
Brechungsindex und Polungsverhalten in Lithiumniobat nach ^3He -Bestrahlung

von

Lena Jentjens

Diplomarbeit in Physik

angefertigt am

Helmholtz-Institut für Strahlen- und Kernphysik

vorgelegt der

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

März 2008

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

Referent: Prof. Dr. Karl Maier

Koreferent: Prof. Dr. Manfred Fiebig

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Theoretische Grundlagen	3
2.1	Physikalische Eigenschaften von Lithiumniobat	3
2.1.1	Kristallstruktur und Symmetrie	3
2.1.2	Domäneninversion	3
2.1.3	Optisches Verhalten	5
2.2	Defekte in Lithiumniobat	6
2.2.1	Intrinsische Defekte	6
2.2.2	Extrinsische Defekte	6
2.2.3	Strahlenschäden	7
3	Experimentelle Methoden	9
3.1	Proben	9
3.2	Bestrahlen der Proben am Zyklotron	10
3.2.1	Rondellbestrahlungen	11
3.2.2	Gitterbestrahlungen	12
3.3	Messung des Beugungswirkungsgrades	14
3.4	Interferometrische Messung der Brechungsindex- und Dickenänderung . . .	15
3.5	Polen der Kristalle	20
3.5.1	Rampenpolen	21
3.5.2	Messung der Leitfähigkeit	21
3.5.3	Pulspolen	22
3.5.4	Strukturiertes Polen	22
3.6	Visualisierung von Domänen	23
3.6.1	Domänensensitives Ätzen	23

3.6.2	Spannungsdoppelbrechung	24
3.6.3	Rasterkraftmikroskopie	24
4	Experimentelle Resultate	25
4.1	Verfärbung und Dosis	25
4.2	Brechungsindex- und Dickenänderungen	26
4.2.1	Dosisabhängigkeit	26
4.2.2	Thermische Behandlung	28
4.2.3	Gitterbestrahlungen	29
4.3	Beugungswirkungsgrad der Gitterbestrahlung	29
4.4	Polungsverhalten	30
4.4.1	Dosisabhängigkeit	32
4.4.2	Thermische Stabilität	32
4.4.3	Mit periodischer Maske	34
4.4.4	Gitter	39
4.5	Leitfähigkeitsbestimmung	39
5	Diskussion	41
5.1	Verfärbung	41
5.2	Brechungsindex und Deformation	41
5.2.1	Thermische Ausheilung	42
5.2.2	Gitterherstellung	43
5.3	Polungsverhalten	43
5.3.1	Physikalische Vorgänge	43
5.3.2	Symmetriezwang	44
5.3.3	Ausheilung	45
5.3.4	PPLN-Herstellung	45
5.4	Leitfähigkeit	46
5.5	Vergleich mit beleuchteten Proben	48
5.6	Ausblick	49
6	Zusammenfassung	51
	Danksagung	57

1 Einleitung

"...so bedurften die vom Meere Heranschiffenden eines hohen und leuchtenden Zeichens, um des Hafens Einfahrt genau zu treffen“ so beschreibt der griechische Geschichtsschreiber Strabon zu Zeiten Christi Geburt eines der sieben Weltwunder, den Pharos von Alexandria. Dieses Beispiel aus der Antike verdeutlicht die enorme Bedeutung eines uralten Kommunikationsmittels für die Menschen - das Leuchtfeuer.

Die moderne optische Datenübertragung wurde 1960 mit der Erfindung des Lasers eingeleitet. Das sich durch eine hohe Monochromasie und Kohärenz auszeichnende Laserlicht führte in den folgenden Jahren und Jahrzehnten zu einer revolutionären Entwicklung der Optik - das moderne Leuchtfeuer!

Neben zahlreichen Anwendungen in Wissenschaft, Medizin, Industrie und Alltag sind vor allem Datenübertragung und -speicherung von zentralem Interesse. Beispielsweise konnte durch die Einführung von Glasfaserkabeln die Übertragungskapazität von Kommunikationsnetzwerken deutlich gesteigert und verbessert werden, wird allerdings oftmals durch elektronische Bauteile begrenzt, die vor allem das Verschalten der Signale leisten müssen. Wünschenswert wäre eine rein optische Datenübertragung, für die integriert-optische Komponenten zur Erzeugung, Steuerung, Schaltung und Umwandlung von Licht erforderlich sind.

Zur Realisierung derartiger Bauteile werden Materialien mit bestimmten physikalischen Eigenschaften benötigt. Lithiumniobat-Kristalle haben sich in vielen Fällen als gut geeignet erwiesen und kommen in vielen Bereichen der angewandten Optik zum Einsatz. Durch Modifizierung der Materialparameter wie z.B. dem Brechungsindex ist es Grundlage für holographische Speicher [1] und holographische Wellenlängenfilter in telekommunikativen Netzwerken [2]. Weitere Beispiele sind optische Wellenleiter, Modulatoren [3], integrierte Laser [4] und Interferometer [5, 6]. Von besonderem Interesse sind Kristalle mit hohen nichtlinearen Koeffizienten, die sich zur Frequenzkonversion einsetzen lassen und somit die Realisierung kurzweiliger Laserlichtquellen ermöglichen. In Lithiumniobat bietet sich die Möglichkeit der Frequenzverdopplung [7, 8]. Bei dieser Methode wird eine eingestrahlte Grundwelle der Frequenz ω zur zweiten harmonischen Oberschwingung mit der Frequenz 2ω angeregt („second harmonic generation“, SHG) [9]. Um einen effizienten Energieübertrag zu erzielen, muss der stetig anwachsende Phasenunterschied, der aus der chromatischen Dispersion entsteht, kompensiert werden. Ein besonders effektives Verfahren wurde bereits vor über 30 Jahren vorgeschlagen: die Quasi-Phasenanpassung („quasi-phase-matching“, QPM) [9, 10]. Hierbei wird bei einer Phasendifferenz von π zwischen den beiden Wellen der nichtlineare Koeffizient des Materials umgekehrt, was zu einem Phasensprung um π in der erzeugten Oberschwingung führt und somit wieder einen resonanten Energieübertrag in die frequenzverdoppelte Oberschwingung ermöglicht. Besitzt

die Invertierung der nichtlinearen Koeffizienten genau die richtige Periodenlänge ist ein resonanter Energieübertrag über lange Strecken möglich.

In ferroelektrischen Kristallen wie Lithiumniobat kann der Vorzeichenwechsel der nichtlinearen Koeffizienten durch eine Änderung der spontanen Polarisierung erzielt werden, die aus einer Ladungsverschiebung im Kristall herrührt. Aufgrund der Symmetrien existieren zwei antiparallele Orientierungen \uparrow und \downarrow , durch die eine Erzeugung von periodisch gepoltem Lithiumniobat („periodically-poled lithium niobate“, PPLN) ermöglicht wird. Die gängige Methode zur Herstellung dieser periodischen Strukturen nutzt ein äußeres elektrisches Feld, das beim Überschreiten der sogenannten Koerzitivfeldstärke zu einer Umkehrung der Orientierung führt. Der Kristall ist dabei mit einer lithographisch hergestellten strukturierten Elektrode kontaktiert, die zu einer periodischen Polung führt. Die Herstellung lithographischer Elektroden ist aufwändig und besonders für dicke Kristalle ist die Erzeugung kleiner Periodenlängen schwierig. Momentan sind PPLN-Kristalle mit Periodenlängen bis etwa $4 \mu\text{m}$ [11] erhältlich, für viele Anwendungen werden allerdings noch kleinere Strukturen benötigt. Es wird also nach alternativen oder erweiterten Methoden zur strukturierten Polung in diesem Material gesucht.

Im Rahmen dieser Arbeit werden Materialeigenschaften durch die Bestrahlung mit schnellen leichten Ionen beeinflusst [12]. Es werden die Auswirkungen auf das Polungsverhalten untersucht, das eine zentrale Rolle bei der Herstellung von PPLN hat. Hierbei liegt der Schwerpunkt auf Lithiumniobat, welches mit Magnesium dotiert ist. Übersteigt die Dotierung einen gewissen Schwellwert, kann der sogenannte optische Schaden unterdrückt werden, was für viele Anwendungen erwünscht ist; allerdings gestaltet sich die Herstellung kleiner periodisch gepolter Strukturen in diesem Material als äußerst schwierig, da aufgrund der geringen Defektdichte weniger Nukleationskeime vorhanden sind, an denen die Umpolung einsetzen kann. Bestrahlungen führen zu einer erhöhten Defektdichte im Kristall, die das Polungsverhalten beeinträchtigen können und so im besten Fall zu einer erleichterten PPLN Herstellung führen können.

Der zweite Schwerpunkt liegt in der Untersuchung des Brechungsindex. Es wurde bereits gezeigt, dass der Brechungsindex von Lithiumniobat durch Bestrahlung mit ^3He -Ionen mit einer Energie von 40 MeV zu langzeitbeständigen, großvolumigen Brechungsindexänderungen führt. Es konnten Änderungen in der Größenordnung 10^{-3} [13, 14] erzielt werden, die zur Erzeugung vergrabener Wellenleiter genutzt werden konnten [15]. Diese Untersuchungen sollen in dieser Arbeit an magnesiumdotiertem Lithiumniobat durchgeführt werden und mit den Ergebnissen der undotierten Kristalle verglichen werden. Ein weiteres Thema ist die Herstellung eines periodisch bestrahlten Kristalls. Durch einen wenige μm breiten, verschiebbaren Schlitz lassen sich periodische Muster erzeugen. Auf diese Weise konnten bereits Brechungsindexgitter [16] verwirklicht werden, die weiter untersucht werden. Darüberhinaus kann durch diese Art der Bestrahlung eventuell eine periodische Defektstruktur in den Kristall eingebracht werden, die Auswirkungen auf das Polungsverhalten hat und somit eine Alternative zur Herstellung von PPLN mit lithographischen Masken sein könnte.

2 Theoretische Grundlagen

Lithiumniobat ist ein seit 1928 bekanntes, künstlich hergestelltes Material [17] mit der chemischen Summenformel LiNbO_3 . Bei einer Temperatur von 1253°C wird es mit Hilfe des Czochralski-Verfahrens direkt aus einer Schmelze von Li_2O und Nb_2O_5 gezogen. Bei der Herstellung nach diesem Verfahren erhält man zylindrische Boules, die in dünne Wafer geschnitten werden können. Dieser Diplomarbeit liegen auf diese Weise hergestellte LiNbO_3 -Proben zugrunde, deren Eigenschaften in diesem Kapitel vorgestellt werden.

2.1 Physikalische Eigenschaften von Lithiumniobat

2.1.1 Kristallstruktur und Symmetrie

Bei Raumtemperatur befindet sich LiNbO_3 in der ferroelektrischen Phase, die in Abbildung 2.1(a) dargestellt ist. Die Sauerstoffionen (O^{2-}) bilden in hcp-Struktur angeordnete Ebenen, die entlang der z -Achse abwechselnd von Niob-Ionen (Nb^{5+}), Leerstellen und Lithium-Ionen (Li^+) aufgefüllt werden. Die deutlich zu erkennende Verschiebung der Niob- und Lithium-Ionen zu den Sauerstoffebenen führt zu einer Ladungsverschiebung innerhalb des Kristalls. Außerhalb sorgen frei bewegliche Ladungsträger für eine Ladungskompensation an der Oberfläche.

Durch die Ladungsverschiebung entsteht im Inneren eine Spontanpolarisierung P_S , die mit der Richtung der z -Achse zusammenfällt. Um diese Achse besitzt Lithiumniobat eine dreizählige Rotationsymmetrie sowie eine Spiegelsymmetrie, die in Abbildung 2.1(b) veranschaulicht sind. Das Material gehört somit zur Punktgruppe $3m$.

Die Ferroelektrika bilden eine Untergruppe der Pyroelektrika, welche wiederum eine Untergruppe der Piezoelektrika sind. LiNbO_3 ist somit sowohl pyro- als auch piezoelektrisch. Oberhalb einer kritischen Temperatur, der sogenannten Curie-Temperatur T_c , durchlaufen Ferroelektrika einen Phasenübergang, der zu einem Verschwinden der Spontanpolarisierung führt. Oberhalb dieser Temperatur, die für LiNbO_3 bei $T_c = 1165^\circ\text{C}$ liegt, ist der Kristall paraelektrisch.

2.1.2 Domäneninversion

Bereiche des Kristalls mit gleicher Polarisierungsrichtung P_S werden, in Analogie zum Ferromagnetismus, als ferroelektrische Domäne bezeichnet. Anders als bei magnetischen Domänen können sich ferroelektrische Domänen nur in Richtungen ausbreiten, die mit dem Kristallgitter verträglich sind. In Lithiumniobat sind nur zwei antiparallele Orien-

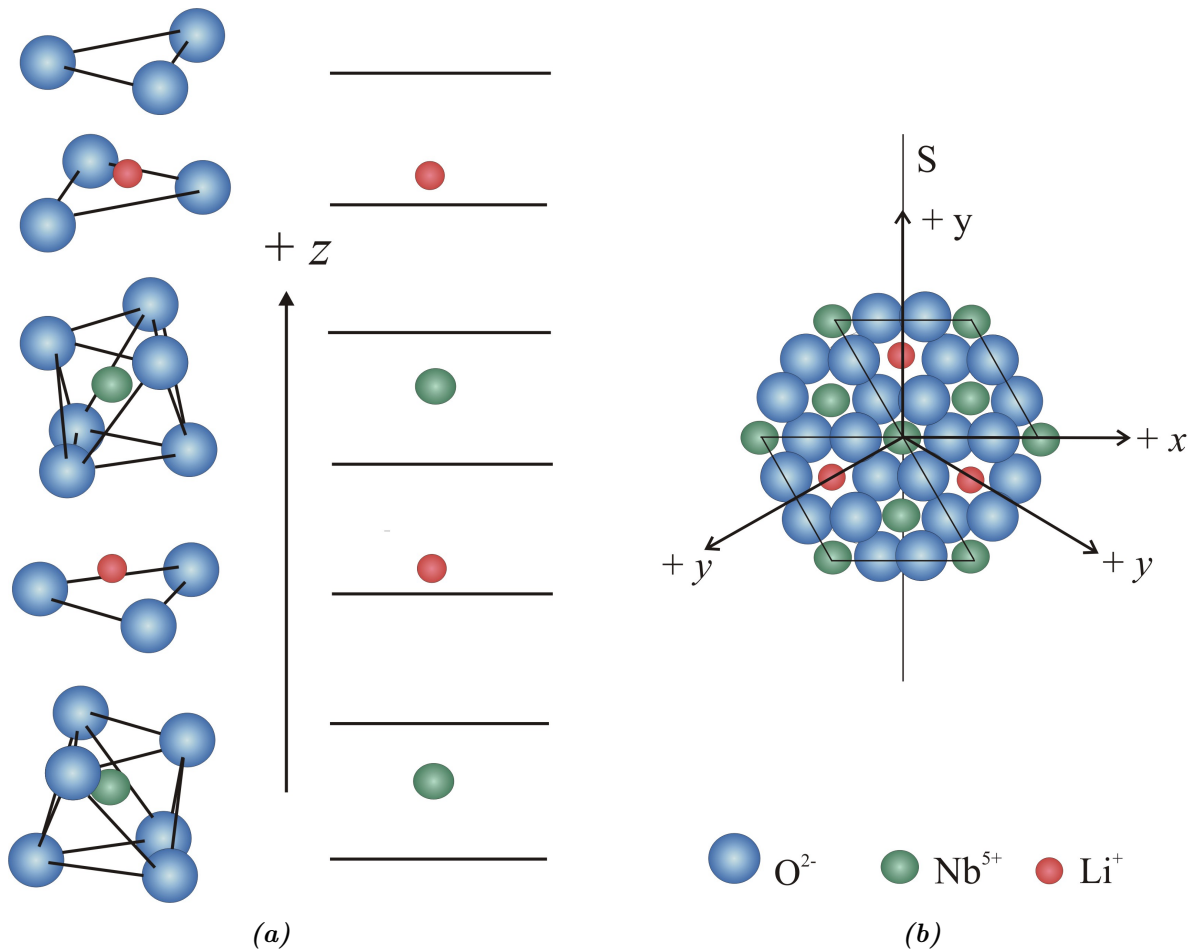


Abbildung 2.1: Kristallstruktur von $LiNbO_3$ in der ferroelektrischen Phase: (a) zeigt die Positionen der Lithium- und Niob-Ionen im Verhältnis zu den Sauerstoffebenen (nach [7]). Aufgrund der Ladungsverschiebung kommt es zu einer spontanen Polarisierung P_S entlang der kristallographischen z -Achse. (b) veranschaulicht durch Projektion der Atome auf die z -Seite (nach [18]) die hexagonale Kristallsymmetrie, die in den Domänenformen wiederzufinden ist.

tierungen entlang der z -Achse möglich, daher spricht man von 180° -Domänen. Wie man sich an Abbildung 2.1.1(b) verdeutlichen kann, bilden sich die Domänen bevorzugt in hexagonaler Form aus.

Die Richtung der Spontanpolarisierung P_S lässt sich durch ein entgegen der z -Achse anliegendes Feld invertieren. Diesen Vorgang bezeichnet man entsprechend als „Domäneninversion“ oder „Umpolen“. Die Polungsrichtung eines unbehandelten Kristalls wird allgemein als „Vorwärtspolung“ bezeichnet, die entgegengesetzte Richtung entsprechend als „Rückwärtspolung“. Im Kristall werden dabei ab einer bestimmten Feldstärke, dem sogenannten Koerzitivfeld E_c , die Lithium-Ionen durch die Sauerstoffebenen gedrückt und die Niob-Ionen zur anderen Seite, im Vergleich zur symmetrischen Position, verschoben. Diese heute gängige Methode der Domäneninversion [19] gelang bei kongruent schmelzenden $LiNbO_3$ -Kristallen aufgrund der extrem hohen Koerzitivfeldstärke von über 20 kVmm^{-1} [20] erst in den Neunzigern [21] und brachten dem Material die Bezeichnung „frozen ferroelectric“ [22] ein. Durch die Domäneninversion müssen sich auch die Kompensationsladungsträger

auf den Kristalloberflächen umverteilen. Die dabei umverteilte Ladungsmenge Q ergibt sich aus der doppelten Polarisierung P_S und der umgepolten Fläche A und lässt sich als „Polungsstrom“ messen:

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

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

Die Spontanpolarisierung von Lithiumniobat ist dabei mit $P_S = 0.71 \text{ Cm}^{-2}$ gegeben [23]. Beim Umpolen der Kristalle ergeben sich unterschiedliche Feldstärken für die Polung in Vorwärts- E_c^v und die Polung in Rückwärtsrichtung E_c^r . Ursache ist ein zugrunde liegendes internes elektrisches Feld, das von Defekten im Kristallinneren herrührt:

$$E_{\text{int}} = \frac{1}{2}(E_c^v - E_c^r) \quad (2.3)$$

Außerdem unterscheiden sich die ersten beiden Polungsfeldstärken, $E_c^{(1)}$ in Vorwärts- und $E_c^{(-1)}$ in Rückwärtsrichtung im unbehandelten Kristall von allen Folgenden und werden daher immer gesondert betrachtet.

Dynamik der Domäneninversion

Wird die Domäneninversion nicht unendlich langsam durchgeführt, spielt die Dynamik dieses Prozesses eine wichtige Rolle. Beim Erhöhen des elektrischen Feldes erreicht man zunächst die Nukleationsfeldstärke E_n , bei der sich kleine Domänenkeime auf einer der z -Seiten bilden, die nadelförmig in die Tiefe wachsen [24]. Die Ausdehnung dieser Nukleationskeime ist so gering, dass sie durch den Polungsstrom kaum messbar ist. Bei weiterem Erhöhen der Feldstärke wachsen die Keime weiter in die Tiefe, entlang der z -Achse, und in die Breite, also in x - und y -Richtung. Von Volumendomänen spricht man, wenn sich der umgepolte Bereich bereits von der $+z$ - bis zur $-z$ -Achse erstreckt. In diesem Stadium entstehen keine neuen Keime mehr und die Wände der Volumendomäne breiten sich aus. An diesem Punkt beginnt die großflächige Inversion, die sich durch den stark ansteigenden Polungsstrom bemerkbar macht. Die Geschwindigkeit, mit der das elektrische Feld erhöht wird, wirkt sich auf den dynamischen Prozess aus. Bei einem langsamen Erhöhen werden die einzelnen Phasen der Inversion deutlicher, während die Effekte bei sehr schneller Erhöhung verschmieren.

2.1.3 Optisches Verhalten

Aufgrund seiner Kristallstruktur ist Lithiumniobat **doppelbrechend**. Entlang der z -Achse polarisiertes Licht erfährt den außerordentlichen Brechungsindex n_e , senkrecht zur z -Achse polarisiertes den ordentlichen Brechungsindex n_o . Die Doppelbrechung

$$\delta n(\lambda, T) = n_e(\lambda, T) - n_o(\lambda, T) \quad (2.4)$$

hängt von der Lichtwellenlänge λ und der Temperatur T ab. Für die Beleuchtung von LiNbO_3 mit einem HeNe-Laser der Wellenlänge $\lambda = 633 \text{ nm}$ ergibt sich mit $n_e = 2.2028$ und $n_o = 2.2866$ eine negative Doppelbrechung δn [7].

Lithiumniobat besitzt **elektro-optische Eigenschaften**, was bedeutet, dass der Brechungsindex durch ein elektrisches Feld verändert wird. Mit Fe, Cu oder Mn dotierte oder verunreinigte LiNbO_3 Kristalle sind zudem **photorefraktiv**: Eine inhomogene Beleuchtung des Kristalls sorgt für einen lichtinduzierten Ladungstransport der Elektronen aus ‘hellen’ in ‘dunkle’ Bereiche. Es entstehen Raumladungsfelder, die über den elektro-optischen Effekt den Brechungsindex ändern. Dieses auch als „optical damage“ bezeichnete Phänomen kann unter anderem durch eine Dotierung mit Magnesium, Zink oder Indium nahezu vollständig unterdrückt werden und wird in Kapitel 2.2.2 näher erläutert.

Die Polarisierung eines Materials ergibt sich durch eine Entwicklung nach dem elektrischen Feld. In LiNbO_3 führen die Terme höherer Ordnung zu **optisch nichtlinearen Eigenschaften**. Dieses Verhalten macht es unter anderem für die Frequenzverdopplung interessant.

LiNbO_3 besitzt zudem photoelastische Eigenschaften, welche die Grundlage für akustische und akustooptische Anwendungen bieten.

2.2 Defekte in Lithiumniobat

2.2.1 Intrinsische Defekte

Für Lithiumniobat mit idealer Kristallstruktur, sogenannte stöchiometrische Kristalle, beträgt das Verhältnis $[\text{Li}]/[\text{Nb}]=1$. Die Herstellung nahezu stöchiometrischer Kristalle ist mittlerweile möglich, im Allgemeinen wird jedoch ein Verhältnis von $[\text{Li}]/[\text{Nb}]=0.942$ [25] genutzt und das so erzeugte Lithiumniobat als kongruent schmelzend bezeichnet. Aufgrund dieses Verhältnisses entsteht ein Lithium-Mangel. Die Fehlstellen des Li^+ werden teilweise durch Nb^{5+} besetzt. Die durch diese Antisite-Defekte (Nb-auf-Li) hervorgerufene Umordnung führt dazu, dass sich Niob-Fehlstellen bilden um die Ladungskompensation zu gewährleisten. Fehlstellen sind somit die vorherrschende Defektart in LiNbO_3 .

2.2.2 Extrinsische Defekte

Durch Dotierungen oder Verunreinigungen entstehen extrinsische Defekte in der Kristallstruktur. Durch die vielen intrinsischen Defekte lässt sich LiNbO_3 gut dotieren. Verschiedene Dotierungsmaterialien sind möglich, im Rahmen dieser Arbeit wird ausschließlich Magnesium benutzt. Die Fehlstellen des Li^+ werden so durch Mg^{2+} statt mit Nb^{5+} besetzt. Auf diese Weise wird die Ladungskompensation im Kristall kleiner und die Anzahl der Niob-Fehlstellen sinkt. Ab einer bestimmten Magnesiumkonzentration M_c sind alle Antisite-Defekte (Niob-auf-Lithium) durch Magnesium ersetzt, ein Erhöhen der Konzentration bewirkt den Einbau von Magnesium auf normalen Niob-Plätzen. Das Verschwinden der Antisite-Defekte (Nb-auf-Li) führt zu kleineren Raumladungsfeldern aufgrund der erhöhten Photoleitfähigkeit und somit zu einer Reduktion des optischen Schadens („optical damage“). Für kongruent schmelzendes Lithiumniobat ergibt sich ein Wert von etwa 5 mol % für die Magnesiumkonzentration [26], der auch als „optical damage threshold“

bezeichnet wird. Bei stöchiometrischem Material genügt eine Konzentration von 1 mol % um den optischen Schaden weitgehend zu unterdrücken [27].

