

UNIVERSITÄT BONN

Physikalisches Institut

Modifikation des Brechungsindexes von Dielektrika mit Hilfe ionisierender Strahlung

von
Birk Andreas

Es werden Brechungsindexänderungen studiert, die sich durch Wechselwirkung von ionisierender Strahlung mit dielektrischen, optisch transparenten Festkörpern ergeben. Beispielhaft werden zwei Materialien untersucht. Zum einen geht es um PolyMethylMethAcrylat (PMMA), ein Polymer, welches mit Synchrotronlicht bestrahlt wird, und zum anderen um Lithiumniobat (LiNbO_3), einen oxidischen Kristall, welcher mit schnellen Helium-Ionen durchschossen wird. In beiden Materialien können Brechungsindexänderungen im Bereich 10^{-4} bis 10^{-3} erzeugt werden, was für viele Anwendungen in der Photonik sehr interessant ist.

Post address:
Nussallee 12
53115 Bonn
Germany



BONN-IR-2005-03
Bonn University
Mai 2005
ISSN-0172-8741

UNIVERSITÄT BONN
Physikalisches Institut

**Modifikation des Brechungsindex von Dielektrika
mit Hilfe ionisierender Strahlung**

von
Birk Andreas

Dieser Forschungsbericht wurde als (Dissertation) von der Mathematisch - Naturwissenschaftlichen Fakultät der Universität Bonn angenommen.

Referent: Prof. Dr. Karsten Buse
Korreferent: Prof. Dr. Karl Maier
Tag der Promotion: 12. Mai 2005

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	PMMA	3
2.1	Grundlagen	3
2.1.1	Das Material	3
2.1.2	Der Einfluss von Strahlung auf den Brechungsindex von PMMA . . .	3
2.1.3	Wellenleitung	8
2.2	Methoden	12
2.2.1	Probenpräparation	12
2.2.2	Bestrahlung	12
2.2.3	Lagerung der Proben nach Bestrahlung	24
2.2.4	Messung von Brechungsindexänderungen	24
2.2.5	Messung der Verbreiterung des bestrahlten Bereichs	30
2.2.6	Messung von Wellenleitung	30
2.3	Resultate	32
2.3.1	Veränderungen im äußeren Erscheinungsbild	32
2.3.2	Aufbau und räumliche Verteilung der Brechungsindex- und Dickenänderung	33
2.3.3	Zeitliche Entwicklung	41
2.3.4	Wellenleitung	46
2.4	Diskussion	48
2.4.1	Vergleich mit dem Modell	48
2.4.2	Anwendbarkeit in der Praxis	54
2.5	Ausblick	55
2.6	Zusammenfassung zu PMMA	56
3	Lithiumniobat	57
3.1	Grundlagen	57

3.1.1	Das Material	57
3.1.2	Durchgang schneller Ionen durch Materie	59
3.1.3	Einfluss auf den Brechungsindex	60
3.2	Methoden	63
3.2.1	Probenpräparation	63
3.2.2	Bestrahlung	63
3.2.3	Messung von Absorptionsänderungen	65
3.2.4	Messung von Brechungsindexänderungen	65
3.2.5	Dosisbestimmung	65
3.2.6	Thermische Behandlungen	66
3.2.7	Messung der elektrooptischen Koeffizienten	66
3.2.8	Messung von Wellenleitung	67
3.3	Resultate	69
3.3.1	Absorptionsänderungen	69
3.3.2	Brechungsindexänderungen	71
3.3.3	Materialverspannungen	74
3.3.4	Thermische Behandlungen	77
3.3.5	Elektrooptischer Effekt	78
3.3.6	Wellenleitung	79
3.4	Diskussion	82
3.4.1	Volumenänderungen	82
3.4.2	Vergleich mit Simulationsdaten	83
3.4.3	Deutung	86
3.4.4	Ausheilung	87
3.4.5	Farbänderung	88
3.4.6	Wellenleitung	88
3.5	Ausblick	90
3.6	Zusammenfassung zu LiNbO ₃	92
4	Zusammenfassung	93
	Literatur	95

1

Einleitung

Seit der Entdeckung der Röntgenstrahlung im Jahre 1895 [1] und der natürlichen Radioaktivität im Jahre 1896 [2,3] hat die Verwendung ionisierender Strahlung in vielen Bereichen des alltäglichen Lebens große Bedeutung erlangt. So finden sich zahlreiche Anwendungen in der Medizin, der Materialprüfung, der Lebensmitteltechnik und vielen anderen Bereichen [4]. Es verwundert also nicht, dass viele Anstrengungen unternommen werden, ionisierende Strahlung auch für die Optik nutzbar zu machen [5–29]. Das grundlegende Prinzip ist dabei recht einfach: Ionisierende Strahlung ist bei Wechselwirkung mit kondensierter Materie in der Lage, chemische Bindungen aufzubrechen. Dies führt i. d. R. zu Änderungen der molekularen Struktur bzw. speziell in Kristallen zu Defekten. Bei optisch transparenten Dielektrika werden diese Materialveränderungen fundamentalen Überlegungen folgend auch immer von Brechungsindexänderungen begleitet. Bestrahlt man also ein geeignetes Material, lassen sich Brechungsindex-Strukturen direkt einschreiben, welche für Anwendungen in der Optik interessant sein können. Hier kommen vor allem integriert-optische Komponenten, wie Modulatoren, Interferometer, Mikrolinsen, Resonatoren u.v.a. [30–34] oder aber auch Komponenten für Freistrahl-Optiken wie z.B. Fresnel-Linsen [35] oder Bragg-Gitter für Wellenlängenfilter [34] in Betracht. All diese Komponenten haben gemeinsam, dass die konventionellen Herstellungsprozesse meist langwierig, umständlich und/oder teuer sind.

Thema dieser Arbeit sind die Brechungsindexänderungen zweier Materialien, die sich bei der Wechselwirkung mit ionisierender Strahlung ergeben. Hierbei handelt es sich zum einen um Polymethylmethacrylat, ein Polymer, welches mit Synchrotronlicht bestrahlt wird, und zum anderen um Lithiumniobat (LiNbO_3), einen oxidischen Kristall, welcher mit relativistischen Heliumkernen aus einem isochronen Zyklotron (mit relativistischer Korrektur) durchschossen wird. Ziel der Arbeit ist es, ein grundlegendes Verständnis der verantwortlichen strahlungsinduzierten Prozesse zu erlangen und eine Machbarkeitsanalyse für die Herstellung optischer Komponenten zu liefern.

Dass sich der Brechungsindex von PMMA mit ionisierender Strahlung beeinflussen lässt, ist schon seit geraumer Zeit bekannt [5–19]. Bei diesen Untersuchungen wurden stets dünne Polymerschichten bestrahlt und Brechungsindexänderungen bei geringen Eindringtiefen der Strahlung charakterisiert. Man fand lediglich Brechungsindexerhöhungen, welche qualitativ durch Kompaktierung des Materials erklärt wurden [7–11, 14, 15, 18]. Dementsprechend fehlten bislang quantitative Untersuchungen welche Brechungsindexänderungen im Volumen mit

einschließen.

Brechungsindexänderungen durch Ionenbeschuss in LiNbO_3 sind schon seit längerem bekannt [20–26] und auch heute noch Gegenstand aktueller Forschung [28, 29]. Bei der so genannten „Ionenimplantation“ schießt man Ionen, z. B. He^{2+} oder auch Ni^{2+} , mit relativ geringen Energien ($\simeq 3$ MeV) in den Kristall, wo sie nach wenigen Mikrometern in einem lokal sehr begrenzten Bereich stecken bleiben und eine Zone mit stark verringertem Brechungsindex formen. Der von den Teilchen durchflogene Bereich weist dazu relativ kleine Brechungsindexänderungen im Bereich 1-2 % des Brechungsindex auf. In dieser Arbeit werden nur die Brechungsindexänderungen im durchflogenen Bereich betrachtet, wenn zudem die Teilchenenergie um eine Größenordnung über der typischen, bei der Ionenimplantation verwendeten Energie liegt.

2

PMMA

2.1 Grundlagen

Das untersuchte Material **P**oly**M**ethyl**M**eth**A**crylat (kurz: PMMA) und der Einfluss von Röntgenstrahlung auf den Brechungsindex werden in diesem Kapitel behandelt. Es folgen grundlegende Überlegungen zur Wellenleitung. Schließlich behandelt das Kapitel die erwartete Struktur von Wellenleitern, die durch Bestrahlung in PMMA entstehen.

2.1.1 Das Material

PMMA ist ein bekanntes und weit verbreitetes Polymer mit guten mechanischen Eigenschaften und hoher optischer Transparenz im sichtbaren Spektralbereich. Ein Makromolekül dieses Polymers besteht dabei aus einer vielfachen Verkettung seines Monomers Methylmethacrylat (Abb. 2.1). Dabei bildet sich eine Hauptkette aus, bei der an jedem zweiten Kohlenstoff-Atom eine Methyl-Gruppe und eine Methylester-Seitenkette gebunden ist.

2.1.2 Der Einfluss von Strahlung auf den Brechungsindex von PMMA

In diesem Abschnitt geht es um grundlegende Überlegungen zum Einfluss hochenergetischer elektromagnetischer Strahlung auf den Brechungsindex n von PMMA. Die chemischen Veränderungen, welche sich durch Strahlungseinwirkung zeigen, sind bereits vielfältig untersucht und verstanden worden [36–48]: PMMA degradiert bei Bestrahlung, d. h. das Molekulargewicht nimmt bei Bestrahlung ab. Erst bei hohen Dosen ($\gtrsim 7 \text{ kJ cm}^{-3}$) kann es zu einer Erhöhung des Molekulargewichtes durch den umgekehrten Prozess, der Vernetzung von Polymerketten, kommen [46]. Als Strahlungsart kann neben Röntgenstrahlung, wie sie in dieser Arbeit verwendet wird, auch UV-Licht oder können Elektronen- und Ionenstrahlen verwendet werden [38]. Die der chemischen Veränderung zugrundeliegenden Reaktionen werden im nun folgenden Teil beschrieben.

Wie sich noch zeigen wird, ist es sinnvoll, für die Beschreibung der Abläufe elementare Einheiten des Polymers zu definieren: Die elementare Einheit P, aus der das unbestrahlte Polymer

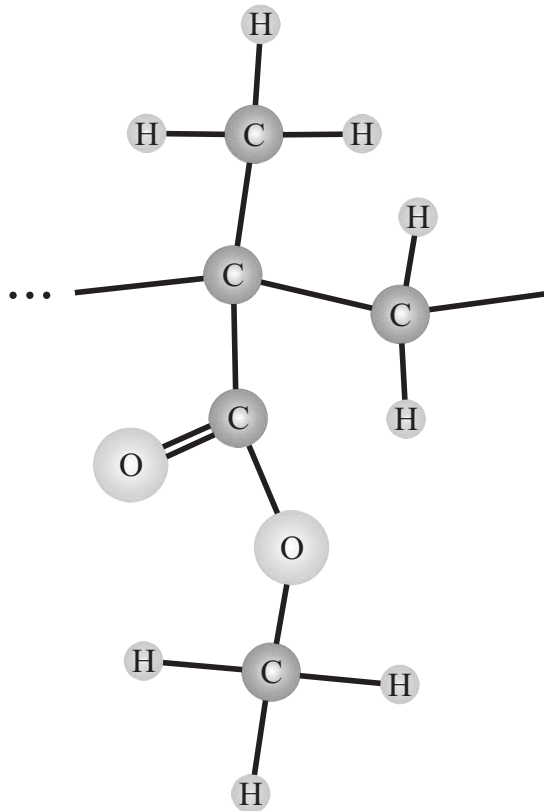


Abbildung 2.1: Struktur von **PolyMethylMethAcrylat** (kurz: PMMA). Ein Makromolekül besteht aus der vielfachen Verkettung des dargestellten Monomers. Dabei bildet sich eine Hauptkette aus, bei der an jedem zweiten Kohlenstoff-Atom eine Methyl-Gruppe und eine Methylester-Seitenkette gebunden ist.

gedanklich zusammengesetzt ist, soll nun aus einer Abfolge von drei Monomereinheiten bestehen. Wird diese elementare Einheit durch Einwirkung eines Photons chemisch verändert, entsteht eine neue elementare Einheit. Alle Folgeprodukte bleiben dabei Bestandteil dieser Einheit. In Abb. 2.2 sind alle wichtigen Reaktionspfade der radiochemischen Degradation von PMMA zusammen mit den jeweiligen elementaren Einheiten dargestellt [44]. Ursache der dargestellten Reaktionen ist die vorangegangene Photoionisation eines Atoms im Molekülverbund. Nach Einfang eines thermischen Elektrons können sich angeregte Elektronenzustände im Molekül ausbilden. Dabei führen die antibindenden Orbitale zur Abspaltung der Ester-Seitenkette oder zum direkten Hauptkettenbruch. Im ersten Fall gibt es nun zwei weitere Möglichkeiten:

1. Es kommt zur Abspaltung eines Wasserstoffatoms von der Hauptkette oder von der gegenüberliegenden Methyl-Gruppe (H-Abstraktion). Dabei bildet sich sofort eine Doppelbindung aus den zuvor ungebundenen Elektronen. Zur Vereinfachung wird angenommen, dass sich das abgestoßene Wasserstoffatom mit der abgespaltenen Ester-Seitenkette verbindet. Je nach Herkunft des abgestoßenen H-Atoms erhält man zwei neue Arten elementarer Einheiten: Ψ und Ψ' . Zur weiteren Vereinfachung soll zwischen Ψ und Ψ' nicht unterschieden werden.

