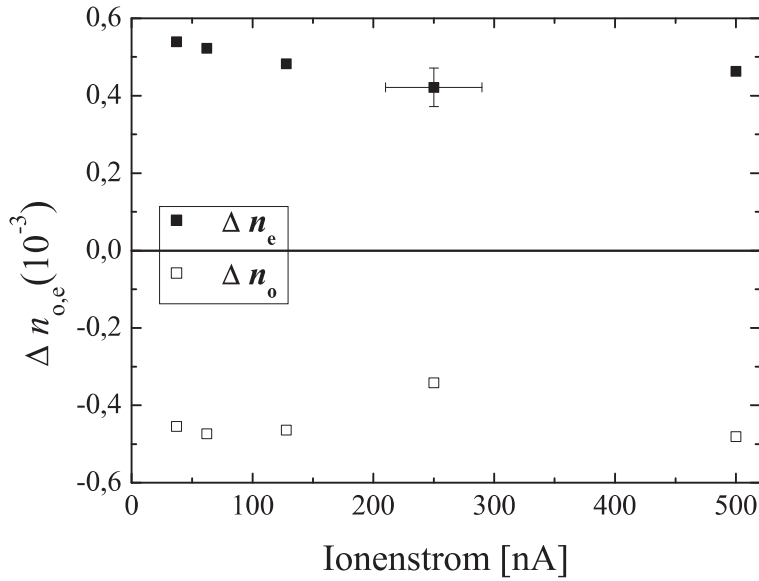
Um die Abhängigkeit von  $\Delta n$  vom Strahlstrom zu untersuchen, wird eine weitere Reihe



**Abbildung 4.3:** Brechungsindexänderung für ordentliche bzw. außerordentliche Lichtpolarisation ( $\Delta n_o, \Delta n_e$ ) in Abhängigkeit von der Ionendosis für drei verschiedene Messreihen (bezeichnet mit drei unterschiedlichen Symbolen) in einer halblogarithmischen Skala. Der Ionenstrom beträgt für alle Proben ca. 500 nA.



**Abbildung 4.4:** Aufgetragen sind die Werte der Brechungsindexänderungen aus Abbildung 4.3 gegen die normierte Aktivität der Proben.

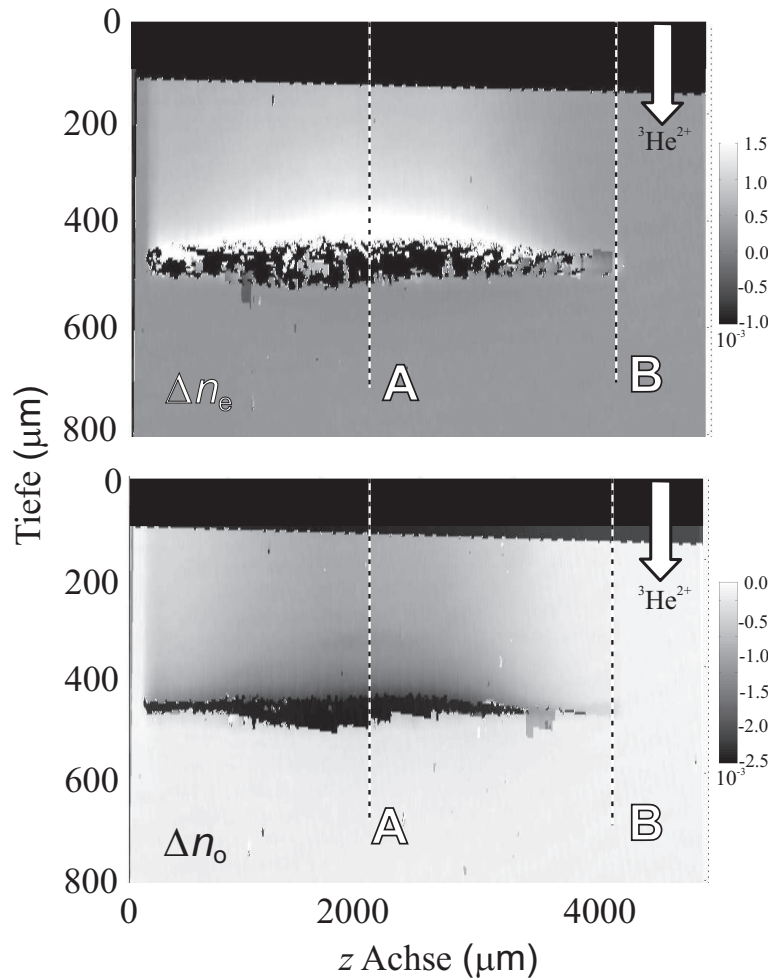


**Abbildung 4.5:** Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung für ordentliche und außerordentliche Lichtpolarisation (bezeichnet mit  $\Delta n_o$  und  $\Delta n_e$ ) bei konstanter totaler Ionendosis. Aufgetragen ist  $\Delta n$  über dem benutzten Ionenstrom.

von Proben bei einem Ionenstrom zwischen 37 und 500 nA so bestrahlt, dass die totale Ionendosis für alle Proben konstant bleibt (ca.  $2 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$ ). Das erreicht man, wenn die Proben mit unterschiedlicher Bestrahlungsdauer bestrahlt werden. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.5 für fünf verschiedene Proben dargestellt. Die Änderung  $\Delta n_{o,e}$  ist gegen den Ionenstrom aufgetragen. Man sieht, dass  $\Delta n_{o,e}$  vom Ionenstrom nicht abhängt, sondern nur von der insgesamt beaufschlagten Dosis.

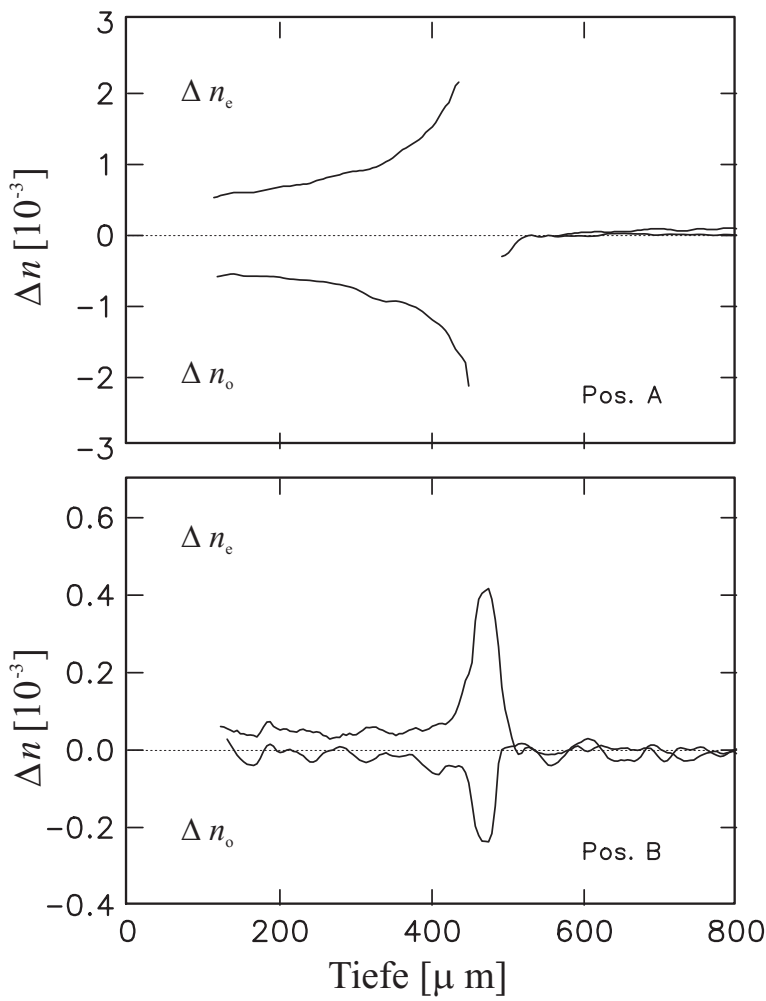
## 4.4 Tiefenaufgelöste Brechungsindexänderung

Das Profil der strahlungsinduzierten Brechungsindexänderung entlang des Ionenstrahls durch die Probe wird untersucht, indem man zur  $\Delta n$ -Messung die Geometrie  $b$ , dargestellt in Abbildung 3.8, verwendet. Dieses Verfahren wird für die Probe LNHEP46 durchgeführt. Sie ist ca. 1 mm dick und wurde bei einem totalen Ionenstrom von ca. 500 nA ca. 30 min bestrahlt. Die tiefenaufgelöste Änderung  $\Delta n$  für ordentliche und außerordentliche Polarisationen sind in Abbildung 4.6 gezeigt. Der Ionenstrahl kommt von oben. Man sieht eine zunehmende Brechungsindexänderung für beide Polarisationen mit Zunahme der Tiefe bis zur Stopptiefe (Bragg-Peak). Wegen sehr großer Effekte im Bereich des Bragg-Peaks versagt die  $\Delta n$ -Messung in der schwarzen Region in der Mitte der Probe. Außerdem können nahe der Oberfläche der Probe keine zuverlässige Messdaten erreicht werden. Zwei spezielle Schnittlinien A und B sind in dieser Abbildung markiert: Die Linie A ist eine Schnittlinie durch die Zone mit der größten Brechungsindexänderung und die Linie B präsentiert eine Schnittlinie durch die Zone, wo die vorkommende Brechungsindexänderung auch im Bereich der Stopptiefe aufgelöst werden kann. Abbildung 4.7 zeigt die Messdaten für  $\Delta n$  entlang der Linie A bzw. B: Aufgetragen ist  $\Delta n$  in Abhängigkeit der Tiefe der Probe für die ordentliche und außerordentliche Polarisation. Es ist zu beachten,

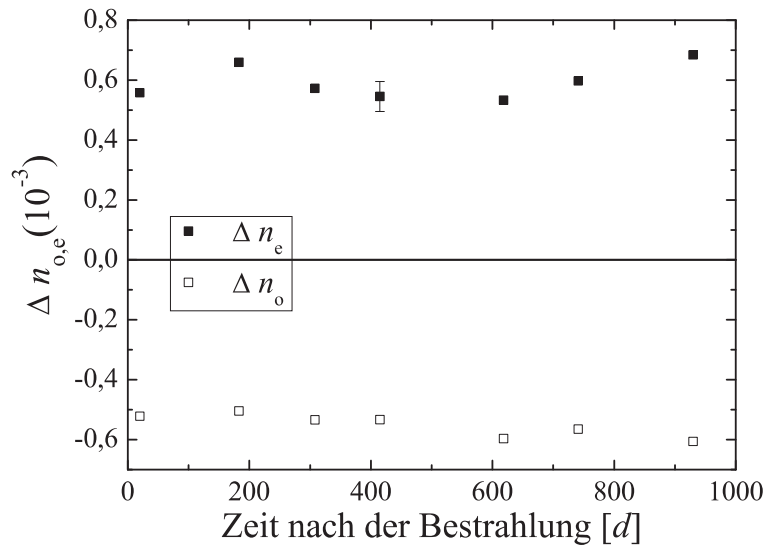


**Abbildung 4.6:** Tiefenaufgelöste Brechungsindexänderung der Probe LNHEP46 für ordentliche und außerordentliche Polarisation in zwei Dimensionen. Der Ionenstrahl durch die Probe erfolgt von oben. Die schwarze Regionen in der Mitte der Probe kennzeichnen die Bereiche, die vom Interferometer nicht auflösbar sind. Die Linien A und B zeigen zwei spezielle Schnittlinien, entlang derer  $\Delta n$  genauer untersucht wird.

dass der Ionenstrahl hier von links nach rechts verläuft. Bei Position A sieht man einen ansteigenden Verlauf von  $\Delta n$  für beide Polarisierungen im bestrahlten Bereich. Es fällt auf, dass  $\Delta n_o$  bzw.  $\Delta n_e$  weitgehend symmetrisch zur Null-Linie verlaufen. Wenn nahe der Oberfläche der Probe  $\Delta n_e$  ca.  $0.5 \times 10^{-3}$  beträgt, steigt sie in Tiefe der Probe an. Wegen begrenzter Auflösung des Interferometers (vgl. Abschnitt 3.3) ist am Bragg-Peak (ca.  $470 \mu\text{m}$  weit von der Oberfläche) keine  $\Delta n$ -Messung mehr möglich. Direkt nach dem Bragg-Peak liegt der unbestrahlte Bereich; hier ergibt sich keine Änderung des Brechungsindexes. Für die ordentliche Polarisation gilt dasselbe mit umgekehrtem Vorzeichen. Die  $\Delta n$ -Messung bei Position B ist in Graph B dargestellt. Der Bragg-Peak ist in einer Tiefe von ca.  $470 \mu\text{m}$  zu erkennen. Für  $d \approx 470 \mu\text{m}$  bzw. an der Region des Bragg-Peaks wird die größte Brechungsindex-Änderung für ordentliche und außerordentliche Polarisation gemessen (ca.  $4.2 \times 10^{-3}$  für  $\Delta n_e$  und ca.  $-2.5 \times 10^{-3}$  für  $\Delta n_o$ ).



**Abbildung 4.7:**  $\Delta n$ -Verlauf in Abhängigkeit von der Kristalltiefe für ordentliche und außerordentliche Polarisation entlang der Schnittlinien A und B in Abbildung 4.6. Graph A zeigt die Messergebnisse entlang der Linie A; in Graph B werden die Messergebnisse entlang der B-Linie dargestellt. Hier ist die Änderung  $\Delta n$  klein, aber der Vorteil ist, dass  $\Delta n$  auch in der Region des Bragg-Peaks aufgelöst werden kann.