2.2.3 Strahlenschäden

Dringen Ionen in Materie ein, verlieren sie auf ihrem Weg Energie. Am Anfang kommt der Energieverlust hauptsächlich durch elektronische Wechselwirkung zustande und kann durch die Bethe-Bloch-Gleichung beschrieben werden [12, 28, 29]. Mit steigender Eindringtiefe nimmt die Geschwindigkeit der Ionen ab und der Anteil der elastischen Stöße mit den Targetkernen zu. Der Energieverlust, der von vielen Parametern wie dem Targetmaterial, der Energie, der Ionensorte und der Ionendosis abhängt, kann mit dem Programm SRIM 2006 [28–30] simuliert werden. Abbildung 2.2 zeigt den simulierten Energieverlust von 40 MeV ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen in LiNbO_3 entlang der Probentiefe. Es ist deutlich zu erkennen, dass die Ionen entlang ihrer Flugbahn einen Energieverlust erleiden, der im Braggpeak maximal wird. An dieser Stelle, die auch Stopptiefe genannt wird, besitzen die Ionen keine Energie und somit auch keine Geschwindigkeit mehr und können nicht weiter ins Material eindringen.

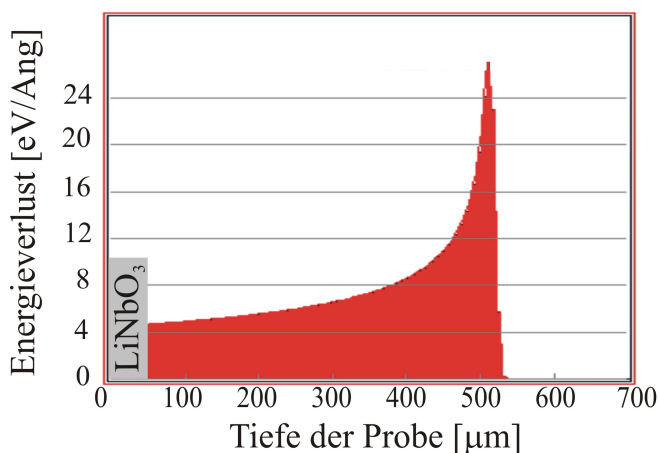


Abbildung 2.2: Mit dem Programm SRIM 2006 [30] erzeugte Simulation des Energieverlustes $\Delta E/\Delta x$ von 40 MeV ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen im LiNbO_3 -Kristall entlang der Probentiefe.

Neben den Defekten durch Stöße kommt es aufgrund der Ionisation der Targetatome entlang der Flugbahn zu Coulomb-Abstoßung der positiv geladenen Rumpfe, was eine Verlagerung im Kristall verursacht. Trotz der Relaxation kommt es zu Fehlstellen entlang der Flugbahn sowie zu Zwischengitteratomen in der näheren Umgebung.

Die nach der Bestrahlung des LiNbO_3 -Kristalls bleibenden Schäden sind noch nicht genau bekannt. Für kleine Ionen-Energien werden in der Literatur bereits einige Ergebnisse vorgestellt. Vorgeschlagen werden eine Verlagerung von Lithium Li^+ [31], insbesondere eine Diffusion in den durchstrahlten Bereich hinein [32], die Erzeugung von Sauerstofffehlstellen [33, 34] sowie, trotz teilweiser Relaxation, eine Gitterverzerrung und damit einhergehende Spannungsfelder im Kristall [32]. Durch die Verringerung der kristallinen Ordnung kann sich der Kristall ebenfalls etwas ausdehnen [35] und seine spontane Polarisierung gesenkt werden.

Als Konsequenz der Bestrahlung und den damit verbundenen Defekten lassen sich Brechungsindexänderungen sowie Verfärbungen der Kristalle beobachten.

3 Experimentelle Methoden

In diesem Kapitel werden zunächst die verwendeten Proben vorgestellt, gefolgt von der Beschreibung der Bestrahlung. Des Weiteren werden die verwendeten Methoden zur Bestimmung des Beugungswirkungsgrades, der interferometrischen Messungen und der Domäneninversion vorgestellt. Abschließend werden Verfahren zur Visualisierung von Domänenmustern beschrieben.

3.1 Proben

Die dieser Arbeit zugrunde liegenden Proben wurden aus Lithiumniobat-Wafern geschnitten. Die Wafer liegen im „z-cut“ mit einer Dicke von 0.5 mm vor und sind beidseitig in optischer Qualität poliert. Bei der Auswahl der Probendicke wurde darauf geachtet, dass die Stopptiefe der Ionen (Bragg-Peak) außerhalb des Kristalls liegt. Auf diese Weise durchfliegen die Ionen den Kristall und große mechanische Spannungen in diesem Bereich, die zu erhöhter Brüchigkeit führen, werden vermieden. Abbildung 3.1 zeigt die Simulation der Reichweite von 40 MeV ^3He -Ionen in Lithiumniobat. Eine Dotierung mit Magnesium liefert annähernd gleiche Resultate, so dass eine Probendicke von $500\ \mu\text{m}$ für alle benutzten Kristalle gut geeignet ist. Üblicherweise wird ein Zuschnitt von $(x \times y) = 16 \times 15\ \text{mm}^2$ gewählt. Durch Abschleifen einer Kante und die rechteckige Form können die Achsen später eindeutig identifiziert werden.

Tabelle 3.1 gibt eine Übersicht der verwendeten Proben. Alle werden von den Herstellern Yamaju Ceramics Co. Ltd. (Japan) bzw. Deltronics Inc. (USA) bezogen und unterscheiden sich in der Magnesium-Dotierung und der Stöchiometrie.

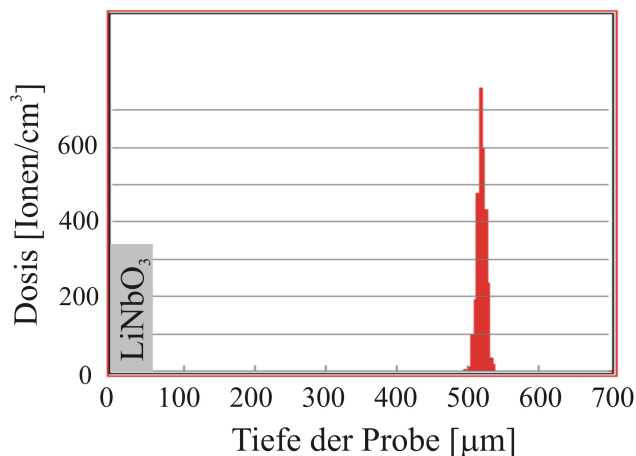


Abbildung 3.1: Mit dem Programm SRIM 2006 [30] erzeugte Simulation der Reichweite von 40 MeV $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen im LiNbO_3 -Kristall entlang der Probentiefe.

Probenname	Hersteller	Mg-Dotierung	Zusammensetzung
LNC-Serie	YamCer	5.0 mol %	kongruent schmelzend
LNS-04	Del	1.0 mol %	stöchiometrisch
LNS-14	Del	1.0 mol %	stöchiometrisch
LNS-15	Del	1.0 mol %	stöchiometrisch
G-1	YamCer	0 mol %	kongruent schmelzend
G-2	YamCer	5.0 mol %	kongruent schmelzend
G-3	YamCer	5.0 mol %	kongruent schmelzend
G-4	YamCer	5.0 mol %	kongruent schmelzend

Tabelle 3.1: Alle Proben stammen von den Herstellern Yamaju Ceramics bzw. Deltronics und weisen Unterschiede in Magnesium-Dotierung und der Zusammensetzung auf. Die LNC-Serie umfasst 19 Proben, die aber alle gleiche Dotierung und Stöchiometrie besitzen.

3.2 Bestrahlen der Proben am Zyklotron

Strahlplatz

Die Bestrahlung der Proben wird am Bonner Isochron-Zyklotron des Helmholtz-Institutes für Strahlen- und Kernphysik durchgeführt [36]. Es werden ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen mit einer Energie von 40 bis 41 MeV benutzt. Diese haben sich als besonders geeignet erwiesen, da sie die Aktivierung der LiNbO_3 -Probe durch langlebige radioaktive Isotope weitestgehend verhindern. Am Strahlplatz 8 werden die Proben ins Vakuum eingebaut. Aufgrund seiner Strahlführung, die in Abbildung 3.2 zu sehen ist, eignet sich dieser Strahlplatz besonders gut um einen nahezu parallelen Ionenstrahl auf die Probe zu fokussieren.

Experiment

Um die bei der Bestrahlung entstehende Wärme abführen zu können, werden die Proben mit Wärmeleitpaste an den Probenhalter kontaktiert. Eine zusätzliche Fixierung mit kleinen schraubbaren Klemmen sorgt für den nötigen Halt. Der Ionenstrahl wird an den Strahlplatz gelenkt und auf einem Leuchtschirm sichtbar gemacht, auf diese Weise lassen sich Position und Form des Strahls bestimmen. Hat der Strahl die gewünschte Orientierung, fährt man den Leuchtschirm aus und der Strahl fällt auf eine Graphitblende mit einer schlitzförmigen Öffnung. Auf Abbildung 3.3 erkennt man oberhalb und unterhalb dieser Öffnung zwei kleine Graphit-Backen, die durch Glimmerscheiben elektrisch isoliert zur Blende sind. Dadurch kann der Ionenstrom auf den beiden Backen gemessen werden und die Strahllage symmetrisch eingestellt werden. Auch während der Strahlzeit kann so überprüft werden, ob der Strahl stabil bleibt oder sich die Bedingungen ändern. Der Gesamtstrom kann an einem Stopper in etwa 7 m Entfernung zum Experiment bestimmt werden und kann durch zwischzeitliches Einfahren ebenfalls während der Bestrahlung kontrolliert werden.

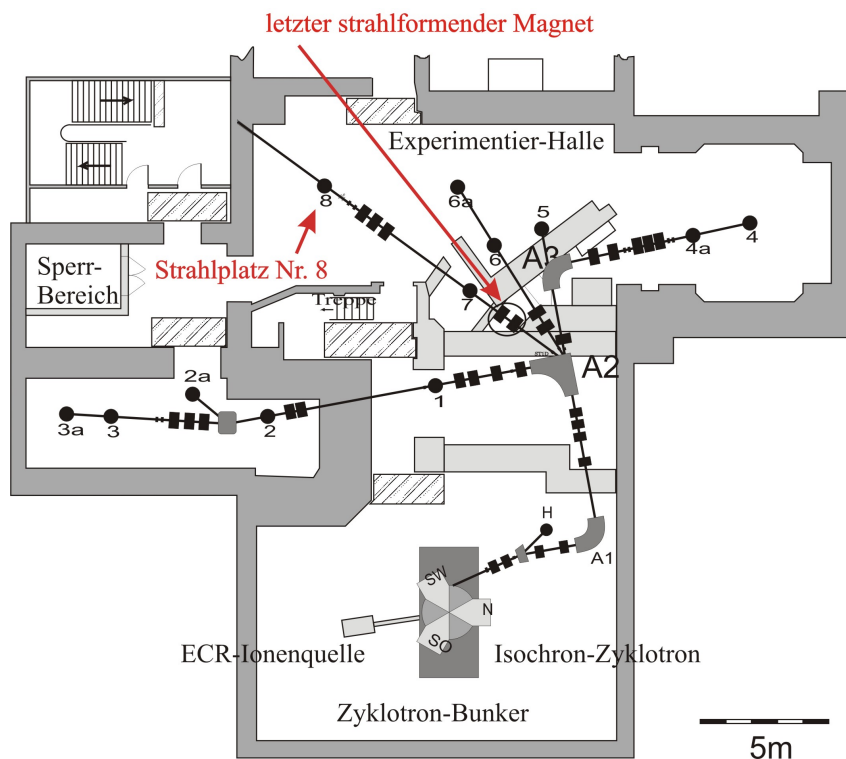


Abbildung 3.2: Strahlführung am Bonner Zyklotron (nach [36]). Im Rahmen der Diplomarbeit wurde der Strahlplatz 8 genutzt.

Ionendosis

Bei den Bestrahlungen liegen auf dem Stopper Ionenströme von 100 – 200 nA an. Auf dem Weg bis zum Experiment ist mit einem Verlust von etwa 40 % zu rechnen. Abzüglich der Ströme auf den beiden Graphitbacken lässt sich so der Strom durch die Blendenöffnung bestimmen. Da je nach Strahleinstellung der bestrahlte Bereich in seiner Größe variiert, wird die Ionendosis auf die bestrahlte Fläche normiert.

Bei Bestrahlungszeiten von wenigen Minuten bis zu einigen Stunden ergeben sich Ionendosen von typischerweise 10^{18} bis 10^{21} m^{-2} .

Für die Berechnung der Fehler wird eine Unsicherheit von 20 % für den Stromverlust auf seinem Weg zum Experiment angenommen. Des Weiteren werden Schwankungen von 5 – 20 nA auf dem Stopper und den beiden Backen, Abweichungen bei der Zeitmessung von einer Minute und Fehler bei der Flächenbestimmung bis zu 1 mm^2 berücksichtigt.

3.2.1 Rondellbestrahlungen

Der Begriff Rondellbestrahlung wird im Rahmen dieser Arbeit für die Bestrahlungen benutzt, bei denen die Proben auf einem drehbaren Teller befestigt sind. Der Aufbau ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Die Größe des Schlitzes in der Blende beträgt etwa $1,8 \times 11,5 \text{ mm}^2$. Je nach Strahleinstellung variiert der bestrahlte Bereich auf der Probe von der vollen Schlitzgröße bis zu einem kleinen Fleck. Auf dem Teller hinter der Blende können

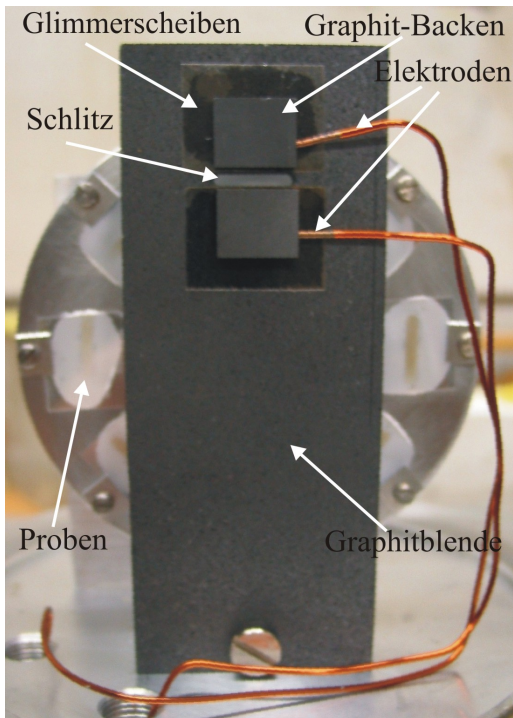


Abbildung 3.3: Bestrahlung mit ^3He am Zyklotron: Die Proben werden mit Wärmeleitpaste an einem drehbaren Probenteller befestigt, der durch eine Steuerung verstellt werden kann. Auf diese Weise können bis zu acht Proben innerhalb einer Bestrahlung präpariert werden. Eine Graphitblende sorgt für die Abschirmung des dahinter befindlichen Aufbaus. Der Ionenstrahl wird durch den Schlitz auf die Proben gelenkt, seine Lage lässt sich während der Bestrahlung durch zwei isolierte Graphitbacken oberhalb und unterhalb des Schlitzes kontrollieren, indem der auftreffende Ionenstrom gemessen wird.

bis zu acht Proben befestigt werden. Während der Strahlzeit kann der Teller (Rondell) mithilfe eines Motors angetrieben und von einem PC-Programm gesteuert werden, so dass eine Probe nach der anderen bestrahlt wird.

Der große Vorteil dieses Aufbaus sind die während einer Messung relativ konstanten Bedingungen. Die absolute Ionendosis ist mit einem großen Fehler behaftet, vergleicht man allerdings die Proben, die innerhalb derselben Serie (Strahlzeit) entstanden sind, kann der relative Fehler der Proben untereinander deutlich kleiner abgeschätzt werden.

3.2.2 Gitterbestrahlungen

Abbildung 3.4(a) zeigt den Aufbau für periodisch modulierte Bestrahlungen (Gitterbestrahlungen). Einer Graphitblende folgt eine weitere Blende aus Tantal, direkt dahinter eine mit Wärmeleitpaste kontaktierte Probe auf einem Verschiebetisch.

Graphitblende

Die Graphitblende besitzt einen Schlitz mit den Maßen von etwa $2 \times 3 \text{ mm}^2$. Um eine Aktivierung der dahinter befindlichen Tantalblende möglichst gering zu halten wird die Öffnung nicht größer gewählt. Oberhalb und unterhalb befinden sich wieder zwei Graphitbacken zur Strommessung und Strahllagenbestimmung. Mit einem Hilfs laser wird geprüft, ob die Öffnungen der beiden Blenden bezüglich der Ionenstrahlrichtung fluchten.

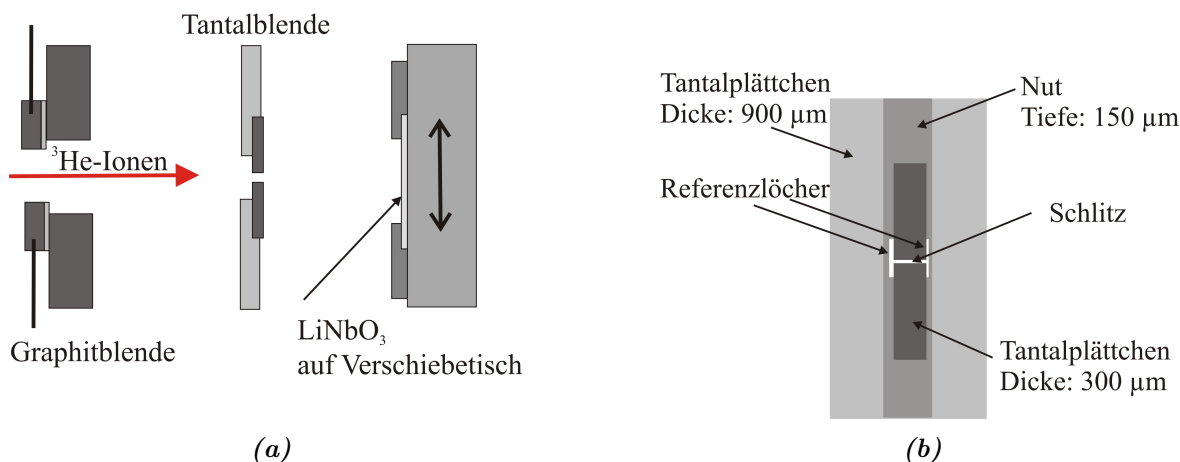


Abbildung 3.4: Gitterbestrahlungen: (a) zeigt den schematischen Aufbau von Graphitblende, Tantalblende und Probe. (b) verbildlicht die Details der Tantalblende.

Tantalblende

Die Schlitzblende ist aus Tantal gefertigt. Dieses Material lässt sich noch relativ gut verarbeiten, ist temperaturbeständig und stark absorbierend für hochenergetische Heliumionen, so dass eine Blendenstärke von 300 µm ausreicht.

Da eine geringe Gitterperiode von nur einigen µm erreicht werden soll, gestaltet sich die Herstellung und Justage der Blende als relativ schwierig. Grundgerüst ist ein 900 µm starkes Tantalplättchen mit den Maßen 1 × 3 cm wie es in Abbildung 3.4(b) gezeigt ist. Entlang der Längsseite verläuft mittig eine 4 mm breite und 150 µm tiefe Nut, in deren Mitte sich ein 3 × 3 mm großes Loch befindet. In die Nut und das Loch zur Hälfte bedeckend wird ein Tantalplättchen der Stärke 300 µm geklebt. Als Klebstoff eignet sich 2-Komponentenkleber, der hitze- und vakuumbeständig ist. Nach Aushärten des Klebstoffes wird die zweite Tantalbacke unter dem Mikroskop in die gewünschte Position gebracht und zunächst mit Schnellfest-Klebstoff fixiert. Da Schnellfest-Klebstoff nicht vakuumbeständig ist, erfolgt eine zusätzliche Fixierung mit 2-Komponentenkleber. Da die beiden Tantalplättchen etwas schmaler als das Loch sind, befinden sich oberhalb und unterhalb des entstandenen Schlitzes zwei Referenzlöcher.

Die gewählte Stärke von 300 µm für die beiden Backen reicht aus, um die Ionen mit einer Energie von 40 MeV vollständig zu absorbieren. Für die Ionen entsteht auf diese Weise ein einige µm breiter und 300 µm langer Schlitz, den sie durchfliegen können. Um Aufstreugung der Ionen hinter dem Schlitz zu verhindern, wird der Schlitz möglichst nahe an die Probe gebracht.

Verschiebetisch und Justierung

Die Probe selber ist mit Wärmeleitpaste an einen Verschiebetisch kontaktiert und wird von kleinen Klemmen zusätzlich gehalten. Der Verschiebetisch wird von einem Motor angetrieben und kann über ein PC-Programm gesteuert werden. Die gewählte Verschiebestrecke ist auf die Schlitzbreite abgestimmt und bestimmt die spätere Gitterperiode.

Auf der Rückseite des Verschiebetisches befindet sich ein kleiner Reflektor, auf den ein von hinten kommender Laserstrahl fällt. Der Laser ist auf die Strahlführung des Zyklotron-Strahlplatzes abgestimmt und zeigt den Verlauf der Ionen an. Die Anordnung aus den beiden Blenden und dem Verschiebetisch wird nun so ausgerichtet, dass der Laserstrahl in sich selbst reflektiert wird. Auf diese Weise ist gewährleistet, dass der Ionenstrahl senkrecht auf das Experiment trifft. Man nimmt dabei an, dass Verschiebetisch und Tantalschlitz hinreichend planparallel sind. Dieser Aufwand ist nötig, da bei einem Aspektverhältnis von beispielsweise [Schlitzbreite]/[Schlitzlänge]=[12 μm]/[300 μm] bereits eine minimale Winkelabweichung der Ionen ein Durchfliegen der Teilchen verhindert. An dieser Stelle ist auch die Strahlplatzwahl aus Abbildung 3.2 ersichtlich, denn durch die lange, parallel verlaufende Strahlführung kann der Laser mit sehr geringem Fehler auf diese einjustiert werden.

3.3 Messung des Beugungswirkungsgrades

Zur näheren Charakterisierung des durch die Bestrahlung erzeugten Phasengitters benutzt man üblicherweise die Beugung einer ebenen Welle an der induzierten Struktur. Dabei werden die von der Probe in Richtung I_{trans} und I_{diff} ausgehenden Intensitäten des transmittierten und abgebeugten Lichtes als Funktion der Abweichung vom Braggwinkel $\theta - \theta_{\text{B}}$ bestimmt. Das Verhältnis der abgebeugten Intensität I_{diff} zur Gesamtintensität $I_{\text{diff}} + I_{\text{trans}}$ wird als Beugungswirkungsgrad bezeichnet:

$$\eta = \frac{I_{\text{diff}}}{I_{\text{diff}} + I_{\text{trans}}} \quad (3.1)$$

Mit den in der Holographie üblichen dimensionslosen Parametern

$$\nu = \frac{\Delta n \pi d}{\lambda \cos(\theta)} \quad (3.2)$$

$$\xi = \frac{K d}{2} (\theta - \theta_{\text{B}}) \quad (3.3)$$

$$(3.4)$$

lautet der Beugungswirkungsgrad η nach Kogelnik [37]:

$$\eta = \nu^2 \frac{\sin^2 \sqrt{\nu^2 + \xi^2}}{\nu^2 + \xi^2} \quad (3.5)$$

Dabei ist $K = 2\pi\Lambda^{-1}$ die Wellenzahl, d die Dicke und Δn der Brechungsindex des Gitters. λ entspricht der Wellenlänge des Referenzlichtes.