2. Es kommt zum so genannten Hauptkettenbruch, bei dem zwei Radikale entstehen. Man erhält die elementare Einheit Ξ .

Im Fall des direkten Hauptkettenbruchs entstehen ebenfalls zwei Radikale. Da sich aber hier die reaktiven Enden der i. a. schwer beweglichen Kettenteile in direkter Nachbarschaft befinden ist eine Rekombination sehr wahrscheinlich. Die dadurch entstehende elementare

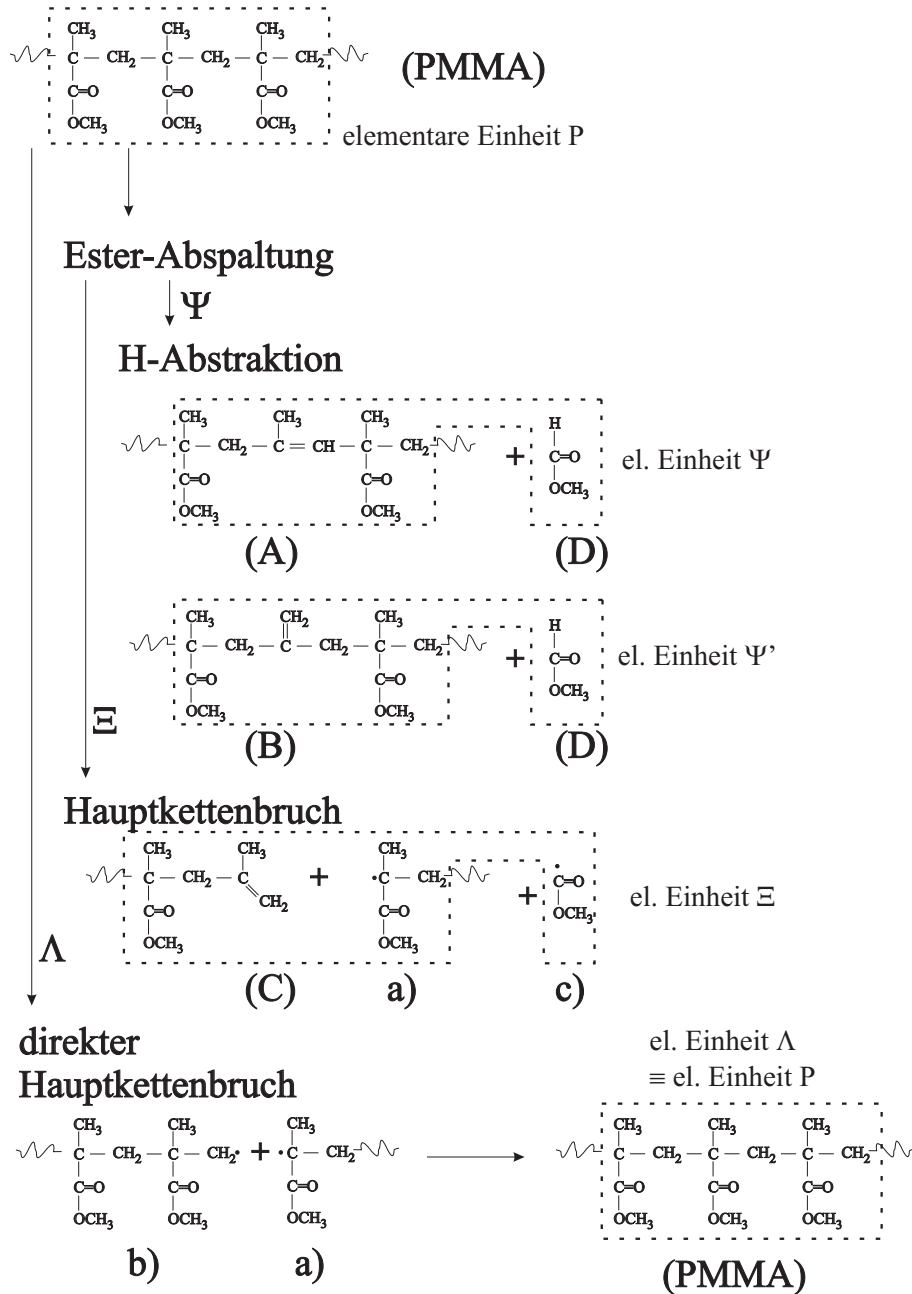


Abbildung 2.2: Alle wichtigen Reaktionspfade der radiochemischen Degradation von PMMA mit den jeweiligen elementaren Einheiten.

Einheit Λ ist mit der ursprünglichen Einheit P identisch.

Durch Bestrahlung von PMMA bildet sich also ein Gemisch aus drei verschiedenen Arten elementarer Einheiten mit verschiedenen elektrischen Polarisierbarkeiten α_i und Konzentrationen N_i . Über die Clausius-Mosotti-Beziehung sind diese Größen mit der dielektrischen Permittivität ϵ und der Vakuum-Permittivität ϵ_0 verbunden [49]:

$$\sum_{i=1}^3 \alpha_i N_i = \frac{\epsilon - 1}{\epsilon + 2} 3\epsilon_0, \quad (2.1)$$

Wir definieren nun

$$t_i = \frac{N_i}{N}, \quad (2.2)$$

wobei N die Gesamtkonzentration der elementaren Einheiten darstellt:

$$N = \frac{\rho_X N_A}{M_{\text{mol}}}, \quad (2.3)$$

mit der Avogadro-Konstanten N_A und der molaren Masse M_{mol} einer elementaren Einheit. Die Massedichte des bestrahlten Polymers ρ_X kann dabei durchaus anders als die des unbestrahlten Polymers ρ_0 sein. Nach Lorentz und Lorenz ist die molare Refraktion R_{LL}^i definiert als [50]:

$$R_{\text{LL}}^i \equiv \frac{N_A \alpha_i}{3\epsilon_0}. \quad (2.4)$$

Wir definieren außerdem:

$$R_{\text{LL}}^\Sigma \equiv R_{\text{LL}}^\Psi t_\Psi + R_{\text{LL}}^\Xi t_\Xi + R_{\text{LL}}^\Lambda t_\Lambda. \quad (2.5)$$

Unter Verwendung der Beziehung $n^2 = \epsilon$ erhalten wir nach Umformung der Gl. (2.1):

$$n = \sqrt{\frac{1 + 2\rho_X \frac{R_{\text{LL}}^\Sigma}{M_{\text{mol}}}}{1 - \rho_X \frac{R_{\text{LL}}^\Sigma}{M_{\text{mol}}}}}. \quad (2.6)$$

Die Ausbreitungsrichtung der ionisierenden Strahlung soll parallel zur y -Achse eines kartesischen Koordinatensystems liegen. Durch die Wechselwirkung der Strahlung mit dem Material ergibt sich nun die Brechungsindexänderung $\Delta n_X(y)$ als:

$$\Delta n_X(y) = \sqrt{\frac{1 + 2\rho_X(y) \frac{R_{\text{LL}}^\Sigma(y)}{M_{\text{mol}}}}{1 - \rho_X(y) \frac{R_{\text{LL}}^\Sigma(y)}{M_{\text{mol}}}}} - \sqrt{\frac{1 + 2\rho_0 \frac{R_{\text{LL}}^\Lambda}{M_{\text{mol}}}}{1 - \rho_0 \frac{R_{\text{LL}}^\Lambda}{M_{\text{mol}}}}}, \quad (2.7)$$

wobei der zweite Term auf der rechten Seite von Gl. (2.7) den Brechungsindex des unbestrahlten Materials beschreibt.

Nun muss R_{LL}^Σ bestimmt werden. Unter Beachtung des Schemas in Abb. 2.2 erhält man für R_{LL}^i :

$$R_{\text{LL}}^\Psi \simeq R_{\text{LL}}^A + R_{\text{LL}}^D \simeq R_{\text{LL}}^B + R_{\text{LL}}^D; \quad (2.8)$$

$$R_{\text{LL}}^\Xi = R_{\text{LL}}^C + R_{\text{LL}}^a + R_{\text{LL}}^c; \quad (2.9)$$

$$R_{\text{LL}}^\Lambda = R_{\text{LL}}^P. \quad (2.10)$$

Tabelle 2.1 enthält alle molaren Refraktionen R_{LL} und molaren Massen M für das Edukt und die Reaktions-Produkte. Diese Werte sind Summen der Beiträge aller Gruppen des jeweiligen Moleküls [50]. Man sieht jetzt auch, warum es gerechtfertigt ist, zwischen Ψ und

Molekül	R_{LL} [cm ³ mol ⁻¹]	M [g mol ⁻¹]
PMMA	74.3	300.3
A	63.0	240.3
B	63.0	240.3
C	39.3	141.1
D	13.0	60.1
a	24.8 (*)	100.1
c	11.9 (*)	59.0

Tabelle 2.1: Molare Refraktionen R_{LL} und molare Massen M für das Edukt und die Reaktions-Produkte. Diese Werte sind Summen der Beiträge aller Gruppen des jeweiligen Moleküls [50]. (*) Diese Werte sind nicht ganz vollständig, da der unbekannte Beitrag der ungebundenen Elektronen nicht enthalten ist.

Ψ' nicht zu unterscheiden: Die Werte der Moleküle A und B sind mit der angegebenen Genauigkeit gleich. Die R_{LL} -Werte für die Produkte a und c sind nicht ganz vollständig, da der unbekannte Beitrag der ungebundenen Elektronen nicht enthalten ist. Die Anteile t_i können aus den Ertrags-Konstanten g_{Ψ} für H-Abstraktion und g_{Ξ} für Hauptkettenbruch aus der im Material abgelagerten Dosis $D(y)$ berechnet werden:

$$t_{\Psi}(y) \simeq \frac{g_{\Psi} D(y)}{\frac{\rho_0}{M_{\text{mol}}} N_{\text{A}}}; \quad t_{\Xi}(y) \simeq \frac{g_{\Xi} D(y)}{\frac{\rho_0}{M_{\text{mol}}} N_{\text{A}}}; \quad t_{\Lambda}(y) \simeq 1 - \frac{(g_{\Psi} + g_{\Xi}) D(y)}{\frac{\rho_0}{M_{\text{mol}}} N_{\text{A}}} \quad . \quad (2.11)$$

Die Ertrags-Konstanten geben an, wie viele Ereignisse pro absorbierte Strahlungsenergie stattfinden. In der Literatur finden sich experimentell ermittelte Beziehungen, in denen die gesuchten Werte implizit enthalten sind [36, 37, 44]:

$$g_{\Psi} + g_{\Xi} = \frac{1}{100 \text{ eV}}; \quad g_{\Xi} + g_{\Lambda} = \frac{1.2}{100 \text{ eV}}; \quad \frac{g_{\Xi}}{g_{\Lambda}} = 4 \quad . \quad (2.12)$$

Durch Lösung dieses Gleichungssystems erhalten wir:

$$g_{\Psi} = \frac{0.04}{100 \text{ eV}}; \quad g_{\Xi} = \frac{0.96}{100 \text{ eV}}; \quad g_{\Lambda} = \frac{0.24}{100 \text{ eV}} \quad . \quad (2.13)$$

Der Wert der Ertrags-Konstanten g_{Λ} für den direkten Hauptkettenbruch wird nicht benötigt und ist nur der Vollständigkeit halber angegeben. Es sei hier erwähnt, dass die Ertrags-Konstanten genau genommen abhängig von der Photonenenergie sind. In der Literatur finden sich hierzu aber keine ausreichend quantitativen Angaben. Daher kann die Energie-abhängigkeit hier nicht berücksichtigt werden.