**Abbildung 4.8:** Zeitliche Entwicklung der strahlungsinduzierten Brechungsindexänderung der Probe LNHEP32. Die Probe ist ca. 4 min bei einem Ionenstrom von ca. 500 nA bestrahlt worden. Aufgetragen ist  $\Delta n$  für ordentliche und außerordentliche Polarisation über die vergangene Zeit nach der Bestrahlung.

## 4.5 Langzeitentwicklung der Brechungsindexänderung

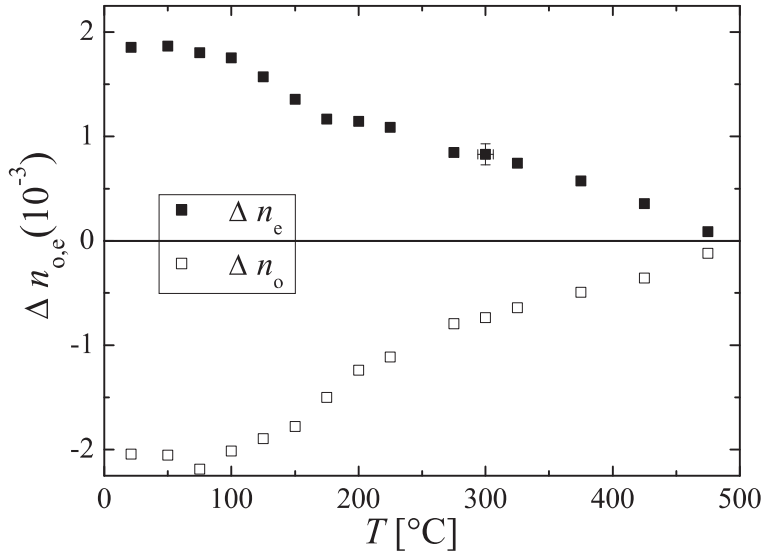
Um zu klären, wie sich die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung sehr lange nach der Bestrahlung verhält, werden hier die Resultate der Langzeitmessungen für die Probe LNHEP32 präsentiert. Die Probe ist bei einem Strahlstrom von ca. 500 nA ca. 4 min bestrahlt und wird danach bei Raumtemperatur und Tageslicht gelagert.

Die Abbildung 4.8 zeigt die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung für diese Probe zu verschiedenen Zeitpunkten nach der Bestrahlung. Die erste  $\Delta n$ -Messung wird 21 Tage nach der Bestrahlung durchgeführt. Schließlich erfolgt die letzte Messung nach 930 Tagen. Eine signifikante Veränderung von  $\Delta n$  ist weder für ordentliche noch für außerordentliche Polarisation innerhalb dieser Messzeit zu beobachten.

## 4.6 Thermische Behandlungen

### Isochrone Erholung

Um zu ermitteln, wie stabil die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung bei hohen Temperaturen ist, wird zunächst für die Probe LNHEP21 die isochrone Erholung durchgeführt (vgl. Abschnitt 3.8). Die Probe wird zuerst ca. 2,5 Stunden bei einem totalen Ionenstrom von ca. 600 nA bestrahlt. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.9 dargestellt. Es ist zu erkennen, dass  $\Delta n$  bis ca. 100 °C weitgehend stabil bleibt. Ab 100 °C beginnt die Änderung  $\Delta n$  für beide Lichtpolarisationen kleiner zu werden. Im Bereich von ca. 150 °C beschleunigt sich der Vorgang und die Steigung der Kurve wird größer, sodass man von einer charakteristischen Stufe sprechen kann. Bei Temperaturen größer als 200 °C wird der



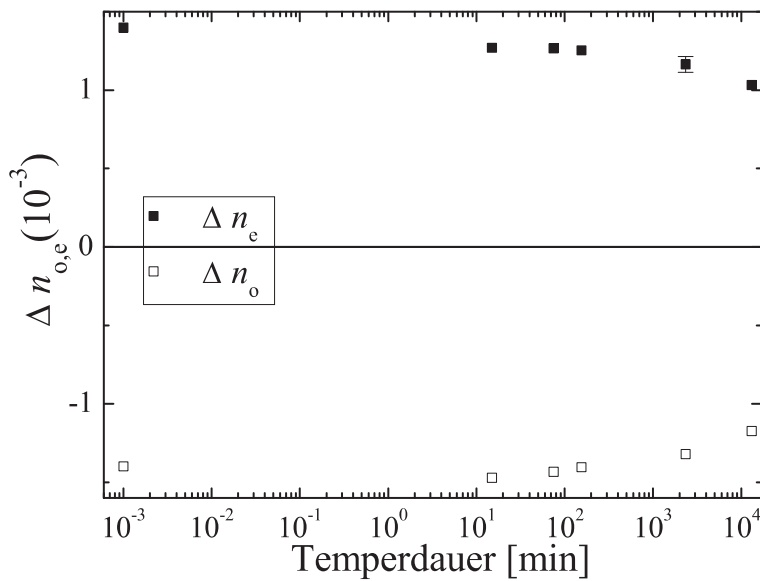
**Abbildung 4.9:** Isochrone Erholung der bestrahlten Probe LNHEP21 mit  $25^\circ\text{C}$  als Temperaturintervall und 15 min als Zeitintervall. Die Probe wurde zuerst 2.5 h bei einem Ionenstrom von ca. 600 nA bestrahlt. Aufgetragen ist die Brechungsindexänderung  $\Delta n$  für ordentliche und außerordentliche Polarisationen (bezeichnet mit  $\Delta n_o$  und  $\Delta n_e$ ) über der jeweils erreichten Temperatur.

$\Delta n$ -Verlauf wieder langsamer. Wenn  $500^\circ\text{C}$  erreicht ist, ist keine Brechungsindexänderung mehr feststellbar.

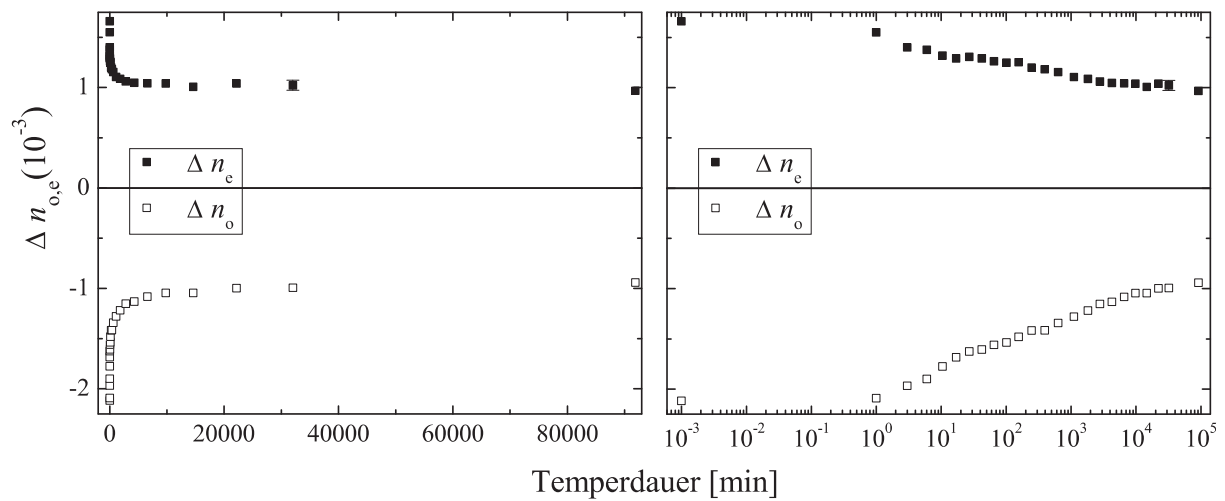
### Isotherme Erholung

Zur weiteren Untersuchung wird die isotherme Erholung für verschiedene, unterschiedlich bestrahlte Proben durchgeführt (vgl. Abschnitt 3.8). Die folgenden Abbildungen zeigen die Ergebnisse dieser Messreihen für unterschiedliche Temperaturen. In Abbildung 4.10 sind die Messergebnisse für  $T = 100^\circ\text{C}$  dargestellt. Die Probe wurde insgesamt 9 Tage lang getempert; innerhalb dieser Zeit zeigt sich eine Änderung von ca.  $0.3 \times 10^{-3}$  für  $\Delta n_o$  und ca.  $-0.2 \times 10^{-3}$  für  $\Delta n_e$ . Man sieht, dass sich bis zum dritten Messpunkt  $\Delta n$  kaum ändert, dann ist die  $\Delta n$ -Änderung größer und die entsprechende Kurve steiler. Die Abbildung 4.11 zeigt die Messresultate der Probe LNHEP65 für  $T = 200^\circ\text{C}$  in einer linearen bzw. halblogarithmischen Skala. Die Probe wird bis zu 64 Tage bei  $200^\circ\text{C}$  getempert. Aufgrund der hohen Zahl der Messpunkte ist eine sehr gute Auflösung erreicht.

Bei der linearen Darstellung ist eine stark nicht-monoexponentiell abfallende Kurve für  $\Delta n_o$  und  $\Delta n_e$  zu erkennen. Auf dem ersten Blick sieht man, dass es beim Tempern bis ca. 3 Tage einen Bereich mit großer Steigung (positiv bzw. negativ) für beide Lichtpolarisationen gibt. Mit steigender Temperdauer geht die Kurve dann in Sättigung und  $\Delta n$  nähert sich zu  $1.6 \times 10^{-3}$  für außerordentliche und  $-1.6 \times 10^{-3}$  für ordentliche Polarisation. Die halblogarithmische Darstellung dieser Messreihe wird in der rechten Abbildung gezeigt. Hier sind die Messergebnisse anschaulicher: Im Gegensatz zur linearen Darstellung der Kurve sieht man hier, dass auch für lange Messzeiten noch ein Abfall stattfindet, wenn auch nur noch sehr langsam. Es ist auch zu erkennen, dass im Bereich von 7 min und 140 min die  $\Delta n$ -Änderung steiler ist. Während bei den ersten Messpunkten die absoluten  $\Delta n$ -Werte bei ordentlicher Polarisation ca. 20% größer als der entsprechende Wert für die

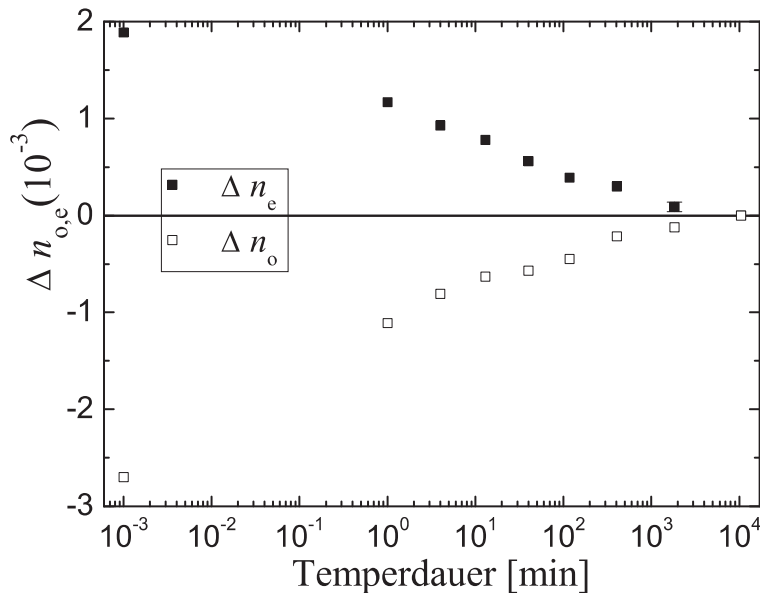


**Abbildung 4.10:** Isotherme Erholung der Probe LN-HEP56 bei der Temperatur 100 °C. Aufgetragen ist strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung  $\Delta n$  für ordentliche und außerordentliche Polarisationen (bezeichnet mit  $\Delta n_o$  und  $\Delta n_e$ ) über der jeweiligen Temperdauer.



**Abbildung 4.11:** Isotherme Erholung der Probe LNHEP65 bei  $T = 200$  °C in einer linearen und halblogarithmischen Skala. Aufgetragen ist die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung  $\Delta n$  für ordentliche und außerordentliche Polarisationen (bezeichnet mit  $\Delta n_o$  und  $\Delta n_e$ ) über der jeweiligen Temperdauer.





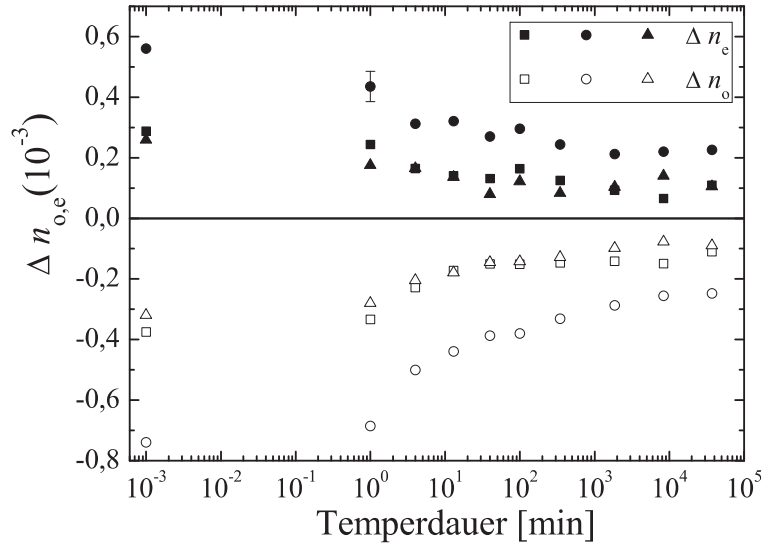
**Abbildung 4.12:** Isotherme Erholung der Probe LN-HEP69 bei der Temperatur 400 °C. Aufgetragen ist die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung  $\Delta n$  für ordentliche und außerordentliche Polarisation (bezeichnet mit  $\Delta n_o$  und  $\Delta n_e$ ) über der jeweiligen Temperdauer.

außerordentliche Polarisation sind, fallen sie aber für die letzten Messungen etwa gleich aus.