Der Winkel zwischen dem eingestrahlteten Licht und der Normalen zur Kristalloberfläche wird durch θ beschreibt, der Braggwinkel durch θ_{B} . Stimmen θ und θ_{B} exakt überein, wird die Braggbedingung

$$\sin\theta_{\text{B}} = \pm m \frac{\lambda}{2g} \quad (3.6)$$

für ein Beugungsmaximum der Ordnung m erfüllt und Gleichung 3.5 vereinfacht sich zu:

$$\eta = \sin^2 \nu \quad (3.7)$$

Abbildung 3.5 zeigt den Aufbau zur Bestimmung des Beugungswirkungsgrades. Der Kristall befindet sich auf einem Drehtisch und wird im Bereich des Gitters mit einem polarisierten, unaufgeweiteten HeNe-Laserstrahl der Wellenlänge 633 nm beleuchtet. Die Polarisation spielt aufgrund der Probengeometrie keine Rolle. Zwei Photodioden messen die Intensitäten I_{diff} und I_{trans} . Der Drehwinkel des Probentisches liegt im Bereich von -10° bis $+10^\circ$, so dass man den Beugungswirkungsgrad in Abhängigkeit des Winkel θ bestimmen kann.

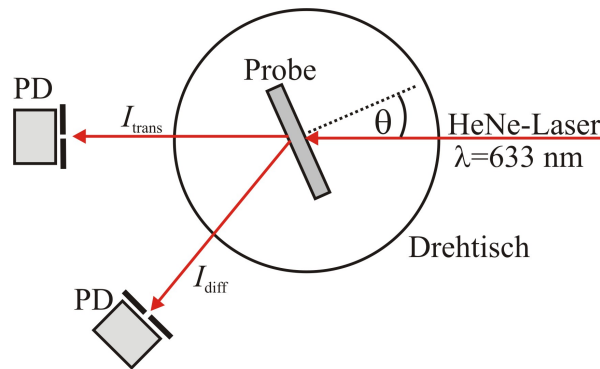


Abbildung 3.5: Aufbau zur Bestimmung des Beugungswirkungsgrades.

3.4 Interferometrische Messung der Brechungsindex- und Dickenänderung

Die Phase einer Welle der Wellenlänge λ hängt ab von der im Medium zurückgelegten Strecke d und dem Brechungsindex n :

$$\Phi = \frac{2\pi}{\lambda}nd \quad (3.8)$$

Abbildung 3.6 verdeutlicht die Beiträge der Brechungsindexänderung Δn und der Dickenänderung Δd . Es ergeben sich die Ausdrücke

$$\Delta\Phi_n(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda}d_0\Delta n(x, y) \quad (3.9)$$

$$\Delta\Phi_d(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda}(n_0 - n_L)\Delta n(x, y) \quad (3.10)$$

die sich zur Gesamtphasenänderung zusammensetzen lassen:

$$\Delta\Phi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda}[d_0\Delta n(x, y) + (n_0 - n_L)\Delta n(x, y)]. \quad (3.11)$$

Dabei ist d_0 die ursprüngliche Probendicke 0.5 mm, $n_L = 1$ der Brechungsindex in Luft und $n_0 = 2.2866$ der ordentliche Brechungsindex von Lithiumniobat [7].

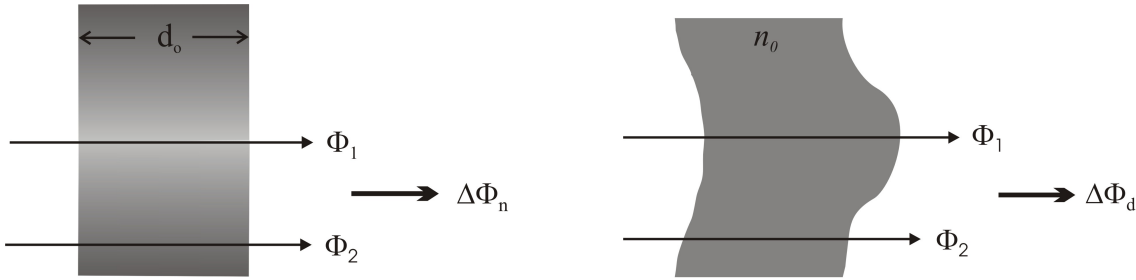


Abbildung 3.6: Die lokale Phasenänderung $\Delta\Phi(x, y)$ setzt sich zusammen aus den Phasenänderungen des Brechungsindex $\Delta\Phi_n(x, y)$ und der Kristalldicke $\Delta\Phi_d(x, y)$.

Ist es also möglich, die Gesamtphasenänderung $\Delta\Phi$ und die Dickenänderung Δd getrennt zu messen, lässt sich daraus die Brechungsindexänderung berechnen:

$$\Delta n(x, y) = \frac{\lambda}{2\pi d_0} \Delta\Phi(x, y) - \frac{n_0 - n_L}{d_0} \Delta d(x, y) \quad (3.12)$$

Gesamtphasenänderung

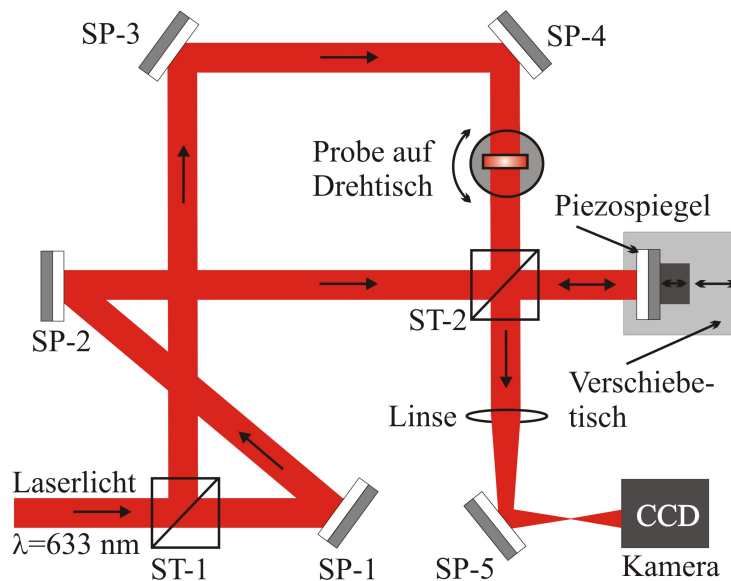


Abbildung 3.7: Mach-Zehnder-Interferometer zur Messung der Gesamtphasenänderung.

Die Gesamtphasenänderung $\Delta\Phi$ lässt sich mit einem Mach-Zehnder-Aufbau, wie er in Abbildung 3.7 gezeigt ist, bestimmen. Der aufgeweitete Strahl eines HeNe-Lasers

($\lambda = 633 \text{ nm}$) trifft auf einen Strahlteiler ST-1 und wird dort in zwei Teilstrahlen aufgespalten. Der abgebeugte Signalstrahl läuft über zwei Spiegel und tritt dann durch die Probe und den Strahlteiler ST-2. Der Referenzstrahl erreicht über zwei Spiegel und den Strahlteiler ST-2 einen piezoelektrisch verstellbaren Spiegel auf einem Verschiebetisch. Der am Piezospiegel reflektierte Strahl wird am Strahlteiler ST-2 abgebeugt und wird gemeinsam mit dem Signalstrahl durch eine Linse gebündelt und über einen Spiegel ins Kameraobjektiv einer CCD-Kamera mit 1280×1024 Pixeln und 8 Bit Intensitätsauflösung gelenkt. Die interferierenden Teilstrahlen können in Echtzeit auf einem Computer dargestellt werden. Durch Mehrfachreflexionen in der Probe kann es zu störenden Reflexen (Fabry-Perot-Interferenz) kommen, die sich durch ein leichtes Verdrehen oder Verkippen der Probe verhindern lassen. Zu diesem Zweck lässt sich der Probenstisch sowohl vertikal als auch horizontal bewegen. Für den durch die Probe transmittierten Signalstrahl ist diese Versetzung vernachlässigbar klein.

Dickenänderung

Die Dickenänderung Δd lässt sich über die aus der Deformation rührende Phasenänderung $\Delta\Phi_d$ bestimmen. Abbildung 3.8 zeigt ein Michelson Interferometer, mit dem sich die Phasenänderung bestimmen lässt.

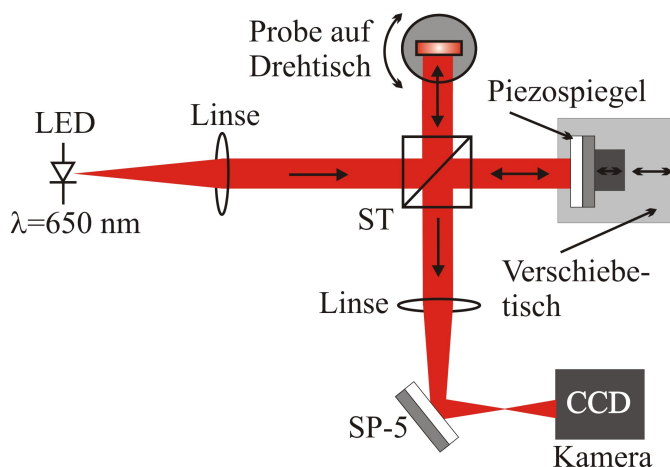


Abbildung 3.8: Michelson-Interferometer zur Messung der Dickenänderung. Es werden die aus Deformationen resultierenden Phasenänderungen der Vorder- und Rückseite separat gemessen und zur Dickenänderung zusammengesetzt.

Der aufgeweitete Strahl einer LED ($\lambda = 650 \text{ nm}$) wird am Strahlteiler in zwei Teilstrahlen aufgespalten. Der abgebeugte Signalstrahl trifft auf die Probenoberfläche, wird an ihr reflektiert und läuft gerade zurück durch den Strahlteiler. Der Referenzstrahl läuft geradeaus auf den Piezospiegel, wird dort reflektiert und am Strahlteiler gebeugt. Die beiden interferierenden Teilstrahlen werden durch eine Linse mittels eines Spiegels in das Kameraobjektiv gelenkt. Verformungen der Oberfläche Δd erzeugen dabei im Signalstrahl eine Phasendifferenz:

$$\Delta\Phi_d = 2\frac{2\pi}{\lambda}\Delta d \quad (3.13)$$

In diesem Aufbau wurde der Laser durch eine LED ersetzt, um störende Überlagerungen von Probenvorder- und -rückseite zu verhindern. Aufgrund der deutlich geringeren Kohärenzlänge von nur ca. $15\ \mu\text{m}$ ist bei der LED eine Überlagerung auszuschließen, so dass sich nur die Probenvorderseite im Interferenzbild bemerkbar macht. Die Deformation der Vorderseite kann dann über die Phasenänderung bestimmt werden. Um die Deformation der Rückseite zu bestimmen, lässt sich der Probenteller um 180° drehen und die Messung kann wiederholt werden. Unter Berücksichtigung der Vorzeichen lassen sich die Deformationen von Vorder- und Rückseite zur Gesamtdickenänderung zusammenfassen. Eine zusätzliche Verformung durch eine Keiligkeit der Probe wird vernachlässigt, da die in optischer Qualität polierten Wafer im allgemeinen hinreichend planparallel sind.

Phasenbestimmung aus Interferenzbildern

Für die eigentliche Messung wird der Piezospiegel bei beiden Verfahren um einen festen Betrag verschoben, so dass die Phase des Referenzstrahls sich um θ verschiebt. Es werden drei Interferogramme mit folgenden Intensitätsverteilungen aufgenommen:

$$I_1 = a + b \cos(\Delta\Phi) \quad (3.14)$$

$$I_2 = a + b \cos(\Delta\Phi + \theta) \quad (3.15)$$

$$I_3 = a + b \cos(\Delta\Phi + 2\theta) \quad (3.16)$$

Hierbei ist a die Hintergrundintensität und b die Amplitude der Interferenzstreifen. Für die Gesamtphasenänderung $\Delta\Phi$ ergibt sich hieraus [38]:

$$\Delta\Phi = \arctan\left(\frac{(I_3 - I_1)[\cos(\theta - 1)] - (I_2 - I_1)[\cos(2\theta - 1)]}{\sin\theta(I_3 - I_1) - \sin 2\theta(I_2 - I_1)}\right) \quad (3.17)$$

Der Arcustangens ist nur im Intervall $-\pi/2$ bis $+\pi/2$ definiert, was zu Unstetigkeiten führen kann. Um die Phase zu berechnen und das Phasenbild zu verstetigen wurde das Programm FRAN von T. R. Judge [39] benutzt. Um den Winkel θ zwischen den drei Interferogrammen zu bestimmen, misst man die Intensität an einer Stelle im Interferogramm, während die Steuerspannung des Piezospiegels in Schritten von einem Volt erhöht wird. Für die beiden Lichtquellen ergibt sich:

- $\theta_{\text{LED}} = 20.7^\circ$ pro 1 V Spannungsänderung
- $\theta_{\text{He-Ne}} = 21.6^\circ$ pro 1 V Spannungsänderung

Um Justagefehler zu berücksichtigen wird zuletzt noch eine Nullmessung im Mach-Zehnder-Aufbau durchgeführt, so dass sich am Ende einer Messung vier verstetigte Phasenbilder ergeben:

- Gesamtphasenänderung in Transmission
 - Gesamtphasenänderung der Nullmessung
- $$\left. \vphantom{\begin{matrix} \bullet \\ \bullet \end{matrix}} \right\} \Delta\Phi$$

- Phasenänderung bei Reflexion an der Vorderseite
 - Phasenänderung bei Reflexion an der Rückseite
- $$\left. \vphantom{\begin{matrix} \bullet \\ \bullet \end{matrix}} \right\} \Delta d$$

Auf diesem Weg lassen sich also $\Delta\Phi$ und Δd bestimmen und dadurch, wie in Gleichung 3.12 gezeigt wurde, auch die Brechungsindexänderung Δn . Zu beachten ist, dass es sich bei den Größen Δd und Δn nicht um absolute Werte handelt, sondern um relative Änderungen, da nur eine Phasenänderung $\Delta\Phi$ gemessen wird und keine absolute Phase. Abbildung 3.9 zeigt beispielhaft einen bestrahlten Kristall, bei dem die Brechungsindexänderung dargestellt ist. Auf den Phasensprung wird in der Fehlerabschätzung im nachfolgenden Kapitel genauer eingegangen.

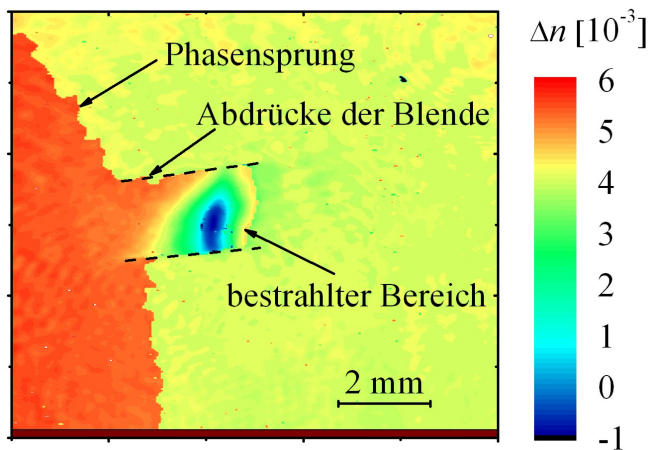


Abbildung 3.9: Typisches Bild der Brechungsindexänderung Δn . Im bestrahlten Bereich ergibt sich eine deutliche Absenkung des Brechungsindex.

Fehlerabschätzung

Auf die Genauigkeit der Messungen wirken sich viele Komponenten aus. Mögliche Fehlerquellen sind Änderungen im ursprünglichen Brechungsindex n_0 sowie der Probendicke d_0 . Auch der Messaufbau selbst ist fehlerbehaftet; so kann es beispielsweise zu einer Drift des Interferometers zwischen Transmissions- und Nullmessung kommen. Eine weitere Unsicherheit ist das Verschieben des Piezospiegels, hier können große Abweichungen auftreten, so dass der daraus bestimmte Winkel θ mit einem Fehler von $\pm 20^\circ$ angegeben werden muss. Sein Einfluss auf die Änderungen der Dicke und der Gesamtphase ist allerdings relativ gering. Die Messung der Dickenänderung Δd ist relativ genau, so dass der Fehler mit etwa $\delta\Delta d = \pm 1 \times 10^{-6}$ für einen 0.5 mm dicken Kristall angegeben werden kann. Als Fehler für die Gesamtphasenänderung wird ein Fehler $\delta\Delta\Phi = \pm\pi/2$ angenommen. Die Brechungsindexänderung Δn wird sowohl durch die Fehler der Gesamtphasenänderung als auch durch die Fehler der Dickenänderung beeinflusst. Der Beitrag der Dickenänderung ist vernachlässigbar, so dass sich nach Fehlerfortpflanzung von Gleichung 3.12 ein Fehler $\delta\Delta n = \pm 3 \times 10^{-4}$ für die Brechungsindexänderung ergibt.

Ein weiteres Fehlerkriterium entsteht durch Probleme beim Verstetigen der Phasenbilder. Durch scharfkantige Änderungen im Brechungsindex oder auch Unreinheiten der Probe kann das Phasenbild an einigen Stellen nicht verstetigt werden, es kommt zu Phasensprüngen wie in Abbildung 3.9. Durch solche Phasensprünge kann es zu Fehlern in der Größenordnung $\delta\Delta n = \pm 1.2 \times 10^{-3}$ kommen, was an den entsprechenden Stellen berücksichtigt wird.

3.5 Polen der Kristalle

Zur Domäneninversion wird ein Halter benutzt, wie man ihn in Abbildung 3.10(a) sehen kann. Der Kristall wird zwischen zwei Silikon-O-Ringe geklemmt und in einem Plastikhalter fixiert. Durch Bohrungen kann Wasser in den Raum zwischen Kristall und Plastikhalter gespritzt werden. Leitungswasser ist hinreichend leitend und sorgt für eine homogene Kontaktierung. Mit einer Hochspannungsquelle (Trek 20C Hochspannungsverstärker) können in diesem Halter Spannungen bis 20 kV überschlagssicher angelegt werden während mit einem empfindlichen Strommessgerät (Keithley 6514 Electrometer) der Strom bestimmt wird. Ein Überspannungsschutz schützt das Gerät vor Spannungsspitzen. Gesteuert wird der Aufbau über ein PC-Programm.

Üblicherweise wird der positive Ausgang des Hochspannungsverstärkers an die $+z$ -Seite des Kristalls angeschlossen, während auf der $-z$ -Seite das Amperemeter anliegt. Eine positive Spannung erzeugt durch diese Anordnung ein entgegen der z -Achse gerichtetes Feld, was beim Überschreiten der Koerzitivfeldstärke zu einer Domäneninversion führt. Negative Spannungen wirken „domänenstabilisierend“, erzeugen demnach also keine Domäneninversion. Möchte man mehrere Inversionen hintereinander durchführen, muss die Spannung periodisch das Vorzeichen wechseln.

Beim Ausrichten der O-Ringe auf dem Kristall, wie in Abbildung 3.10(b), ist darauf zu achten, dass sowohl bestrahlte als auch unbestrahlte Bereiche innerhalb der Kontaktierung liegen. Der Innendurchmesser der O-Ringe beträgt 8 mm, der durch das Anpressen auf etwa 8.2 mm vergrößert werden kann. Die Kontaktierungsfläche ergibt sich so zu $A_k = 50 - 52 \text{ mm}^2$.

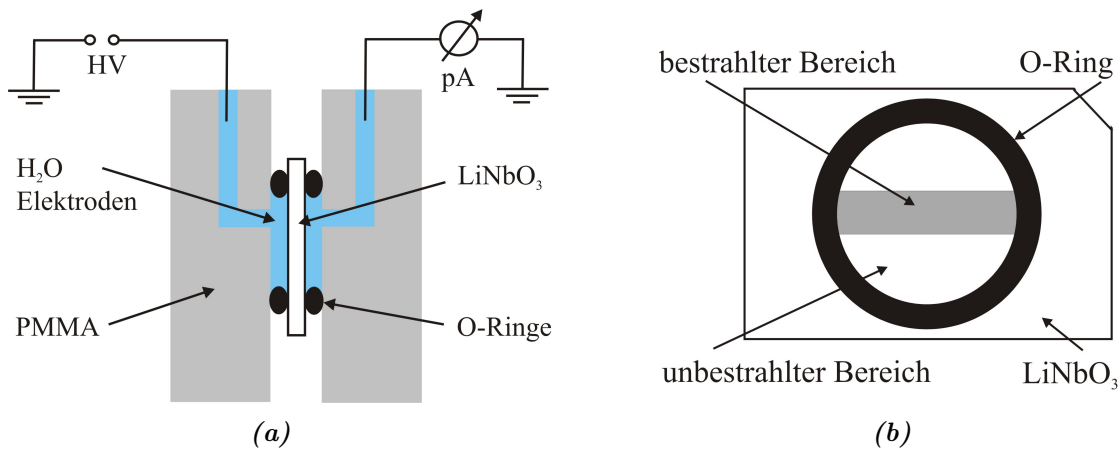


Abbildung 3.10: Domäneninversion: (a) zeigt die schematische Darstellung des Probenhalters. Der Kristall wird zwischen zwei O-Ringen in einen Plastikhalter eingebaut. Mittels Flüssigelektroden können Spannungen bis 20 kV angelegt und die Polungsströme gemessen werden. (b) zeigt die Ausrichtung der O-Ringe auf dem Kristall. Sowohl bestrahlte als auch unbestrahlte Bereiche liegen innerhalb der Kontaktierungsfläche.

3.5.1 Rampenpolen

Vom Rampenpolen spricht man, wenn die Spannung (bzw. die Feldstärke) linear erhöht wird. In dieser Arbeit werden Geschwindigkeiten von 50 Vs^{-1} , 5 Vs^{-1} und 1 Vs^{-1} benutzt. Abbildung 3.11 zeigt exemplarisch eine Rampe bei mittlerer Geschwindigkeit. Bei ausreichend hohen elektrischen Feldern kommt es zunächst zur Domänen nucleation, bei weiterer Erhöhung zu einer großflächigen Domäneninversion wie in Kapitel 2.1.2 beschrieben. Messbar ist die Domäneninversion durch den Polungsstrom, der durch die Umverteilung der Kompensationsladungsträger an den Oberflächen zustande kommt. In bestrahlten $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ -Proben lassen sich zwei Polungsintervalle erkennen. Das erste, bei E_c^b beginnende Intervall ist auf den bestrahlten Bereich zurückzuführen, das zweite, bei E_c^u einsetzende, entspricht dem nicht bestrahlten Bereich des Kristalls [16]. Um die Koerzitivfeldstärken zu definieren, wird, ähnlich wie in [40], eine Stromschwelle von $0.2 \mu\text{A}$ eingeführt, bei deren Überschreitung das Polungsintervall beginnt. Diese Definition ist nur sinnvoll, wenn gleiche O-Ring-Größen beim Polen der Proben benutzt werden, da der Polungsstrom direkt von der umgepolten Fläche abhängt (vgl. Gl. 2.2).

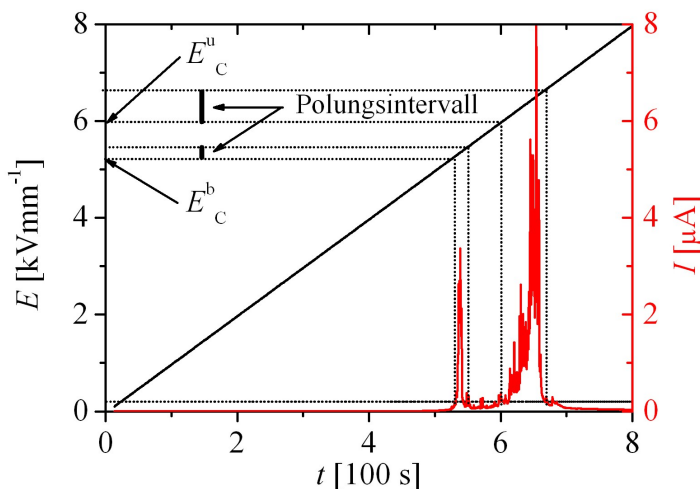


Abbildung 3.11: Typische Stromkurve einer Domäneninversion, bei der Teile des Kristalls bestrahlt wurden. Das erste, bei E_c^b beginnende, Polungsintervall entsteht durch die Bestrahlung, das zweite, bei E_c^u beginnende, ist durch den unbestrahlten Bereich festgelegt. Die grau gepunktete Linie gibt den Schwellwert an, ab dem das Polungsintervall einsetzt.

Fehlerabschätzung

Die Domäneninversion ist ein dynamischer Prozess, daher kommt es zu unterschiedlichen Kurven des Polungsstromes. Bei der Bestimmung der Koerzitivfeldstärke werden diese statistischen Schwankungen berücksichtigt, so dass sich insgesamt ein Fehler von $\pm 0.2 \text{ kVmm}^{-1}$ ergibt. Fehler aufgrund des apparativen Aufbaus sind vernachlässigbar klein.