Der direkte Einfluss der chemischen Veränderungen auf den Brechungsindex ist damit beschrieben. Allerdings ist zu erwarten, dass aufgrund der Degradation des Polymers auch Änderungen des mittleren Molekulargewichtes, also des Mittelwerts der molaren Masse der Makromoleküle im Polymer, auftreten, was sich wiederum auf die Massedichte des Materials auswirken kann. Eine Modellierung der so veränderten Massedichte ρ_X würde sich, wenn derzeit überhaupt möglich, als sehr schwierig erweisen. Um dennoch einen Zugang zu ρ_X

zu ermöglichen, soll hier nun gezeigt werden, wie man prinzipiell aus einer Dickenänderung $\Delta d_X(y)$, welche man experimentell bestimmen kann, auf ρ_X schließen kann. Für ρ_X gilt:

$$\rho_X = \rho_0 + \Delta\rho \quad . \quad (2.14)$$

Vernachlässigt man einen Verlust an Masse, kann eine isotrope Änderung der Massedichte $\Delta\rho$ als Änderung eines bestimmten Volumens, das aus vielen kleinen identischen Würfeln mit der Kantenlänge \tilde{d} lückenlos zusammengesetzt ist, beschrieben werden. Die Änderung dieses Volumens ergibt sich nun als Änderung der Kantenlänge \tilde{d} . Für $\Delta\rho$ gilt:

$$\Delta\rho = \frac{\partial\rho_0}{\partial\tilde{d}}\Delta\tilde{d} = -3\rho_0\frac{\Delta\tilde{d}}{\tilde{d}} \quad . \quad (2.15)$$

Demzufolge hängt $\rho_X(y)$ über die folgende Beziehung von der Dickenänderung $\Delta d_X(y)$ ab:

$$\rho_X(y) = \rho_0 \left(1 - \frac{3\Delta d_X(y)}{d_0} \right) \quad . \quad (2.16)$$

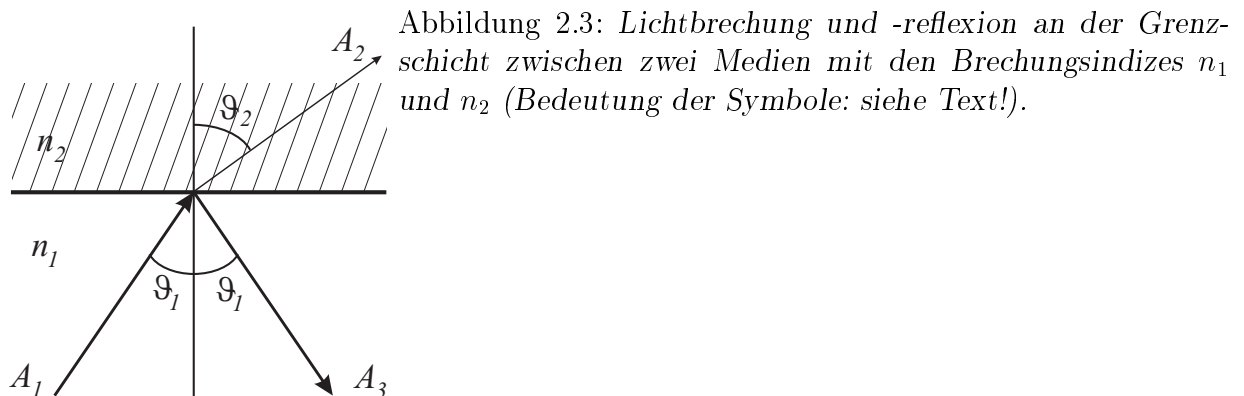
Man muss also lediglich die Dickenänderung entlang der y -Richtung kennen, um auf die geänderte Massedichte schließen zu können, welche zusammen mit der molaren Refraktion des chemisch veränderten Polymers zur Bestimmung der Brechungsindexänderung nach Gl. (2.7) benötigt wird.

2.1.3 Wellenleitung

In diesem Abschnitt wird kurz auf Lichtwellenleitung eingegangen und der Grundstein zur qualitativen Beschreibung von Wellenleitern gelegt, welche in PMMA durch Bestrahlung mit weicher Röntgenstrahlung erzeugt werden können [12, 51].

Bedingungen für Wellenleitung

Eine ebene Lichtwelle mit der komplexen Amplitude A_1 falle unter dem Winkel ϑ_1 auf eine Grenzschicht zwischen zwei verlustfreien, isotropen und homogenen dielektrischen Medien mit den Brechungsindizes n_1 und n_2 (Abb. 2.3). Ein Teil der Welle wird unter dem Winkel



ϑ_1 reflektiert, während der andere Teil an der Grenzschicht gebrochen wird. Der zugehörige Austrittswinkel ϑ_2 ist über das Snelliussche Brechungsgesetz gegeben [30]:

$$n_1 \sin \vartheta_1 = n_2 \sin \vartheta_2 \quad . \quad (2.17)$$

Die komplexe Amplitude A_3 der reflektierten Welle steht mit A_1 über den folgenden Zusammenhang in Beziehung:

$$A_3 = R A_1 \quad . \quad (2.18)$$

Der Reflexionskoeffizient R hängt vom Einfallswinkel und von der Lichtpolarisation ab. Er wird mit den Fresnel-Gleichungen beschrieben. Man unterscheidet dabei Wellen, die **Transversal Elektrisch** (kurz: TE; das elektrische Feld steht senkrecht zur Einfallsebene) oder **Transversal Magnetisch** (kurz: TM; das magnetische Feld steht senkrecht zur Einfallsebene) sind. Es gilt [30]:

$$R_{\text{TE}} = \frac{n_1 \cos \vartheta_1 - n_2 \cos \vartheta_2}{n_1 \cos \vartheta_1 + n_2 \cos \vartheta_2} = \frac{n_1 \cos \vartheta_1 - \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_1}}{n_1 \cos \vartheta_1 + \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_1}} \quad ; \quad (2.19)$$

$$R_{\text{TM}} = \frac{n_2 \cos \vartheta_1 - n_1 \cos \vartheta_2}{n_2 \cos \vartheta_1 + n_1 \cos \vartheta_2} = \frac{n_2^2 \cos \vartheta_1 - n_1 \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_1}}{n_2^2 \cos \vartheta_1 + n_1 \sqrt{n_2^2 - n_1^2 \sin^2 \vartheta_1}} \quad . \quad (2.20)$$

Für den Fall $n_1 > n_2$ existiert ein kritischer Winkel ϑ_c , bei dem R zu einer komplexen Zahl mit Betrag 1 wird:

$$\sin \vartheta_c = \frac{n_2}{n_1} \quad . \quad (2.21)$$

Solange $\vartheta_1 < \vartheta_c$ gilt, ist R reell und kleiner als 1. Das bedeutet, dass nur ein Teil der einfallenden Welle reflektiert wird. Der Fall bei $\vartheta_1 > \vartheta_c$ wird als Totalreflexion bezeichnet [30].

Es ergibt sich daraus die Möglichkeit, Licht in einer Region zu führen, die einen höheren Brechungsindex als die Umgebung aufweist. Eine optische Komponente, die dieses Prinzip ausnutzt, wird als dielektrischer Wellenleiter bezeichnet. Je nach Aufbau unterscheidet man verschiedene Strukturen. Die in der Literatur am häufigsten beschriebene Struktur ist der planare Wellenleiter, auch Schichtwellenleiter genannt [30]. Abbildung 2.4 skizziert den typischen Aufbau. Die Dicke s des Films beträgt üblicherweise nur wenige Mikrometer und hat

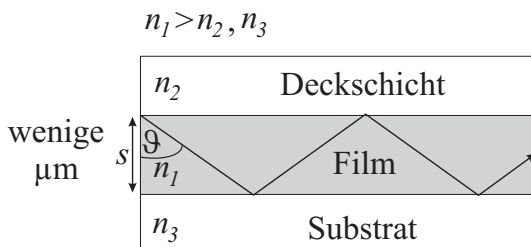


Abbildung 2.4: Typischer Aufbau eines planaren Wellenleiters (Schichtwellenleiter). Der Film hat einen größeren Brechungsindex (n_1) als Deckschicht und Substrat (n_2, n_3).

einen größeren Brechungsindex als Substrat und Deckschicht. Häufig wird die Deckschicht auch weggelassen, und Luft stellt das angrenzende Medium dar. Eine monochromatische,

geführte Welle beschreibt hier einen „Zickzack“-förmigen Verlauf. Der Winkel ϑ ist nicht beliebig. Nur diskrete Werte sind erlaubt. Es gilt die „transversale Resonanz-Bedingung“ [30]:

$$\frac{4\pi n_1 s}{\lambda} \cos(\vartheta) - 2\phi_2(\vartheta) - 2\phi_3(\vartheta) = 2\pi \nu \quad , \quad (2.22)$$

wobei ν eine natürliche Zahl (0, 1, 2...) und ϕ_2 und ϕ_3 Phasensprünge der total reflektierten Welle an Deck- bzw. Substratschicht sind. Es bilden sich also diskrete Moden aus, was prinzipiell für alle Wellenleiter gilt. Wird s oder n_1 größer, nimmt damit die Winkeldifferenz $\vartheta_i - \vartheta_{i+1}$ zwischen benachbarten Moden ab. Das Modenspektrum wird dichter, und damit nimmt auch die Zahl der erlaubten Moden zu. Ist dagegen bei einem Wellenleiter nur eine Mode propagationsfähig, spricht man von einem einmodigen Wellenleiter.

Wellenleitung im Brechungsindexgradienten

Im vorigen Abschnitt wurde anhand der Totalreflexion an scharfen Grenzflächen das Prinzip der Wellenleitung erklärt. Allerdings kann in bestimmten Fällen auch ein stetiger Verlauf des Brechungsindex als Barriere für Licht wirken. Dabei muss eine Lichtwelle eine Richtungskomponente senkrecht und eine parallel zum negativen Brechungsindexgradienten besitzen. Auf eine exakte Beschreibung der Wellenleitung in Brechungsindexgradienten wird hier verzichtet, da sie nur in Ausnahmefällen möglich ist [30]. Um sich dennoch plausibel zu machen, wie Totalreflexion in Brechungsindexgradienten funktioniert, kann man sich den Gradienten als Abfolge dünner Schichten mit gradueller Abnahme des Brechungsindex vorstellen (Abb. 2.5). An jeder Grenzfläche laufen nun die üblichen Reflexionen und Brechungen ab,

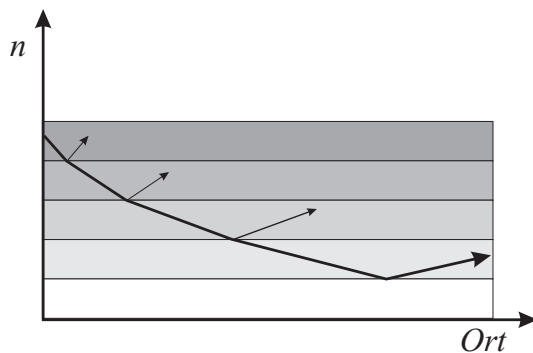


Abbildung 2.5: Plausibilitäts-Überlegung zur Totalreflexion in Brechungsindexgradienten. An jeder Grenzfläche finden Reflexionen und Brechungen statt, bis der Einfallswinkel an der x-ten Grenzfläche den kritischen Winkel überschreitet und Totalreflexion erfolgt.

bis der Einfallswinkel an der x-ten Grenzfläche den kritischen Winkel überschreitet und Totalreflexion erfolgt.

Wellenleitung in bestrahltem PMMA

Wenn PMMA mit energiereicher Strahlung wechselwirkt, bildet sich, wie bereits gezeigt wurde, ein Brechungsindexprofil entlang der Ausbreitungsrichtung der Strahlung aus (Gl. 2.7). Soll dieses Profil für Wellenleitung tauglich sein, muss es einen Bereich mit erhöhtem Brechungsindex aufweisen. In der Tat führt eine Bestrahlung mit weicher Röntgenstrahlung (im Energiebereich weniger keV) zu Brechungsindexprofilen, mit denen bereits Schichtwellenleiter hergestellt wurden [12]. Wird lediglich ein schmaler Streifen bestrahlt, ist zu erwarten,

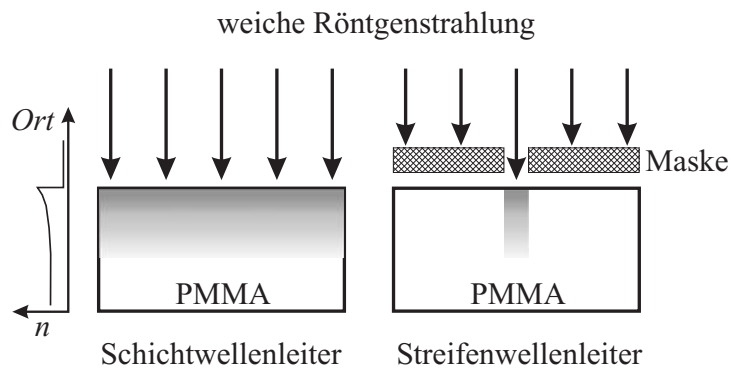


Abbildung 2.6: Durch Röntgenbestrahlung in PMMA erzeugte Wellenleiter.

dass sich ein Streifenwellenleiter (Abb. 2.6) ausbildet, welcher links und rechts vom bestrahlten Bereich eine relativ scharfe Brechungsindexstufe aufweist, während er entlang der Bestrahlungsrichtung einen Brechungsindexgradienten besitzt.

2.2 Methoden

In diesem Abschnitt werden zunächst die verwendeten Proben vorgestellt. Dann wird auf die Bestrahlung und Lagerung der Proben eingegangen. Es folgt die Beschreibung des interferometrischen Messaufbaus, mit dem Brechungsindex- und Dickenänderungen der Proben ermittelt werden. Schließlich werden Methoden zur Untersuchung von Wellenleitern vorgestellt.

2.2.1 Probenpräparation

Für die Experimente wird PMMA der Firma Röhm, PLEXIGLAS[®] GS 233 und PLEXIGLAS SUNACTIVE[®] GS, verwendet. Aus großen Platten werden kleine Stücke mit einer Kreissäge ausgeschnitten. Die typischen Abmessungen für Proben der Sorte PLEXIGLAS[®] GS 233 sind $x \times y \times z = 20 \times 20 \times 10 \text{ mm}^3$. Für PLEXIGLAS SUNACTIVE[®] GS ist $z = 8 \text{ mm}$. Üblicherweise haben nur die (x, y) -Flächen optische Qualität. Für die Proben AG1 und AG2 gilt dies nur an den (x, z) -Flächen. Die Abmessungen sind $x \times y \times z = 20.7 \times 8 \times 9.5 \text{ mm}^3$ für AG1 und $x \times y \times z = 20.7 \times 8 \times 10.4 \text{ mm}^3$ für AG2. Die verwendeten Sorten werden bei der Herstellung im noch flüssigen Zustand in Formen mit planen Oberflächen gegossen. Nach der Aushärtung ergeben sich also von selbst glatte Oberflächen. Das Nachpolieren dieser Flächen, um vor allem die Planität der Oberflächen zu verbessern, ist hochgradig schwierig. Wenn nicht unbedingt notwendig, ist davon abzuraten. Bei den Wellenleiter-Proben WL10 ($x \times y \times z = 41.9 \times 20 \times 10 \text{ mm}^3$) und SMTP1-SMTP5 ($x \times y \times z = 46 \times 46 \times 10 \text{ mm}^3$) werden an den (y, z) -Flächen Stirnflächen-Polituren durchgeführt. Laut Hersteller liegt der Brechungsindex für 589 nm und Raumtemperatur bei $n_0 = 1.49$, die Absorption für sichtbares Licht ist kleiner als 0.05 % und die Massedichte beträgt $\rho_0 = 1.19 \text{ g cm}^{-3}$ [52].