Die Abbildung 4.12 stellt dar, wie die isotherme Erholung bei einer hohen Temperatur aussieht. Die Probe LNHEP69 wird bei der Temperatur 400 °C getempert. Die Änderungen  $\Delta n$  sind wiederum gegen die Temperdauer in einer halblogarithmischen Skala aufgetragen. Man sieht eine steile Steigung für beide Polarisationen in ersten 100 min Tempern der Probe, sodass  $\Delta n_o$  ca. 60% ansteigt und entsprechend sinkt  $\Delta n_e$  auch ca. 60% ab; dann wird die Steigung kleiner und  $\Delta n$  geht für die beiden Polarisationen zu null. Schließlich ist nach sieben Tagen Tempern kein  $\Delta n$  mehr feststellbar. Um diese Untersuchungen zu ergänzen und der  $\Delta n$ -Verlauf bei anderen Temperaturen zu ermitteln, werden die Proben LNHEP71, 67, 70 und 72 einer isothermen Erholung bei Temperaturen 233 °C, 266 °C, 300 °C und 370 °C untergezogen. Es fällt auf, dass bei allen diesen Proben die Zerfälle immer analog zu den beschriebenen Kurven stattfinden.

### Isotherme Erholung entlang der Probentiefe

Bisher wurde integriert  $\Delta n$  gemessen (vgl. Abschnitt 3.4, Geometrie a)). Nun stellt sich die Frage, wie sich die tiefenaufgelöste Brechungsindexänderung (vgl. Kapitel 4.4) bei isothermer Behandlung verhält. Um diese Frage zu beantworten, wird die Probe LNHEP46 der isothermen Erholung entlang der Probentiefe unterzogen. Abbildung 4.13 präsentiert die Messergebnisse dieser Untersuchung bei  $T = 200$  °C mit drei Messreihen, die zu verschiedenen Orten in unterschiedlichen Tiefen der Probe gehören. Aufgetragen ist  $\Delta n$  über der Temperdauer in einer halblogarithmischen Skala. Hier sind zwei Dinge zu erkennen: erstens sieht man, dass sich bei verschiedenen Orten qualitativ gleiche Verläufe der Zerfallkurven ergeben. Zweitens sieht die Zerfallkurve der tiefenaufgelösten Brechungs-



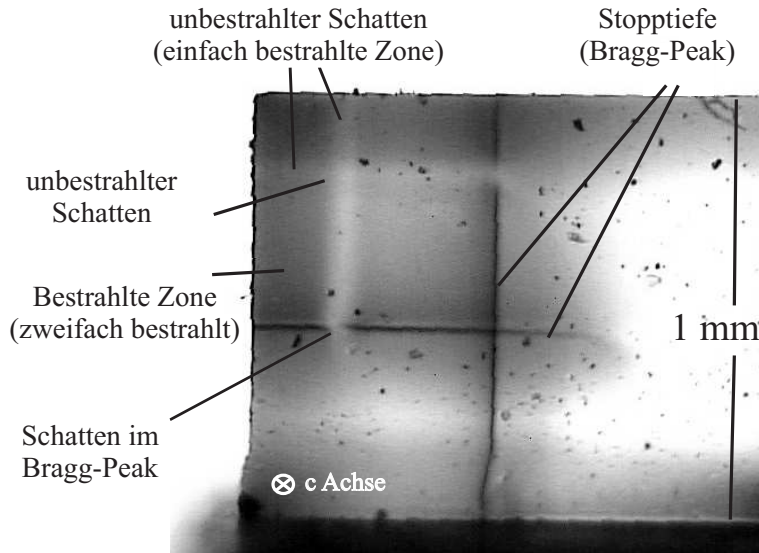
**Abbildung 4.13:** Isotherme Erholung der Probe LN-HEP46 bei der Temperatur 200 °C. Aufgetragen ist die tiefenaufgelöste strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung für ordentliche und außerordentliche Polarisierungen über der Temperdauer.

indexänderung wie die integriert gemessene Brechungsindexänderung (Abbildung 4.11, Geometrie a)) aus.

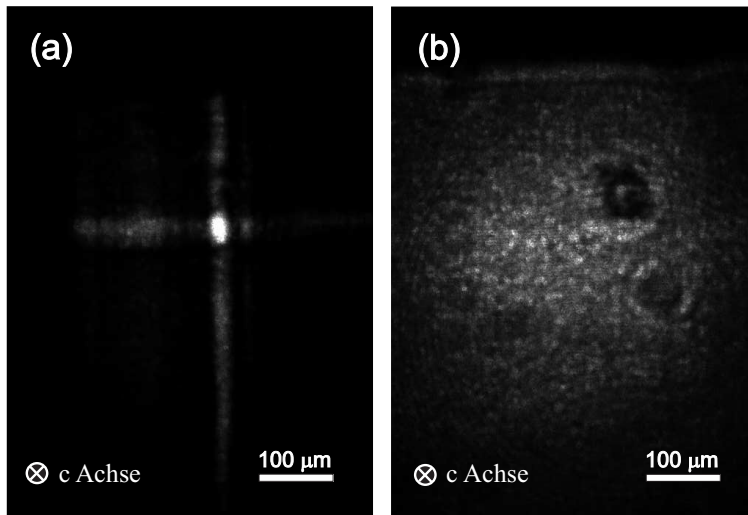
## 4.7 Messungen am vergrabenen Wellenleiter

Bei diesen Messungen werden zuerst zwei Kristalle mit den Methoden aus Abbildung 3.17 hergestellt, einmal mit  $\vec{c}$  parallel zum Wellenleiter (WL1) und einmal mit  $\vec{c}$  senkrecht zum Wellenleiter (WL2). Abbildung 4.14 zeigt eine Mikroskop-Fotoaufnahme einer  $xy$ -Fläche des ersten Kristalls (WL1). Auf dem Foto ist die bestrahlte Fläche mit deutlich brauner Farbe zu erkennen, welche normalerweise durch die Bestrahlung erscheint. Außerdem werden die unbestrahlten Schatten von zwei Behandlungen, besonders die gekreuzte Zone dieser zwei Schatten, als nicht braun gefärbte Regionen beobachtet. Der Bragg-Peak an der Stopptiefe der Ionen ist auch zu sehen.

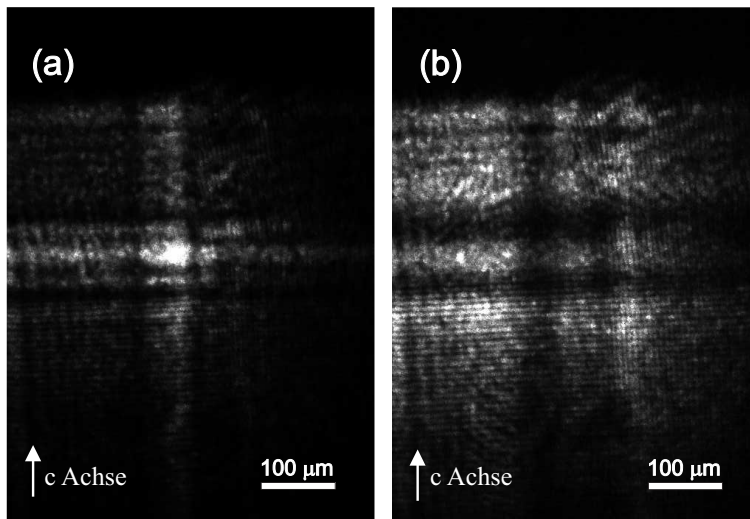
Die Resultate der Untersuchungen über die Fortpflanzung von Licht in diesem Kristall sind in Abbildung 4.15 dargestellt. Teil (a) zeigt die Lichtverteilung an der Austrittsfläche, wenn das Licht auf der Eingangsfläche in den unbestrahlten Kanal eingekoppelt wird. Ein heller, scharf begrenzter Fleck mit hoher Lichtintensität ist auf dem Foto zu beobachten. Teil (b) zeigt die Lichtverteilung an der Austrittsfläche, indem das Licht sehr weit von dem bestrahlten Bereich in den Kristall eingekoppelt ist. Ein breiter Kegel ist auf dem Foto zu sehen. Es sei darauf hingewiesen, dass die Intensitätsskala von diesen zwei Fotos, die die Lichtintensität repräsentiert, unterschiedlich ist: Teil (b) wurde mit 6 Mal höherer Empfindlichkeit aufgenommen. Somit ist die Intensität für die gleiche Graustufenskala 6 Mal geringer als die entsprechende Farbe im Bild 4.15-a. Bei der Messung des zweiten Kristalls (WL2) fällt auf, dass die Lichtintensität an der Austrittsfläche abhängig von der Orientierung des dichromatischen Polarisators vor der Kamera ist. Die Resultate sind in Abbildung 4.16 zu sehen. Teil (a) zeigt das Lichtmuster für die ordentliche Lichtpolarisa-



**Abbildung 4.14:** Mikroskop-Aufnahme eines bestrahlten Kristalls zur Wellenleitung. Es zeigt eine  $xy$ -Stirnfläche des Kristalls, die bestrahlte Fläche mit zwei Schattenschicht als ein unbestrahlter Kanal und die Stopptiefe der Ionen (siehe Abb. 3.16).



**Abbildung 4.15:** Intensitätsverteilung des Lichts an der Austrittsfläche der Wellenleiter-Probe Nr. WL1. Die  $c$ -Achse steht senkrecht zur Austrittsfläche. Die Aufnahme (a) zeigt die Intensitätsverteilung, wenn Licht in den unbestrahlten Kanal eingekoppelt wird. Das Foto b) wurde aufgenommen, indem das Licht sich sehr weit vom bestrahlten Bereich in die Probe ausbreitet. Foto (b) ist 6 Mal empfindlicher aufgenommen.



**Abbildung 4.16:** Intensitätsverteilung des Lichts an der Austrittsfläche der Wellenleiter-Probe Nr. WL2. Die  $c$ -Achse steht parallel zur Austrittsfläche. Gezeigt ist das Austrittslicht für ordentliche (a) und außerordentliche Lichtpolarisation (b).

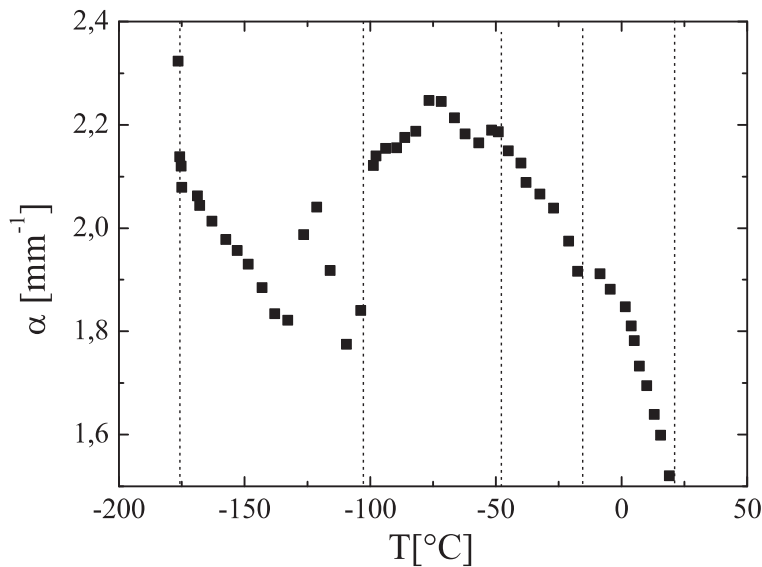
tion. Wieder ist eine kleine helle Fläche vom geleiteten Licht zu beobachten. Teil (b) zeigt das Ergebnis für die außerordentliche Lichtpolarisation. Auf der Fläche des unbestrahlten Kanals tritt kein Licht aus, wohl aber in der Umgebung: Das Licht wird deflektiert.

## 4.8 Messung des Absorptionskoeffizienten

Bei einer Probe, die mit dem Aufbau aus Abbildung 3.18 ca. 13 Stunden mit einem Ionenstrom von ca. 110 nA bei der Temperatur  $-190^\circ\text{C}$  bestrahlt wurde, wird die Intensitätsmessung nach Aufbau 3.20 in Abhängigkeit von Temperatur durchgeführt. Die Messergebnisse sind in Abbildung 4.17 dargestellt. Aufgetragen ist der Absorptionskoeffizient  $\alpha = \frac{\ln(I_0/I)}{d}$  über der Temperatur. Hier wird die transmittierte Lichtintensität durch die unbestrahlte Probe als  $I_0$  angenommen. Zwischen  $-175$  bis  $-120^\circ\text{C}$  sieht man einen linearen Kurvenabfall. Anschließend steigt  $\alpha$  an und ab  $T = -70^\circ\text{C}$  beginnt es wieder bis Ende der Messung zu sinken. Somit ist bei  $T = -70^\circ\text{C}$  ein Peak für  $\alpha$  zu erkennen. Schließlich endet die Intensitätsmessung bei Raumtemperatur. Es ist zu beachten, dass bei Temperaturen  $-175$ ,  $-97$ ,  $-45$ ,  $4$  und  $28^\circ\text{C}$  die Intensitätsmessung für die unbestrahlte Probe durchgeführt wurde, verbunden mit fünfmaligem Verstellen und Wiederrückstellen des Tisches in Abbildung 3.20 bei den genannten Temperaturen während der Untersuchung. Diese Messpunkte sind im Bild mit den gestrichelten Linien eingezeichnet.