3.5.2 Messung der Leitfähigkeit

Um die Leitfähigkeit einer Probe zu bestimmen, wird die Feldstärke wie im Kapitel 3.5.1 linear erhöht. Der Unterschied besteht in der Richtung der Feldstärke, die „domänenstabilisierend“ angelegt wird. Auf diese Weise wird keine Domäneninversion erzeugt, so dass allein die Leitfähigkeit des Materials gemessen wird. Aufgrund ihres Ohmschen Verhaltens kann sie durch eine lineare Anpassung an die Messwerte bestimmt werden. Eine weitere

Messgröße, die zur Beschreibung der Leitfähigkeit herangezogen wird, ist die geflossene Ladung. Diese ergibt sich bei Integration über die Kurve des Polungsstromes (vgl. Gleichung 2.1, 2.2).

3.5.3 Pulspolen

Beim sogenannten Pulspolen wird die elektrische Feldstärke nicht linear erhöht, sondern in Spannungspulsen wie in Abbildung 3.12 angelegt. Die Gesamtlänge eines Pulses beträgt dabei typischerweise 500 bis 700 ms, die Amplitude ist variabel. Die ideale Pulsform wird durch ein iteratives Verfahren angenähert und unterscheidet sich für verschiedene Probenarten und Elektrodenmasken (vgl. Kapitel 3.5.4). In dieser Arbeit werden zwei Pulse benutzt, die für die Domäneninversion von unbestrahltem LiNbO_3 in der Arbeitsgruppe von Prof. Buse entwickelt wurden.

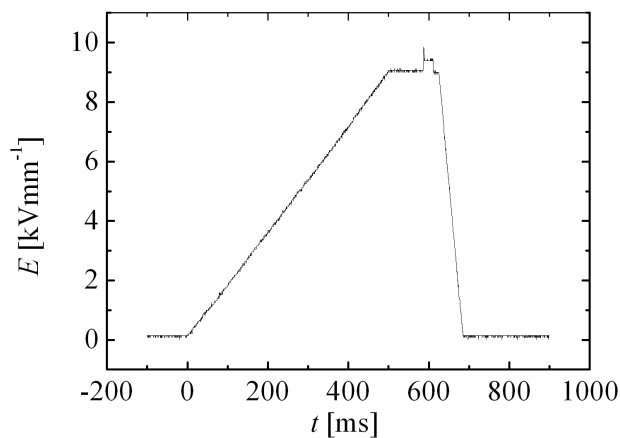


Abbildung 3.12: Pulspolen: Die elektrische Feldstärke wird in Pulsen von typischerweise einigen hundert ms Länge angelegt. Die Pulsform wird in aufwändigen iterativen Verfahren angenähert.

Bei einer vollständigen Umpolung des gesamten kontaktierten Bereiches beträgt die geflossene Ladung nach Gleichung 2.1 etwa $72 \mu\text{C}$. Soll nur ein Teil der kontaktierten Fläche umgepolt werden, muss die entsprechende Ladungsmenge berechnet werden und der Polungsvorgang nach ihrem Durchfließen abgebrochen werden. Die Ladungsbestimmung erfolgt wie in Kapitel 3.5.2.

3.5.4 Strukturiertes Polen

Ferroelektrische Domänenmuster können mithilfe eines strukturierten elektrischen Feldes realisiert werden. Die praktische Umsetzung geschieht mittels metallischer Elektroden aus Aluminium, Titan, Tantal, Nickel oder wie hier benutzt, Chrom. Das Metall wird dabei auf eine Seite des mit Photolack beschichteten Kristalls in einem lithographischen Verfahren aufgedampft, so dass ein periodisches Muster aus Metall und Photolack entsteht. Die andere Seite wird homogen kontaktiert. Mit diesem oder ähnlichen Verfahren können verschiedene Periodenlängen hergestellt werden. Die Erzeugung kleiner Strukturen ist allerdings sehr schwierig, da das Verhältnis zwischen Kristalldicke d und Periodenlänge Λ sehr hoch ist und stößt momentan bei etwa $4 \mu\text{m}$ Periodenlänge bei 0.5 mm Kristalldicke an eine Grenze [11]. Kleinere Strukturen können bislang ausschließlich als Oberflächendomänen realisiert werden [41].

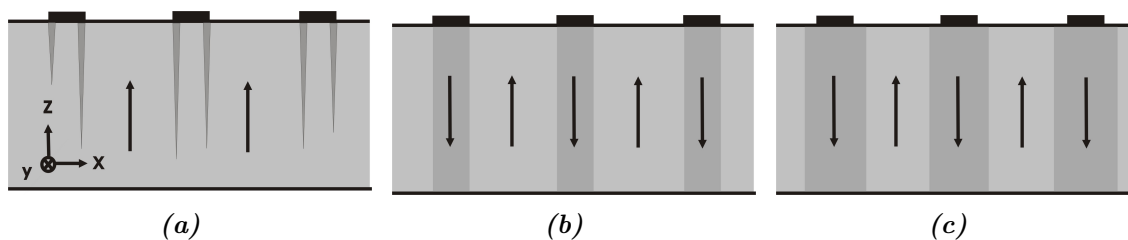


Abbildung 3.13: Herstellung von periodisch gepoltem Lithiumniobat (PPLN): (a) Der einkristalline Kristall wird auf der einen z -Seite mit einer strukturierten Elektrode kontaktiert, auf der anderen homogen. An den Elektroden beginnt die Nukleation. (b) Die Nukleationen sind zu Volumendomänen herangewachsen. (c) Die Domänenwände wachsen über die Elektroden hinaus und es entsteht ein periodisch gepolter Kristall.

Abbildung 3.13 zeigt einen einkristallinen Kristall, der auf einer Seite mit einer strukturierten Elektrode, auf der anderen homogen kontaktiert wird. Durch Anlegen der Hochspannung kommt es zunächst zu Nukleation an den Elektrodenrändern. Wie in Kapitel 2.1.2 beschrieben, wachsen die Domänen in Tiefe und Breite und bilden Volumendomänen. Diese wachsen über die Grenzen der Elektrode hinaus, bis sich ein stabiles Muster gebildet hat. Eine wichtige Rolle spielt dabei das Tastverhältnis Γ , das definiert ist über das Verhältnis von der Breite a des invertierten Bereichs (bzw. der Elektrode) zur Periodenlänge Λ . Optimalerweise sollte das Tastverhältnis im Kristall 0.5 betragen, was nicht unbedingt mit einer Elektrodenmaske mit dem gleichen Tastverhältnis erzielt wird.

Die Masken werden üblicherweise auf der $+z$ -Achse aufgebracht, mit einem Gittervektor parallel zur x -Achse. Auf diese Weise fallen die Domänenwände mit den natürlichen hexagonalen Domänengrenzen (vgl. Kap. 2.1.2) zusammen und erleichtern die Bildung eines scharfen Übergangs.

3.6 Visualisierung von Domänen

Zur Visualisierung von Domänen gibt es zahlreiche Methoden. In dieser Arbeit werden das domänensensitive Ätzen, die Spannungsdoppelbrechung sowie die Rasterkraftmikroskopie genutzt, auf die in diesem Abschnitt kurz eingegangen wird.

3.6.1 Domänensensitives Ätzen

Das Standardverfahren zur Domänenvisualisierung ist das domänensensitive Ätzen [42]. Die z -Seiten der Lithiumniobat-Proben werden nacheinander mit 48% Flußsäure (HF) beträufelt. Der chemische Prozess wird durch Protonen an der Oberfläche bestimmt, was zu einer weitaus stärkeren Ätzrate an der $-z$ -Seite führt. Nach 15-20 minütiger Einwirkzeit entsteht ein Topographiemuster mit einem Höhenunterschied von etwa 100 nm zwischen Bereichen mit $+z$ und $-z$ Orientierung. Diese Art der Visualisierung bietet eine sehr gute Auflösung, hat aber den Nachteil der Destruktivität.

3.6.2 Spannungsdoppelbrechung

Ein nicht destruktives Verfahren ist die Spannungsdoppelbrechung. Bei der Inversion kommt es an den Grenzen benachbarter Domänen zu hohen mechanischen Spannungen, da sich die Polarisationsrichtung innerhalb weniger Gitterkonstanten umkehrt. Diese Spannungen lassen sich durch gekreuzte Polarisatoren sichtbar machen [43]. Im Rahmen dieser Arbeit wird ein Lichtmikroskop der Firma Zeiss benutzt, das über verstellbare Polarisatoren verfügt und somit die Spannungsdoppelbrechung sichtbar machen kann. Auch die Lichtbeugung an Domänenwänden lässt sich zur Domänenvisualisierung verwenden [44].

3.6.3 Rasterkraftmikroskopie

Ein weiteres nicht destruktives Verfahren mit sehr hoher Auflösung ist die Rasterkraftmikroskopie. Eine Messspitze, die sich auf einem elastisch biegsamen Hebelarm befindetet, tastet die zu untersuchende Oberfläche ab. Die Verbiegung des Hebelarmes wird in ein Messsignal übersetzt, so dass die Topographie der Oberfläche bestimmt werden kann.

Eine Unterart der Rasterkraftmikroskopie ist die Piezokraftmikroskopie, bei der man sich den inversen piezoelektrischen Effekt zunutze macht. An die Probe wird eine Spannung angelegt, die zu einer Deformation der Oberfläche führt und mit dem Rasterkraftmikroskop detektiert werden kann [45].

In ferroelektrischen Materialien führt eine unterschiedliche Orientierung der polaren z -Achse zu einem Domänenkontrast in den Piezokraftmikroskopie-Messungen. In den aufgenommenen Bildern erscheinen die Domänen als helle oder dunkle Flächen.

4 Experimentelle Resultate

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse dargestellt, die durch die Bestrahlung von LiNbO_3 entstehen. Zunächst werden die äußeren Erscheinungen in Form der Verfärbung vorgestellt, danach die Brechungsindex- und Dickenänderungen in Abhängigkeit von der Dosis und thermischen Behandlung. Für die hergestellten Gitter folgt eine Qualitätsprüfung durch die Bestimmung des Beugungswirkungsgrades. Der Schwerpunkt liegt in der Untersuchung des Polungsverhaltens der bestrahlten LiNbO_3 -Proben. Im letzten Abschnitt sind die Resultate der Leitfähigkeitsuntersuchungen zu sehen.

4.1 Verfärbung und Dosis

Nach der Bestrahlung der Proben aus Tabelle 3.1 lässt sich eine bräunliche Verfärbung im bestrahlten Bereich erkennen. Abbildung 4.1 zeigt beispielhaft einige Proben der LNC-Serie mit ihren Verfärbungen. Man erkennt unterschiedliche Ausprägungen der Form und Farbstärke. Formänderungen sind dabei auf die Probenlage hinter der Blende zurückzuführen, die Farbintensität ist dosisabhängig.

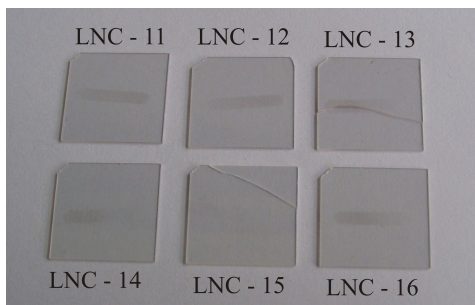


Abbildung 4.1: Beispielhaft sind hier die Proben LNC-11 bis LNC-16 mit ihren bräunlichen Verfärbungen, die nach der Bestrahlung auftreten, dargestellt. Man erkennt Unterschiede in der Farbausprägung, die von der Dosis abhängt.

Tabelle 4.1 zeigt die Proben der LNC-Serie sowie drei LNS-Proben. Bei allen wird das in Kapitel 3.2.1 beschriebene Rondell benutzt, so dass jeweils mehrere Kristalle in einer Strahlzeit erzeugt werden. Innerhalb einer Strahlzeit liegen weitestgehend konstante Bedingungen vor, was sich beispielsweise in der bestrahlten Fläche A_b bemerkbar macht. Desweiteren werden im Laufe dieser Arbeit vier Gitter in den in Kapitel 3.2.2 beschriebenen Gitterbestrahlungen produziert. Bei Gitter G-1 misslingt die Bestrahlung, bei allen drei anderen Gittern lassen sich im Bereich des Gitters Verfärbungen erkennen.

Bestrahlung	Probenname	Dosis [m^{-2}]	A_b [mm^2]
1	LNC-1	$3,0 \times 10^{19}$	3
	LNC-2	$9,0 \times 10^{19}$	3
	LNC-3	$1,8 \times 10^{20}$	3
	LNC-4	$7,4 \times 10^{20}$	3
	LNC-5	$1,8 \times 10^{21}$	3
2	LNC-6	$5,2 \times 10^{18}$	18
	LNC-7	$2,0 \times 10^{18}$	18
	LNC-8	$6,0 \times 10^{19}$	18
	LNC-9	$2,0 \times 10^{19}$	18
	LNC-10	$8,0 \times 10^{19}$	18
3	LNC-11	$8,3 \times 10^{19}$	18
	LNC-12	$7,1 \times 10^{19}$	18
	LNC-13	$5,9 \times 10^{19}$	18
	LNC-14	$4,8 \times 10^{19}$	18
	LNC-15	$3,6 \times 10^{19}$	18
	LNC-16	$7,1 \times 10^{19}$	18
4	LNS-1	$4,1 \times 10^{19}$	10
	LNS-2	$8,1 \times 10^{19}$	10
	LNS-3	$2,0 \times 10^{19}$	10

Tabelle 4.1: Es werden insgesamt vier Bestrahlungen mit dem Rondell durchgeführt: In obestehender Tabelle sind die jeweiligen Proben, ihre Ionendosis sowie die bestrahlte Fläche aufgelistet.

4.2 Brechungsindex- und Dickenänderungen

Jede der Proben wird nach der Bestrahlung einer interferometrischen Untersuchung unterzogen, bei der sich sowohl die Brechungsindex- als auch die Dickenänderungen gemäß Kapitel 3.4 messen lassen. Durch die verästetigten Bilder der Dicken- und Brechungsindexänderung wird eine Linie durch den bestrahlten Bereich und seine Umgebung gelegt, entlang der ein Profil erstellt werden kann. Abbildung 4.2 zeigt dies für die Dickenänderung der Probe LNC-4. Hierbei zeigt Abbildung 4.2(a) das verästetigte Bild der Dickenänderung. Entlang der gestrichelten Linie wird das Profil erstellt, das man in Abbildung 4.2(b) sehen kann. In beiden Darstellungen lässt sich die Größe der Änderung ablesen. Für die Brechungsindexänderungen wird genauso verfahren.

4.2.1 Dosisabhängigkeit

Für die in Tabelle 4.1 aufgelisteten Proben der Rondellbestrahlungen wird sowohl die Brechungsindexänderung Δn als auch die Dickenänderung Δd interferometrisch bestimmt. Abbildung 4.3 zeigt die Brechungsindexänderung Δn in Abhängigkeit von der Dosis D . Die Dosis wird dabei, wie in Kapitel 3.2 beschrieben, ermittelt. Die meisten Proben liegen in einem Dosisbereich von 2×10^{19} bis $9 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$ und zeigen einen leichten Anstieg der

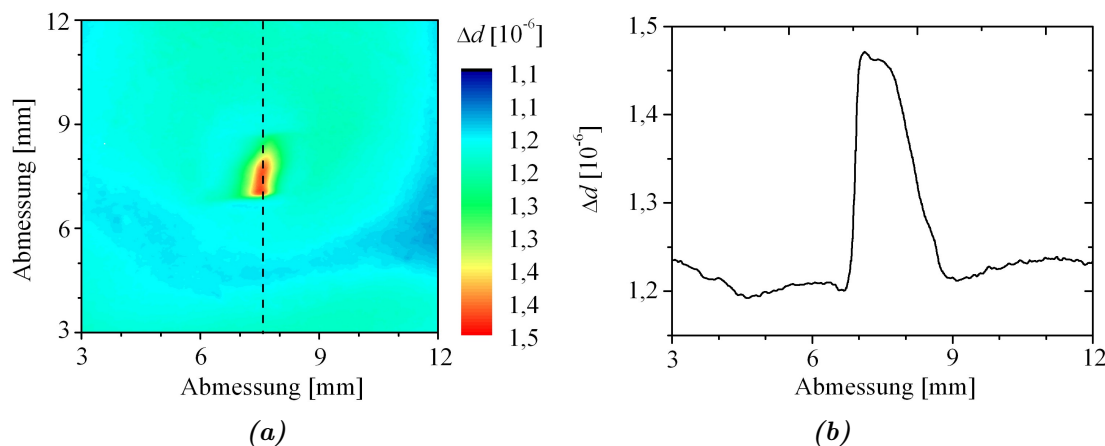


Abbildung 4.2: Deformation der Probe LNC-4: Es sind jeweils die Dickenänderungen gegen die Probenabmessungen aufgetragen. In (a) sind die Änderungen für einen Probenausschnitt zu sehen, in (b) wurde entlang der gestrichelten Linie aus (a) ein Profil erstellt, an dem die Dickenänderungen ebenfalls ablesbar sind.

Änderung in diesem Bereich. Die stöchiometrischen LNS-Proben der Bestrahlung 4 lassen größere Änderungen in diesem Intervall erkennen als die kongruent schmelzenden LNC-Proben. Bereiche höherer Dosen sind von Bestrahlung 1 abgedeckt und zeigen einen steilen Anstieg im Bereich 2×10^{20} bis $8 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$. Die Fehler ergeben sich nach Kapitel 3.2 und sind hier exemplarisch an einem Punkt eingezeichnet. Nicht auszuwertende Proben wurden in der Darstellung nicht berücksichtigt.

Die Spanne der Brechungsindexänderungen reicht von nahezu 0 bei schwach bestrahlten bis zu 6.4×10^{-3} bei den stark bestrahlten Proben. Abbildung 4.4 zeigt die Dickenänderung

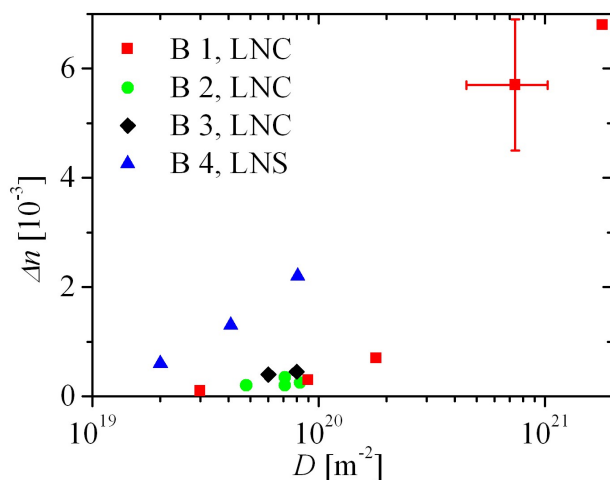


Abbildung 4.3: Dosisabhängigkeit der Brechungsindexänderung: Aufgetragen ist Δn gegen die Dosis D für die Proben der LNC-Serie aus Bestrahlung 1 bis 3 sowie die drei LNS-Proben aus Bestrahlung 4.

Δd in Abhängigkeit von der Dosis. Das Erscheinungsbild ähnelt dem der Brechungsindexänderungen. Ein flache Steigung im Bereich niedriger Dosen gefolgt von einem steilen Anstieg im Bereich 2×10^{20} bis $8 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$. Die LNS-Proben aus Bestrahlung 4 weisen scheinbar bereits im Bereich niedriger Dosen von 4×10^{19} bis $8 \times 10^{19} \text{ m}^{-2}$ einen steileren Anstieg auf.

Die Spanne der Dickenänderungen reicht von nahezu 0 bei schwach bestrahlten bis zu 0.7×10^{-6} bei den stark bestrahlten Proben.

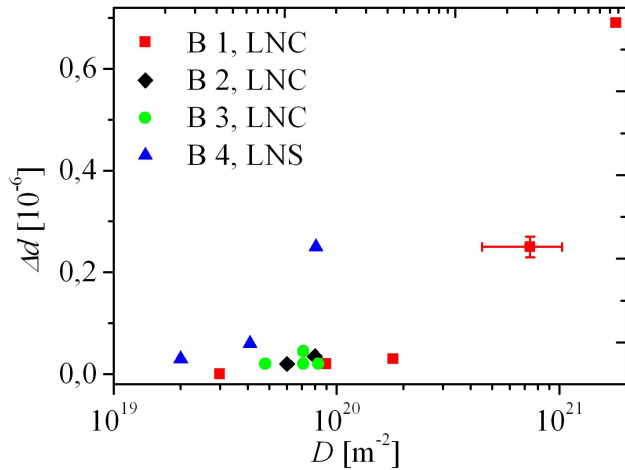


Abbildung 4.4: Dosisabhängigkeit der Dickenänderung: Aufgetragen ist Δd gegen die Dosis D für die Proben der LNC-Serie aus Bestrahlung 1 bis 3, sowie die drei LNS-Proben aus Bestrahlung 4.

4.2.2 Thermische Behandlung

Die Proben LNC-1 bis LNC-5 werden für 30 min. bei 150°C getempert. Brechungsindex- und Dickenänderungen werden nach dem Tempervorgang erneut bestimmt und in Abbildung 4.5 exemplarisch für die Probe LNC-4 mit den Ergebnissen vor der thermischen Behandlung verglichen. In Abbildung 4.5(a) ist die Änderung des Brechungsindex dargestellt, die eine Abschwächung um etwa 20 % des Ausgangswertes erleidet. Die in Abbildung 4.5(b) dargestellte Dickenänderung zeigt keine Veränderung durch die thermische Behandlung. Die Probe LNC-3 wird nach einem zweiten Tempervorgang von 20 min. bei 200°C erneut vermessen, wobei sich allerdings keine deutlichen Änderungen mehr ergeben.

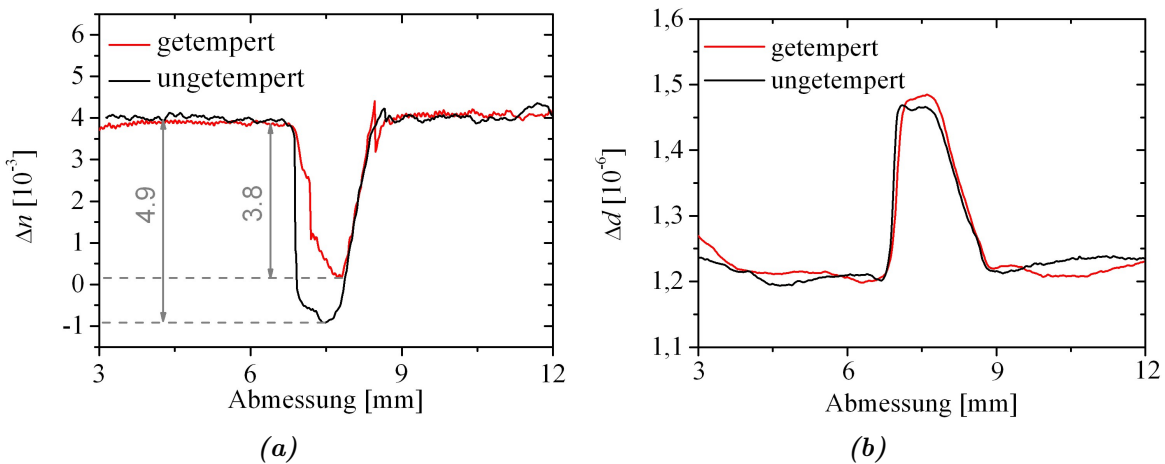


Abbildung 4.5: Einflüsse der thermischen Behandlung bei der Probe LNC-4: (a) zeigt eine Abschwächung der Brechungsindexänderung um etwa 20%, während die in (b) abgebildete Dickenänderung keine Veränderung zeigt. In beiden Fällen sind die Änderungen entlang der Probenabmessungen aufgetragen.

4.2.3 Gitterbestrahlungen

Auch bei den hergestellten Gittern wird eine interferometrische Untersuchung durchgeführt. Abbildung 4.6 zeigt exemplarisch für das Gitter G-2 die Änderungen im Brechungsindex. Aufgrund der geringen Strahlungsdosis, die bei den Gittern in der Größenordnung 3×10^{18} liegt, sind die Effekte sehr klein. Man erkennt die beiden Referenzlöcher der Tantalblende. Im Bereich dazwischen, in dem das Gitter liegen müsste, sind keine Änderungen sichtbar. Beim Demontieren der Probe vom Probenstisch ist eine Kante abgebrochen, was man im unteren, rechten Bildteil erkennt.