2.2.2 Bestrahlung

In dieser Arbeit kommen zwei Methoden der Bestrahlung zum Einsatz. Hauptsächlich findet die Bonner **EL**ektronen **St**retcher **An**lage (kurz: ELSA) als Synchrotronlichtquelle Verwendung. Alternativ werden die Proben mit einer leistungsstarken Röntgenröhre bestrahlt.

Bestrahlung mit Synchrotronlicht

ELSA kann im Speicherring-Modus als Quelle für Synchrotronstrahlung genutzt werden. Die Strahlung wird durch relativistische Elektronen hervorgerufen, welche der durch Magnetfelder erzwungenen, gekrümmten Bahn folgen. Im Laborsystem erscheint diese Abstrahlung als ein schmaler, tangential an der Elektronenbahn in Bewegungsrichtung abgestrahlter Kegel [53] (Abb. 2.7). Aufgrund der sehr hohen Umlaufgeschwindigkeit der Elektronen erscheint die Strahlung beim Beobachter nur als sehr kurzer Lichtpuls. Durch Fourier-Transformation dieses Pulses erhält man ein breites Frequenzspektrum. Der Energiebereich und die Form des Spektrums sowie die Intensität der Strahlung hängen dabei von der Elektronenenergie E , vom Bahnradius r , dem Abstand zum Tangentialpunkt l und der Höhe h bzw. dem Winkel φ

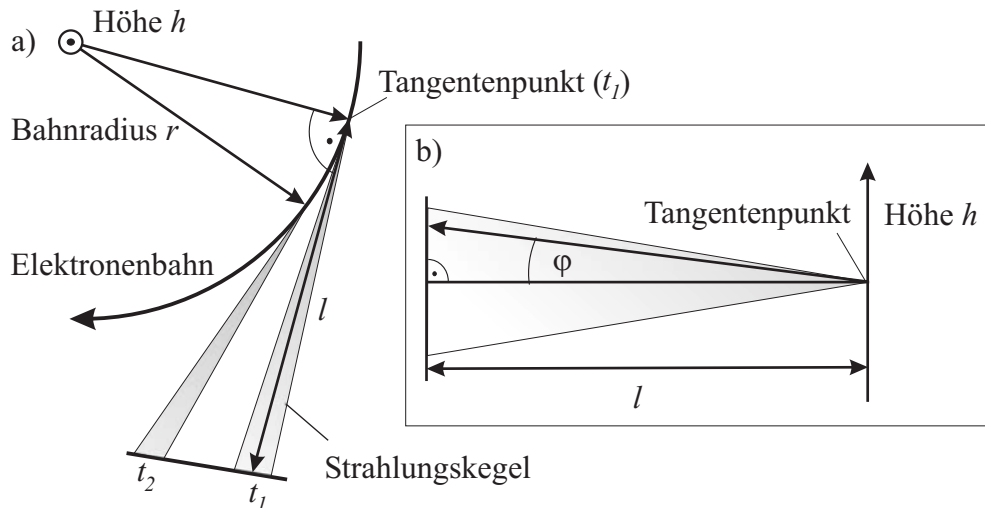


Abbildung 2.7: Entstehung von Synchrotronstrahlung beim Umlauf relativistischer Elektronen im Speicherring. Die Strahlung wird als schmaler Kegel tangential in Bewegungsrichtung abgestrahlt. Dargestellt sind die Strahlungskegel zu aufeinander folgenden Zeiten t_1 und t_2 (a) Draufsicht, b) Seitenansicht eines Kegels.

ab [54, 55]. Durch Einbringung von Filter-Materialien in den Strahlengang kann die Form des Spektrums verändert und an experimentelle Anforderungen angepasst werden [56].

Der Bestrahlungsaufbau ist in Abb. 2.8 schematisch dargestellt. Bei diesem Aufbau han-

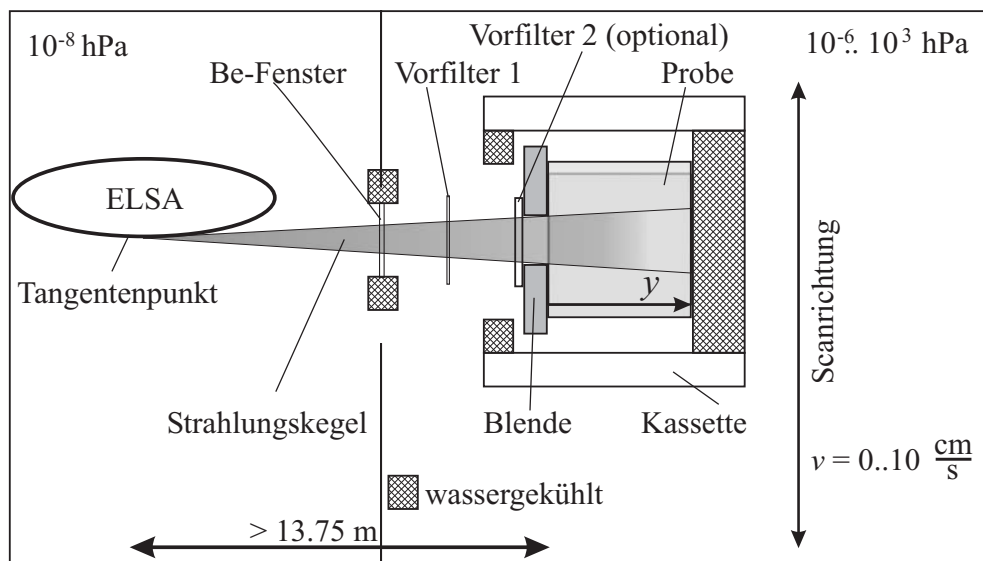


Abbildung 2.8: Schematische Darstellung des Bestrahlungsaufbaus „BELLA“. Die Probe befindet sich in einer Kassette, die periodisch auf- und abbewegt wird.

delt es sich um die **B**onner-**E**LSA-**L**ithographie-**A**nlage (BELLA), welche Olaf Wollersheim (geb. Knüppel) im Rahmen seiner Diplomarbeit in Bonn aufgebaut hat [57]. Apparaturen dieser Art werden häufig auch als „Scanner“ bezeichnet. Die Bestrahlung wird im Vakuum durchgeführt um:

1. die Strahlung nicht unnötig abzuschwächen,
2. keine unnötige Ozonproduktion zuzulassen.

Während der Bestrahlung wird die wassergekühlte Proben-Kassette auf- und abbewegt, um:

1. Temperaturstau zu reduzieren,
2. Variationen der spektralen Verteilung in h -Richtung auszugleichen.

Über die Zeit t_B , in der sich die Probe im Strahlengang befindet, wird der im Speicherring fließende Elektronenstrom $I(t)$ integriert:

$$B = \int_0^{t_B} I(t) dt \quad . \quad (2.23)$$

Das B wird als Bestrahlaufwand bezeichnet. Ein Steuerprogramm ermöglicht die rechnergestützte Bewegung des Scanners mit synchroner Stromintegration. Wenn nicht anders angegeben, werden für die Scanner-Bewegung folgende Parameter verwendet:

1. Scanhub H (Strecke zwischen den Umkehrpunkten): 12 mm
2. Scangeschwindigkeit v : 10 mm s⁻¹
3. Scanbeschleunigung \dot{v} : 0.6 m s⁻²

Die Definition des Scanhubs, ist in Abb. 2.9 dargestellt. Er wird so gewählt, dass die Strahlmitte den gesamten Öffnungsbereich der Blende überstreicht. Es ist leicht einzusehen, dass der Bestrahlaufwand pro Fläche umgekehrt proportional vom Scanhub abhängt. Die Bestrah-

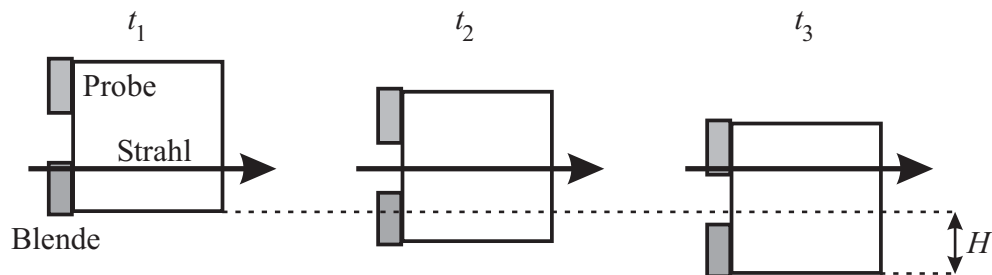


Abbildung 2.9: Definition des Scanhubs. Dieser wird so gewählt, dass die Strahlmitte den gesamten Öffnungsbereich der Blende überstreicht.

lung wird manuell gestartet und beendet sich selbständig bei Erreichen des vorgesehenen Bestrahlaufwands.

Die Probe ist bei der Bestrahlung um die y -Achse (parallel zur Strahlrichtung) um den Winkel ζ verkippt, wie in Abb. 2.10 skizziert ist. Dies erleichtert die interferometrischen Messungen der Brechungsindexmodulation in der (x, y) -Ebene, auf die später noch im Detail eingegangen wird. Das in der Abbildung gezeigte Koordinatensystem der Probe wird im

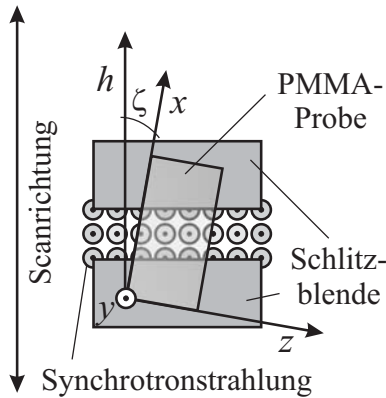


Abbildung 2.10: Orientierung der Probe in Bezug auf die Richtung der Synchrotronstrahlung. Die Probe ist um die y -Achse (parallel zur Strahlrichtung) um den Winkel ζ verkippt. Auch führt diese Abbildung das im folgenden verwendete Koordinatensystem der Probe ein. Die Brechungsindexmodulation in der (x, y) -Ebene wird nach der Bestrahlung gemessen.

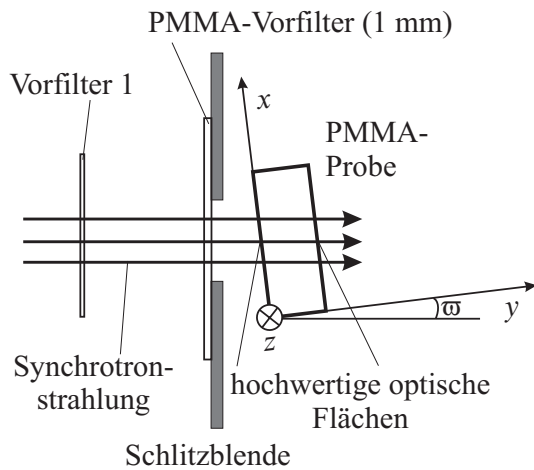


Abbildung 2.11: Schematische Darstellung der zweiten Bestrahlungsgeometrie. Eine der hochwertigen optischen Flächen wird bestrahlt, damit die Brechungsindexmodulation in der (x, z) -Ebene gemessen werden kann. Um die Güte der Oberfläche zu erhalten, wird ein zusätzlicher PMMA-Filter verwendet, der den niederenergetischen Anteil der Strahlung absorbiert.

folgenden verwendet. Außer der in Abb. 2.10 dargestellten Bestrahlungsgeometrie wird noch eine andere Konfiguration verwendet (Abb. 2.11). Hierbei wird eine der hochwertigen optischen Flächen bestrahlt, damit die Brechungsindexmodulation in der (x, z) -Ebene gemessen werden kann. Der Kippwinkel ϖ um die z -Achse erleichtert hier analog zur vorigen Geometrie die interferometrischen Messungen. Um Beschädigungen der Oberfläche durch Bestrahlung zu vermeiden, wird ein zusätzlicher PMMA-Filter verwendet, der den niederenergetischen Anteil der Strahlung absorbiert. Die Probe ist um die z -Achse um den Winkel ϖ verkippt.

Für die Bestrahlung der Proben kommen neben den in Abb. 2.10 und Abb. 2.11 dargestellten Blenden je nach experimenteller Problemstellung auch noch andere Blenden zum Einsatz. Abbildung 2.12 zeigt alle zur Probenbestrahlung verwendeten Blenden. Als Material wird Aluminium verwendet. Der Kippwinkel ζ ist nur bei b) und c) Null. Sonst liegt er im Bereich zwischen 10° und 20° . Die Blendendicke d_B variiert von 3 bis 12.2 mm. In Tab. 2.2 sind alle mit ELSA bestrahlten Proben mit den zugehörigen Bestrahlaufwänden B und den bei Bestrahlung verwendeten Blenden und Vorfiltern aufgelistet.