## 4.9 XAS-Messungen

Bei diesen Messungen handelt es sich um die Untersuchung der atomaren Umgebung einzelner Bausteine einer bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ -Probe durch Röntgenabsorptionsspektrosko-



**Abbildung 4.17:** Absorptionskoeffizient  $\alpha$  in Abhängigkeit von der Temperatur für einen  $\text{LiNbO}_3$ -Kristall, der ca. 13 Stunden bei einem Ionenstrom von ca. 110 nA bestrahlt wurde. Die gestrichelten Linien zeigen die Temperaturen, bei denen die Null-Messung durch Verstellen und Zurückstellen des Probenstückes durchgeführt ist.

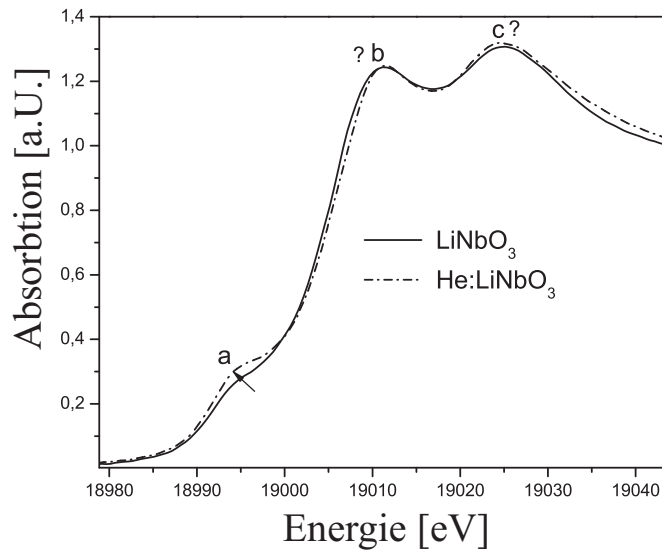
pie. Hier wird für eine bestrahlte Probe (vgl. Kapitel 3.11.1) mit dem in Abbildung 3.15 skizzierten Aufbau eine XAS-Messung beschrieben; die Versuche werden in der AG Prof. Hormes im physikalischen Institut der Universität Bonn durchgeführt. Abbildung 4.18 zeigt das Absorptionsspektrum dieser Probe an der Nb-K-Kante. Aufgetragen ist der Absorptionskoeffizient über der Energie des Röntgenstrahls für den bestrahlten (gestrichelte Kurve) und unbestrahlten Bereich (durchgezogene Kurve). Es wird beobachtet, dass es in drei Bereichen zwischen den Spektren von bestrahlten bzw. unbestrahlten Regionen kleine Unterschiede gibt. Diese Bereiche wurden im Bild mit a, b und c gekennzeichnet.

## 4.10 Resultate der TEM-Messungen

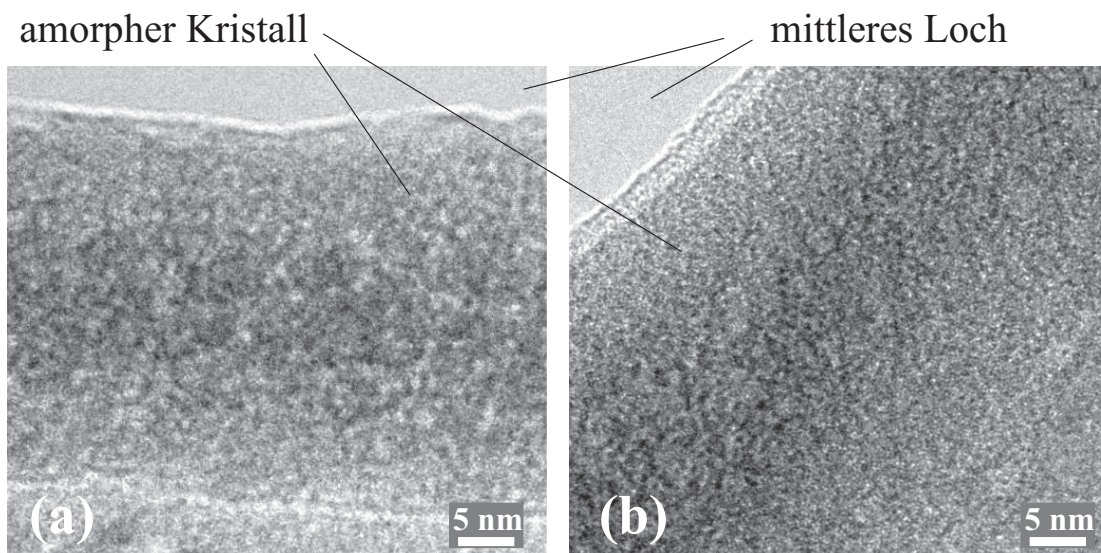
Hier wird durch eine TEM-Messung die Kristall-Struktur der Probe B10 mikroskopisch untersucht und eine direkte Darstellung von Strahlenschäden durch Durchgang der  $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen durch  $\text{LiNbO}_3$ -Kristall demonstriert.

Die Probe wurde zuvor bei Raumtemperatur ca. 11 Stunden mit einem Ionenstrom von ca. 1 nA nach Aufbau 3.11 bestrahlt. Zunächst wird die Probe in einem sehr dünnen Bereich am Rand des Loches (vgl. Abb. 3.10) untersucht. Abbildung 5.3 zeigt zwei TEM-Aufnahmen in diesem Bereich für die bestrahlte (Abb. 5.3-(a)) bzw. unbestrahlte (Abb. 5.3-(b)) Probe. Diese Bilder wurden mit unter-Fokus-Einstellung aufgenommen (siehe Kapitel 3.10.3). Man erkennt, dass in diesem Bereich sowohl die bestrahlte als auch die unbestrahlte Probe amorph aussehen.

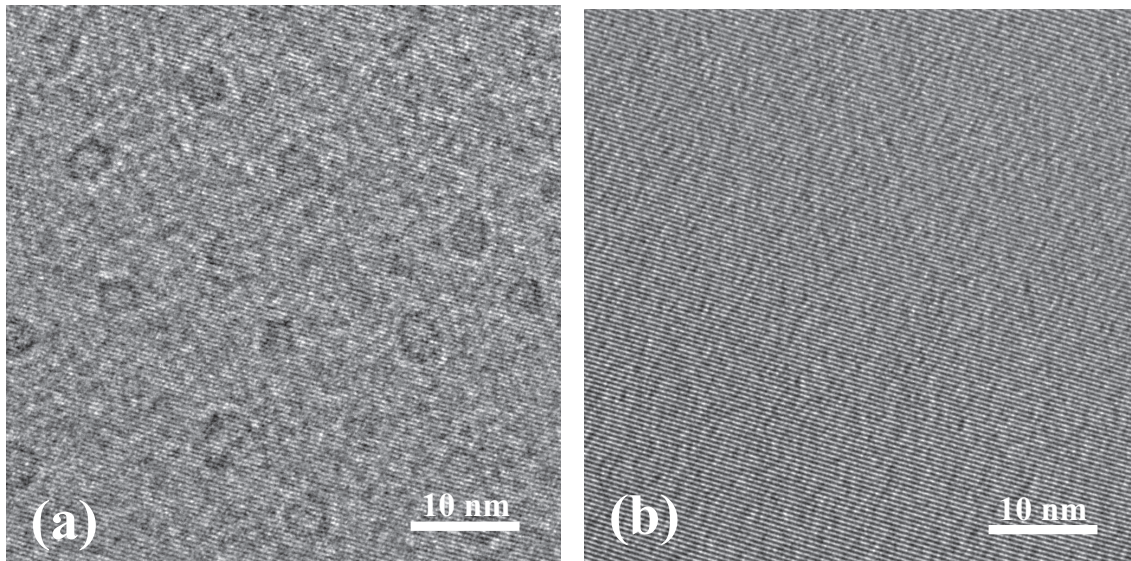
Die TEM-Messungen der Probe in einem dickeren Bereich sind in Abbildung 4.20 zu sehen. Die beiden Bilder wurden mit unter-Fokus-Einstellung aufgenommen. Die erste Abbildung (a) zeigt ein Bild vom bestrahlten Bereich des Kristalls, während die zweite Abbildung (b) einen unbestrahlten Bereich des Kristalls darstellt. Beide Bilder zeigen eine ebene Fläche



**Abbildung 4.18:** XANES-Spektrum des bestrahlten und unbestrahlten Bereichs einer  $40\mu\text{m}$  dünnen  $\text{LiNbO}_3$ -Probe bei der Nb K-Kante ( $18.986\text{ keV}$ ). Aufgetragen ist der Absorptionskoeffizient gegen die Energie. Die Spektren haben verschiedene Verläufe in den Bereichen a, b und c (durchgeführt in der AG Prof. Hormes im physikalischen Institut der Universität Bonn).

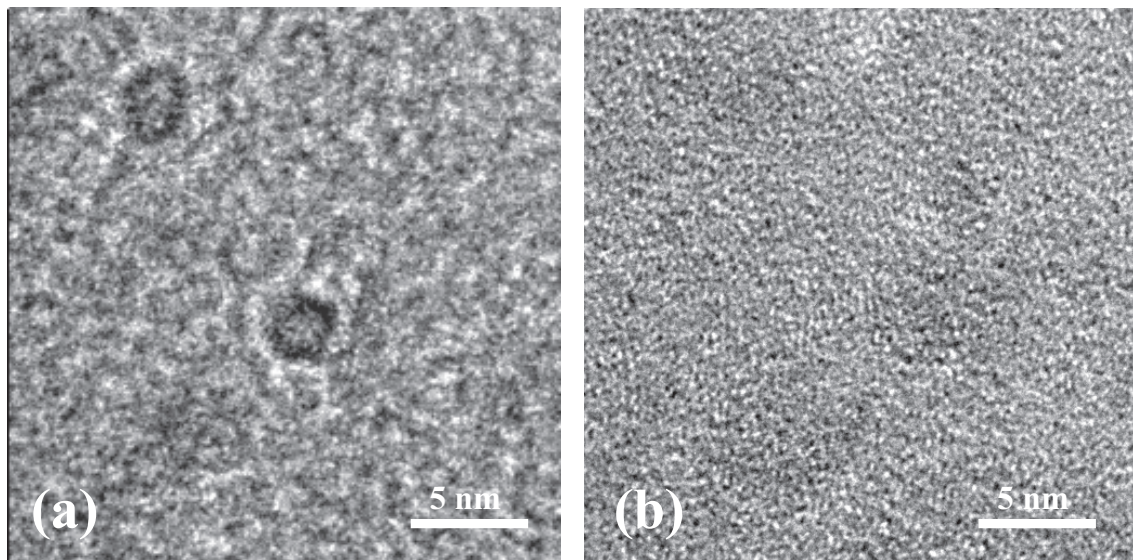


**Abbildung 4.19:** TEM-Aufnahme der bestrahlten (Teil a) bzw. unbestrahlten Probe (Teil b) in einem sehr dünnen Bereich am Rand des Loches (vgl. Abb. 3.10).



**Abbildung 4.20:** Zwei TEM-Bilder der Probe B10. Die Probe wurde ca. 11 h bei einem Ionenstrom von ca. 1 nA bestrahlt. Während das erste Bild einen bestrahlten Bereich der Probe zeigt, stellt das zweite Bild eine unbestrahlte Region dar. Kreisförmige Effekte mit einem Durchmesser von ca. 5 nm sind im Bild (a) zu erkennen.

von kristallinem Material. Der bestrahlte Bereich weist deutliche kreisförmige Flecken auf, die in dem unbestrahlten Bereich nicht zu erkennen sind. Die Größe dieser Flecken beträgt ca. 5 nm; an der Stelle dieser Flecken hat der Kristall eine höhere Dichte im Vergleich zur Umgebung [70]. Es ist zu beachten, dass diese Kreise durch Volumeneffekte hervorgerufen sind; anderenfalls wäre der Kontrast nicht groß genug. Man sieht, dass es auf einer  $50 \times 50 \text{ nm}^2$  großen Fläche im bestrahlten Bereich ca. 19 Stück von diesen kreisförmigen Effekten gibt, d.h. ca. 15% der Fläche besteht aus diesen Effekten. Es fällt auf, dass man an diesen zwei Bildern sogar neue Informationen gewinnen kann, wenn man in gleichen Probenort mit im-Fokus-Einstellung die TEM-Messung durchführt. In Abbildung 4.21 sind für einen bestrahlten Ort in der Probe zwei TEM-Aufnahmen mit Einstellungen unter-Fokus und im-Fokus dargestellt. Während man in Abbildung 4.21-(a) die kreisförmigen Flecken beobachtet, ist in Abbildung 4.21-(b) die Rekristallisierung zu sehen.



**Abbildung 4.21:** Zwei TEM-Aufnahmen von einem bestrahlten Bereich der Probe B10 mit Einstellungen unter-Fokus (Abb. 4.21-(a)) und im-Fokus (Abb. 4.21-(b)).



# KAPITEL 5

## DISKUSSION

Die hier vorgestellten Messergebnisse werden im Folgenden diskutiert. Als Erstes geht es um die Ursachen für die Brechungsindexänderungen durch den Durchgang der schnellen leichten  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen in  $\text{LiNbO}_3$ . Anschließend wird die tiefenaufgelöste Brechungsindexänderung mit SRIM-Simulation verglichen. Es folgt eine Abhandlung über die Ausheilung der Strahlenschäden durch thermische Behandlungen. Dann werden die Untersuchungen zur Wellenleitung interpretiert. Schließlich werden die Ursachen der Untersuchungen zur TEM-Messungen abgeschätzt.