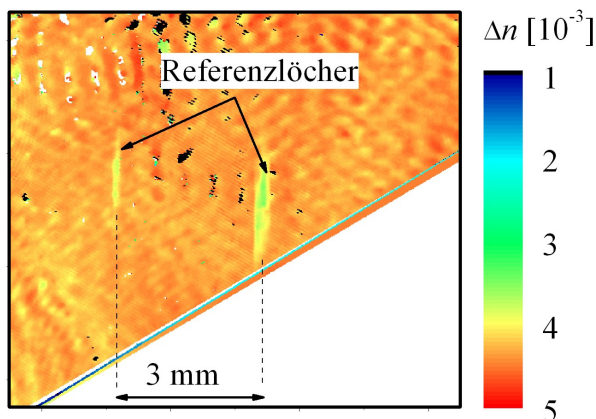


Abbildung 4.6: Brechungsindexänderung für das Gitter G-2: Die beiden Referenzlöcher der Tantalblende sind zu erkennen, im Bereich des Gitters, der dazwischen liegt, sind keine Änderungen zu erkennen. Vermutlich sind die Effekte zu gering, um mit dem Interferometer aufgelöst werden zu können.

4.3 Beugungswirkungsgrad der Gitterbestrahlung

Um die Existenz eines Gitters zwischen den Referenzlöchern nachzuweisen, bietet sich die Messung des Beugungswirkungsgrades an. Wie in Kapitel 4.3 beschrieben, entsteht ein Beugungsmuster, indem sich Maxima 1. und 2. Ordnung erkennen lassen, wodurch eine Messung des Beugungswirkungsgrades möglich ist. Die Polarisation des Lichtes hat aufgrund der Probengeometrie (z -Cut) keinen Einfluss, da sie immer senkrecht zur Polarisationsachse steht. Der Beugungswirkungsgrad wird jeweils für das erste Maximum zu beiden Seiten ermittelt, eine Auswertung für die zweiten Maxima ist aufgrund der kleinen Effekte schwierig. Abbildung 4.7 zeigt den Beugungswirkungsgrad η in Abhängigkeit des Verstellwinkels θ für das Gitter G-3.

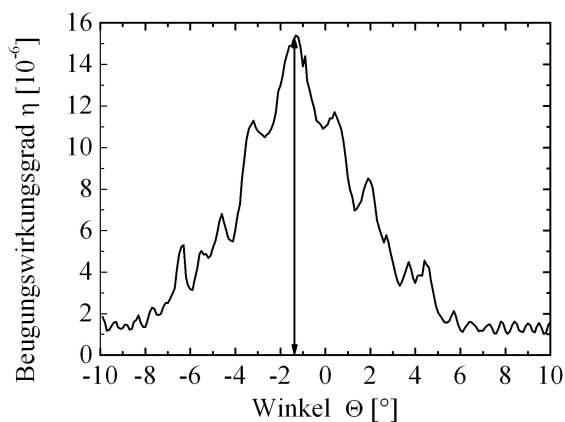


Abbildung 4.7: Beugungswirkungsgrad in Abhängigkeit vom Drehwinkel: Im Braggwinkel bei etwa 1.5° ist der Beugungswirkungsgrad maximal. Daraus lässt sich eine Gitterperiode von etwa $12 \mu\text{m}$ berechnen, die der im Experiment benutzten entspricht.

Mit dem Braggwinkel $\theta_B=1.5^\circ$ ergibt sich laut Gleichung 3.6 eine Gitterperiode $g = 12 \mu\text{m}$. In allen Gittern kann auf diese Weise eine periodische Struktur mit einer Periode von etwa $12 \mu\text{m}$ zwischen den Referenzlöchern nachgewiesen werden.

4.4 Polungsverhalten

Ein typisches Ergebnis einer zyklischen Domäneninversion ist in Abbildung 4.8 zu sehen. Am Beispiel der Probe LNC-2 und einer Spannungsänderung von 5 Vs^{-1} sind die Verläufe der elektrischen Feldstärke E und des Polungsstromes I gegen die Zeit aufgetragen.

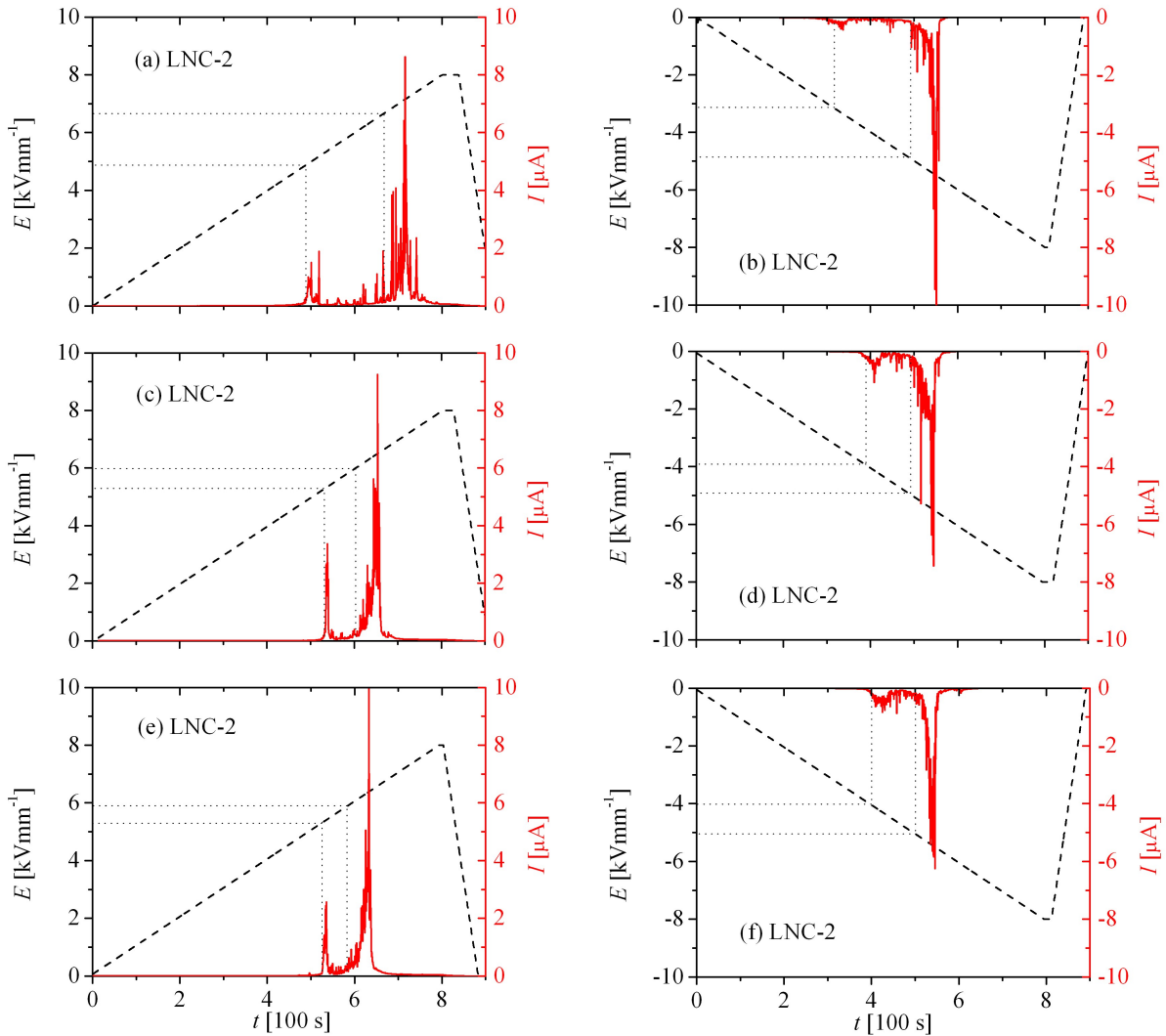


Abbildung 4.8: Zyklisches Polen der Probe LNC-2: Aufgetragen sind links die Feldstärke, rechts der Polungsstrom jeweils gegen die Zeit. Die ersten beiden Polungsvorgänge sowohl in Vorwärts- als auch in Rückwärtsrichtung unterscheiden sich jeweils von allen folgenden. Die Koerzitivfeldstärken der beiden Richtungen weichen aufgrund eines internen elektrischen Feldes voneinander ab. Charakteristisch für die Bestrahlung sind die zwei Polungsintervalle für den bestrahlten und unbestrahlten Bereich.

Die Domäneninversion erfolgt in jede Richtung dreimal, so dass man sechs Polungskurven erhält. Ab einer bestimmten Feldstärke beginnt die Domäneninversion, was sich durch einen Anstieg im Polungsstrom bemerkbar macht. Abbildung 4.8(a) zeigt den ersten Polungsvorgang mit den zwei charakteristischen Signalen: Das erste, kleinere wird durch den bestrahlten Bereich verursacht, das zweite, größere durch den unbestrahlten Bereich. Nach Umkehrung der Spannungsrichtung erfolgt eine weitere Inversion, die in Abbildung 4.8(b) dargestellt ist. Die Feldstärke, bei der eine Domäneninversion einsetzt, ist deutlich herabgesetzt. Alle folgenden Zyklen unterscheiden sich von diesen ersten beiden und sind innerhalb der gleichen Spannungsrichtung beliebig oft (bis zum Bruch des Kristalls) reproduzierbar, wie man in Abbildung 4.8(c)-(f) sehen kann. Die Werte für die Feldstärken, bei denen die Inversion einsetzt, sind in Tabelle 4.2 aufgelistet. Dabei wird zwischen bestrahltem und unbestrahltem Bereich differenziert sowie zwischen den beiden ersten Zyklen $E_c^{(1)}$, $E_c^{(-1)}$ und allen folgenden E_c^v , E_c^r .

Bereich	$E_c^{(1)}$ [kVmm ⁻¹]	$E_c^{(-1)}$ [kVmm ⁻¹]	E_c^v [kVmm ⁻¹]	E_c^r [kVmm ⁻¹]
bestrahlt	4.8	-3.3	5.4	-4.1
unbestrahlt	6.8	-4.9	6.0	-5.0

Tabelle 4.2: Koerzitivfeldstärke $E_c^{(1)}$ für die erste Umkehrung, $E_c^{(-1)}$ für die erste Umkehrung in negativer Spannungsrichtung. Für alle folgenden Zyklen ergibt sich E_c^v in Vorwärts- und E_c^r in Rückwärtsrichtung. Der Fehler für die Koerzitivfeldstärken beträgt etwa 0.2 kVmm⁻¹.

Das gleiche Vorgehen führt bei den stöchiometrischen Proben LNS-1 bis LNS-3 zu keinem Signalausschlag, der dem bestrahlten Bereich zugeordnet werden kann, wie Abbildung 4.9 zeigt. Auch ein Absenken der Polungsgeschwindigkeit auf 1 Vs⁻¹ liefert kein zusätzliches Signal E_c^b . Die gemessenen Koerzitivfeldstärken liegen bei 2.5 kVmm⁻¹ und lassen im Vergleich zu den Koerzitivfeldstärken unbehauelter Proben keine Abweichung erkennen [20]. Mit 50 Vs⁻¹ ist sowohl bei den Proben der LNC-Serie als auch bei denen der LNS-Serie kein Signal E_c^b zu erkennen.

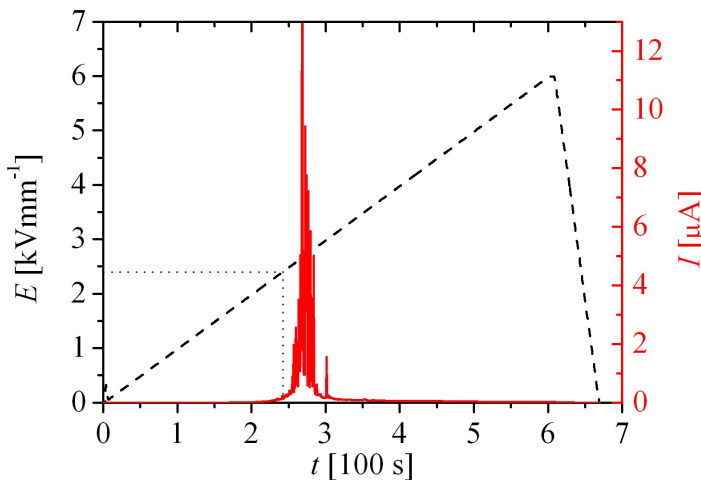


Abbildung 4.9: Für die stöchiometrischen Proben, wie hier LNS-2 ist nur ein Polungsintervall zu erkennen, wenn man Feldstärke und Polungsstrom gegen die Zeit aufträgt. Ein zweites, durch die Bestrahlung entstehendes Signal, ist nicht zu erkennen. Die Größenordnung der Koerzitivfeldstärke stimmt mit unbehauelten Proben des gleichen Typs überein [20].

4.4.1 Dosisabhängigkeit

Variiert man die Ionendosis, beobachtet man, dass bereits bei geringen Dosen zwei klar trennbare Signale im Polungsstrom auftreten. Dieses Verhalten wird in Abbildung 4.10 deutlich, in der jeweils die zweite Polung in Vorwärtsrichtung für die Proben der ersten Bestrahlung LNC-1 bis LNC-5 dargestellt ist.

In Abbildung 4.10(a) erkennt man eine leichte Absenkung der Koerzitivfeldstärke E_c^b des bestrahlten Bereichs im Vergleich zu höheren Dosen. Im Bereich kleiner und mittlerer Dosen sind zwei deutlich trennbare Signale des bestrahlten- und unbestrahlten Bereichs erkennbar, wie in den Abbildungen 4.10(a)-(c) zu sehen ist. Für größere Ionendosen, wie in den Abbildungen 4.10(d),(e), liegt die Koerzitivfeldstärke zwar bei vergleichbaren Zahlenwerten, die Signale sind aber nicht mehr so deutlich zu unterscheiden, eine klare Trennung ist aufgrund der Verschmierung nicht möglich.

4.4.2 Thermische Stabilität

Nach einem Tempervorgang werden die Proben erneut gepolt. Abbildung 4.11 zeigt den Verlauf des Polungsstromes für die Probe LNC-3. Die rote Linie zeigt das Verhalten vor dem Tempern, die blaue nach einem ersten Tempervorgang von 15 min. bei 150 °C und die schwarze nach einem zweiten Tempervorgang von 15 min. bei 200 °C.

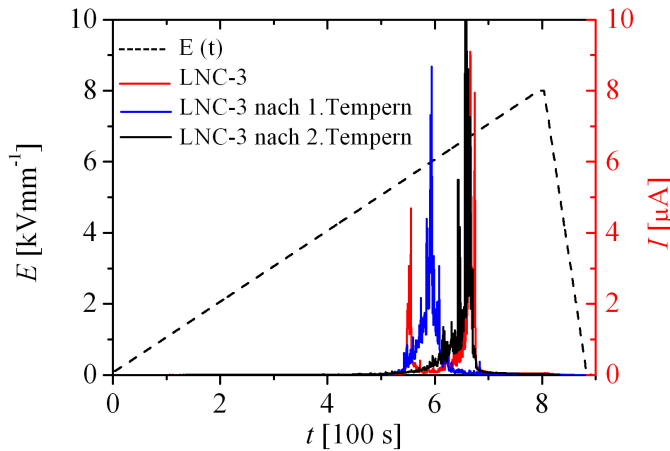


Abbildung 4.11: Thermische Stabilität der Polungseigenschaften: Vor dem Tempern sind die zwei charakteristischen Fingerabdrücke zu sehen (rot), die sich nach dem ersten Tempervorgang (blau) zu einem Signal vermischen und nach einem weiteren Tempervorgang (schwarz) nahezu dem Signal eines unbestrahlten Kristalls entsprechen.

Die charakteristische Form der zwei voneinander getrennten Signale verschwindet. Bei manchen Proben gibt es zwar noch ein Signal für den bestrahlten Bereich, allerdings ist dieses dann deutlich schwächer und der Übergang zum Signal des unbestrahlten Bereichs ist sehr verschwommen. Bei den meisten Proben gibt es nur noch ein Signal, wie in Abbildung 4.11 deutlich wird. Die Koerzitivfeldstärke dieses Signals liegt zwischen der des bestrahlten Bereiches E_c^b und der des unbestrahlten Bereiches E_c^u . Nach zweimaligem Tempervorgang sind Effekte aus der Bestrahlung nicht mehr zu erkennen, es gibt nur noch ein Signal mit der Koerzitivfeldstärke E_c^u .

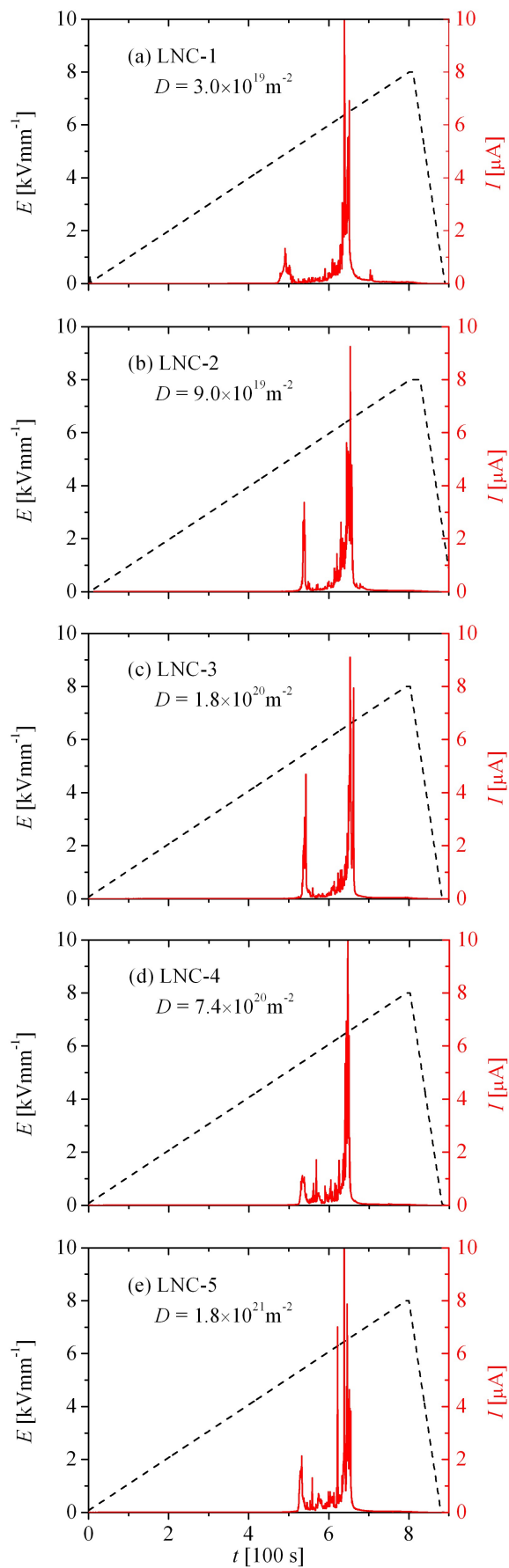


Abbildung 4.10: Polungsvorgänge der LNC-Proben für verschiedene Bestrahlungsdosen. Aufgetragen sind Feldstärke und Polungsstrom gegen die Zeit.

4.4.3 Mit periodischer Maske

Wie in Kapitel 3.5.4 beschrieben können periodisch strukturierte Elektrodenmasken zur Erzeugung ferroelektrischer Domänenmuster benutzt werden. Im Rahmen dieser Arbeit werden drei Proben mit solchen Masken belackt, deren Periodenlänge $18 \mu\text{m}$ bzw. $10 \mu\text{m}$ beträgt. Tabelle 4.3 gibt einen Überblick über die verwendeten Proben und die Tastverhältnisse Γ ihrer Belackung. Anschließend werden die Proben, wie in Kapitel 3.5.3

Probe	Breite des Chrom-Streifen	Breite des Chromfreien-Streifen	Tastverhältnis Γ
LNC-2	10	8	0.55
LNC-8	6	4	0.6
LNC-9	10	8	0.55

Tabelle 4.3: Tastverhältnisse der verwendete Masken zur strukturierten Polung der Proben LNC-2, LNC-8 und LNC-9.

beschrieben, mit Feldstärke-Pulsen gepolt. Aus der geflossenen Ladung lässt sich bestimmen, welche Fläche bereits umgepolt wurde. Ist die gewünschte Ladungsmenge geflossen, wird der Polungsvorgang abgebrochen.

LNC-2

Wie in Tabelle 4.4 zu sehen, werden insgesamt sieben Feldstärke-Pulse angelegt. Nach dem sechsten Puls ist bereits eine Ladung von $2.25 \mu\text{C}$ geflossen, beim siebten Puls kommt es zu einem Spannungseinbruch, der durch einen Durchschlag verursacht wird. Die geflossene Ladung lässt sich daher nur sehr ungenau abschätzen, da man nicht genau weiß, wie viel Ladung bereits vor dem Spannungseinbruch geflossen ist. Der Kristall wird daher nach siebenmaligem Pulspolen ausgebaut und untersucht.

Amplitude [kVmm^{-1}]	Ladung [μC]
3.5	0
3.7	0
3.8	0
3.8	0.25
3.9	0.6
3.9	1.4
3.8	15

Tabelle 4.4: Die Probe LNC-2 wird insgesamt mit sieben Pulsen gepolt: Die Tabelle zeigt die jeweiligen Amplituden und die geflossene Ladung. Die Gesamtladung lässt sich aufgrund eines Spannungseinbruch beim letzten Puls nicht genau bestimmen und kann daher nur auf einen Wert zwischen $2.25 \mu\text{C}$ und $17.25 \mu\text{C}$ geschätzt werden.

Abbildung 4.12 zeigt die Mikroskopaufnahme der Probe LNC-2, in der man nur innerhalb des bestrahlten Bereiches gepolte Strukturen erkennen kann. Durch Spannungsdoppelbrechung lassen sich besonders an den Übergängen zum unbestrahlten Bereich gepolte Strukturen erkennen, so dass bestrahlter und unbestrahlter Bereich klar trennbar sind.

Die gepolten Strukturen weisen das aufgebrachte Elektrodenmuster auf. Im Inneren des bestrahlten Bereiches sind die gepolten Strukturen meist hexagonal, in den Randbereichen links und rechts scheinen diese Strukturen kleiner zu werden und an Symmetriezwang zu verlieren.

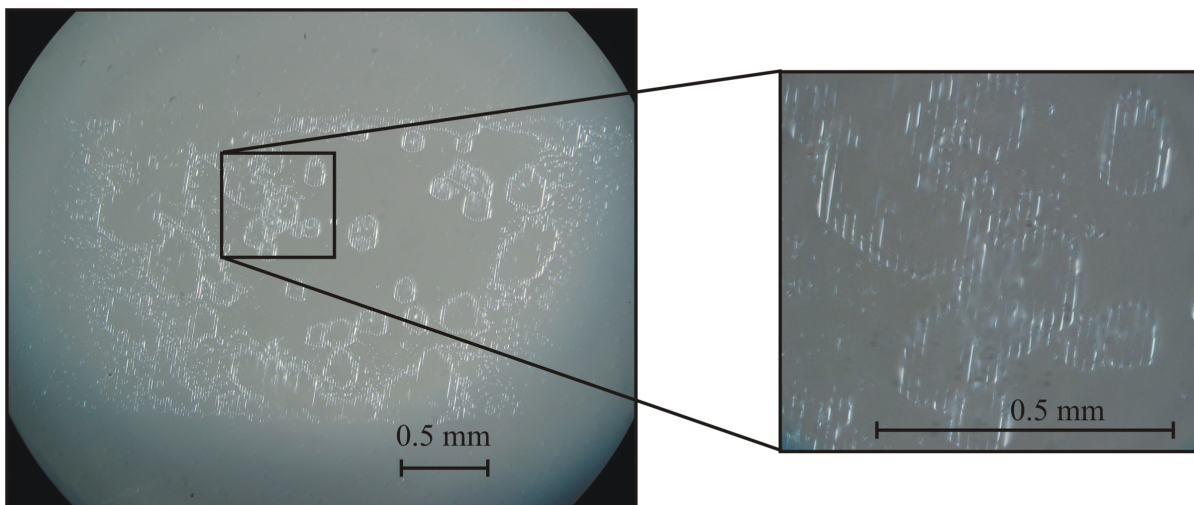


Abbildung 4.12: Mikroskopaufnahme der Probe LNC-2: Im linken Bild ist etwa die von den O-Ringen umschlossene Fläche zu sehen; die Blendenkanten oben und unten sind gut zu erkennen, rechts und links läuft der bestrahlte Bereich langsam aus. Innerhalb des bestrahlten Bereiches lassen sich gepolte Strukturen erkennen, die periodische Muster aufweisen. Das rechte Bild zeigt eine Vergrößerung eines Teilbereiches in der die periodische Struktur der Elektrodenmaske zu erkennen ist.