Probe	B [mAmin]	Blende	12.5 μm K	50 μm K & 1 mm P
AG1 ¹⁾	400	a) $\zeta = 0, \varpi > 0$		X
AG2 ¹⁾	800	a) $\zeta = 0, \varpi > 0$		X
HS1 ¹⁾	1600	a)		X

Tabelle 2.2: Bitte umblättern!

Probe	B [mAmin]	Blende	12.5 μm K	50 μm K & 1 mm P
HS2 ¹⁾	800	a)		X
HS3 ¹⁾	400	a)		X
HS4 ¹⁾	200	a)		X
HS5 ¹⁾	100	a)		X
SA1 ¹⁾	5	a)	X	
SA2 ¹⁾	25	a)	X	
SA3 ¹⁾	50	a)	X	
SA4 ¹⁾	100	a)	X	
SA5 ¹⁾	200	a)	X	
SA6 ¹⁾	500	a)	X	
AT1-AT4 ²⁾	200	d)	X	
CT1 ²⁾	145	a)	X	
CT2 ²⁾	145	a)	X	
CT3 ²⁾	145	a)	X	
BT ²⁾	200	b)	X	
APT2 ²⁾ , APT3 ³⁾	200	f)	X	
LS1 ²⁾	200	a)	X	
TT ²⁾	1000	c)	X	
ST1-ST7 ³⁾	200	e)	X	
TCT1 ³⁾	5	a)	X	
TCT2 ³⁾	25	a)	X	
TCT3 ³⁾	100	a)	X	
TCT4 ³⁾	200	a)	X	
TCT5 ³⁾	500	a)	X	
TDT1 ³⁾	100	a)	X	
TDT2 ³⁾	200	a)	X	
TDT3 ³⁾	500	a)	X	

Tabelle 2.2: Proben mit Bestrahlaufwänden B und den bei Bestrahlung verwendeten Blenden und Vorfiltern: 12.5 μm KAPTONTM oder 50 μm KAPTONTM + 1 mm PMMA. Die Nummern kennzeichnen die verwendeten Sorten des Herstellers (Röhlm):

¹⁾ PLEXIGLAS SUNACTIVE[®] GS

²⁾ PLEXIGLAS[®] GS 233 (neue Charge)

³⁾ PLEXIGLAS[®] GS 233 (alte Charge)

Zwei Strahlungsfilter kommen zum Einsatz:

1. Eine 12.5 μm dicke KAPTONTM-Folie
2. Eine 50 μm dicke KAPTONTM-Folie plus eine 1 mm dicke PMMA-Platte

Die für die Bestrahlung der Wellenleiter-Proben WL10 und SMTP1-SMTP5 verwendeten Masken sind in Abb. 2.13 skizziert. Die lithographische Maske, welche am Center for

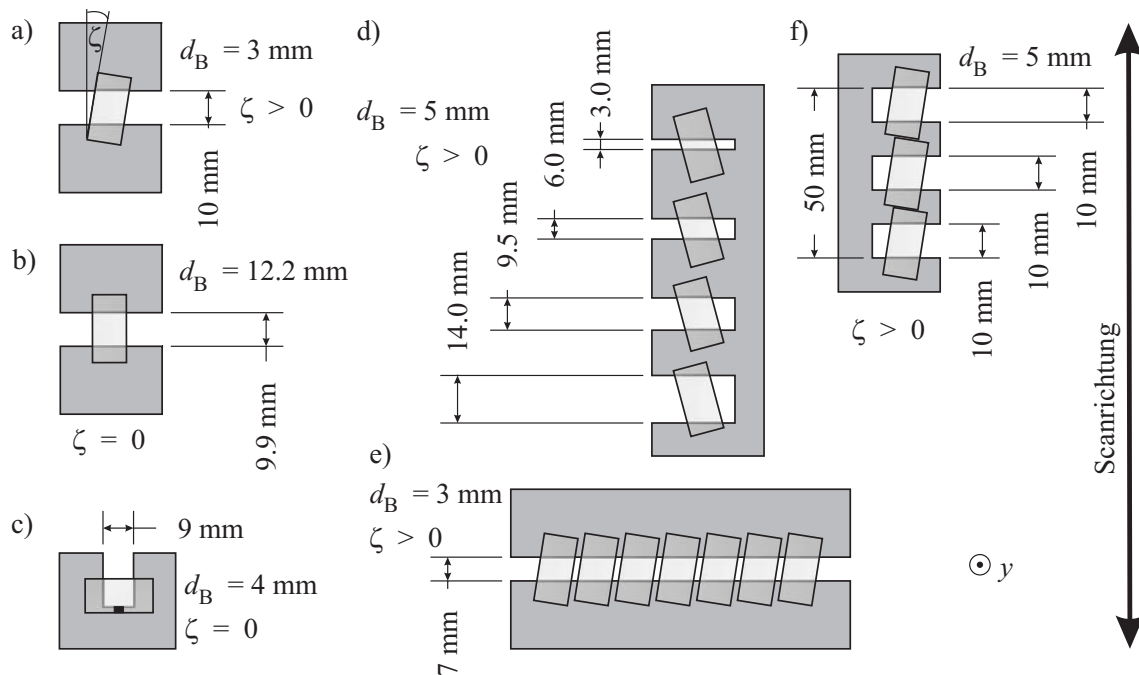


Abbildung 2.12: Alle zur Probenbestrahlung verwendeten Blenden, angeordnet in Relation zur Scanrichtung. Als Material wird Aluminium verwendet. Die Position der Proben ist mit den hellgrauen Kästchen gekennzeichnet. Der Kippwinkel ζ ist nur bei b) und c) Null. Sonst liegt er im Bereich zwischen 10° und 20° . Die Blendendicke d_B variiert von 3 bis 12.2 mm. Das schwarze Kästchen bei c) markiert die Position von Temperatursensoren, die in einer Rinne entlang der y -Richtung angeordnet sind.

Advanced Microstructures and Devices in Baton Rouge, Louisiana, USA hergestellt wurde, besitzt 19 Streifen, welche ihrer Breite nach von 5 bis $100 \mu\text{m}$ aufsteigend angeordnet sind. Aus Tab. 2.3 sind die Bestrahlungs-Parameter ersichtlich. Bei der Bestrahlung von

Probe	KM	CAMD	B [mAmin]	H [mm]	$12.5 \mu\text{m K}$
WL10	X		10	5	X
SMTP1		X	600	40	
SMTP2		X	60	40	
SMTP3		X	100	40	
SMTP4		X	300	40	
SMTP5		X	1200	40	

Tabelle 2.3: Wellenleiter-Proben mit verwendeter Maske: Klingemaske (KM) oder lithographischer Maske (CAMD), Bestrahlungsleistung B , Scanhub H und verwendeter Vorfilter ($12.5 \mu\text{m KAPTON}^{\text{TM}}$). Es werden Proben der Sorte PLEXIGLAS[®] GS 233 (alte Charge) von Röhm verwendet.

WL10 wurde abweichend von den üblichen Parametern die halbe Scangeschwindigkeit von $v = 5 \text{ mm s}^{-1}$ verwendet.

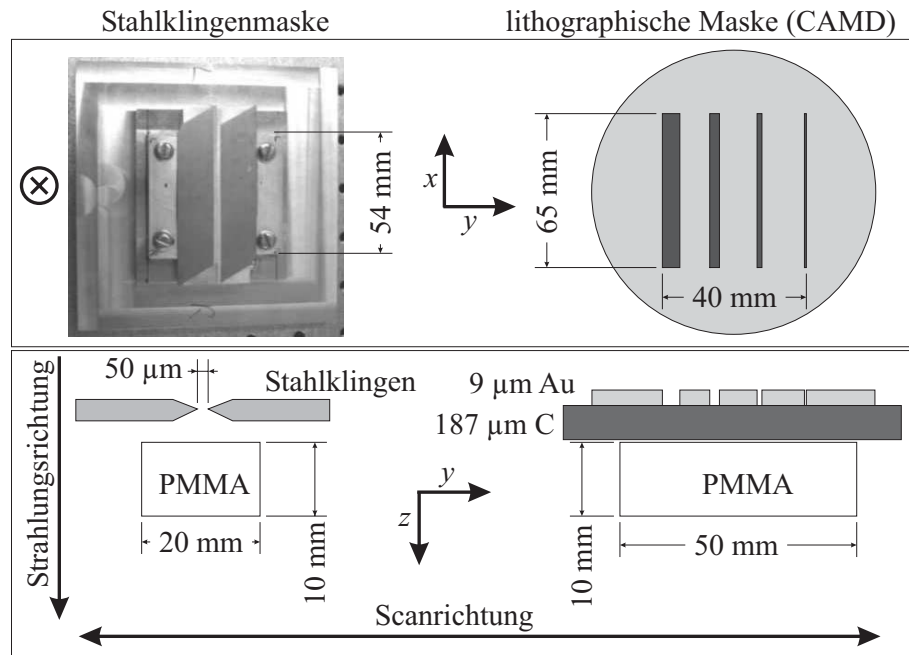


Abbildung 2.13: Masken für die Herstellung von Wellenleitern in PMMA durch Bestrahlung mit Synchrotronlicht. Mit eingezeichnet sind Proben-Koordinaten sowie Strahlungs- und Scanrichtung in Bezug auf die Anordnung der Masken bei Bestrahlung. Die lithographische Maske besitzt nicht wie dargestellt 4 sondern 19 Streifen, welche ihrer Breite nach von 5 bis 100 μm aufsteigend angeordnet sind.

Messung der Temperatur bei Bestrahlung

Um die Temperaturänderung in den Proben bei Bestrahlung mit Synchrotronlicht zu messen, werden zwei Temperatur-Sensoren vom Typ AD 590 verwendet. Die Sensoren befinden sich hierfür in einer rechtwinkligen 1 mm tiefen und 2.5 mm breiten, durchgängigen Rinne, welche hierzu in eine der (x,y)-Flächen entlang der y-Richtung in die Probe TT gefräst worden ist. Der erste Sensor nimmt dabei die Position $y = 0-3$ mm der zweite die Position $y = 17-20$ mm ein. Um die Sensoren vor der Strahlung zu schützen, wird die Probe so hinter der Blende positioniert, dass die Sensoren bündig abgedeckt sind (Abb. 2.12, c)). Bei den verwendeten Sensoren handelt es sich um spezielle Halbleiter-Schaltkreise, die bei 1 K Temperaturerhöhung und mindestens 4 V angelegter Spannung den durchgehenden Strom um 1 μA erhöhen. Dieser wird über den Spannungsabfall an einem 20 k Ω -Widerstand gemessen und aufgezeichnet.

Variation der Strahlungsintensität

Die Strahlungsintensität ist proportional zum Elektronenstrom im Speicherring $I(t) = I_0 e^{-t/\tau}$, mit $\tau \simeq 1-2$ h als Zerfallszeitkonstante. Untersucht wird also, ob die im Material hervorgerufene Brechungsindexänderung Δn_x vom Strom $I(t)$ abhängt. Der Speicherring wird bei Erreichen einer unteren Stromschwelle neu befüllt. Man spricht von einer „Injektion“. Es werden zu verschiedenen Zeitpunkten Bestrahlungen durchgeführt:

1. Probe CT3 direkt nach einer Injektion ($I(t) \simeq 28$ mA)

2. Probe CT2 kurz vor der nächsten Injektion ($I(t) \simeq 10 \text{ mA}$)
3. Probe CT1 bei $I(t) \simeq \frac{2}{3}I_0$ ($I(t) \simeq 22 \text{ mA}$)

Ein Bestrahl Aufwand von $B = 145 \text{ mAmin}$ wird für jede dieser Bestrahlungen eingehalten.

Variation der bestrahlten Fläche

Um den Einfluss der Größe der bestrahlten Fläche auf die Brechungsindexänderung Δn_X zu untersuchen, werden die Proben AT1-AT4 gleichzeitig mit Blende d) (Abb. 2.12) bestrahlt. Der Bestrahl Aufwand B wird an den durch die Blendenhöhe vergrößerten Scanhub H angepasst: $H = 70 \text{ mm} \simeq 5.83 \times 12 \text{ mm} \Rightarrow B = 5.83 \times 200 \text{ mAmin} = 1166 \text{ mAmin}$. Effektiv ergibt sich damit für jede Probe aber immer noch ein Bestrahl Aufwand von $B = 200 \text{ mAmin}$ und ein Scanhub von $H = 12 \text{ mm}$.

Simulation der abgelagerten Dosis

Die im Material abgelagerte Dosis $D(y)$ wird im Rahmen dieser Arbeit nicht experimentell ermittelt, sondern mit dem Programm LITOP 2.0 berechnet. LITOP entstand im Rahmen der Promotion von B. Maid [56] und wurde 1992 während der Durchführung seiner Diplomarbeit von R. Dany zu LITOP 2.0 weiterentwickelt. Im Jahre 1994 ist diese Version schließlich von C. Wehner in C++ konvertiert worden. Bis heute wird LITOP 2.0 als Standard-Programm für Dosisberechnungen in der Röntgentiefenlithographie eingesetzt [58, 59]. Es soll hier kurz auf die grundlegenden Abhängigkeiten eingegangen werden, um das Prinzip einer Dosiskalkulation zu veranschaulichen.