### 5.1 Dosisabhängigkeit

Unsere Resultate zeigen, dass große Brechungsindexänderungen in  $\text{LiNbO}_3$  erreicht werden können, wo schnelle leichte Ionen durch das Material hindurchtreten. Die erreichten Werte sind vergleichbar mit den Werten bei photorefraktiven Methoden und sogar erheblich höher. Der ordentliche Brechungsindex nimmt ab, während der außerordentliche Brechungsindex zunimmt. Daher wird die Doppelbrechung  $\delta n = n_e - n_o$  von  $\text{LiNbO}_3$  kleiner. Diese Abnahme beträgt mit Berücksichtigung auf den Anfangswert ca. 5%. Die hergestellte Brechungsindexänderung ist gut reproduzierbar (vgl. Abbildung 4.2) und zeitlich sehr stabil, sodass  $\Delta n$  über den gesamten gemessenen Zeitraum von ca. 930 Tagen konstant geblieben ist (vgl. Abbildung 4.8). Das ist stabiler als z. B. Brechungsindexänderungen, die durch thermisches Fixieren hergestellt werden können [75].

Offenbar ist die Kristall-Struktur durch die Bestrahlung stark beschädigt. Zum Klären der zugrunde liegenden Prozesse und der beteiligten Atome sind weitere Untersuchungen wie  $x$ -Ray-Beugung oder  $x$ -Ray-Spektroskopie notwendig. Die Erhöhung von  $\Delta n$  mit zunehmender Ionendosis, wie in Abb. 4.3 gezeigt ist, ist stark nichtlinear. Sogar für die höchste Dosis, die wir in unserem Experiment benutzt haben, ist die Sättigung noch nicht erreicht. Daher erwartet man, dass eine weitere Zunahme von  $\Delta n_{o,e}$  möglich ist. Die Änderung  $\Delta n$  mit zunehmender Ionendosis zeigt eine charakteristische Stufe um  $2 \times 10^{20} \frac{\text{Ion}}{\text{m}^2}$ , wo die Erhöhung von  $\Delta n$  stärker als bei niedrigerer bzw. größerer Ionendosis ausfällt.

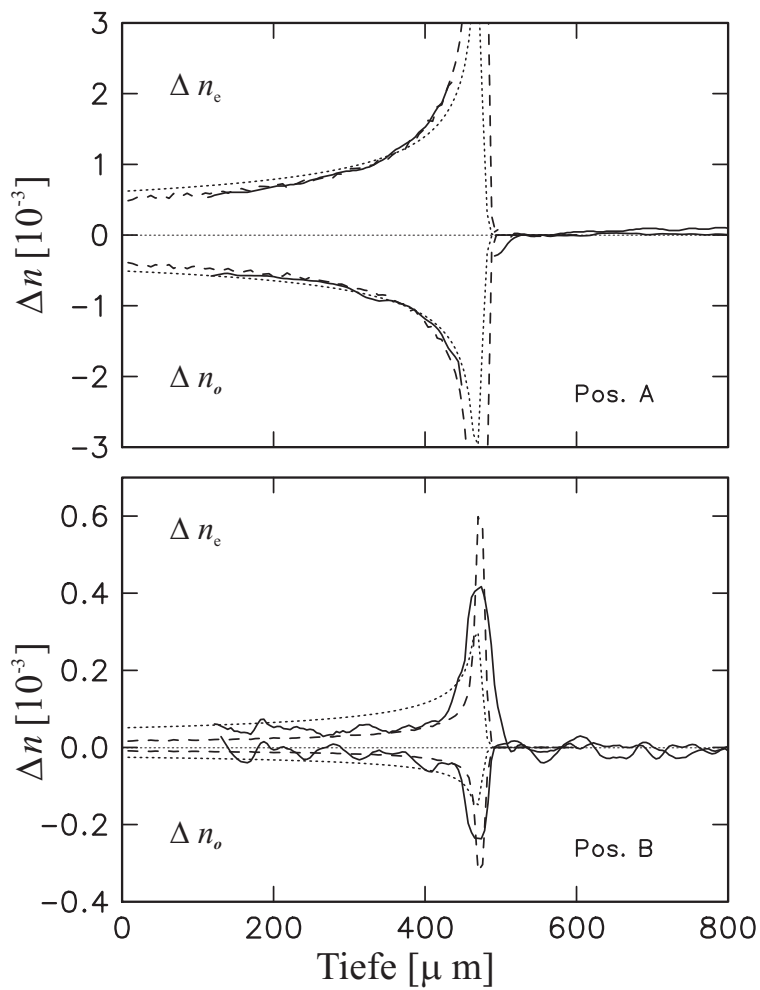
## 5.2 Vergleich der tiefenaufgelösten Brechungsindexänderung mit Modellrechnungen

Die Untersuchung der Abhängigkeit von  $\Delta n_{o,e}$  von der Kristall-Tiefe zeigt eine signifikante Erhöhung mit Zunahme der Ionen-Weglänge und somit Abfall der Ionenenergie. Mittels SRIM-2006 kann man die verursachten Fehlstellendichte in Kristall pro Ion und Angstrom  $c_{vac}(d)$  simulieren. Diese Fehlstellendichte zeigt qualitativ gleiches Verhalten wie  $\Delta n_{o,e}(d)$ ; die Zahl der Fehlstellen erhöht sich mit Zunahme der Kristall-Tiefe. Das Ergebnis für  $c_{vac}(d)$  multipliziert in einem geeigneten Faktor wird gegen die Kristall-Tiefe als gestrichelte Linie zusammen mit der gemessenen Kurve  $\Delta n_{o,e}(d)$  in Abbildung 5.1 aufgetragen. Gezeigt sind, analog zu Abbildung 4.6, wiederum die Bereiche A und B, also mit maximalem Effekt (A) und kleinem Effekt, aber aufgelöstem Bragg-Peak (B). Es ist zu erkennen, dass die Fehlstellendichte  $c_{vac}(d)$  in ihrem qualitativen Verlauf die Messdaten  $\Delta n$  überzeugend beschreibt; insbesondere die unter den Bragg-Peak liegende Fläche (B) wird beschrieben. Dass die Breite des Bragg-Peaks in der Messung größer ausfällt, kann mit nicht ausreichender Tiefenschärfe des abbildenden Systems in dem Interferometer erklärt werden. Die Änderung  $\Delta n$  könnte auch mit dem Energieverlust der Teilchen durch elektronische Wechselwirkung mit Elektronen im Material verbunden sein: Die Energieverlust-Funktion  $\Delta E$ , ebenfalls mit SRIM-2006 simuliert, hat eine ähnliche Form wie  $c_{vac}(d)$ ; abhängig von der Kristall-Tiefe beginnt sie mit kleinen Werten an der Oberfläche und steigt in Richtung Bragg-Peak an. Die Kurve  $\Delta E(d)$ , multipliziert mit einem passenden Faktor, ist ebenfalls in Abbildung 5.1 als gepunktete Kurve gezeigt. Die Profile von  $\Delta n$  werden deutlich besser mit der Fehlstellendichte  $c_{vac}(d)$  beschrieben als mit dem Energieverlust  $\Delta E(d)$ . Schließlich können wir folgern, dass es einen direkten Zusammenhang zwischen der Fehlstellendichte  $c_{vac}(d)$  und der Brechungsindexänderung  $\Delta n_{o,e}$  gibt.

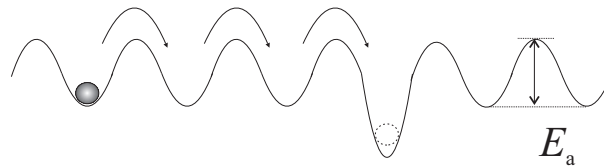
Die Messungen zeigen, dass innerhalb der ersten 400  $\mu\text{m}$  unter der Oberfläche die Brechungsindexänderung  $\Delta n_{o,e}$  mit einem Faktor  $\approx 3$  ansteigt (siehe Abbildung 5.1). Daher zeigen die Daten von  $\Delta n$  (gezeigt in der Abbildungen 4.2–4.13) einen durchschnittlichen Wert, wenn die Brechungsindexänderung entlang des Ionenstrahls gemessen wird. Es sei darauf hingewiesen, dass der Bragg-Peak allein 40% vom gesamten Effekt verursacht (siehe Tabelle 4.1). Dies findet sich auch in die Kurve von  $c_{vac}(d)$  wieder; integriert man den unter der Kurve liegenden Bereich bis 400  $\mu\text{m}$  und insgesamt, findet sich ebenfalls der Faktor 40% wieder.

## 5.3 Thermische Ausheilung

Durch SRIM-2006 können Fehlstellen von Li, Nb und O simuliert werden. Bei Tempern des Kristalls heilen diese Defekte aus und die Brechungsindexänderung verschwindet. Die Resultate der isochronen Erholung (siehe Abbildungen 4.9) zeigen, dass der Zerfall ab



**Abbildung 5.1:**  $\Delta n$ -Verlauf in Abhängigkeit von der Kristall-Tiefe für ordentliche und außerordentliche Polarisation entlang der Schnittlinien A und B in Abbildung 4.6. Außerdem sind die Fehlstellendichte  $c_{\text{vac}}(d)$  und der Energieverlust  $\Delta E(d)$ , simuliert durch SRIM-2006, auf die Kurve  $\Delta n_{o,e}$  geplottet.



**Abbildung 5.2:** Schematische Darstellung eines Diffusionsprozesses in einem periodischen Potential eines Kristalls.

100 °C beginnt und ab 150 °C schneller wird. Bei Temperaturen größer als 200 °C wird der Zerfallsprozeß langsamer und wenn die Temperatur 500 °C erreicht ist, verschwindet  $\Delta n$ . Dieses Verhalten lässt sich auch mit den Resultaten der isothermischen Erholungen (Abbildungen 4.10-4.12) bestätigen. Die charakteristische Stufe zwischen 150 – 200 °C ist möglicherweise auf thermische Diffusion von Li-Atomen zurückzuführen. Abbildung 5.2 stellt die schematische Darstellung eines Diffusionsverfahrens im periodischen Potential eines Kristalls dar, wobei  $E_a$  die Aktivierungsenergie ist.

Die Experimente, die die Technologie des thermischen Fixierens von Brechungsindexänderung in  $\text{LiNbO}_3$  anwenden [76,77], zeigen, dass Nb neben H-Ionen auch Li-Ionen bei diesen Temperaturen sich bewegen und umverteilen können [78]. Im Vergleich zum thermischen Fixieren von  $\Delta n$  sollte die hergestellte Brechungsindexänderung durch unsere Methode stabiler sein, weil hier  $\Delta n$  teilweise neben Verlagerung vom Li-Atome zusätzlich wegen Verschiebungen von Nb- und O-Atomen verursacht ist und diese zwei Ionen zeigen kleinere Diffusionen als Li [79]. Durch weiteren Messungen muss dies geprüft werden.

Die Ergebnisse der isothermischen Erholung zeigen, dass dem Verlauf von  $\Delta n$  keine mono-exponentielle Kurve zugeordnet werden kann. Um eine Anpassung aus Exponentialkurven zu versuchen, müssten  $3e$ -Funktionen benutzt werden. Dies ist ein klarer Hinweis darauf, dass komplexe Prozesse ablaufen, die sie durch Li-Diffusion allein nicht erklären lassen. Je höher die ausgewählte Temperatur bei isothermer Erholung ist, desto schneller wird der Zerfall von  $\Delta n$ . Ab  $T=400$  °C ist der Zerfall-Verlauf aber so schnell, dass  $\Delta n$  in kurzer Zeit zu null geht. Auf jeden Fall sind weitere Untersuchungen zur Interpretation des  $\Delta n$ -Verlaufs bei der isothermischen Erholung notwendig. In den nächsten Messungen sollen mehrere Messpunkte genommen werden, um eine qualitative Beschreibung für den  $\Delta n$ -Verlauf vorstellen zu können.

## 5.4 Wellenleiter

Wenn Licht in die Referenz-Region des Kristalls (d.h. außerhalb der behandelten Fläche) eingekoppelt wird, verbreitet es sich im Material und verlässt den Kristall in Ausgangsfläche mit einer breiten Verteilung. Im Vergleich dazu wird Licht aber im unbestrahlten Kanal innerhalb der behandelten Fläche geleitet: Es verlässt die Probe durch eine klei-

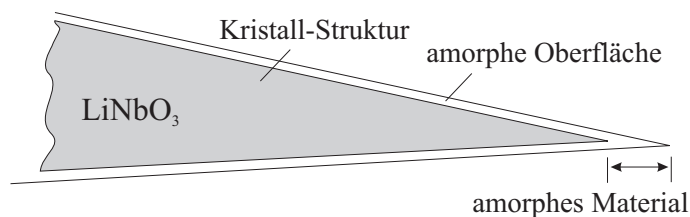
ne Stelle und die Lichtintensität ist in dieser Stelle im Vergleich zu dem nicht leitenden Fall viel größer. Es wurde deutlich in Abbildung 4.15 gezeigt. Die Wellenleitung ist eine direkte Konsequenz der ungleichmäßigen Bestrahlung. Die Größe des Kanals beträgt ca.  $30 \mu\text{m}$ , welche sehr gut mit der Größe des Schattens vom Ionenstrom zusammenpasst; sie wird durch die Dicke unserer Wolfram-Folie festgelegt. Andererseits werden manche Lichtstrahlen in Wellenleiter-Kanal (bzw. an den Wänden rechts/links und oben/unten des Kanals, die nur einfach bestrahlt wurden) nicht gefangen. Dies kann mit einem optimierten Strahlstrom bzw. einer optimierten Bestrahlungsdauer verbessert werden, welche den Kontrast des Brechungsindex erhöhen, oder durch optimierte Strahl-Geometrie die Homogenität der unbestrahlten Fläche erreicht werden.