LNC-8

Wie in Tabelle 4.5 zu sehen, werden insgesamt sieben Feldstärke-Pulse angelegt. Insgesamt fließt dadurch eine Ladung von etwa $9.5 \mu\text{C}$, was einer durchgepolten Fläche von etwa 13% entspricht. Die bestrahlte Fläche innerhalb der Kontaktierung wurde auf 14.5 mm^2 geschätzt, was bei einer kompletten Umpolung dieser Fläche einen Ladungsfluss von etwa $20 \mu\text{C}$ bedeuten würde. Durch die Elektrodenmaske sollte jeweils nur die halbe Fläche gepolt werden, was einen Ladungsfluss von etwa $10 \mu\text{C}$ erwarten lässt. Mit den hier geflossenen $9.5 \mu\text{C}$ sollte daher bereits ein beachtlicher Teil umgepolt sein. Der Kristall wird daher nach siebenmaligem Pulsfolgen ausgebaut und untersucht.

Amplitude [kVmm^{-1}]	Ladung [μC]
3.7	0.25
3.5	0.125
3.5	0.8
4	0.75
4	2
4	2
4	3.5

Tabelle 4.5: Die Probe LNC-8 wird insgesamt mit sieben Pulsen gepolt: Die Tabelle zeigt die jeweiligen Amplituden und die geflossene Ladung. Die Gesamtladung beträgt $9.5 \mu\text{C}$.

Unter dem Mikroskop lässt sich, wie in Abbildung 4.13, entlang des Übergangs vom bestrahlten zum unbestrahlten Bereich eine Umpolung erkennen, die keinerlei Elektroden-induzierte Muster zeigt. Innerhalb des bestrahlten Streifens befinden sich unterschiedlich große, meist hexagonale Strukturen, an deren Rändern das periodische Elektrodenmuster erkennbar ist. In den unbestrahlten Randbereichen sind kleine hexagonale umgepolte Domänen sichtbar, die allerdings keinerlei periodische Strukturierung aufweisen.

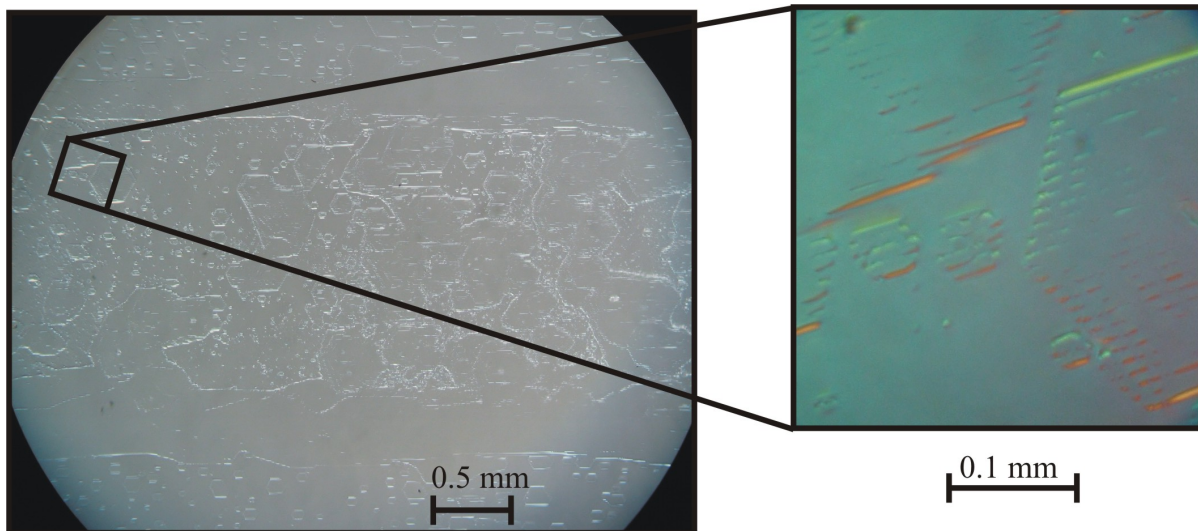


Abbildung 4.13: Mikroskopaufnahme der Probe LNC-8: Im linken Bild lässt sich der bestrahlte Streifen in der Mitte sehr deutlich von den unbestrahlten Randbereichen trennen. Innerhalb des bestrahlten Bereiches treten gepolte Strukturen mit periodischen Unterstrukturen auf, die auch im vergrößerten Bildausschnitt rechts zu sehen sind. Im unbestrahlten Randbereich sind nur sehr kleine Strukturen zu erkennen, die außerdem keinerlei periodische Unterstrukturen erkennen lassen.

Zur genaueren Untersuchung wird das Rasterkraftmikroskop genutzt. Abbildung 4.14 zeigt die Piezo-Signale entlang zweier Linien, die über einen periodisch strukturierten Bereich gelegt wurde. Es lässt sich in beiden Fällen eine Periodenlänge von $10 \mu\text{m}$ ablesen, die mit der verwendeten Maske übereinstimmt. Das Tastverhältnis ist bei den Linien sehr unterschiedlich und beträgt in Abbildung 4.14(a) nahezu 0.5, in Abbildung 4.14(b) deutlich mehr. Es besteht also kein einheitliches Tastverhältnis für die gepolten Bereiche.

LNC-9

Wie in Tabelle 4.6 zu sehen, werden insgesamt fünf Feldstärke-Pulse angelegt. Insgesamt fließt dadurch eine Ladung von etwa $20.7 \mu\text{C}$, was einer durchgepolten Fläche von etwa 30% entspricht. Die bestrahlte Fläche innerhalb der Kontaktierung wurde wieder auf 14.5 mm^2 geschätzt, was bei einer kompletten Umpolung dieser Fläche einen Ladungsfluss von etwa $20 \mu\text{C}$ bedeuten würde. Durch die Elektrodenmaske ergäbe sich ein Ladungsfluss von etwa $10 \mu\text{C}$. Durch Überschreiten der Ladung von $10 \mu\text{C}$ wird vermutet, den bestrahlten Bereich diesmal nicht nur in Teilbereichen gepolt zu haben, sondern eine großflächigere

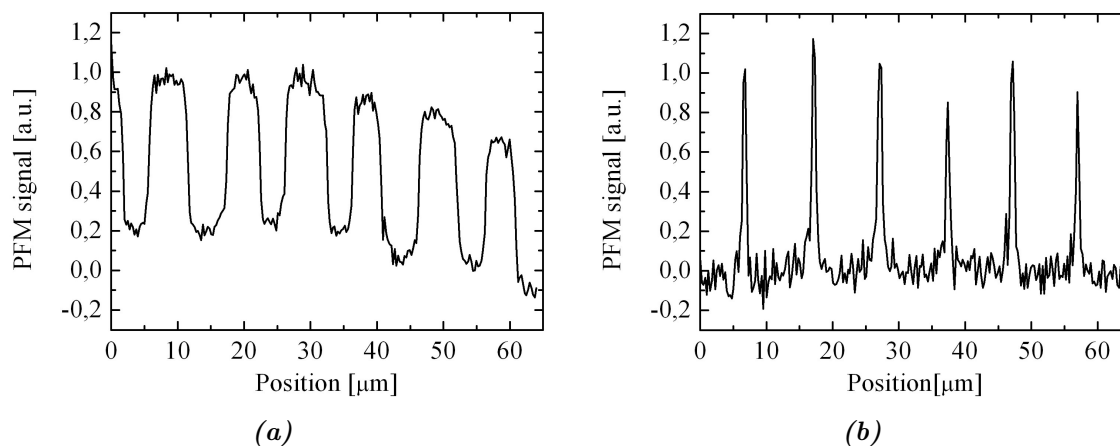


Abbildung 4.14: An zwei unterschiedlichen Stellen der Probe LNC-8 wurde entlang einer Linie das Signal des Rasterkraftmikroskopes aufgenommen. Es ergeben sich sehr unterschiedliche Tastverhältnisse, die allerdings immer die Periode der Elektrodenmaske aufweisen.

Polung erzielt zu haben. Nach diesen fünf Pulsen wird der Kristall daher ausgebaut und untersucht.

Aplitude [kVmm^{-1}]	Ladung [μC]
3.5	0
4	4
4	7
4	8
4	1.7

Tabelle 4.6: Die Probe LNC-9 wird insgesamt mit fünf Pulsen gepolt: Die Tabelle zeigt die jeweiligen Amplituden und die geflossene Ladung. Die Gesamtladung beträgt $20.7 \mu\text{C}$.

Im Gegensatz zu den Proben LNC-2 und LNC-8 wird diese Probe in Flusssäure geätzt um die visuelle Untersuchung zu verbessern. Im Dunkelfeld des Mikroskops, das in Abbildung 4.15 zu sehen ist, lässt sich sehr schön der bestrahlte Streifen in der Mitte von den unbestrahlten Randbereichen differenzieren. Man erkennt in der gesamten kontaktierten Fläche das periodische Elektrodenmuster, im bestrahlten Bereich ist es allerdings viel ausgeprägter zu erkennen. Hier sind die hellen Streifen fast immer durchgängig, während im unbestrahlten Bereich die hellen Streifen nur bruchstückhaft vorhanden sind und sich bei weitem kein so ausgeprägtes periodisches Muster ergibt.

Auch für die Probe LNC-9 wird eine rasterkraftmikroskopische Untersuchung durchgeführt um die Strukturierung qualitativ besser beschreiben zu können. Es ergibt sich eine Periode von $18 \mu\text{m}$, die mit der Elektrodenmaske übereinstimmt. Das Tastverhältnis ist unregelmäßig, meist jedoch deutlich über 0.5. Abbildung 4.16(a) zeigt einen Ausschnitt aus dem bestrahlten, periodisch gepolten Bereich. Es wird deutlich, dass die einzelnen Strukturen voneinander abweichen, insgesamt jedoch lässt sich ein Überpolen klar erkennen. In der nebenstehenden Abbildung 4.16(b) wurde eine Linie über eine dieser Strukturen gelegt, aus der sich eine Halbwertsbreite von 500 nm ablesen lässt.

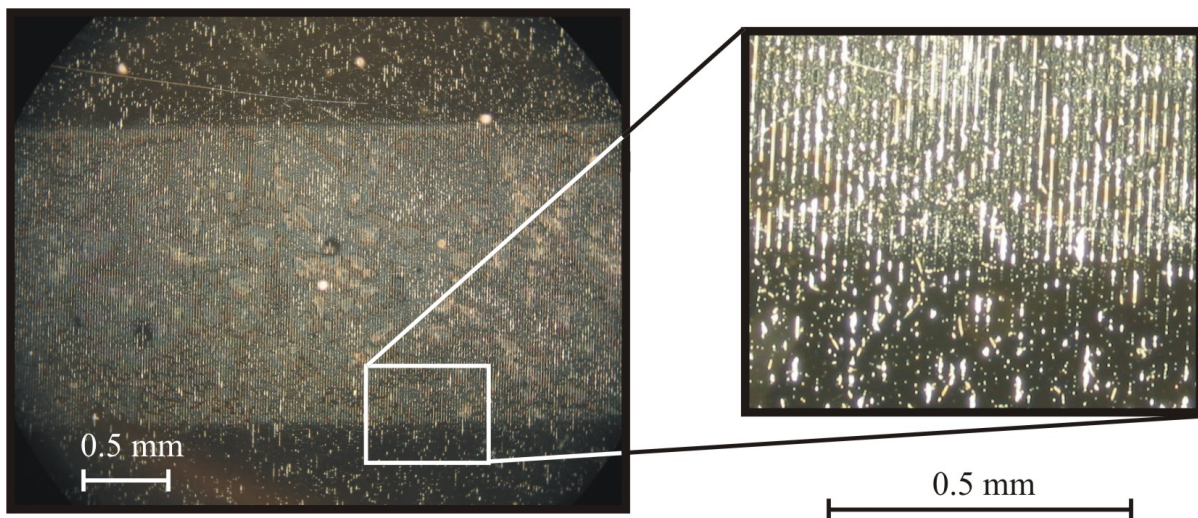
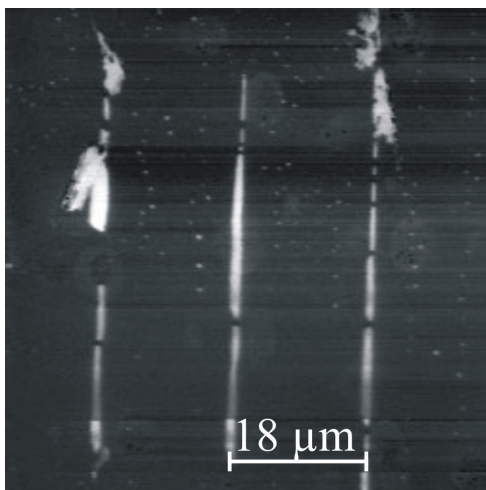
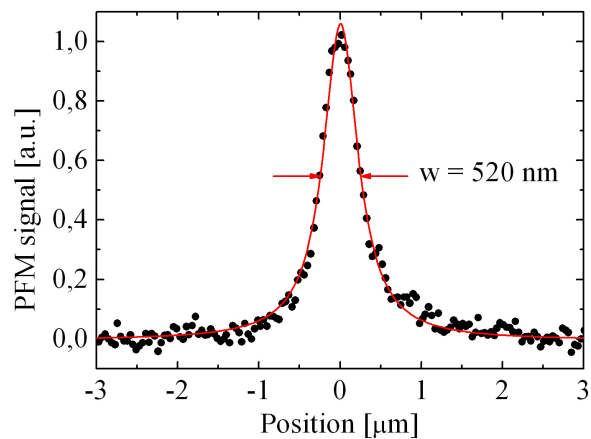


Abbildung 4.15: Mikroskopaufnahme der Probe LNC-9: Im Dunkelfeld lässt sich im rechten Bild der bestrahlte Streifen klar von den unbestrahlten Randbereichen trennen. Der Grund wird im vergrößerten Bildausschnitt rechts deutlich: Im bestrahlten Bereich ist die periodische Struktur weit stärker ausgeprägt, die Streifen sind über weite Teile durchgängig und werden relativ selten unterbrochen. Im unbestrahlten Bereich hingegen treten nur stellenweise periodische Strukturen auf.



(a)



(b)

Abbildung 4.16: Rasterkraftmikroskopische Aufnahme der Probe LNC-9: (a) zeigt die periodische Struktur, helle und dunkle Bereiche geben die unterschiedlichen Orientierungen der polaren c-Achse an. In (b) wurde das Signal des Rasterkraftmikroskopes entlang einer Linie über eine dieser hellen Strukturen aufgenommen. Aus der Halbwertsbreite ergeben sich 500 nm breite Strukturen.

4.4.4 Gitter

Grundsätzlich ist es möglich, einen Polungsvorgang zu unterbrechen und so nur einen Teil der Domänen zu invertieren. Bei den hergestellten Gittern wird der Versuch unternommen nur den bestrahlten Bereich umzupolen, so dass eine periodisch gepolte Struktur entsteht. Durch die erniedrigte Koerzitivfeldstärke im bestrahlten Bereich sollte es möglich sein, diese zu überschreiten und damit den bestrahlten Bereich umzupolen, während die Koerzitivfeldstärke des unbestrahlten Bereiches noch nicht erreicht ist und somit diese Teile des Kristalls in ihrem ursprünglichen Zustand bleiben.

An allen hergestellten Gittern werden Polungsversuche sowohl mit Rampen als auch mit Pulsen durchgeführt, die bislang jedoch alle nicht zu dem gewünschten Ergebnis führen. So erhält man entweder überpolte oder unterpolte Kristalle, eine periodische Struktur wird in keiner Probe beobachtet.

4.5 Leitfähigkeitsbestimmung

Um die Leitfähigkeit der Proben zu überprüfen, wird nach einem Polungsvorgang erneut in die gleiche Spannungsrichtung gepolt. In Abbildung 4.17 ist die Leitfähigkeitsuntersuchung des Kristalls LNC-10 zu sehen, für den nach der Domäneninversion in Vorwärtsrichtung 21 mal in die gleiche und somit domänenstabilisierende Richtung gepolt wurde.

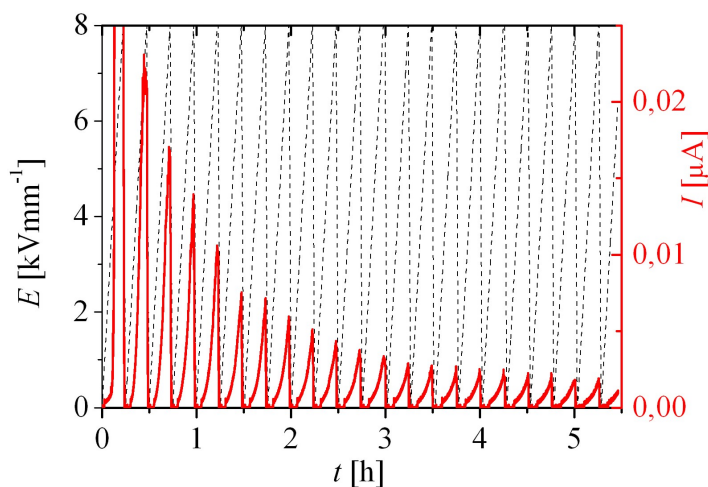


Abbildung 4.17: Langzeitmessung des Leitfähigkeitsverhaltens: Die Leitfähigkeit ist aus dieser Art von Messung nicht ersichtlich, da sie sich nach dem Polen nur langsam abbaut.

Die geflossene Ladung wird bei jedem Vorgang geringer und endet in einer Sättigung. Die Signalform des Polungsstromes nimmt dabei an Linearität zu. Die Zeit, die vergeht, bis ein annähernd stationärer Zustand erreicht ist, variiert von Messung zu Messung. Grundsätzlich ist für die Proben allerdings zu beobachten, dass ein Abklingen in Vorwärtsrichtung langsamer abläuft als in Rückwärtsrichtung. In beide Richtungen kann beobachtet werden, wie der Strom annähernd linear bis etwa zu einem Wert von 2 nA ansteigt, wenn ein stationärer Zustand erreicht ist.

Eine andere Methode die Leitfähigkeit zu untersuchen wird mit zuvor ungepolten Proben durchgeführt. Die Proben werden wie üblich in den Halter eingebaut, allerdings wird bereits der erste Polungsvorgang in Rückwärtsrichtung, also domänenstabilisierend ange-

legt. Auf diese Weise werden zwei unbestrahlte Proben LNC-0 und LNC-00 sowie zwei mit gleicher Dosis bestrahlte Proben LNC-12 und LNC-16 untersucht.

Für unbestrahlte Kristalle, wie die Probe LNC-0 in Abbildung 4.18 ergibt sich für den ersten Vorgang ein „Polungssignal“, obwohl entgegen der Polungsrichtung gepolt wird. Dieses Signal ist allerdings mit einem Maximalstrom von 6 nA deutlich geringer als die Signale in Polungsrichtung. Weitere Polungsvorgänge in die gleiche Richtung weisen keine „Polungssignale“ mehr auf, sondern zeigen einen linearen Anstieg des Polungsstromes bis zu Werten von etwa 0.2 nA.

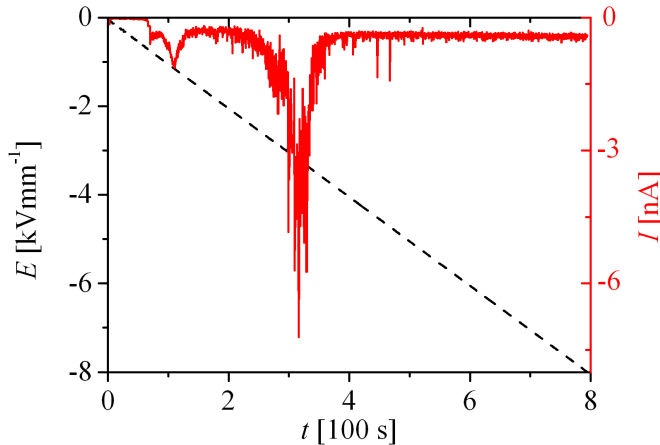


Abbildung 4.18: Bei einer unbestrahlten Probe wird entgegen der Polungsrichtung gepolt: Ein schwaches Polungssignal ist zu erkennen, das allerdings deutlich geringer ausfällt als bei einer normalen Domäneninversion. Wird erneut domänenstabilisierend gepolt, verschwindet das schwache Signal und es stellt sich ein annähernd linearer Anstieg des Polungsstromes ein.

Für bestrahlte Kristalle, wie die Probe LNC-12 in Abbildung 4.19, ist der erste Polungsvorgang ebenfalls nichtlinear, allerdings ist das Polungssignal bei weitem nicht so ausgeprägt wie bei den unbestrahlten Kristallen. Der Polungsstrom steigt bis zu Werten von etwa 7 nA, was Signale in der Größenordnung der unbestrahlten Proben überdecken würde. Weitere Polungen in dieselbe Richtung zeigen ein lineareres Verhalten.

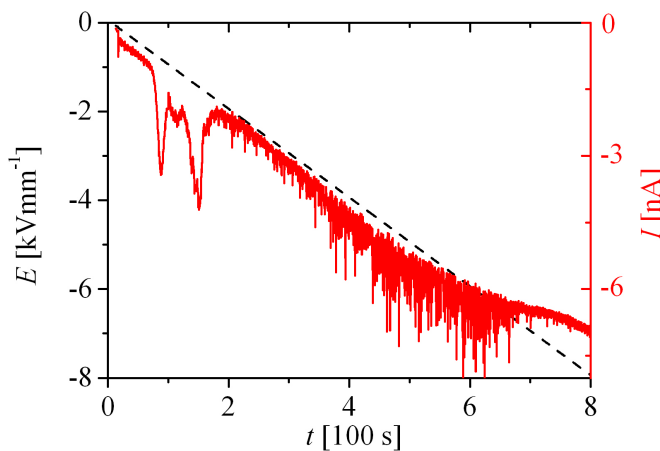


Abbildung 4.19: Bei einer bestrahlten Probe wird entgegen der Polungsrichtung gepolt: Es ist kein deutliches Signal zu erkennen, wie bei den unbestrahlten Proben. Generell ist die Leitfähigkeit allerdings deutlich erhöht, so dass ein Signal mit einer Amplitude von 6 nA nicht zu erkennen wäre.

5 Diskussion

5.1 Verfärbung

Verfärbungen im bestrahlten Bereich sind bereits bei einigen Materialien beobachtet worden [46–48]. Als Ursache gelten elektronische Defekte, die durch Ionisationsprozesse und δ -Elektronen zustande kommen. Zum einen bilden sich Lochpolaronen durch die fortgerissenen Elektronen, zum anderen entstehen Farbzentren, wenn die Elektronen auf Sauerstoff-Leerstellen treffen [49].

Lagern die Proben bei Raumtemperatur, verschwinden die Verfärbungen langsam, tempern kann diesen Vorgang beschleunigen [38, 48]. Diese Beobachtung untermauert die vermuteten Ursachen, da elektronische Schäden bereits bei relativ kleinen Aktivierungsenergien ausgeheilt werden können.

Bei den dieser Arbeit zugrundeliegenden Messungen können die Verfärbungen als schneller Indikator genutzt werden, ob der Ionenstrahl die Probe getroffen hat oder nicht. Auf diese Weise lassen sich schon sehr kleine Dosen auf den Proben erkennen, die selbst mit dem Interferometer nicht auflösbar sind.

5.2 Brechungsindex und Deformation

Anhand der Messungen aus Kapitel 4.2 wird deutlich, dass sowohl der Brechungsindex als auch die Probendicke in magnesiumdotiertem Lithiumniobat deutlich verändert werden. Eine umfangreiche Messreihe (vgl. Abbildungen 4.3, 4.4) zeigt eine starke Dosisabhängigkeit sowohl für den Brechungsindex als auch für die Dickenänderungen der Proben. Die Abhängigkeit ist in beiden Fällen stark nichtlinear, die Verläufe der beiden Kurven ähneln sich stark. Die höchste hier gemessene Δn -Änderung liegt bei etwa 6×10^{-3} , eine Sättigung der Effekte ist dabei noch nicht zu erkennen, so dass durch stärkere Ionendosen vermutlich noch größere Änderungen erzielt werden können.