Fällt monochromatisches Röntgenlicht der Wellenlänge λ auf ein Material, das im folgenden als Resist bezeichnet wird, so ist die absorbierte Dosis $D(y)$ als im Volumen dV deponierte Energie dE gegeben:

$$\begin{aligned}
 D(y) &= -\frac{dE}{dV} = -\frac{1}{A} \int_0^{t_B} \frac{dP(y, t)}{dy} dt \\
 &= -\frac{1}{A} \int_0^{t_B} \frac{d(P_0(\lambda, t)e^{-\mu_R(\lambda)y})}{dy} dt \\
 &= \frac{1}{A} \mu_R(\lambda) e^{-\mu_R(\lambda)y} \int_0^{t_B} P_0(\lambda, t) dt \quad .
 \end{aligned} \tag{2.24}$$

Dabei bezeichnet A die bestrahlte Fläche, $\mu_R(\lambda)$ den linearen Absorptionskoeffizienten des Resists, $P(y, t)$ die Lichtleistung in der Tiefe y , und $P_0(\lambda, t)$ die Lichtleistung vor dem Resist. Da die Bestrahlung nicht mit monochromatischem Licht erfolgt, sondern mit einer breitbandigen Quelle, muss über den betreffenden Spektralbereich integriert werden:

$$D(y) = \frac{1}{A} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \mu_R(\lambda) e^{-\mu_R(\lambda)y} \int_0^{t_B} P_0(\lambda, t) dt d\lambda \quad . \tag{2.25}$$

Für die in einem Synchrotron pro Raumwinkelement und Frequenzintervall abgestrahlte Energie pro Elektron gilt der folgende Zusammenhang [54]:

$$\frac{dW}{d\Omega d\omega} = \frac{e^2}{12\pi^3 \epsilon_0 c} \left(\frac{\omega r}{c}\right)^2 \left(\frac{1}{\gamma^2} + \varphi^2\right)^2 \left[K_{2/3}^2(\xi) + \frac{\varphi^2}{1/\gamma^2 + \varphi^2} K_{1/3}^2(\xi) \right] . \quad (2.26)$$

Dabei bezeichnet e die Elementarladung, c die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum, ω die Kreisfrequenz der Strahlung, $\gamma = \frac{E}{m_e c^2}$ den relativistischen Faktor, m_e die Ruhemasse des Elektrons und $K_{1/3}$, $K_{2/3}$ modifizierte Besselfunktionen der zweiten Art. Auch gilt

$$\xi = \frac{\omega r}{3c} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \varphi^2\right)^{3/2} .$$

Mit der Substitution

$$\omega = \frac{2\pi c}{\lambda}, \quad \frac{d\omega}{d\lambda} = -\frac{2\pi c}{\lambda^2} \quad (2.27)$$

erhält man

$$\frac{dW}{d\Omega d\lambda} = -\frac{2e^2 r^2}{3\epsilon_0 \lambda^4} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \varphi^2\right)^2 \left[K_{2/3}^2(\xi) + \frac{\varphi^2}{1/\gamma^2 + \varphi^2} K_{1/3}^2(\xi) \right] . \quad (2.28)$$

Die Leistung pro Wellenlängenintervall und Raumwinkelement ist schließlich gegeben durch:

$$\frac{dP(t)}{d\Omega d\lambda} = \frac{I(t)}{e} \frac{dW}{d\Omega d\lambda} = -\frac{2e r^2}{3\epsilon_0 \lambda^4} I(t) \left(\frac{1}{\gamma^2} + \varphi^2\right)^2 \left[K_{2/3}^2(\xi) + \frac{\varphi^2}{1/\gamma^2 + \varphi^2} K_{1/3}^2(\xi) \right] . \quad (2.29)$$

Mit

$$\tilde{U}(\lambda, \varphi) \equiv -\frac{2e r^2}{3\epsilon_0 \lambda^4} \left(\frac{1}{\gamma^2} + \varphi^2\right)^2 \left[K_{2/3}^2(\xi) + \frac{\varphi^2}{1/\gamma^2 + \varphi^2} K_{1/3}^2(\xi) \right] \quad (2.30)$$

und geeigneter Transformation $\tilde{U}(\lambda, \varphi) \rightarrow U(\lambda, h)$ folgt

$$\int_0^{t_B} P_0(\lambda, t) dt = \frac{1}{l \cdot H} \int_{h_u}^{h_o} U(\lambda, h) dh \int_0^{t_B} I(t) dt = \frac{B}{l H} \int_{h_u}^{h_o} U(\lambda, h) dh . \quad (2.31)$$

Auf den Scanhub H muss normiert werden, da sich beim Scannen die Leistung auf einer zu H proportionalen Fläche verteilt. Aufgrund der vertikalen Divergenz ($P(\lambda)$ ist abhängig von φ) folgt eine zu l proportionale Abnahme der Strahlungsintensität, denn in horizontaler Richtung kann die Strahlung in guter Näherung als homogen angesehen werden. Der lineare Absorptionskoeffizient $\mu_R(\lambda)$ des Resists kann bei bekannter Massedichte ρ_0 und Kenntnis der chemischen Zusammensetzung aus den linearen Absorptionskoeffizienten aller beteiligten Elemente ermittelt werden. LITOP 2.0 verwendet hierfür Polynome, welche die in der Literatur angegebenen Werte [60–62] in guter Übereinstimmung (Abweichung < 1 %) wiedergeben. Schließlich gilt für die im Material abgelagerte Dosis:

$$D(y) = \frac{B}{l H} \int_{\lambda_1}^{\lambda_2} \mu_R(\lambda) e^{-\mu_R(\lambda)y} T(\lambda) \int_{h_u}^{h_o} U(\lambda, h) dh d\lambda , \quad (2.32)$$

wobei $T(\lambda)$ die Transmissionsfunktion der vor dem Resist eingesetzten Filter darstellt, welche wieder aus den linearen Absorptionskoeffizienten der darin vorkommenden Elemente, sowie aus Dichte, Zusammensetzung und Dicke der eingesetzten Materialien bestimmt werden kann.

In Abb. 2.14 ist ein mit LITOP 2.0 simuliertes Synchrotronstrahlungsspektrum von ELSA hinter einem $100\ \mu\text{m}$ dicken Be-Fenster und einer $12.5\ \mu\text{m}$ dicken KAPTONTM-Folie dargestellt. Um von der normierten Leistung auf die Gesamtleistung zu kommen, muss man mit

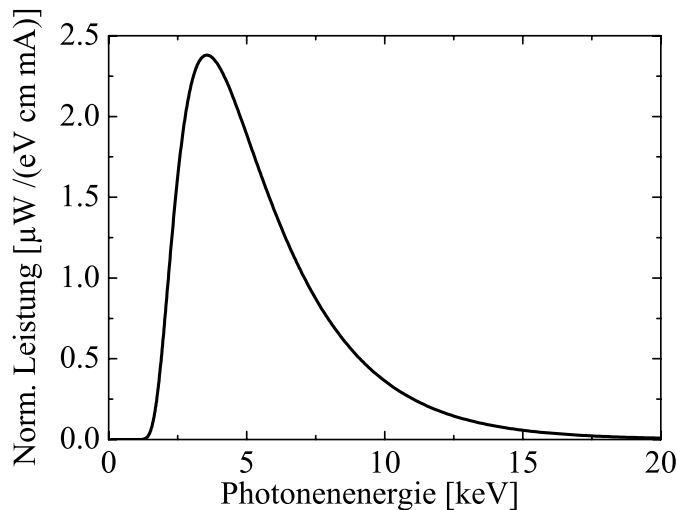


Abbildung 2.14: Mit LITOP 2.0 simuliertes Synchrotronstrahlungsspektrum von ELSA (Elektronenenergie: 2.3 GeV) in 10 m Entfernung vom Quellpunkt hinter einem $100\ \mu\text{m}$ dickem Be-Fenster und einer $12.5\ \mu\text{m}$ dicken KAPTONTM-Folie.

dem Strom [mA] im Beschleuniger, dem betrachteten Energieintervall [eV] und der Breite [cm] (senkrecht zu h) des betrachteten Segments in der dem Programm angegebenen Entfernung (als Ersatz für eine entsprechende Winkelangabe) multiplizieren. Das Spektrum hat ein Maximum bei etwa 3 keV und erstreckt sich bis ca. 20 keV. Abbildung 2.15 zeigt die mit LITOP 2.0 simulierte Energiehöhenverteilung des Speicherrings ELSA (Elektronenenergie: 2.3 GeV) für verschiedene Photonenergien. Wie man sieht, sind die höheren Energien stärker in der Strahlmitte konzentriert als die niedrigeren. Eine mit LITOP 2.0 simulierte Dosisablagerung für PMMA ist in Abb. 2.16 für verschiedene Bestrahlufwände aufgetragen. Der Verlauf zeigt ganz deutlich, dass fast die gesamte Dosis bereits in den ersten $300\ \mu\text{m}$ abgelagert wird. Vor allem der niederenergetische Teil des Spektrums wird in diesem Bereich deponiert, wie man in Abb. 2.17 erkennen kann. Dargestellt sind mit LITOP 2.0 simulierte Spektren für verschieden dicke PMMA-Vorfilter. Man kann das Ergebnis auch als Spektrum in PMMA bei verschiedenen Eindringtiefen verstehen. Das Intensitätsmaximum verschiebt sich mit zunehmender Eindringtiefe zu höheren Photonenergien. Niederenergetische Strahlung wird stärker absorbiert.

Bestrahlung mit Licht einer Röntgenröhre

Im Gegensatz zum Synchrotron ist eine exakte Dosiskalkulation bei Bestrahlung mit Röntgenröhren nur dann möglich, wenn das Spektrum der Strahlung in Abhängigkeit von Röhrenstrom und -spannung gemessen wird. Im Rahmen dieser Arbeit werden in Bezug auf

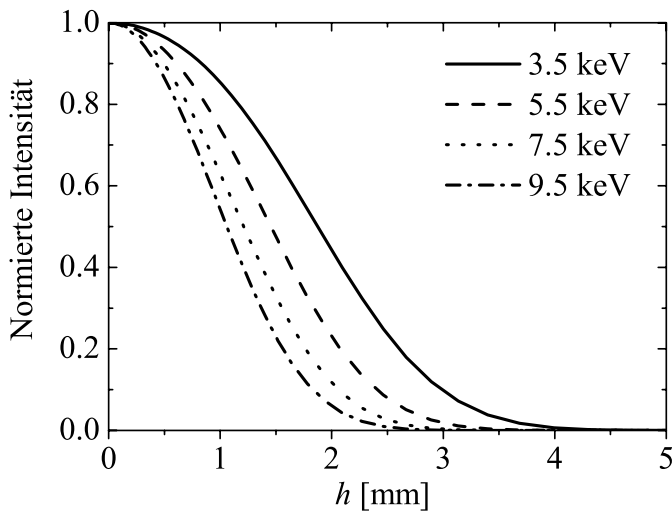


Abbildung 2.15: Mit LITOP 2.0 simulierte Energiehöhenverteilung des Speicherrings ELSA (Elektronenenergie: 2.3 GeV) für verschiedene Photonenergien.

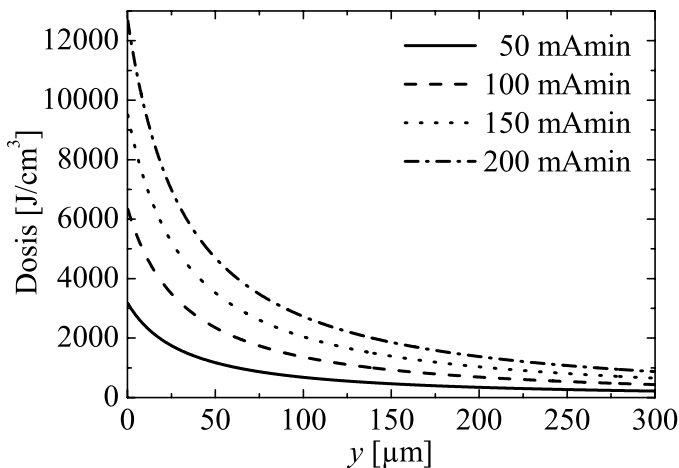


Abbildung 2.16: Mit LITOP 2.0 simulierte Dosisablagerung in PMMA für verschiedene Bestrahlungsdauern beim Speicherring ELSA (Elektronenenergie: 2.3 GeV, $H = 12$ mm, $l = 10$ m)

die durchgeführten Bestrahlungen mit der Röntgenröhre nur qualitative Aussagen gemacht, so dass auf eine Dosiskalkulation verzichtet werden kann. Mit dem in Abb. 2.18 dargestellten Aufbau werden die Proben IS1-IS3 bestrahlt. Der Aufbau ermöglicht die In-situ-Beobachtung von Brechungsindexänderungen bei Bestrahlung mit Röntgenlicht in unterschiedlichen Umgebungen. Dargestellt ist der Modus für Bestrahlung im Vakuum (2-3 hPa). Der Druckmesser kann durch einen Gaseinlass ersetzt werden, wodurch eine Bestrahlung in verschiedenen Atmosphären ermöglicht wird. Die Spiegel Sp1 und Sp2 bilden zusammen mit dem Strahlteiler ST ein Michelson-Interferometer, mit dem ein Interferogramm der Probe aufgenommen wird. Änderungen des Interferogramms können bei Bestrahlung in situ verfolgt werden. Verwendet wird eine Röntgenröhre des Modells Comet MXR-160/22. Hierbei handelt es sich um eine Gleichspannungsröhre mit Wolfram-Anode und Beryllium-Austrittsfenster. Die gesamte Anlage kann mit Beschleunigungsspannungen von 40 bis 150 kV bei einem Strom bis zu 20 mA betrieben werden. Die Proben mit den Bestrahlungs-Parametern sind in Tab. 2.4 aufgelistet.