Wie Abbildung 4.16 demonstriert, wurde die ordentliche Lichtpolarisation im Wellenleiter geführt, während die außerordentliche Lichtpolarisation nach außen aus dem unbestrahlten Kanal abgelenkt wird. Dieses Verhalten zeigt, dass in den bestrahlten Flächen der ordentliche Brechungsindex  $n_o$  reduziert ist. Die außerordentliche Lichtpolarisation  $\Delta n_e$  würde dagegen nach Bestrahlung ansteigen und führt zu einem Wellenleiter mit Polarisation-Auswahl. So kann ein optisch integriertes Element wie ein Polarisator durch unsere Technologie geliefert werden. Durch die dargestellten Daten in Abbildung 4.15 können die Verluste unseres Wellenleiters abgeschätzt werden, wenn man jeweils das gebundene Licht als kleine Stelle (Teil 4.15a) oder als ausgebreiteten Kegel (Teil 4.15b) in Beziehung setzt: Das Verhältnis dieser Größen bringt die erste Abschätzung für den Lichtverlust, weil es das Verhältnis der geleiteten Lichtintensität zu der totalen eingekoppelten Lichtintensität in Kristall ist. Wir bekommen ein Verhältnis von ca.  $0.5 = 3 \text{ dB}$  für die Lichtintensität, welche einem Intensitätsverlust pro Weglänge von ca.  $5 \frac{\text{dB}}{\text{cm}}$  entspricht. Der Grund für diesen ziemlich hohen Verlust kann die nicht perfekte Herstellung des Wellenleiters sein, sodass die Ionen wegen der nicht perfekten Kanten der Wolfram-Folie aufgestreut wurden. Ferner ist zu beachten, dass es bereits beim Einkoppeln zu Verlusten kommt, da die Kopplung nicht optimiert ist.

Festzuhalten ist, dass die Technik funktioniert und einen interessanten Weg zur Herstellung vergrabener Wellenleiter-Strukturen bietet, welche durch andere Methoden nicht geliefert werden können. Die Verbesserung der Bestrahlungsparameter (wie Bestrahlungsdauer und Strahlstrom) und Optimieren der verwendeten Geometrie (z.B. Rotation des Kristalls um den Ionenstrahl) sollten das Herstellen von Wellenleitern mit niedrigem Verlust ermöglichen, weil keine Störungen des Wellenleiters durch die Oberfläche auftritt. Verbunden mit der Bestrahlungsgeometrie ist die Herstellung anderer komplizierter Strukturen wie gebogener Wellenleiter möglich.

## 5.5 XAS-Untersuchungen

Die Ergebnisse der XAS-Messungen (vgl. Abbildung 4.18) zeigen drei Bereiche, in denen es zwischen den Spektren von bestrahlten bzw. unbestrahlten Zonen Unterschiede gibt. Es gibt theoretische Modelle, mittels deren man verschiedene Kurvenanpassungen simulieren



**Abbildung 5.3:** Schematische Darstellung eines Kristalls. Auf dem Bild sind amorphe und Kristalline Materiale zu sehen.

kann. Durch das Simulation-Programm FEFF8.2 [80] kann man mit Einsatz verschiedener Werte für die atomaren Koordinaten von Li, Nb, und O unterschiedliche Anpassungen berechnen. Dieser Versuch wurde in der AG Prof. Hormes im physikalischen Institut der Universität Bonn durchgeführt. Es wird beobachtet, dass nach dieser Auswertung alle drei Atome Li, Nb und O im Strahlenschaden-Prozess beteiligt sind.

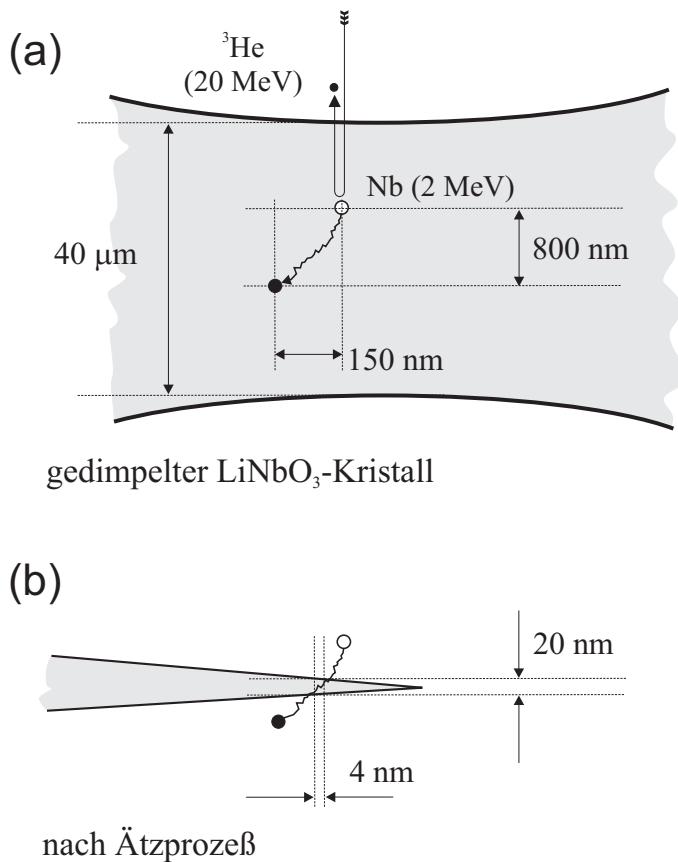
## 5.6 TEM-Messungen

Mit Hilfe der TEM-Aufnahmen kann man hier die erzeugten Schäden im Kristall direkt beobachten. Diese erzeugten Schäden können Folge drei verschiedener Prozesse sein. Der größte Teil ist auf den Durchgang der hochenergetischen  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen durch den Kristall und die Erzeugung von Stoßkaskaden durch Zusammenstoß mit Atomen im Kristall zurückzuführen. Der zweite Möglichkeit ist Schäden durch den Ätzprozeß mit  $\text{Ar}^+$ -Ionen und schließlich kann die Elektronentransmission während der TEM-Aufnahme dazu beitragen.

Im Ätzprozeß wird  $\text{Ar}^+$  mit einem kleinen Winkel auf die Oberfläche der Probe geschossen, deshalb werden die Atom-Lagen in Kristall Schicht für Schicht abgetragen. Außerdem ist die Energie der  $\text{Ar}^+$ -Ionen nicht so groß, sodass wegen der Energieübertragung keine Schäden im ganzen Volumen verursacht werden können. Die durchgehenden Elektronen haben auch keine ausreichende Energie zur Erzeugung der Schäden. Aus diesen Gründen sollten die meisten Schäden durch Durchgang der  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen verursacht sein. Ferner ist zu beachten, dass auf jeden Fall für die beobachteten Schäden im bestrahlten Volumen des Kristalls nur die  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen verantwortlich sein sollen, da die möglichen Schäden durch  $\text{Ar}^+$ -Ionen und Elektronen sowohl in bestrahlten als auch in unbestrahlten Bereichen existieren sollen.

Die Oberfläche eines Kristalls besteht im Prinzip aus einer dünnen amorphen Schicht; also gibt es in einer sehr dünnen Ecke des Kristalls kein kristallines Material. Abbildung 5.3 unterstreicht dies. Man sieht hier nur amorphes Material.

Die verschwommenen kreisförmigen Flecken in Abbildung 4.20 sind Folge eines Volumeneffektes im bestrahlten Bereich der Probe. Es ist zu beachten, dass die durch den Durchgang der  ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen erzeugten Kreiseffekte eine Dichte-Änderung in dem untersuchten Bereich des Kristalls verursachen. Diese kreisförmigen Flecken haben höhere Dichte im Vergleich zur Umgebung [70]. Aus diesem Grund wird vermutet, dass an der Stelle dieser Flecken die



**Abbildung 5.4:** Schematische Darstellung eines zentralen Stoßes zwischen einem  $^3\text{He}$ -Ion und einem Nb-Atom. Die obere Abbildung zeigt einen gedimpelten LiNbO<sub>3</sub>-Kristall, wo ein zentraler Stoß zwischen  $^3\text{He}$ -Ion und Nb-Atom zu einer Stoßkaskade führt. In Abb. (a) wurde ein möglicher Weg für das Nb-Atom nach dem Zusammenstoß dargestellt. Der Teil (b) zeigt den gleichen Kristall nach dem Ätzprozeß mit Ar<sup>+</sup>: man sieht, dass hierbei nur noch ein kleiner Teil des eingezeichneten Weges von Nb im Material übrigbleibt.

atomare Zusammensetzung der Struktur einer lithiumärmeren Kristallphase, z. B. der von LiNb<sub>3</sub>O<sub>8</sub>-Kristallen entspricht. Sie haben eine Dichte von ca.  $5.0 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ , was höher als die Dichte von LiNbO<sub>3</sub> ( $4.6 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$ ) ist [81]. Zum Klären der Größe dieser Änderungen nehmen wir an, dass am Anfang ein schnelles  $^3\text{He}^{2+}$ -Ion ein Nb-Atom im Kristall trifft und einen Teil seiner Energie dem Nb-Atom überträgt: Ein zentraler Stoß bringt eine Energieübertragung von ca.  $\approx 2 \text{ MeV}$ . Es ist in Abbildung 5.4-a) gezeichnet. Wie in der Abbildung zu erkennen ist, hat das angestoßene Nb-Atom eine Reichweite von  $0.8 \mu\text{m}$  und eine mittlere Streuung von ca.  $0.15 \mu\text{m}$  in LiNbO<sub>3</sub> (Simulation mit SRIM-2006). Das Nb-Atom hinterlässt in seinem Bewegungsablauf Defekte wie Verschiebungskaskaden im Material; die gesamte Energie des Nb-Atoms wird in diesem kleinen Volumen auf den Kristall übertragen. Damit die Probe bei der TEM-Messung elektronentransparent ist, wird die gedimpelte Probe durch das Ätzen mit Ar-Ionen nachgedünnt (Abbildung 5.4-b)). So bleibt von der früheren Nb-Weglänge nur ein kleines Stück innerhalb des TEM-Bereichs übrig, weil wir nur bis zu 20 nm dicke elektronentransparente Schichten beobachten können. Die Streuung der Nb-Ionen auf diesem kurzen Wegstück ist sehr gering. Der Durchmesser der kreisförmigen Defekte entsteht durch die sekundären Stoßprozesse und durch Ausdiffusionen von Li-Ionen. Für O- und Li-Ionen ist der Energieverlust im Kristall-Gitter zu gering, daher ist es sehr wahrscheinlich, dass die beobachteten Defekte einzelnen Nb-Ionen zuzuordnen sind.

## 5.7 Ausblick

Die in dieser Arbeit erzielten Ergebnisse bezüglich der Bestrahlung von  $\text{LiNbO}_3$ -Kristallen mit hochenergetischen  $^3\text{He}$ -Ionen bieten viele interessante Anknüpfungspunkte für weitere Messungen, deren Verständnis jedoch eine detaillierte Kenntnis der hergestellten Defektstruktur in  $\text{LiNbO}_3$  voraussetzt. Zunächst soll der Einfluss der Bestrahlung auf Materialeigenschaften wie elektrooptischer Koeffizient, Leitfähigkeit, Domäneninversion usw. untersucht werden. Dann kann man mit Optimieren der Bestrahlung versuchen, den Intensitätsverlust der Wellenleitern kleiner zu machen. Ferner sollte mittels geeigneter Masken das Realisieren von optischen Gittern versucht werden.

Im zweiten Schritt ist es wichtig, dotierte Materialien mit der in dieser Arbeit verwendeten Methoden zu betrachten. Als ein Beispiel sind mit Mg dotierte  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle interessant, die eine gute Unterdrückung des photorefraktiven Effektes aufweisen, was sie zur Frequenzverdopplung interessant werden lässt.

Durch die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellten TEM-Messungen ist uns gelungen, zum ersten Mal ein mikroskopisches Bild von Strahlenschäden in  $\text{LiNbO}_3$  aufzunehmen. Es ist ein guter Anfang zur weiteren Untersuchung mit dieser Methode. Es ist sinnvoll, in weiteren Versuchen die Abhängigkeit der Dichte der Strahlenschäden von der Ionendosis zu untersuchen. Man kann untersuchen, wie die Brechungsindexänderung in Abhängigkeit von der Dichte der Strahlenschäden verläuft. Außerdem kann bei TEM-Messungen das Verhalten der Dichte der Strahlenschäden bei thermischen Behandlungen ein weiterer Schritt sein.



## KAPITEL 6

# ZUSAMMENFASSUNG

Optische Datenübertragung und Datenspeicherung sind wichtige Themen in der Optik. Benötigt werden geeignete optische Materialien, die die Herstellung von optischen Lichtquellen, Wellenleitern, Filtern und Schaltern ermöglichen. Solche Komponenten können aufgrund ihrer interessanten Eigenschaften aus Lithiumniobat-Kristallen ( $\text{LiNbO}_3$ ) hergestellt werden. Dabei werden häufig maßgeschneiderte stabile Änderungen des Brechungsindex  $\Delta n$  benötigt. Dies ist durch verschiedene Methoden möglich, beispielsweise mit Einsatz der Bestrahlung von  $\text{LiNbO}_3$ -Kristallen mit schnellen leichten Ionen. Um beliebige und zeitlich stabile Brechungsindexstrukturen herzustellen und viele Anwendungen mit  $\text{LiNbO}_3$  realisieren zu können, ist es notwendig, die Grundlagen der für die Brechungsindexänderungen verantwortlichen strahlungsinduzierten Prozesse zu verstehen und quantitativ zu beschreiben.