Ein Vergleich zwischen den stöchiometrischen LNS-Proben und den kongruent schmelzenden LNC-Proben deutet auf stärkere Änderungen in den stöchiometrischen Kristallen hin. Da die Materialien allerdings in verschiedenen Strahlzeiten bestrahlt wurden, können die Abweichungen bei der Dosisbestimmung relativ groß werden. Durch einen Fehler in der Dosisbestimmung mit dem Faktor 3 würden die Abweichungen der beiden Materialien sowohl in den Brechungsindexänderungen als auch in den Dickenänderungen stark relativiert werden. Fehler dieser Größenordnung sind durch die schwer zu kontrollierenden Bedingungen bei den Bestrahlungen, wie z.B. die Strahlfleckgröße, durchaus möglich, so

dass ein qualitativer Vergleich der beiden Materialien noch aussteht. Bessere Vergleichbarkeit würde man erzielen, wenn beide Kristallsorten innerhalb einer Strahlzeiten bestrahlt würden, da die Fehler bei der Dosisbestimmung für diese Proben im Verhältnis zueinander dann wesentlich reduziert werden können.

Ein Vergleich der erzielten Brechungsindexänderungen mit undotiertem Material [50] zeigt ein sehr ähnliches Verhalten. Die Kurvenform der Brechungsindexänderung entlang der Ionendosis ist in beiden Fällen etwa gleich, die Größenordnung der Änderungen ebenfalls, wenn man die Dosisfehler berücksichtigt [14].

Die für die Brechungsindexänderungen verantwortlichen Defekte sind bislang nicht eindeutig erklärbar. Durch Aufnahmen mit einem Transmissions-Elektronen-Mikroskop [50] könnten vor kurzem erstmals mikroskopische Bilder von Strahlenschäden in LiNbO_3 aufgenommen werden. Bei diesen Schäden handelt es sich um eine Folge von Stoßkaskaden, die durch zentrale Stöße der ^3He -Ionen mit Nb-Ionen ausgelöst werden. Für undotiertes Material wurden außerdem Simulationen der Fehlstellendichten entlang der Probtiefe an die Messdaten angepasst und gute Übereinstimmungen erzielt [50]. Da das dotierte Material ein ähnliches Verhalten in der Modifikation des Brechungsindex aufweist, ist anzunehmen, dass hier ebenfalls die Fehlstellendichte ausschlaggebend für die Δn -Änderungen ist.

Die Deformationen der Proben erfolgte immer in Richtung der Bestrahlung, was die These der Probenausdehnung aufgrund geringerer kristalliner Ordnung [35] unterstreicht.

5.2.1 Thermische Ausheilung

Die Auswirkungen der thermischen Ausheilung auf die Proben wurde in Kapitel 4.2.2 untersucht. Für moderates Tempern bei 150 °C für 15 min. ergibt sich eine Abschwächung der Brechungsindexänderungen von etwa 20% . Auch dieses Verhalten ist mit dem undotierter Kristalle vergleichbar [50] und lässt sich prinzipiell über die Diffusion von Ionen erklären. Wann ein Ion beweglich wird hängt dabei im Wesentlichen von seiner Aktivierungsenergie und der Temperatur ab. Der Veröffentlichung [51] können die Aktivierungsenergien $E_a^{\text{Li}} = 1.98\text{ eV}$, $E_a^{\text{Nb}} = 1.07\text{ eV}$, $E_a^{\text{O}} = 1.27\text{ eV}$ entnommen werden, die bei Temperaturen um 1000 °C bestimmt wurden. Hieraus ließe sich folgern, dass zunächst das Niob mobil werden würde, gefolgt vom Sauerstoff und mit einigem Abstand dem Lithium. Da bei niedrigeren Temperaturen jedoch völlig andere Bedingungen gelten können sind diese Folgerungen sehr fraglich. Vielmehr ist anzunehmen, dass bei tieferen Temperaturen die ziemlich kleinen Lithium-Ionen als erstes beweglich werden [52], wie Untersuchungen zum thermischen Fixieren von Brechungsindexgittern ergeben haben [53–55].

Die bei einer Temperatur von 150 °C ausgeheilten Defekte sind daher vermutlich auf eine Diffusion des Lithium zurückzuführen, während eine Diffusion der Niob bzw. Sauerstoff-Ionen eher unwahrscheinlich ist und erst bei deutlich höheren Temperaturen einsetzt.

Bei der Erhöhung der Temperatur im zweiten Vorgang ergibt sich keine weitere, deutliche Änderung im Brechungsindex. Es liegt daher nahe, dass die für den Brechungsindex relevanten Defekte im Temperaturbereich von 150 °C bis 200 °C keine spürbare Ausheilung erfahren.

5.2.2 Gitterherstellung

Durch die gitterförmige Bestrahlung lassen sich Kristalle mit periodisch moduliertem Brechungsindex erzeugen. Eine Gitterperiode von $12 \mu\text{m}$ konnte für drei Proben reproduziert werden und über die Bestimmung des Beugungswirkungsgrades (vgl. Kapitel 4.3) bestätigt werden.

5.3 Polungsverhalten

Das Polungsverhalten der untersuchten Proben entspricht weitestgehend dem aus der Literatur bekannten Verhalten [56, 56]: Die ersten beiden Domäneninversionen (E_c^1 und E_c^{-1}) unterscheiden sich von allen folgenden Inversionen in Vorwärts- (E_c^v) und Rückwärtsrichtung (E_c^r), die beliebig oft reproduzierbar sind.

Für die stöchiometrischen LNS-Proben ist kein Einfluss der Bestrahlung auf das Polungsverhalten erkennbar. Mit Koerzitivfeldstärken von $E_c = (2.4 \pm 0.2) \text{ kVmm}^{-1}$ bei einer linearen Erhöhung von 5 Vs^{-1} und einem Schwellwert von $0.2 \mu\text{A}$ sind die Werte mit aus der Literatur bekannten Koerzitivfeldstärken von $E_c = (2.5 \pm 0.2) \text{ kVmm}^{-1}$ bei einer linearen Erhöhung von 30 Vs^{-1} und einem Schwellwert von $1 \mu\text{A}$ vergleichbar [40].

Die kongruent schmelzenden Proben der LNC-Serie zeigen im Vergleich zu unbestrahlten einen deutlichen Unterschied: Es ergeben sich zwei charakteristische Polungsintervalle für den bestrahlten und unbestrahlten Bereich (vgl. Abbildung 4.10). Die Verminderung der Koerzitivfeldstärke durch die Bestrahlung liegt etwa bei 10% - 15%. Diese Reduktion kann durch höhere Ionendosen bei der Bestrahlung nicht gesteigert werden, was auf eine Sättigung des Effektes hinweist (vgl. Abbildung 4.10). Da bereits bei kleinen Dosen die Koerzitivfeldstärke auf etwa den gleichen Wert abfällt, müssen isolierte Defekte der elektronischen Umgebung vorliegen, die durch stärkere Bestrahlung nicht aufsummiert werden. Im Gegensatz zu der Koerzitivfeldstärke ändert sich die Signalform durch die Bestrahlungsdosis; so kommt es für Ionendosen im mittleren Bereich ($1 \times 10^{20} \text{ m}^{-2}$) zu den deutlichst trennbaren Signalen, während es bei hohen Dosen ($1 \times 10^{21} \text{ m}^{-2}$) bereits zu einem Verschwimmen der Signale kommt. Die Ursache hierfür könnte ein Übergreifen der Domäneninversion auf unbestrahlte Bereiche bei zu hohen Dosen sein, das die beiden Signale verschmelzen lässt.

Der Grund für die etwas stärker verminderte Koerzitivfeldstärke des bestrahlten Bereiches bei niedrigen Dosen (vgl. Abbildung 4.10(a)) können einerseits Messartefakte sein, zum anderen besteht die Möglichkeit, dass die Richtung in der die Probe bestrahlt wurde eine Rolle spielt. So wurden die Proben LNC-2 bis LNC-5 entlang der $+z$ -Achse bestrahlt, die Probe LNC-1 jedoch gegen die $+z$ -Achse. Ein Einfluss der Bestrahlungsrichtung bleibt daher noch zu untersuchen.

5.3.1 Physikalische Vorgänge

Die Koerzitivfeldstärke hängt im Wesentlichen von der Defektstruktur des Materials ab. In kongruent schmelzendem Lithiumniobat ist die Koerzitivfeldstärke deutlich höher als in stöchiometrischem Material, was vermutlich daran liegt, dass die Li(auf-Li)-Ionen leichter durch die Sauerstoffebenen zu drücken sind als Nb(auf-Li)-Ionen [22, 57]. Auch für magne-

siumdotierte Kristalle wird ein Absenken der Koerzitivfeldstärke beobachtet [58]. Bei einer Dotierung mit Magnesium werden die Nb(auf-Li)-Plätze durch Mg(auf-Li) ersetzt, was zu der Annahme führt, dass auch Mg(auf-Li) leichter durch die Sauerstoffebenen zu drücken ist als Nb(auf-Li).

Durch die Bestrahlungen konnte nur in kongruent schmelzendem Material mit einer 5 mol% Mg-Dotierung ein Absenken der Koerzitivfeldstärke für den bestrahlten Bereich beobachtet werden (vgl. Abbildung 4.8). Da bei den nahezu stöchiometrischen Kristallen mit 1 mol% Mg-Dotierung kein Effekt ersichtlich ist (vgl. Abbildung 4.9), muss die Bestrahlung Defekte in den LNC-Proben erzeugen, die in den LNS-Kristallen nicht entstehen. Die LNS-Proben besitzen mehr Lithium und weniger Magnesium als die LNC-Proben, so dass vermutlich eine dieser Abweichungen für das unterschiedliche Verhalten der Koerzitivfeldstärke verantwortlich ist. Da bereits bei moderater Temperatur von 150 °C bzw. 200 °C die Verminderung der Koerzitivfeldstärke in den LNC-Proben verschwindet (vgl. Abbildung 4.11), kommen am wahrscheinlichsten elektronische Defekte als Ursache in Betracht. Diese These wird auch durch den Vergleich mit UV-beleuchteten Proben (vgl. Abschnitt 5.5) gestützt, in denen ebenfalls ein Absenken der Koerzitivfeldstärke beobachtet wird. Diese Verminderung in den beleuchteten Proben sollte ebenfalls elektronisch hervorgerufen sein, da andere Defekte durch UV-Bestrahlung unwahrscheinlich sind. Da im Gegensatz zu den beleuchteten Proben die Reduktion der Koerzitivfeldstärke bei den bestrahlten Proben beständig ist, müssen allerdings noch weitere Prozesse eine Rolle spielen. Wie diese Defekte im Einzelnen aussehen kann momentan noch nicht beantwortet werden.

Eine weitere Möglichkeit ist, dass aufgrund der geringeren Koerzitivfeldstärke in den LNS-Proben der durch die Bestrahlung induzierte Effekt unter dem Polungssignal verschwindet und somit scheinbar nicht vorhanden ist. Auf diese Weise könnten die Defektarten, die in den LNC-Proben zur Verminderung der Koerzitivfeldstärke führen auch in den LNS-Proben auftreten, ohne sich auf das Polungssignal auszuwirken.

5.3.2 Symmetriezwang

Die Domänenform wurde im Rahmen dieser Arbeit nicht näher untersucht, es scheint jedoch eine Reduzierung im Symmetriezwang vorzuliegen. Wie man in der Abbildung 4.12 sehen kann, liegen vor allem in den Randbereichen der Bestrahlung sehr kleine, nicht zwingend hexagonale Domänen vor. Jüngere Arbeiten [18] zeigen, dass mechanische Verspannungen und die Energie der Domänenwand maßgeblich die Form der Domänen beeinflussen. Vor allem Ersteres wird im Falle einer Bestrahlung im Kristall erzeugt, was sich besonders deutlich in den Randbereichen auswirken dürfte und somit zu verändertem Symmetrieverhalten führen kann.

Eine Verminderung des Symmetriezwanges ist bei der Herstellung von PPLN interessant, da bei sehr kleinen Strukturen die hexagonale Form durchaus zu Problemen führen könnte. Aber auch im Bereich anderer Anwendungen, wie zum Beispiel elektrooptisch schaltbare Fresnel-Linsen ist eine Aufhebung des Symmetriezwanges von Interesse.

5.3.3 Ausheilung

Die Auswirkungen thermischer Ausheilung sind in Kapitel 4.4.2 dargestellt. Nach einem Tempervorgang von 15 min. bei 150 °C sind die Bestrahlungseffekte im Polungsstrom deutlich reduziert, nach einem zweiten Tempervorgang von 10 min. bei 200 °C ist fast kein Unterschied zu unbestrahlten Proben mehr zu erkennen. Die Reduzierung des Effektes kann auch hier über die Diffusion von Ionen wie in Kapitel 5.2.1 erklärt werden. Durch den deutlichen Unterschied zwischen dem ersten und zweiten Tempervorgang lässt sich schließen, dass durch das zweite Tempern Defekte ausgeheilt wurden, die nach dem ersten Vorgang noch vorhanden waren. Ursachen können einerseits die gesamte Temperdauer sein, oder viel wahrscheinlicher die Temperatur. Durch die Erhöhung von 150 °C auf 200 °C werden vermutlich Defekte ausgeheilt, die vorher noch stabil waren. Diese Defekte müssen für die Domäneninversion eine Bedeutung haben.

5.3.4 PPLN-Herstellung

Mithilfe strukturierter Elektrodenmasken

Die Herstellung periodisch gepolten Lithiumniobats durch strukturierte Elektrodenmasken wurde in Kapitel 4.4.3 untersucht. Grundsätzlich lässt sich eine Domäneninversion in bestrahlten Bereichen leichter, das heißt mit geringeren Feldstärken realisieren. Dies wird auch an den beiden Proben LNC-2 und LNC-8 deutlich, die nur in dem bestrahlten mittigen Streifen invertierte Strukturen mit dem streifenförmigen Elektrodenmuster erkennen lassen. In beiden Fällen reichte die geflossene Ladung jedoch nicht aus, um den kompletten bestrahlten Bereich sauber zu invertieren. Bei der Probe LNC-2 konnte die geflossene Ladungsmenge aufgrund eines Spannungseinbruches nicht genau bestimmt werden, so dass daher insgesamt zu wenig Ladung geflossen ist. Bei der Probe LNC-8 hingegen entsprach die geflossene Ladungsmenge den Berechnungen; da sich allerdings in den Randbereichen der Bestrahlung relativ breite, komplett ungepolte Streifen gebildet haben, die die Ladungsmenge stark beeinträchtigt haben, ist im Endeffekt zu wenig Ladung geflossen um den kompletten bestrahlten Bereich umzupolen.

Bei der Probe LNC-9 ist es gelungen, den kompletten bestrahlten Bereich mit einem sehr regelmäßigen Muster aus invertierten und nicht invertierten Streifen zu versehen. Allerdings wurde dazu der Richtwert für die geflossene Ladung deutlich überschritten. So sind auch im nicht bestrahlten Bereich streifenförmige Muster zu erkennen, deren Qualität jedoch deutlich schlechter ist.

Die Aufnahmen des Rasterkraftmikroskopes (vgl. Abbildung 4.14) zeigen für die Probe LNC-8 relativ stark variierende Tastverhältnisse, was vermutlich durch unregelmäßige Bestrahlung aufgrund des gaußförmigen Strahlprofils zustande kommt. Für die Probe LNC-9 (vgl. Abbildung 4.16) ist das Tastverhältnis regelmäßiger, was vermutlich auf die Überpolung zurückzuführen ist.

Um Tastverhältnisse von 0.5 zu realisieren müssten wahrscheinlich Elektrodenmasken mit anderen Tastverhältnissen benutzt werden. Da tendenziell die gepolten Streifen deutlich breiter waren als die ungepolten, sollte die Breite der Chromstreifen (vgl. Tabelle 4.3) verringert werden um bessere Ergebnisse zu erzielen.

Ein Erfolg sind die in der Probe LNC-9 erzielten Strukturen von $0.5 \mu\text{m}$ Breite in relativ guter Qualität. Solch kleine Strukturen sind in $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ äußerst schwer zu realisieren, da aufgrund der geringen Defektdichte wenig Nukleationskeime vorhanden sind, an denen die Inversion beginnen kann.

Mithilfe gitterförmiger Bestrahlung

Eine periodisch gepolte Struktur, die durch eine gitterförmige Bestrahlung induziert ist, konnte bislang nicht realisiert werden. Ursachen könnten in der geringen Bestrahlungsdosis begründet sein, die immerhin eine Größenordnung unter den anderen Proben liegt. Vielleicht reichen die induzierten Defekte für eine frühzeitige Invertierung nicht aus. Ein weiteres Problem könnte die Aufstreuung der Ionen hinter dem Tantalschlitz sein. Da eine Domäneninversion bevorzugt an Bestrahlungsgrenzen einsetzt (vgl. Abbildungen 4.12 und 4.13) könnte der komplette Bereich, in dem sich das Gitter befindet, umgepolt werden, wenn die Grenzen zwischen bestrahltem und unbestrahltem Bereich nicht scharf genug sind.

5.4 Leitfähigkeit

Bei bereits gepolten Kristallen lässt sich die Leitfähigkeit nur sehr schwer bestimmen. Wie in Abbildung 4.17 zu sehen ist, liegt nach einmaligem Polen in domänenstabilisierende Richtung noch kein eindomäniger Kristall vor. Die geflossene Ladung nimmt nur sehr langsam ab, was vermutlich daran liegt, dass einige Domänen erst nach mehreren Polungsvorgängen invertiert werden. Auch Randeffekte müssen in Betracht gezogen werden, so kann es passieren, dass eine Inversion unter den O-Ringen hindurchwandert und somit Bereiche außerhalb der eigentlichen Kontaktierung einen Beitrag zum Polungsstrom bzw. der geflossenen Ladung liefern. Auch eine periodische Rückpolung dieser Randbereiche ist möglich.

Die Auswertung der Leitfähigkeit beschränkt sich daher auf die an den ungepolten Proben durchgeführten Messungen. Zum einen wird von vornherein in domänenstabilisierende Richtung gemessen, so dass eine restliche Domäneninversion aus früheren Vorgängen nicht zu berücksichtigen ist, zum anderen können die Randeffekte vernachlässigt werden, da der ganze Kristall einheitlich in domänenstabilisierende Richtung vorliegt und somit keinen Einfluss auf den Polungsstrom hat.

Erstaunlicherweise ist jedoch auch in ungepolten Proben ein schwaches „Polungssignal“ zu erkennen (vgl. Abbildung 4.18), im Vergleich mit den richtigen Polungssignalen in Vorwärtsrichtung ergibt sich ein Verhältnis von 1:1000 für die geflossene Ladung. Ursachen für dieses Signal sind vermutlich sehr kleine Domänen, die nicht mit der Orientierung der polaren c -Achse übereinstimmen. Ob sich diese Domänen bereits seit der Herstellung im Kristall befinden, oder im Laufe der Zeit entstehen ist unklar. Um ihren Einfluss zu umgehen, wird zur Bestimmung der Leitfähigkeit jeweils der zweite Polungsvorgang in domänenstabilisierende Richtung ausgewertet.

Die Leitfähigkeit $\sigma(z)$ ist über den reziproken spezifischen Widerstand $\varrho(z)$ definiert:

$$\sigma(z) = \frac{1}{\varrho(z)} \quad (5.1)$$

Der Widerstand einer Probe mit der kontaktierten Fläche A_b und der Dicke d ist gegeben durch

$$R = \int_0^d \frac{\varrho(z)}{A_k} dz \quad (5.2)$$

und nach dem Ohmschen Gesetz, ergibt sich der Strom I bei anliegender Spannung U zu:

$$I = \frac{U}{R} = \frac{U A_k}{\int_0^d \varrho(z) dz} \quad (5.3)$$

Über die Messung des Polungsstromes soll nun die Leitfähigkeit bestimmt werden. Mit der Gleichung 5.2 ergibt sich die Gleichung 5.3 zu:

$$I = \frac{U A_k \sigma}{d} \quad (5.4)$$

Für die untersuchten Proben ergeben sich die Leitfähigkeiten in Tabelle 5.1.

Probe	σ [pAV ⁻¹ m ⁻¹]
LNC-0	1.1
LNC-00	1.6
LNC-12	17
LNC-16	19

Tabelle 5.1: Leitfähigkeiten der unbestrahlten Proben LNC-0 und LNC-00 sowie der mit gleicher Dosis bestrahlten Proben LNC-12 und LNC-16.

Anhand der unbestrahlten Proben lässt sich die ursprüngliche Leitfähigkeit σ_u bestimmen. Für die bestrahlten Proben setzt sich die Leitfähigkeit zusammen aus der ursprünglichen Leitfähigkeit σ_u und der durch die Bestrahlung induzierten σ_i .

$$\sigma_b = \sigma_u + \sigma_i \quad (5.5)$$

Mittelt man jeweils über beide Messungen ergeben sich die Leitfähigkeiten für die unbestrahlten und bestrahlten Proben zu:

$$\sigma_u = (1.4 \pm 0.3) \text{ pAV}^{-1}\text{m}^{-1} \quad (5.6)$$

$$\sigma_b = (18 \pm 1) \text{ pAV}^{-1}\text{m}^{-1} \quad (5.7)$$

Aufgrund der geringen Statistik und dem großen Einfluss, den bereits kleinste Messartefakte auf die Messung ausüben, stellt dieses Ergebnis vorerst eine Tendenz dar. Es wird jedoch deutlich, dass die Leitfähigkeit durch die Bestrahlung erhöht wird. Die induzierte Leitfähigkeit liegt hier etwa in einer Größenordnung von 16.6 pAV⁻¹m⁻¹ und somit etwa um einen Faktor 10 über der ursprünglichen Leitfähigkeit. Diese Erhöhung ist merklich, es findet allerdings keine Anhebung der Leitfähigkeit um viele Größenordnungen statt,

was eine wichtige Voraussetzung für die Polungsexperimente an bestrahltem Material mit elektrischen Feldern ist. Der Einfluss der Ionendosis ist bislang unklar, genauso wie die thermische Ausheilung dieses Effektes.

Vergleiche mit Werten aus der Literatur sind nur für die natürliche Leitfähigkeit möglich und zeigen ähnliche Ergebnisse. In [59] wird für Proben des gleichen Typs eine Leitfähigkeit von $< 1.2 \text{ pAV}^{-1}\text{m}^{-1}$ angegeben, was sehr gut mit den hier bestimmten Werten übereinstimmt. Eine erhöhte Leitfähigkeit der gleichen Größenordnung ergibt sich auch bei beleuchteten Proben (vgl. Abschnitt 5.5).

5.5 Vergleich mit beleuchteten Proben

Der Einfluss von Licht auf die Koerzitivfeldstärke und die Inversionsdynamik von Lithiumniobat-Kristallen ist bereits untersucht worden und führt in einigen Bereichen zu ähnlichen Ergebnissen. Insofern bietet sich ein Vergleich der beiden Methoden an.

Unter Beleuchtung mit $\lambda = 334 \text{ nm}$ und einer Intensität von etwa 100 mWcm^{-2} konnte in kongruent schmelzenden Proben mit einer Magnesiumdotierung von 5 mol%, die ebenfalls von der Firma Deltronics bezogen wurden, eine Reduktion der Koerzitivfeldstärke auf etwa 3.4 kVmm^{-1} erzielt werden [40]. Dieser Effekt ist allerdings nicht nachhaltig, so dass nach dem Ausschalten des Lichtes die Koerzitivfeldstärke der folgenden Inversionszyklen wieder dem ursprünglichen Wert entspricht. Ein noch stärkeres Absenken der Koerzitivfeldstärke durch eine erhöhte Intensität ist nicht zu erzielen, da sich für 100 mWcm^{-2} bereits eine Sättigung eingestellt hat [40]. Auch die Leitfähigkeit des Materials wird durch die Beleuchtung erhöht, die induzierte Photoleitfähigkeit beträgt $\sigma^{\text{Ph}} = (12.3 \pm 0.4) \text{ pAV}^{-1}\text{m}^{-1}$ [40].

Eine Absenkung der Koerzitivfeldstärke wird mit beiden Methoden erzielt, wobei der Effekt durch die Beleuchtung größer, allerdings auch reversibel ist. Ursache für dieses Verhalten bei Beleuchtung sind vermutlich lichtinduzierte Defektumladungen, die nach dem Ausschalten des Lichtes ausheilen. Die Vermutung, dass die Verminderung der Koerzitivfeldstärke auch nach der Bestrahlung hauptsächlich durch elektronische Defekte bestimmt wird, wird durch die Temperuntersuchungen bestätigt (vgl. Kapitel 4.4.2). Mit großer Wahrscheinlichkeit entstehen bei der Bestrahlung weitere elektronische Defekte, die eventuell zu einer noch größeren Reduktion der Koerzitivfeldstärke führen würden, die aber bereits bei Raumtemperatur ausheilen. Um ihre Existenz und ihren Einfluss zu überprüfen könnten Messungen bei tiefen Temperaturen hinzugezogen werden (vgl. Kapitel 5.6). Auch die induzierten Leitfähigkeiten liegen für die beleuchteten und bestrahlten Proben in der gleichen Größenordnung (vgl. Kapitel 5.4) und sind vermutlich auf elektronische Defekte zurückzuführen.