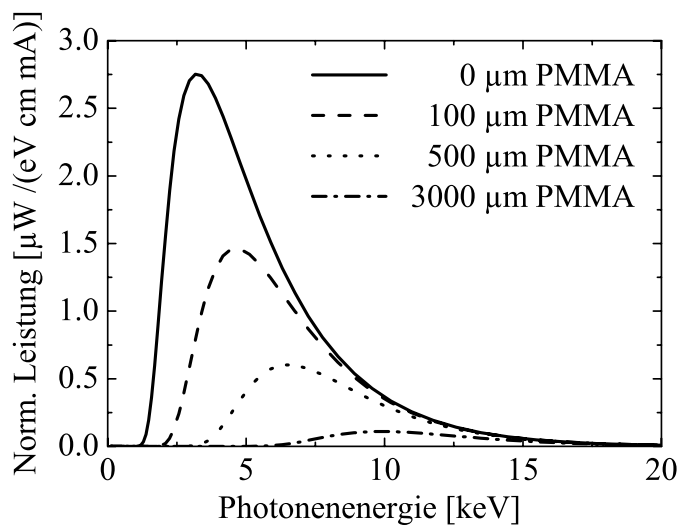


Abbildung 2.17: Mit LITOP 2.0 simulierte Spektren für verschiedene dicke PMMA-Vorfilter. Man kann das Ergebnis auch als Spektrum im PMMA-Volumen bei verschiedenen Eindringtiefen verstehen. Das Intensitätsmaximum verschiebt sich mit zunehmender Eindringtiefe zu höheren Photonenenergien. Niederenergetische Strahlung wird stärker absorbiert.

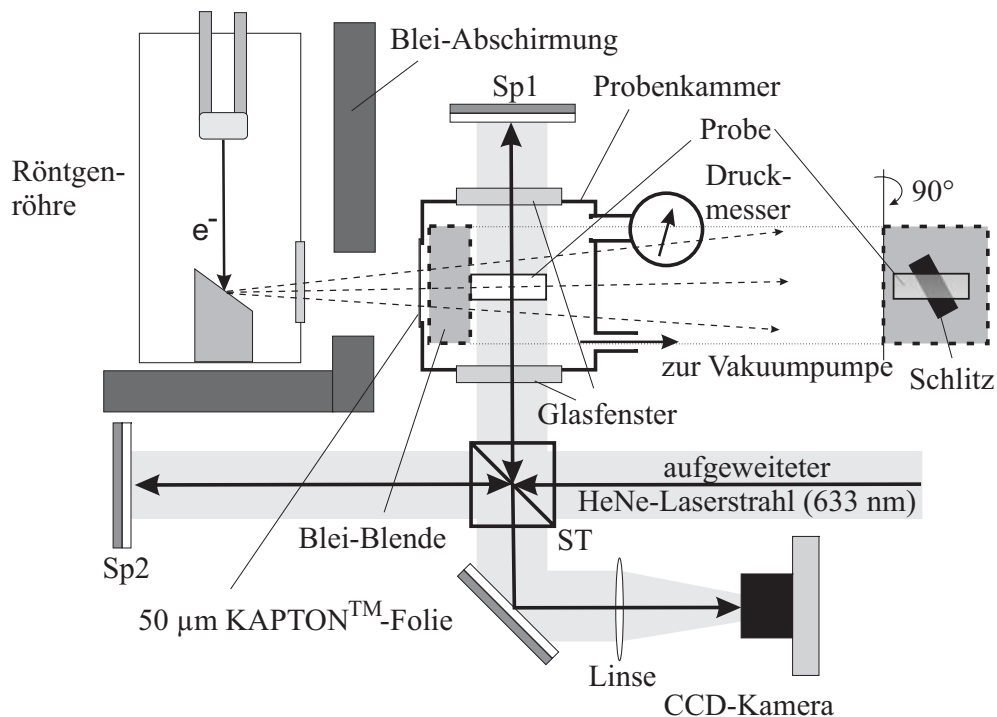


Abbildung 2.18: Aufbau zur In-situ-Beobachtung von Brechungsindexänderungen bei Bestrahlung von PMMA mit Röntgenlicht in unterschiedlichen Atmosphären. Dargestellt ist der Modus für Bestrahlung im Vakuum (2-3 hPa). Der Druckmesser kann durch einen Gasinlass ersetzt werden, wodurch die Bestrahlung in verschiedenen Atmosphären ermöglicht wird. Die Spiegel Sp1 und Sp2 sowie der Strahlteiler ST bilden ein Michelson-Interferometer, mit dem ein Interferogramm der Probe aufgenommen wird.

Der Bestrahlungswert B_x ist hier über die Zeitintegration des Röhrenstroms definiert.

Probe	Atmosphäre	Druck [hPa]	B_X [mAh]
IS1	Vakuum	2-3	334
IS2	Stickstoff	1000	334
IS3	Sauerstoff	1000	334

Tabelle 2.4: *Proben mit Bestrahlungs-Parametern. Der Bestrahlaufwand B_X ist hier über die Zeitintegration des Röhrenstroms definiert. Es werden Proben der Sorte PLEXIGLAS SUNACTIVE[®] GS von Röhm verwendet*

2.2.3 Lagerung der Proben nach Bestrahlung

Um das Zeitverhalten der Brechungsindexänderungen nach der Bestrahlung zu untersuchen, werden Proben bei verschiedenen Temperaturen, Umgebungen und Lichtverhältnissen gelagert. Die Proben TDT1-TDT3 lagern bei Raumtemperatur, an Luft und bei Tageslicht. Die Lagerbedingungen für die Proben ST1-ST7 und BT sind in Tab. 2.5 zusammengestellt.

Probe	Atmosphäre	Temperatur [°C]	Beleuchtung
ST1	Luft	22	dunkel
ST2	N ₂	22	dunkel
ST3	H ₂ O	22	dunkel
ST4	Luft	22	Tageslicht
ST5	Luft	-19	dunkel
ST6	Luft	6	dunkel
ST7	Luft	50	dunkel
BT	Luft	50	dunkel

Tabelle 2.5: *Lagerbedingungen nach Bestrahlung für die Proben ST1-ST7 und BT. Es werden Proben der Sorte PLEXIGLAS[®] GS 233 (alte Charge) von Röhm verwendet.*

2.2.4 Messung von Brechungsindexänderungen

Um die Brechungsindexänderungen $\Delta n(x, y)$ in den Proben mit guter Ortsauflösung messen zu können, wird Interferometrie eingesetzt. Die Phase ϕ einer monochromatischen Lichtwelle der Wellenlänge λ ist durch den zurückgelegten Weg d im Medium mit dem Brechungsindex n gegeben durch

$$\phi = \frac{2\pi}{\lambda} n d \quad . \quad (2.33)$$

Für die interferometrische Messung von reinen Brechungsindexänderungen ergibt sich daher das in Abb. 2.19 schematisch dargestellte Messproblem. Die Phase der einfallenden ebenen Welle wird bei Propagation durch die Probe verändert. Es entsteht eine deformierte Welle, in der die Information über die Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$ mit Phasenänderungen durch Schwankungen der Probendicke $\Delta L(x, y)$ überlagert sind. Hierzu trägt

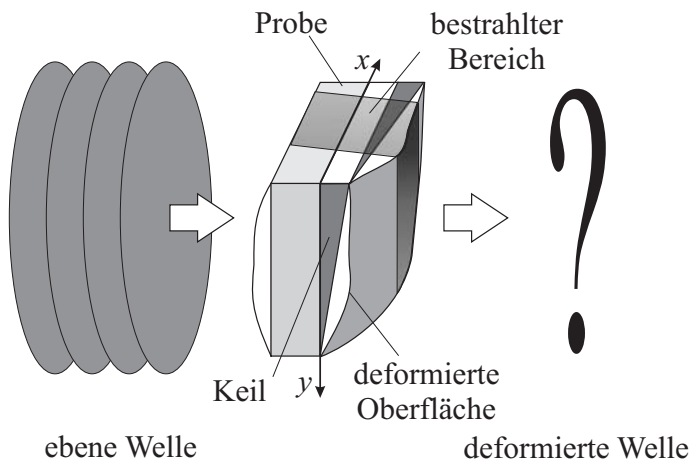


Abbildung 2.19: Darstellung des Messproblems. Die Phase der einfallenden ebenen Welle wird bei Propagation durch die Probe verändert. Es entsteht eine deformierte Phasenfront, in der die Information über die Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$ mit Auswirkungen einer inhomogenen Probendicke überlagert sind.

eine lineare Dickenänderung der Probe durch Keiligkeit $\Delta J(x, y)$ zusammen mit weiteren Oberflächendeformationen $\Delta d(x, y)$ bei:

$$\Delta L(x, y) = \Delta J(x, y) + \Delta d(x, y) \quad . \quad (2.34)$$

Vereinfachend soll nun angenommen werden, dass sich die lokale Phasenänderung $\Delta\phi(x, y)$ als totales Differential aus zwei Beiträgen zusammensetzt:

$$\Delta\phi(x, y) = \frac{\partial\phi}{\partial n}\Delta n(x, y) + \frac{\partial\phi}{\partial L}\Delta L(x, y) = \Delta\phi_n(x, y) + \Delta\phi_L(x, y) \quad . \quad (2.35)$$

In Abb. 2.20 ist schematisch dargestellt, wie sich die beiden Beiträge verstehen lassen. Man

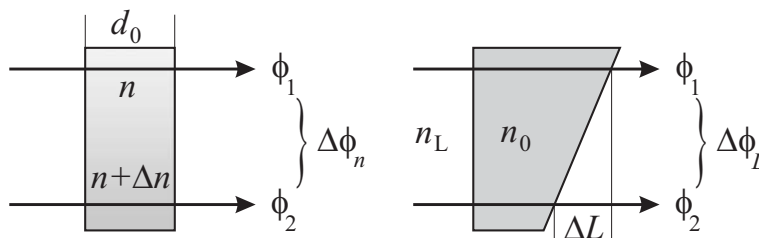


Abbildung 2.20: Die lokale Phasenänderung $\Delta\phi(x, y)$ wird als totales Differential beschrieben. Man erhält die Beiträge $\Delta\phi_n(x, y)$ und $\Delta\phi_L(x, y)$.

erhält die folgenden Ausdrücke:

$$\Delta\phi_n(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} d_0 \Delta n(x, y) \quad , \quad (2.36)$$

$$\Delta\phi_L(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} (n_0 - n_L) \Delta L(x, y) \quad . \quad (2.37)$$

Wie man leicht einsieht, muss man den Brechungsindex n_L des äußeren Mediums, hier Luft, berücksichtigen. Der Brechungsindex $n_0 = 1.49$ ist schon aus dem Abschnitt „Probenpräparation“ bekannt. Für die gesamte lokale Phasenänderung $\Delta\phi(x, y)$ folgt also:

$$\Delta\phi(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} [d_0 \Delta n(x, y) + (n_0 - n_L) \Delta L(x, y)] \quad . \quad (2.38)$$

Durch Umstellen erhält man schließlich:

$$\Delta n(x, y) = \frac{\lambda}{2\pi} \Delta\phi(x, y) - \frac{(n_0 - n_L)}{d_0} \Delta L(x, y) \quad . \quad (2.39)$$

Man misst also die Gesamtphasenänderung $\Delta\phi(x, y)$ und die Gesamtdickenänderung $\Delta L(x, y)$ und errechnet daraus $\Delta n(x, y)$. Der für diese Arbeit verwendete Aufbau besitzt hierfür drei Konfigurationen, die mit geringem Aufwand eingerichtet werden können, ohne die Probe zu bewegen:

Transmissions-Modus

Abbildung 2.21 zeigt den Aufbau, wie er zur Messung von $\Delta\phi(x, y)$ verwendet wird. Das