Die Idee der strahlungsinduzierten Brechungsindexänderung mit hochenergetischen leichten Ionen besteht darin, die optischen Kristall-Untersuchungen in einem von Ionen durchflogenen Bereich durchzuführen. Zur Untersuchung werden in dieser Arbeit  $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen mit der Energie von ca. 40 MeV verwendet. Nach der Bestrahlung werden einige Proben in einem Interferometer untersucht, mit dem die Brechungsindex- und Dickenänderung der Probe ortaufgelöst gemessen werden. Die Ergebnisse dieser Untersuchungen zeigen eine zeitlich sehr stabile anisotrope Brechungsindexänderung im Bereich einiger  $10^{-3}$  im Durchgangsbereich. Die durch Ionen verursachten Strahlenschäden rufen eine Abnahme des ordentlichen Brechungsindex  $n_o$  und eine Zunahme des außerordentlichen Brechungsindex  $n_e$  hervor. Während die absoluten Werte für  $\Delta n_o$  und  $\Delta n_e$  fast gleich sind, wird die Doppelbrechung des Materials ( $n_e - n_o$ ) kleiner. Die hergestellte Brechungsindexänderung ist dosisabhängig und die Kurve  $\Delta n$  hat bei steigender Dosis einen stark nichtlinearen Verlauf mit einer charakteristischen Stufe bei der Strahldosis von ca.  $2 \times 10^{20} \frac{\text{Ionen}}{\text{m}^2}$ . Es wird vermutet, dass an diese Stufe Stoßkaskaden zu überlappen beginnen.

Eine ortabhängige Untersuchung der Brechungsindexänderung zeigt, dass eine signifikante Erhöhung von  $\Delta n_{o,e}$  mit Zunahme der Ionen-Weglänge stattfindet. Der Anstieg liefert etwa einen Faktor  $\approx 3$  innerhalb der ersten  $400 \mu\text{m}$  unter der Oberfläche. Dieser Effekt kann qualitativ mit der durch Stöße der Ionen mit Kristallatomen erzeugten Fehlstellendichte

$c_{\text{vac}}(d)$  in Zusammenhang gebracht werden. Es ist zu beachten, dass bei Raumtemperatur die Brechungsindexänderung sehr stabil ist und sich über einen Zeitraum von 3 Jahren keine Degeneration feststellen lässt; dagegen führt thermische Behandlung zum Abbau der hergestellten Brechungsindexänderung. Bei Durchführung von Messungen zur isothermen Erholung fällt eine stark nichtmonoexponentielle Zerfall-Kurve für  $\Delta n$  auf. Man kann diese Zerfall-Kurve nicht durch ein einfaches Modell erklären, etwa durch Diffusion von Lithium. So bleibt festzuhalten, dass komplexere Prozesse beteiligt sein sollten.

Die im Rahmen dieser Arbeit vorgestellte Methode zur Modifikation des Brechungsindexes in  $\text{LiNbO}_3$  bietet außerdem die Möglichkeit, einen vergrabenen Wellenleiter herzustellen. Durch eine räumlich inhomogene Bestrahlung wurde hier die Herstellung eines vergrabenen Wellenleiters in einer Tiefe von einigen  $100 \mu\text{m}$  demonstriert. Es wurde ein Monomode-Wellenleiter nachgewiesen, der außerdem polarisationabhängig funktioniert. Mit  $5 \frac{\text{dB}}{\text{cm}}$  sind die Verluste noch sehr groß; Verbesserung der Bestrahlung sollte die Herstellung verlustarmer Wellenleiter ermöglichen. Messungen mit Transmissions-Elektronen-Mikroskopie geben schlussendlich mikroskopisch Auskünfte über die durch Bestrahlung hergestellten Defektstrukturen in  $\text{LiNbO}_3$ . Die Resultate legen die Einschluss lithiumarme Phasen, bedingt durch Stöße mit Nb-Atomen durch die Bestrahlung, als Ursache der Brechungsindexänderung nahe.

Abschließend lässt sich sagen, dass die Untersuchungen von  $\text{LiNbO}_3$  im Bereich der durchflogenen Ionen neue Einblicke in die Prozesse bezüglich der durch Strahlenschäden induzierten Änderungen von optischen Eigenschaften in  $\text{LiNbO}_3$  geliefert haben. Die Resultate können zum Bau von optischen Komponenten berücksichtigt werden und in Zukunft im Bereich der Nachrichten-Technik zu Anwendungen führen.

# LITERATURVERZEICHNIS

- [1] A. Hermann *Lexikon Geschichte der Physik A–Z*. Aulis Verlag (Köln), 1987.
- [2] C. Ronan *The Shorter Science and Civilisation in China, Vol. 2*. Cambridge University Press (Cambridge), 1981.
- [3] V. W. S. Chan, „All-optical networks“, *Scientific American* **273**, 72 (September 1995).
- [4] R. S. Weis and T. K. Gaylord, „Lithium Niobate: Summary of Physical Properties and Crystal Structure“, *Appl. Phys. A* **37**, 191 (1985).
- [5] M. Jazbinšek and M. Zgonik, „Material Tensor Parameters of LiNbO<sub>3</sub> relevant for Electro- and Elasto-Optics“, *Appl. Phys. B* **74**, 407 (2002).
- [6] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein, and K. Nassau, „Optically-Induced Refractive Index Inhomogeneities in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>“, *Appl. Phys. Lett.* **9**, 72 (1966).
- [7] R. Holzwarth, T. Udem, T. W. Hänsch, J. C. Knight, W. J. Wadsworth, and P. S. J. Russell, „Optical Frequency Synthesizer for Precision Spectroscopy“, *Phys. Rev. Lett.* **85**, 2264 (2000).
- [8] M. M. Fejer, G. A. Magel, D. H. Jundt, and R. L. Byer, „Quasi-Phase-Matched Second Harmonic Generation: Tuning and Tolerances“, *IEEE J. Quant. Electron* **QE-28**, 2631 (1992).
- [9] L. E. Myers, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg, and J. R. Pierce, „Quasi-Phase-Matched Optical Parametric Oscillators in Bulk Periodically Poled LiNbO<sub>3</sub>“, *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 2102 (1995).
- [10] Y.-S. Lee, N. Amer, and W. C. Hurlbut, „Terahertz Pulse Shaping via Optical Rectification in Poled Lithium Niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 170 (2003).

- [11] C. A. Brackett, „Foreword: Is There an Emerging Consensus on WDM Networking?“, *J. Lightwave Technol* **14**, 936 (1996).
- [12] F. S. Chen, J. T. LaMacchia, and D. B. Fraser, „Holographic Storage in Lithium Niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **13**, 223 (1968).
- [13] D. Gabor, „A New Microscopic Principle“, *Nature* **161**, 777 (1948).
- [14] P. J. Chandler and P. D. Townsend, „Detailed Analysis of Refractive Index Effects Produced by Ion Implantation“, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **19**, 921 (1987).
- [15] C. Buchal, „Ion Beam Modification of Electro-Optical Crystals“, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **59/60**, 1142 (1991).
- [16] *Deutsche Agenda Optische Technologien für das 21. Jahrhundert*. VDI-Technologie-Zentrum (Düsseldorf), 2000.
- [17] D. T. Y. Wei, W. W. Lee, and L. R. Bloom, „Large Refractive Index Change Induced by Ion Implantation in Lithium Niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **25**, 329 (1974).
- [18] G. L. Destefanis, J. P. Gailliard, E. L. Ligeon, S. Valette, B. W. Farmery, P. D. Townsend, and A. Perez, „The Formation of Waveguides and Modulators in LiNbO<sub>3</sub> by Ion Implantation“, *J. Appl. Phys.* **50**, 7898 (1979).
- [19] E. Glavas, L. Zhang, P. J. Chandler, and 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 (1988).
- [20] P. D. Townsend, „An Overview of Ion-Implanted Optical Waveguide Profiles“, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **46**, 18 (1990).
- [21] L. Zhang, P. J. Chandler, and 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 (1991).
- [22] D. Kip, „Photorefractive Waveguides in Oxide Crystals: Fabrication, Properties and Applications“, *Appl. Phys. B* **67**, 131 (1998).
- [23] F. Lu, T. Zhang, X. Wang, S. Li, K. Wang, D. Shen, and H. Ma, „Formation of Waveguides by Implantation of 3.0 MeV Ni<sup>2+</sup>“, *J. Appl. Phys.* **96**, 3463 (2004).
- [24] X. L. W. et al., „Optical Properties of Stoichiometric LiNbO<sub>3</sub> Waveguides Formed by Low-Dose Oxygen Ion Implantation“, *Appl. Phys. Lett.* **86**, Art.–No. 041103 (2005).
- [25] B. Andreas, K. Peithman, K. Buse, and K. Maier, „Modifikation of the Refractive Index of Lithium Niobate Crystals by Transmission of High Energy <sup>4</sup>He<sup>2+</sup> and D<sup>+</sup> Particles“, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3813 (2004).

- [26] K. Peithmann, M.-R. Zamani-Meymian, M. Haaks, K. Maier, B. Andreas, K. Buse, and H. Modrow, „Fabrication of Embedded Waveguides in Lithium-Niobate Crystals by Radiation Damage“, *Appl. Phys. B* **82**, 419 (2006).
- [27] K. Peithmann, M.-R. Zamani-Meymian, M. Haaks, K. Maier, B. Andreas, and I. Breunig, „Refractive Index Changes in Lithium Niobate Crystals by High-Energy Particle Radiation“, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 2107 (2006).
- [28] P. D. Townsend, P. J. Chandler and L. Zhang, *Cambridge Studies in Modern Optics. Optical Effects of Ion Implantation*. Cambridge University Press (Cambridge), 1994.
- [29] K. K. Wong (Hrsg.), *Emis. Datareview Series No. 28. Properties of Lithium Niobate*. INSPEC, The Institute of Electrical Engineers (London), 2002.
- [30] W. S. Zachariasen, „Untersuchungen über die Kristallstruktur von Sesquioxyden und Verbindungen  $ABO_3$ “, *Skr. Norske. Vid. Akad.* **4**, (1928).
- [31] T. Tamir, ed. *Guided-Wave optoelectronics, second Edition*. Springer-Verlag (Berlin), 1990.
- [32] R. G. Hunsperger, ed. *Integrated Optics, Fourth Edition*. Springer-Verlag (Berlin), 1995.
- [33] A. M. Prokhorov and Yu. S. Kuzminov, ed. *Physics and Chemistry of Crystalline Lithium Niobate*. Adam Hilger (Bristol), 1990.
- [34] K. H. Hellwege (Editor), *Landolt Börnstein Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, New Series*. Springer (Berlin, Heidelberg, New York), 1981.
- [35] J. F. Nye, *Physical Properties of Crystals*. Oxford University Press (Oxford), 1972.
- [36] K. Kitamura, J. K. Yamamoto, N. Iyi, S. Kimura, and T. Hayashi, „Stoichiometric  $LiNbO_3$  Single Crystal Growth by Double Crucible Czochralski Method Using Automatic Power Supply System“, *J. Cryst. Growth* **116**, 327 (1992).
- [37] B. C. Grabmaier, W. Wersing, and W. Koestler, „Properties of Undoped and MGO-Doped  $LiNbO_3$ ; Correlation to the Defect Structure“, *J. Cryst. Growth* **110**, 339 (1991).
- [38] N. Zotov, H. Boysen, F. Frey, T. Metzger, and E. Born, „Cation Substitution Models of Congruent  $LiNbO_3$  Investigated by X-Ray and Neutron Powder Diffraction“, *J. Phys. Chem. Sol.* **55**, 145 (1994).
- [39] O. F. Schirmer, O. Thiemann, and M. Wöhlecke, „Defects in  $LiNbO_3$  – I. Experimental Aspects“, *J. Phys. Chem. Sol.* **52**, 185 (1991).

- [40] S. C. Abrahams and P. Marsh, „Defect Structure Dependence on Composition in Lithium Niobate“, *Acta Crystallogr. Sect. B* **42**, 61 (1986).
- [41] J. Olivares and G. García and F. Agulló-López and F. Agulló-Rueda and J. C. Soares and 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 (2006).
- [42] F. Jermann, M. Simon, R. Böwer, E. Krätzig, and O. F. Schirmer, „Light-Induced Absorption Changes in Reduced Lithium Niobate“, *Ferroelectrics* **165**, 319 (1995).
- [43] H. J. Donnerberg, S. M. Tomlinsson, and C. R. A. Catlow, „Defects in LiNbO<sub>3</sub>-II. Computer Simulation“, *J. Phys. Chem. Sol.* **52**, 201 (1991).
- [44] F. P. Safaryan, R. S. Feigelson, and A. M. Petrosyan, „An Approach to the Defect Structure Analysis of Lithium Niobate“, *J. Appl. Phys.* **85**, 8079 (1999).
- [45] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon Press (New York), 1985.
- [46] J. F. Ziegler, „The Stopping of Energetic Light Ions in Elemental Matter“, *J. Appl. Phys. / Rev. Appl. Phys.* **85**, 1249 (1999).
- [47] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler and J. P. Biersack *Particle Interactions with Matter, Programm SRIM und Informationen unter <http://www.SRIM.org>*. 2006.
- [48] R. L. Fleicher, P. B. Price and R. M. Walker, *Nuclear Tracks in Solids*. University of California Press, 1975.
- [49] R. Kassing (Hrsg.) and Bergmann Schaefer *Lehrbuch der Experimentalphysik. Band 6: Festkörper*. Walter de Gruyter (Berlin, New York), 2005.
- [50] H. Hu, F. Lu, F. Chen, B.-R. Shi, K.-M. Wang, and D.-Y. Shen, „Extraordinary Refractive-Index Increase in Lithium Niobate Caused by Low-Dose Ion Implantation“, *Appl. Opt.* **40**, 3759 (2001).
- [51] G. G. Bentini, M. Bianconi, M. Chiarini, L. Correr, C. Sada, P. Mazzoldi, N. Argiolas, M. Bazzan, and R. Guzzi, „Effect of Low Dose High Energy O<sup>3+</sup> Implantation on Refractive Index and Linear Electro-Optic Properties in X-Cut LiNbO<sub>3</sub>: Planar Optical Waveguide Formation and Characterization“, *J. Appl. Phys.* **92**, 6477 (2002).
- [52] E. R. Hodgson and F. Agulló-López, „Displacement Damage in LiNbO<sub>3</sub>“, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **32**, 42 (1988).
- [53] S. B. Ubizskii, A. O. Matkovskii, N. A. Mironova-Ulmane, V. Skvortsova, A. Suchocki, Y. A. Zhydachevskii, and P. Potera, „Radiation Displacement Defect Formation in some Complex Oxide Crystals“, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **166-167**, 40 (2000).