Ein weiterer interessanter Aspekt ist, dass die Nukleation bei beleuchteten Proben immer auf der $-z$ -Seite auftritt, unabhängig von welcher Seite das Licht auf den Kristall trifft [40]. Ein solches Verhalten sollte auch für die bestrahlten Proben überprüft werden. Dieses Verhalten könnte vor allem für die Herstellung von PPLN interessant sein. Weiterhin weicht die Form lichtinduzierter Domänenkeime teilweise stark von der hexagonalen Kristallsymmetrie ab, was auch für die bestrahlten Proben beobachtet werden konnte.

5.6 Ausblick

Die Modifizierung geeigneter Materialparameter in Lithiumniobat oder ähnlichen Kristallen wird bereits seit vielen Jahren untersucht und spielt auch in Zukunft eine wichtige Rolle in der aktuellen Forschung. Die im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Untersuchungen haben zu neuen Erkenntnissen geführt und werfen Fragen auf, die neue Anknüpfungspunkte bieten. Grundlage für das Verständnis der bereits gewonnenen und folgenden Ergebnisse ist eine detaillierte Kenntnis der Defektstruktur in LiNbO_3 -Kristallen, so dass in Zukunft eine genauere Überblick über die mikroskopischen Vorgänge angestrebt wird.

Die vorgestellten Untersuchungen zur Brechungsindexänderung lassen eine starke Abhängigkeit von der Ionendosis erkennen, die bisher kein sättigendes Verhalten zeigt. Eine qualitative Beschreibung des Kurvenverlaufes bis zu einer eventuellen Sättigung könnte in Zukunft weitere Erkenntnisse liefern.

Auch die vermutlich vorhandenen Unterschiede in den nahezu stöchiometrischen (LNS) und den kongruent schmelzenden (LNC) Kristallen sollten näher untersucht werden. Dazu sollten die verschiedenen Materialien innerhalb einer Strahlzeit bestrahlt werden um die Fehler bei der Dosisbestimmung zu minimieren und eine bessere Vergleichbarkeit zu erzielen. Eine klare Aussage, ob die Materialien in ihrem Verhalten identisch reagieren oder nicht, würde helfen die Defekte zu klassifizieren, die für die Brechungsindexänderungen verantwortlich sind.

Die durch periodische Bestrahlung hergestellten Brechungsindexgitter sollten in Zukunft verbessert werden, vor allem eine kleinere Periodenlänge wäre wünschenswert. Diese Gitter haben im Vergleich zu photorefraktiven Gittern den Vorzug einer größeren Beständigkeit und können bei genügend kleiner Periode als Wellenlängenfilter eingesetzt werden.

Zur Konkretisierung der Ergebnisse des Polungsverhaltens sollte überprüft werden, ob tatsächlich eine stärkere Reduktion der Koerzitivfeldstärke bei kleinen Dosen vorliegt, oder ob dieses Verhalten andere Ursachen hat. Auch andere Einflüsse auf die Koerzitivfeldstärke wie zum Beispiel die Größe der bestrahlten Fläche oder die Schärfe des Überganges zum unbestrahlten Bereich bieten neue Ansatzpunkte. Hilfreich wären Echtzeit-Visualisierungen zur genauen Beobachtung der Keimbildung und Domäneninversion, wie sie bereits in [16, 40, 60] zum Einsatz kamen.

Um die Defekte besser eingrenzen zu können, die für die verminderte Koerzitivfeldstärke im bestrahlten Bereich verantwortlich sind, können die Untersuchungen auf Materialien mit verschiedenen Magnesiumkonzentrationen ausgeweitet werden.

Die thermischen Untersuchungen haben bereits erste Einblicke in die Ausheilprozesse sowohl für die Brechungsindexänderungen, als auch für das Polungsverhalten geliefert. Hier würde eine quantitative Messreihe neue Erkenntnisse liefern. Für die thermische Ausheilung der Brechungsindexänderungen in undotiert kongruent schmelzenden Lithiumniobat-Kristallen liegen in der Literatur bereits solche Messungen vor [14]; ein Vergleich mit dotiertem Material wäre sinnvoll um auch hier nochmals festzustellen, ob die für die Δn -Änderungen verantwortliche Defektstruktur der beiden Materialien identisch ist.

Experimente bei tiefen Temperaturen wären ebenfalls höchst interessant und würden vor allem im Bereich der Domäneninversion neue Einblicke in die Inversionsdynamik liefern.

Die Herstellung von periodisch gepoltem Lithiumniobat (PPLN) mit strukturierten Elektrodenmasken zeigt eindeutig Unterschiede in bestrahlten und unbestrahlten Bereichen, die in Zukunft näher spezifiziert werden sollten. Die Tastverhältnisse der Masken müssen an die Bedingungen besser angepasst werden, so dass bessere Tastverhältnisse in den Kristallen erzielt werden. Auch Masken mit kleinerer Periodenlänge sollten zum Einsatz kommen. Da es bisher nicht gelungen ist periodische Volumendomänen herzustellen sollte auch dieses Ziel verfolgt werden. Bei lichtinduzierter Domäneninversion, wie sie in [40, 60] untersucht wurde, ergeben sich interessante Ergebnisse, an welchen Stellen bzw. auf welchen Seiten im Kristall eine von der Domäneninversion gefolgte Nukleation beginnt. Solche Untersuchungen könnten auch an bestrahltem Material durchgeführt werden, was zu einer Optimierung der Anordnung der Elektrodenmasken genutzt werden könnte.

Der zweite Ansatz zur PPLN-Herstellung durch gitterförmige Bestrahlung konnte bisher leider keine brauchbaren Ergebnisse liefern, was in Zukunft jedoch durch eine bessere Qualität der bestrahlten Gitter erzielt werden soll. Eine stärkere Bestrahlung könnte dabei bereits zum gewünschten Ergebnis verhelfen. Gleichzeitig sollte auch hier eine Echtzeit-Visualisierung eingesetzt werden, um besser abschätzen zu können, wann der Polungsvorgang abgebrochen wird.

Eine umfangreichere Messreihe sollte auch zur Untersuchung der Leitfähigkeit angestrebt werden. Eine Abhängigkeit von der Ionendosis wäre mit relativ wenig Aufwand zu realisieren.

6 Zusammenfassung

Die 1960 mit der Erfindung des Lasers einsetzende revolutionäre Entwicklung der optischen Datenübertragung hat im Laufe der Zeit bereits eine Vielzahl optischer Bauteile hervorgebracht. Dennoch sind in zahlreichen Bereichen neue oder verbesserte integriert-optische Komponenten zur Erzeugung, Steuerung, Schaltung und Umwandlung erforderlich. Ein häufig benutztes Material zur Herstellung solcher Komponenten sind ferroelektrische Lithiumniobat-Kristalle (LiNbO_3) mit modifizierten Materialeigenschaften. Angestrebt sind maßgeschneiderte Kristalle, die z. B. periodisch gepolt eine effiziente Frequenzkonversion von Licht ermöglichen.

Im Rahmen dieser Arbeit werden magnesiumdotierte LiNbO_3 -Kristalle mit ^3He -Ionen mit einer Energie von 40 MeV am Bonner Zyklotron durchstrahlt und anschließend die Auswirkungen auf den Brechungsindex und das Polungsverhalten untersucht.

Ähnlich wie bei undotiertem kongruent schmelzendem LiNbO_3 ergibt sich auch für magnesiumdotiertes eine stark nichtlineare Abhängigkeit der Brechungsindexänderungen Δn von der Ionendosis. Begleitet wird diese Änderung von einer ebenfalls dosisabhängigen Deformation der Probe sowie einer bräunlichen Verfärbung. Ein wesentlicher Unterschied zwischen mit 5 mol% Magnesium dotiertem, kongruent schmelzendem (LNC) und mit 1 mol% Magnesium dotiertem, nahezu stöchiometrischem (LNS) Material kann nicht eindeutig festgestellt werden. Bisher konnte eine Verminderung des Brechungsindex um $(6.4 \pm 0.2) \times 10^{-3}$ in den LNC-Proben durch die Bestrahlung erzielt werden, die vermutlich durch größere Dosen noch zu steigern ist.

Der Einfluss der Bestrahlung auf das ferroelektrische Polungsverhalten führt in den LNS-Proben zu keiner Änderung, während in den LNC-Proben eine Verminderung der Koerzitivfeldstärke um etwa 10 % erzielt wird. Diese Beobachtung deutet auf unterschiedliche Defekte in den beiden Materialien, die bei der Domäneninversion von Bedeutung sind. Durch eine Erhöhung der Ionendosis kann keine weitere Reduzierung der Koerzitivfeldstärke erzielt werden.

Bei der Herstellung von periodisch gepoltem Lithiumniobat (PPLN) wurde das gängige Verfahren mittels strukturierter Elektroden für drei magnesiumdotierte Proben benutzt. Es zeigt sich, dass eine Domäneninversion bevorzugt an den Randbereichen der Bestrahlung einsetzt, sich dann invertierte Domänen im bestrahlten Bereich bilden und erst bei weiterer Erhöhung der Feldstärke eine Domäneninversion im unbestrahlten Bereich erzielt werden kann. Somit ist eine periodische Modulierung der Polarisierung in bestrahltem Material aufgrund der niedrigeren Koerzitivfeldstärke und der erhöhten Keimdichte vereinfacht. Die bisher erzeugten PPLN-Kristalle weisen noch nicht die gewünschte Qualität auf, da die Tastverhältnisse bislang nicht mit dem optimalen Verhältnis von 0.5 übereinstimmen und auch noch unklar ist, bis zu welcher Probentiefe die Struktur reicht. Es

konnte allerdings eine Breite der ungepolten Domänen von $0.5 \mu\text{m}$ nachgewiesen werden, was für magnesiumdotiertes LiNbO_3 bereits ein Erfolg ist. In unbestrahlten, magnesiumdotierten Proben ist die Erzeugung kleiner periodischer Strukturen schwierig, da aufgrund der geringen Defektdichte eine Keimbildung erschwert wird. Da durch die Bestrahlung Defekte induziert werden, bilden sich leichter Keime und periodisch gepolte Strukturen im Submikrometer sollten sich besser realisieren lassen.

Ein alternativer Ansatz zur Erzeugung von PPLN wurde durch eine gitterförmige Bestrahlung der Proben realisiert. In den Proben konnten durch die Bestrahlung Brechungsindexgitter mit einer Periode von $12 \mu\text{m}$ nachgewiesen werden, die gegenüber photorefraktiv hergestellten optischen Gittern den Vorteil größerer Beständigkeit haben. Aufgrund dieser Gitter sollten sich periodisch gepolte Strukturen in den Kristallen erzeugen lassen, wenn durch ein äußeres Feld die bestrahlten Streifen bereits invertiert sind, sich die unbestrahlten Streifen aber noch in ihrem ursprünglichen Zustand befinden. Eine derart induzierte periodisch gepolte Struktur konnte bislang noch nicht realisiert werden, sollte in Zukunft jedoch weiter untersucht werden.

Leitfähigkeitsuntersuchungen zeigen eine um etwa eine Größenordnung erhöhte Leitfähigkeit in bestrahltem Material von $\sigma_b = (18 \pm 1) \text{pAV}^{-1}\text{m}^{-1}$. Genauere Untersuchungen sowie eine Überprüfung der Dosisabhängigkeit stehen noch aus.

Abschließend lässt sich sagen, dass sich durch die Modifikation des Brechungsindex und des Polungsverhaltens in magnesiumdotiertem LiNbO_3 viele interessante Ergebnisse erzielen lassen, die in vielen optischen Komponenten Anwendung finden werden. Besonders die Ergebnisse zur Erzeugung von PPLN in $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$ liefern vielversprechende Ansätze, die in Zukunft die Herstellung erleichtern können und somit in Anwendungen wie kurzwelligen Laserlichtquellen zum Einsatz kommen könnten.

Literaturverzeichnis

- [1] F. H. Mok, „Angle-multiplexed storage of 5000 holograms in lithium niobate“, *Opt. Lett.* **18**, 915 (1993).
- [2] F. S. Chen, J. T. LaMacchia, and D. B. Fraser, „Holographic storage in lithium niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **13**, 223 (1968).
- [3] V. Ramaswamy, M. D. Divino, and R. D. Standley, „Balanced bridge modulator switch using Ti-diffused LiNbO₃ strip waveguides“, *Appl. Phys. Lett.* **32**, 644 (1978).
- [4] C. Becker, A. Greiner, T. Oesselke, A. Pape, W. Sohler, and H. Suche, „Integrated optical Ti:Er:LiNbO₃ distributed bragg reflector laser with a fixed photorefractive grating“, *Opt. Lett.* **23**, 1194 (1998).
- [5] 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* **19/20**, 921 (1987).
- [6] C. Buchal, „Ion beam modification of electro-optical crystals“, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **59/60**, 1142 (1991).
- [7] R. S. Weis and T. K. Gaylord, „Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure“, *Appl. Phys. A* **37**, 191 (1985).
- [8] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters, and G. Weinreich, „Generation of optical harmonics“, *Phys. Rev. Lett.* **7**, 118 (1961).
- [9] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, and P. Pershan, „Interactions between light waves in a nonlinear dielectric“, *Phys. Rev.* **127**, 1918 (1962).
- [10] P. A. Franken and J. F. Ward, „Optical harmonics and nonlinear phenomena“, *Rev. Mod. Phys.* **35**, 23 (1963).
- [11] R. Batchko, V. Y. Shur, M. M. Fejer, and R. L. Byer, „Backswitching poling in lithium niobate for high-fidelity domain patterning and efficient blue light generation“, *Appl. Phys. Lett.* **75**, 1673 (1999).
- [12] P. D. Townsend, P. J. Chandler, and L. Zhang *Cambridge Studies in Modern Optics. Optical Effects of Ion Implantation*. Cambridge University Press, Cambridge 1994.
- [13] B. Andreas, K. Peithmann, K. Buse, and K. Maier, „Modification of the refractive index of lithium niobate crystals by transmission of high energy ⁴He²⁺ and D⁺ particles“, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3813 (2004).

- [14] 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).
- [15] 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).
- [16] H. Hattermann, „Modifikation der Materialeigenschaften von Lithiumniobat durch Teilchenbestrahlung“, Diplomarbeit, Universität Bonn, 2007.
- [17] W. S. Zachariasen, „Untersuchungen über die kristallstruktur von sesquioxyden und verbindungen ABO_3 “, *Skr. Norske. Vid. Akad.* **4**, (1928).
- [18] D. A. Scrymgeour, V. Gopalan, A. Itagi, A. Saxena, and P. J. Swart, „Phenomenological theory of a single domain wall in uniaxial trigonal ferroelectrics: Lithium niobate and lithium tantalate“, *Phys. Rev.* **71**, 184110 (2005).
- [19] M. Houé and P. Townsend, „An introduction to methods of periodic poling for second-harmonic generation“, *J. Phys. D* **28**, 1747 (1995).
- [20] M. C. Wengler, B. Fassbender, E. Soergel, and K. Buse, „Impact of ultraviolet light on coercive field, poling dynamics and poling quality of various lithium niobate crystals from different sources“, *J. of Appl. Phys.* **96**, 2816 (2004).
- [21] M. Yamanda, N. Nada, M. Saitoh, and K. Wantanabe, „First-order quasi-phase matched $LiNbO_3$ waveguide periodically poled by applying an external electric field for efficient blue second harmonic generation“, *Appl. Phys. Lett.* **62**, 435 (1993).
- [22] V. Gopalan and T. E. Mitchell, „Origin and characteristics of internal fields in $LiNbO_3$ crystals“, *Ferroelectrics* **198**, 49 (1997).
- [23] I. Camlibel, „Spontaneous polarization measurements in several ferroelectric oxides using a pulsed-field methode“, *J. of Appl. Phys.* **40**, 1690 (1969).
- [24] D. Miller, *Periodically Poled Lithium Niobate: Modeling, Fabrication, and Nonlinear-Optical Performance*. Dissertation, Stanford University, 1998.
- [25] O. F. Schirmer, O. Thiemann, and M. Wöhlecke, „Defects in $LiNbO_3$ –I. experimental aspects“, *J. Phys. Chem. Sol.* **52**, 185 (1991).
- [26] D. A. Bryan, R. Gerson, and H. E. Tomaschke, „Increased optical damage resistance in lithium niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **44**, 847 (1984).
- [27] Y. Furukawa, K. Kitamura, S. Takekawa, K. Niwa, and H. Hatano, „Stoichiometric $Mg:LiNbO_3$ as an effective material for nonlinear optics“, *Opt. Lett.* **23**, 1892 (1998).
- [28] J. F. Ziegler, J. P. Biersack and U. Littmark, *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon Press (New York), 1985.
- [29] J. F. Ziegler, „The stopping of energetic light ions in elemental matter“, *J. Appl. Phys.* **85**, 1249 (1999).

- [30] J. F. Ziegler, M. D. Ziegler, and J. P. Biersack *Particle interactions with mater (SRIM)*. Programm und Informationen unter <http://www.SRIM.org>, 2006.
- [31] E. Glavas, L. Zhang, P. J. Chandler, and P. D. Townsend, „Thermal stability of ion implanted LiTaO₃ and LiNbO₃ optical waveguides“, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **32**, 45 (1988).
- [32] L. Zhang, P. J. Chandler, and P. D. Townsend, „Optical analysis of damage profiles in ion implanted LiNbO₃“, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **59/60**, 1147 (1991).
- [33] E. R. Hodgson and F. Agulló-López, „Displacement Damage in LiNbO₃“, *Nucl. Instr. and Meth. in Phys. Res. B* **32**, 42 (1988).
- [34] 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).
- [35] 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).
- [36] Bonner Isochron-Zyklotron-Team *Das Bonner Isochron-Zyklotron*. Homepage unter <http://www.zyklotron.iskp.uni-bonn.de/zyklo/index.html>, 2006.
- [37] H. Kogelnik, „Coupeled wave theory for thick hologram gratings“, *Bell Syst. Tech. J.* **48**, 2909 (1969).
- [38] 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).
- [39] T. R. Judge and P. J. Bryanston-Cross *Automatic fringe analysis (FRAN)*. Programm und Informationen unter <http://www.eng.warwick.ac.uk/oel/previous/fran.html>, 2002.
- [40] M. C. Wengler, *Lichtinduzierte Inversion ferroelektrischer Domänen in Lithiumniobat-Kristallen*. Dissertation, Universität Bonn, 2005.
- [41] K. Mizuuchi, A. Morikawa, T. Sugita, and K. Yamamoto, „Electric-field poling in Mg-doped LiNbO₃“, *J. Appl. Phys.* **96**, 6585 (2004).
- [42] K. Nassau, H. J. Levinstein, and G. M. Loiacono, „The domain structure of ferroelectric lithium niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **6**, 228 (1965).
- [43] V. Gopalan and T. E. Mitchell, „In situ video observation of 180° domain switching in LiNbO₃ by electro-optic imaging microscopy“, *J. Appl. Phys.* **85**, 2304 (1999).
- [44] M. Müller, E. Soergel, and K. Buse, „Visualisization of ferroelectric domains with coherent light“, *Opt. Lett.* **28**, 2515 (2003).
- [45] T. Jungk, *Untersuchung der Abbildungsmechanismen ferroelektrischer Domänen mit dem Rastermikroskop*. Dissertation, Universität Bonn, 2006.

- [46] 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).
- [47] O. F. Schirmer and D. von der Linde, „Two-photon- and x-ray-induced Nb^{4+} and O^- small polarons in LiNbO_3 “, *Appl. Phys. Lett.* **33**, 35 (1978).
- [48] J. P. Harmon and J. F. Gaynor, „The effect of gamma irradiation on color center formation in optical polymers“, *J. Polym. Sci. B* **31**, 235 (1993).
- [49] C. Kittel *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg, 1980.
- [50] M. R. Zamani-Meymian, *Brechungsindexänderungen in Lithiumniobat-Kristallen durch Strahlenschäden*. Dissertation, Universität Bonn, 2007.
- [51] D. P. Birnie, „Analysis of diffusion in lithium niobate“, *J. of Mat. Sci.* **28**, 302 (1993).
- [52] I. Nee, K. Buse, F. Havermeyer, 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).
- [53] 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).
- [54] J. J. Amodei and D. L. Staebler, „Holographic pattern fixing in electro-optic crystals“, *Appl. Phys. Lett.* **18**, 540 (1971).
- [55] D. L. Staebler and J. J. Amodei, „Thermally fixed holograms in LiNbO_3 “, *Ferroelectrics* **3**, 107 (1972).
- [56] V. Gopalan, T. E. Mitchell, Y. Furukawa, and K. Kitamura, „The role of nonstoichiometry in 180° domain switching of LiNbO_3 crystals“, *Appl. Phys. Lett.* **72**, 1981 (1998).
- [57] Y. Chen, J. Xu, Y. Kong, S. Chen, G. Zhang, and J. Wen, „Effect of Li diffusion on the domain inversion of LiNbO_3 prepared by vapor transport equilibration“, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 700 (2002).
- [58] H. Ishizuki, I. Shoji, and T. Taira, „Periodical poling characteristics of congruent $\text{MgO}:\text{LiNbO}_3$ crystals at elevated temperature“, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 4062 (2003).
- [59] M. C. Wengler, U. Heinemeyer, E. Soergel, and K. Buse, „Ultraviolet light-assisted domain inversion in magnesium-doped lithium niobate“, *J. of Appl. Phys.* **98**, 064104/1 (2005).
- [60] U. Heinemeyer, „Kontrolle der ferroelektrischen Eigenschaften von Lithiumniobat-Kristallen mit ultraviolettem Licht“, Diplomarbeit, Universität Bonn, 2005.

Danksagung

Ich danke Herrn Professor Maier für die freundliche Aufnahme in seiner Arbeitsgruppe. Durch sein Wesen, die vielen netten Einladungen und Ausflüge entstand eine Atmosphäre in der ich mich sehr wohl gefühlt habe.

Herrn Professor Fiebig danke ich für die Übernahme des Korreferates.

Ganz besonders herzlich möchte ich mich bei Herrn Dr. Konrad Peithmann bedanken, der mich während des gesamten Jahres betreut hat. Er hatte immer zwei offene Ohren, viel Geduld und wertvolle Tipps.

Herrn Professor Buse danke ich, dass er mir die Laboreinrichtung seiner Arbeitsgruppe zur Verfügung gestellt hat. Auch für die durch ihn geförderte Zusammenarbeit im Domänen-Bereich und den unproblematischen Probenaustausch möchte ich mich bedanken.

Michael Kösters half mir beim Polen und der Beugungswirkungsgradbestimmung. Dafür und für die unkomplizierte Labormitbenutzung herzlichen Dank!

Auch meinen beiden Domänen-Mitstreitern Hendrik Steigerwald und Fabian Luedtke möchte ich herzlich für die konstruktive Zusammenarbeit danken. Ohne ihre Hilfe, vor allem beim Pulspolen und Ätzen, wäre vieles nicht möglich gewesen.

PD Elisabeth Soergel und Tobias Jungk danke ich für die Untersuchungen mit dem Rasterkraftmikroskop.

Bei den Mitarbeitern der Feinmechanik-, Elektronik- und Polierwerkstatt bedanke ich mich für die gute Zusammenarbeit.

Ein dickes Dankeschön gebührt auch dem gesamten Zyklotroneteam, das mir während meiner Strahlzeiten immer helfend zur Seite stand. Meine Fragen wurden immer mit viel Geduld beantwortet und Strahlrohre wie von Zauberhand eingebaut.

Der ganzen Arbeitsgruppe Maier möchte ich für die tolle Atmosphäre danken. Jeder Einzelne hat mir im Laufe des Jahres wohl mehr als einmal geholfen, sei es das Administratorenteam bei Computerproblemen, Christine Negrini mit ihren vielen Tipps oder Matz Haaks mit dem Auftreiben eines russischen Papers.

Jessica Mende und Mathieu Gentile möchte ich für die nette Gesellschaft spät abends und an den Wochenenden danken. Ohne unsere kleinen Picknicks hätte mir das Zusammenschreiben nur halb so viel Vergnügen bereitet und ich wäre sicherlich an dem ein oder anderen Latex-Problem verzweifelt.

Zu guter Letzt danke ich meinen Eltern, meiner Schwester Hannah und meinem Freund Sascha, die mich während meines gesamten Studiums begleitet und in jeglicher Hinsicht Unterstützt haben.