- [54] P. de Almeida, N. Franco, J. C. Soares, and J. Räisänen, „Irradiation-Assisted Photoelastic Domain Wall Formation in X- and Y-Cut Lithium Niobate“, *Sol. State Communications* **137**, 296 (2006).
- [55] B. Andreas, I. Breunig, and K. Buse, „Modeling of X-Ray-Induced Refractive-Index Changes in Poly(Methyl Methacrylate)“, *Chem. Phys. Chem.* **6**, 1544 (2005).
- [56] A. Matkovskii, P. Potera, D. Sugak, Y. Zhydachevskii, V. Pankratov, D. Millers, L. Grigorjeva, I. Pracka, and T. Lukasiewicz, „Transient and Stable Color Centers in Pure and Cu-Doped  $LiNbO_3$ “, *Cryst. Res. Technol.* **38**, 388 (2003).
- [57] C. Michael Lederer and Virginia S. Shirley, ed. *Table of Isotopes, 7 EDITION*. John Wiley and Sons, Inc. (USA), 1978.
- [58] H. Gobrecht (Herausgeber) *Bergmann · Schäfer – Lehrbuch der Experimentalphysik – Band III, Optik*. Walter de Gruyter (Berlin, New York), 1987.
- [59] H. Vogel *Gerthsen Physik–19. Auflage*. Springer-Verlag (Berlin), 1997.
- [60] D. Meschede *Optik, Licht und Laser*. Teubner (Stuttgart), 1999.
- [61] D. F. Nelson and R. M. Mikulyak, „Refractive Indices of Congruently Melting Lithium Niobate“, *J. Appl. Phys.* **45**, 3688 (1974).
- [62] Zyklotron-Gruppe *Das Bonner Isochron-Zyklotron-Zyklotron-Homepage mit der URL <http://www.zyklotron.iskp.uni-bonn.de/zyklo/index.html>*. letzte Aktualisierung: 30.06.2006.
- [63] D. C. Ghiglia and M. D. Pritt *Two-Dimensional Phase Unwrapping*. John Wiley and Sons (New York), 1998.
- [64] D. P. Towers, T. R. Judge, and P. J. Bryanstoncross, „Automatic Interferogram Analysis Techniques Applied to Quasi-Heterodyne Holography and ESPI“, *Optics and Lasers in Engineering* **14**, 239 (1991).
- [65] T. R. Judge and P. J. Bryanstoncross, „A Review of Phase Unwrapping Techniques in Fringe Analysis“, *Optics and Lasers in Engineering* **21**, 199 (1994).
- [66] S. C. J. Parker, C. M. E. Holden, and P. J. Bryanstoncross, „The Study of Transonic-Flows by Quantitative Holographic-Interferometry“, *Proceedings of the Institution of Mechanical Engineers Part G-Journal of Aerospace Engineering* **208**, 91 (1994).
- [67] M. Heimendahl *Elektronenmikroskopie: Grundlagen und Anwendung*. Mc Graw-Hill Book Company (UK), 1990.
- [68] P. J. Goodhew *Elektronenmikroskopie: Grundlagen und Anwendung*. Mc Graw-Hill Book Company (UK), 1990.

- [69] L. Reimer *Transmission Electron Microscopy*. Springer-Verlag (Berlin), 1993.
- [70] H. K. Schmid, „Identification of Intergranular Phases in Ceramic Nanocomposites“, *Journal of Microscopy* **194**, Pt 1, 192 (1999).
- [71] D. C. Koningsberger and R. Prins *X-Ray Absorption, Principles, Applications, Techniques of EXAFS, SEXAFS and XANES*. A Wiley-Interscience Publication (USA), 1988.
- [72] P. A. Lee, P. H. Citrin, P. Eisenberger, and B. M. Kincaid, „The Study of Transonic-Flows by Quantitative Holographic-Interferometry“, *Rev. of Mod. Phys.* **53**, no. 4, part 1 (1981).
- [73] A. Meisel, G. Leonhardt and R. Szargan *X-Ray Spectra and Chemical Binding, Springer Series in Chemical Physics Vol.37*. Springer-Verlag (Berlin, Heidelberg, New York), 1989.
- [74] E. A. Stern and K. Kim *Phys. Rev.* **23**, 3781 (1981).
- [75] B. Sturman, E. Podivilov, and M. Gorkunov, „Origin of Stretched Exponential Relaxation for Hopping-Transport Models“, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 176602 (2003).
- [76] K. Buse, S. Breer, K. Peithmann, S. Kapphan, M. Gao, and E. Krätzig, „Origin of Thermal Fixing in Photorefractive Lithium Niobate Crystals“, *Phys. Rev. B* **56**, 1225 (1997).
- [77] J. J. Amodei and D. L. Staebler, „Holographic Pattern Fixing in Electro-Optic Crystals“, *Appl. Phys. Lett.* **18**, 540 (1971).
- [78] I. Nee, K. Buse, F. Havermeier, R. A. Rupp, M. Fally, and R. P. May, „Neutron Diffraction From Thermally Fixed Gratings in Photorefractive Lithium Niobate Crystals“, *Phys. Rev. B* **60**, R9896 (1999).
- [79] D. P. B. (III), „Analysis of Diffusion in Lithium Niobate“, *J. Mater. Sci.* **28**, 302 (1993).
- [80] A. L. Ankudinov, B. Ravel, J. J. Rehr, and S. D. Conradson *Phys. Rev. B* **58**, 7565 (1998).
- [81] L. O. Svaasand, M. Eriksrud, A. P. Grande, and F. Mo, „Crystal Growth and Properties of  $\text{LiNb}_3\text{O}_8$ “, *Journal of Crystal Growth* **18**, 179 (1973).



# LISTE EIGENER VERÖFFENTLICHUNGEN

- K. Peithmann and M.-R. Zamani-Meymian and M. Haaks and K. Maier and B. Andreas and K. Buse and H. Modrow, „Fabrication of embedded waveguides in lithium-niobate crystals by radiation damage“, *Appl. Phys. B* **82**, 419 (2006).
- K. Peithmann and M.-R. Zamani-Meymian and M. Haaks and K. Maier and B. Andreas and I. Breunig, „Refractive index changes in lithium niobate crystals by high-energy particle radiation“, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 2107 (2006).
- M.-R. Zamani-Meymian and K. Peithman and K. Maier and H. Schmid and G. Schröder and W. Mader, „Direct visualization of damage cascades in lithium niobate crystals caused by high-energy ions“, *J. Phys. C: Solid State Phys.* (in Vorbereitung).



# DANKSAGUNG

An dieser Stelle möchte ich all jenen meinen herzlichen Dank aussprechen, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

An erster Stelle danke ich dem lieben Gott, den durch seine Fürsorglichkeit und Kraft bin ich zu dem geworden was ich jetzt bin.

Ich bedanke mich bei Herrn Prof. Dr. K. Maier für die einmalige Chance, die er mir gab, meine Lehre bei ihm absolvieren zu dürfen. Ihm gebührt mein herzlichster Dank für die ausgezeichnete Betreuung der Arbeit, seine ständige Diskussionsbereitschaft und Unterstützung. Seine tollen Ideen und Hinweise waren immer meine Retter. Weiterhin möchte ich mich für die wunderbare Zeit in seiner Fakultät bedanken, welche nicht nur eine Bereicherung im Hinblick auf meine Lehre war, sondern auch mich als Mensch weiterentwickelt und geformt hat. Die wunderbare Atmosphäre, die er geschaffen hat, war einmalig. Sein Erscheinen war immer freundlich und ihm voraus war sein beruhigendes Lächeln, sodass ich in seinem Wesen meinen Vater gesehen habe, den ich seit Jahren nur in meinen Gedanken habe.

Besonders bedanken möchte ich mich auch bei Herrn Prof. Dr. W. Mader, der die TEM-Untersuchungen erst ermöglicht und selbst viel dazu beigetragen hat. Darüber hinaus danke ich ihm für die ständige Diskussionsbereitschaft, Unterstützung und die freundliche Übernahme des Korreferats.

Ich danke Herrn Dr. K. Peithman, ohne dessen Hilfe dieses Werk nie zustande gekommen wäre. Ihm gebührt mein herzlichster Dank für seine Mühen und Unermüdlichkeit, mit welcher er diese Arbeit vorangetrieben hat. Mit Stolz kann ich bekunden, dass nur durch seine wegweisenden Ratschläge und seine fürsorglichen Betreuung heute diese Arbeit zustande gekommen ist. Die Arbeit mit ihm war voller wissenschaftlicher Erkenntnisse, die meines Erfahrungsspektrum jeden Tag erweiterte. Seine besondere Aufmerksamkeit, Verantwortlichkeit und die Liebe zur Lehre habe ich nur in wenigen Menschen sehen können und dadurch wurde auch er zu einem Vorbild für mich.

Mein spezieller Dank gilt Herrn Prof. Dr. K. Buse, der mir freundlicherweise und sehr nett die Mitnutzung der Laboreinrichtung seiner Arbeitsgruppe ermöglicht hat. Für viele gute Ratschläge, Ideen und Unterstützung danke ich ihm. Für die ausführliche Einführung in die Arbeit mit dem Interferometer gebührt mein herzlicher Dank Herrn Dr. B. Andreas und Herrn Dipl.-Phys. I. Breunig, die bei dringenden Fragen und Probleme immer zur Verfügung standen und mir tatkräftig geholfen haben.

Herrn Prof. Dr. J. Hormes danke ich, dass er die Untersuchungen zum XAS erst ermöglicht und selbst viel dazu beigetragen hat. Für die Durchführung der XAS-Messungen und gute Zusammenarbeit danke ich auch Frau T. Vitova.

Der letzte Teil dieser Arbeit wäre ohne die TEM-Messungen und die aufwendigen Auswertungen von Herrn Dr. H. Schmid nicht denkbar gewesen. Dafür und für seine ständige Diskussionsbereitschaft gebührt ihm mein herzlicher Dank. Mein besonderer Dank geht

auch an Frau G. Schröder, deren große Hilfsbereitschaft bei der Präparation von Kristallen einige Messungen erst ermöglicht hat.

Ferner danke ich den Mitarbeitern der Feinmechanik-, Elektronik- und Polierwerkstatt für die Anfertigung von Spezialgeräten und gelungene Zusammenarbeit.

Außerdem möchte ich der ganzen Zyklotron-Mannschaft für ihren Einsatz und für die vielen einwandfreien Strahlzeitstunden danken, besonders möchte ich den Herren B. Kahn, A. Henny und O. Rast für die sorgfältige Durchführung der Strahlzeiten und sehr gute Arbeit danken.

Großer Dank gebührt auch allen Mitgliedern und Ehemaligen der Arbeitsgruppe Maier für das ausgezeichnete Arbeitsklima, dass ich in dieser Zeit genießen konnte, besonders möchte ich T. Müller, B. Klobes, J. Fingerhuth, O. Oehms und S. Hühne für ihre Unterstützungen in vielen technischen Fragen bedanken.

Großer Dank geht an Herrn Dr. M Haaks für seine gute Ratschläge und Ideen, besonders seine Hilfe bei der Aktivitätsmessung.

Auch danke ich meinen Zimmerkollegen der Arbeitsgruppe Fiebig, besonders Herrn T. Hoffmann für seine Hilfe mit dem Tex-Programm.

Herzlich danke ich meiner Arbeitskollegin Frau C. Negrini, die immer zwei offene Ohren für meine Probleme hatte und ihre Worte mir immer beruhigend waren.

Der Deutschen Forschungsgemeinschaft sei für die finanzielle Unterstützung gedankt.

Den größten Dank bin ich meiner Frau Solmaz Davari schuldig, die mich durch alle Höhen und Tiefen meines Studiums begleitet und mit großer Geduld meine Eigenarten ertragen hat.

An dieser Stelle bin ich meiner Schwägerin Frau M. Ekhteraei Tosi für ihre ständige Bemühungen und Unterstützungen dankbar.

Besonders bedanke ich mich bei meinem Neffen A. Zamani, der mir während des Studiums ständig zur Seite gestanden hat.

Der größte Dank gilt meiner Familie, die mich auf meinem gesamten Lebensweg begleitet und weitaus mehr gefördert als gefordert hat. Danke, dass sie immer an mich geglaubt haben und mich nach Kräften unterstützten.

Schließlich muss ich zugeben, dass ich acht Jahre lang in Deutschland gewohnt und geatmet habe. In dieser Zeit haben viele Leute mir geholfen und ich habe die Möglichkeiten dieses Landes benutzt, um meine Fortschritte zu machen. Meine Aufenthalt in Deutschland hat mein Leben geändert. Sehr wertige Erfahrungen habe ich hier gemacht und einen wichtigen Teil meiner Bildung hat Deutschland mir beigebracht. Deshalb möchte ich an dieser Stelle vom tiefen Herzen sagen:

Ich vergesse Dich nicht  
und  
Danke Dir Deutschland!