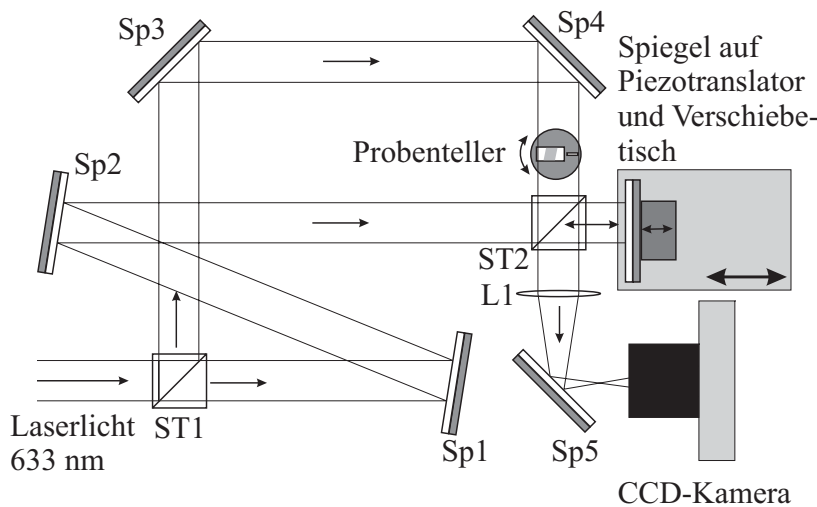


Abbildung 2.21: *Interferometrischer Aufbau zur Messung der Gesamtphasenänderung $\Delta\phi(x, y)$ (Symbole: Erläuterung im Text).*

aufgeweitete Licht eines HeNe-Lasers ($\lambda = 633 \text{ nm}$) tritt am Strahlteiler ST1 in das Interferometer ein. Im Referenzarm läuft das Licht dann über die Spiegel Sp1 und Sp2, durch den Strahlteiler ST2 auf einen piezoelektrisch verstellbaren phasenschiebenden Spiegel und zurück durch ST2 und die Linse L1 über Sp5 ins Objektiv einer monochromen CCD-Kamera mit 1280×1024 Pixeln und 8 Bit Intensitätsauflösung, welche sowohl mit Videorate als auch im Einzelbildmodus von einem Rechner ausgelesen werden kann. Die Signalwelle läuft von ST1 über Sp3 und Sp4 anschließend teilweise durch die Probe und teilweise durch eine fest auf den Probenteller geklebte planparallele Referenzplatte (Abb. 2.22). Das von ST2 transmittierte Licht tritt durch L1 und fällt schließlich über Sp5 und das Objektiv der Kamera auf den CCD-Chip, wo es mit der Referenzwelle interferiert. Die Linse L1 und das Objektiv sind so eingestellt, dass die am nächsten zur Kamera gelegene Probenoberfläche auf dem CCD-Chip scharf abgebildet wird. Ein CCD-Pixel entspricht dabei einer Probenfläche von $18.6 \times 18.6 \mu\text{m}^2$. Die durch Mehrfachreflexionen in der Probe auftretenden Reflexe sind bei Proben mit kleinem Brechungsindex kein Problem, da sie viel lichtschwächer als das transmittierte Licht sind. Sollten sie stören, kann man sie gefahrlos durch leichtes Verkippen der Probe aus dem Raumwinkelbereich der CCD-Kamera entfernen. Die transmittierte Welle erfährt hierdurch nur eine zu vernachlässigende Versetzung. Der Probenteller kann über zwei Schrittmotoren vertikal und horizontal mit der Winkelauflösung 1.6×10^{-3} Grad

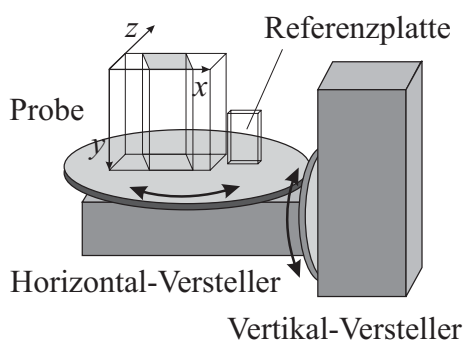


Abbildung 2.22: Skizze des verwendeten Probestellers, welcher über zwei Schrittmotoren vertikal und horizontal mit der Winkelauflösung 1.6×10^{-3} Grad verkippt werden kann. Neben der Probe befindet sich eine fest aufgeklebte planparallele Referenzplatte.

verkippt werden. Für eine Messung wird der piezoelektrisch verstellbare Spiegel nun schrittweise verfahren. Dadurch wird die Phase der Referenzwelle gegenüber der der Signalwelle um den Phasenwinkel θ verschoben. Pro Schritt wird ein Interferogramm mit der Intensitätsverteilung $I_i(x, y, (i-1) \times \theta)$ aufgenommen. Man benötigt drei dieser Bilder: I_1 , I_2 und I_3 und erhält das folgende Gleichungssystem:

$$\begin{aligned} I_1 &= a + b \cos(\Delta\phi); \\ I_2 &= a + b \cos(\Delta\phi + \theta); \\ I_3 &= a + b \cos(\Delta\phi + 2\theta). \end{aligned} \quad (2.40)$$

Hierbei ist a die Hintergrundintensität und b die Amplitude der Interferenzstreifen. Hieraus folgt für $\Delta\phi$:

$$\Delta\phi = \arctan \left\{ \frac{(I_3 - I_1)[\cos(\theta - 1)] - (I_2 - I_1)[\cos(2\theta - 1)]}{\sin \theta(I_3 - I_1) - \sin 2\theta(I_2 - I_1)} \right\}. \quad (2.41)$$

Der Arkustangens nimmt nur Werte im Intervall $-\pi/2$ bis $+\pi/2$ an. Dadurch treten im Phasenbild Unstetigkeiten auf. Für eine Verstetigung stehen verschiedene Algorithmen zur Verfügung. Ein simples Verfahren führt hier meistens nicht zum Ziel, da dann zwischen tatsächlichen Phasensprüngen und einzelnen Residuen (Schmutz oder Kratzer auf der Probenoberfläche) nicht unterschieden werden kann und verrauschte Daten Probleme bereiten. Es stellt sich heraus, dass das Verstetigen von Phasenbildern, das sog. „Unwrapping“, eine anspruchsvolle Aufgabe ist [63]. Auf eine nähere Ausführung dieses Themas wird hier verzichtet, da dies den Rahmen dieser Arbeit sprengen würde. Die Berechnung nach Gl. 2.41 sowie die Verstetigung mit einem sehr ausgefeilten Algorithmus kann mit dem Programm FRAN [64,65] durchgeführt werden. Es wurde von T. R. Judge für MS Windows geschrieben und ist im Internet frei verfügbar. Abbildung 2.23 zeigt beispielhaft ein Interferogramm sowie die zugehörigen unverstetigten und verstetigten Phasenbilder. Um Fehler des Interferometer-Aufbaus auszugleichen, wird die gleiche Messung wie oben ohne Probe durchgeführt. Das Phasenbild dieser „Nullmessung“ wird von dem Phasenbild der Messung mit Probe subtrahiert.

Bestimmung der Keiligkeit

Der horizontale und der vertikale Keilwinkel einer Probe werden mit dem in Abb. 2.24

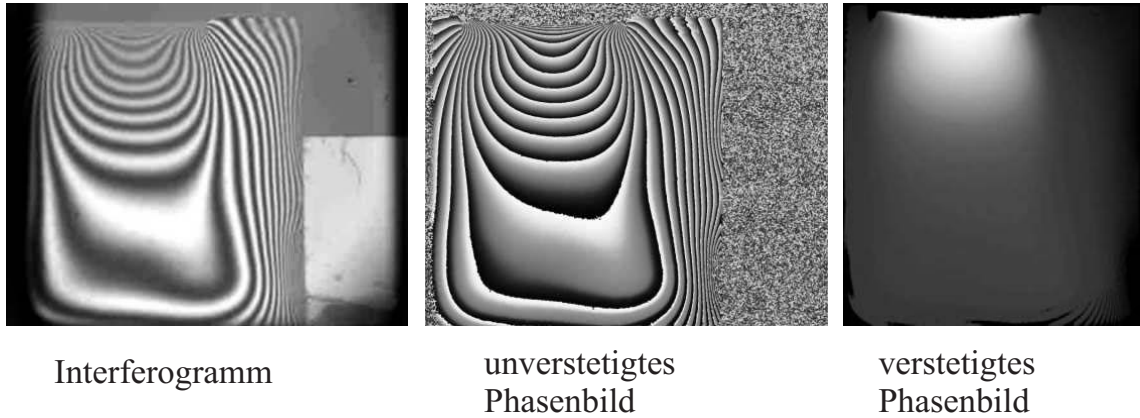


Abbildung 2.23: Beispiele für ein Interferogramm und zugehörige unverstetigte und verstetigte Phasenbilder.

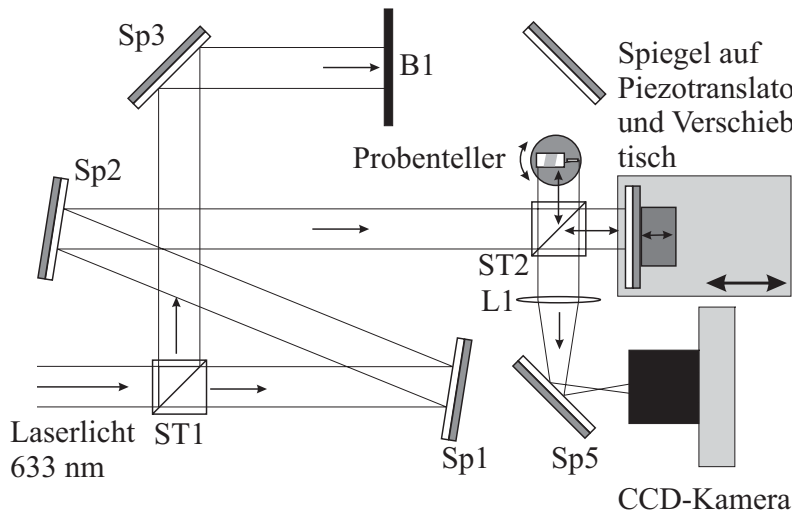


Abbildung 2.24: Interferometrischer Aufbau zur Messung der Keilwinkel einer Probe (Symbole: Erläuterung im Text).

dargestellten Aufbau gemessen. Der vorher als Signalarm benutzte Teil des Interferometers wird durch den Verschluss B1 deaktiviert. Man erkennt, dass nun Probenoberfläche und ST2 den Signalarm und der Spiegel auf dem Piezotranslator mit ST2 den Referenzarm eines Michelson-Interferometers bilden. Zunächst wird die Probenoberfläche so eingestellt, dass die reflektierte Welle so parallel wie möglich zur einfallenden Welle verläuft. Im Interferogramm ist dies dadurch zu erkennen, dass die Anzahl der Streifen minimal wird. Nun verkippt man den Probenteller sowohl vertikal als auch horizontal, bis das Interferogramm der Oberfläche der Referenzplatte keine Streifen mehr aufweist und protokolliert die dafür benötigten Drehwinkel. Wiederholt man diese Prozedur für die andere Probenoberfläche, was erst nach einer horizontalen 180°-Drehung des Probentellers möglich ist, erhält man die vollständige Information über die Keiligkeit der Probe. Hieraus lässt sich nun die Ebene $J(x, y)$ berechnen.

Messung der Oberflächendeformationen

Für die Messung der Oberflächendeformationen wird der in Abb. 2.25 dargestellte Aufbau

verwendet. Anstelle des Lasers wird eine herkömmliche Leuchtdiode (LED) ($\lambda_{\text{LED}} \simeq 650 \text{ nm}$)

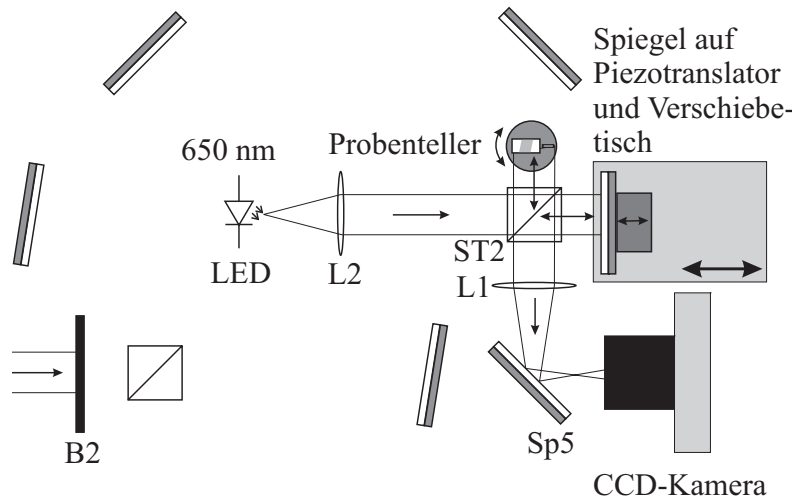


Abbildung 2.25: Interferometrischer Aufbau zur Messung der Oberflächen deformationen einer Probe (Symbole: Erläuterung im Text).

verwendet. Die Linse L2 dient der Kollimation des Lichts. Wieder bilden Probenoberfläche und ST2 den Signalarm und Piezo-Spiegel und ST2 den Referenzarm eines Michelson-Interferometers. Die geringe zeitliche Kohärenz erfordert, dass der Weglängenunterschied zwischen Referenz- und Signalarm kleiner als $15 \mu\text{m}$ sein muss, damit Interferenz beobachtet werden kann. Der Weglängenabgleich wird durch den Verschiebetisch ermöglicht, auf dem der Piezo-Spiegel montiert ist. Aufgrund der kurzen Kohärenzlänge treten nun im Interferogramm keine störenden Überlagerungen von Rückseitenreflexen und auch keine für Laserstrahlung typischen „Speckles“ mehr auf. Für die Messung wird wie oben die Phase der Referenzwelle variiert und aus drei Interferogrammen ein Phasenbild $\Delta\varphi_d$ berechnet. Aus diesem folgt für die Oberflächen deformation:

$$\Delta d_1 = \frac{\Delta\varphi_d \lambda_{\text{LED}}}{4\pi} \quad . \quad (2.42)$$

Nach einer horizontalen 180° -Drehung des Probentellers erhält man in gleicher Weise die Oberflächen deformation Δd_2 der anderen Probenoberfläche. Für die gesamte Dickenmodulation durch Oberflächen deformation gilt:

$$\Delta d = \Delta d_1 + \Delta d_2 \quad . \quad (2.43)$$

Bestimmung der strahlungsinduzierten Brechungsindexänderung

Gleichung (2.39) liefert die Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$ nach Einsetzen der Gesamtphasenänderung $\Delta\phi(x, y)$ und der Gesamtdickenänderung $\Delta L(x, y)$. Um nun von relativen zu absoluten Werten zu kommen, definiert man die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung:

$$\Delta n_X(y) = \Delta n(x_1, y) - \Delta n(x_2, y) \quad , \quad (2.44)$$

wobei x_1 aus dem bestrahlten und x_2 aus dem unbestrahlten Bereich gewählt wird.

Fehlerbetrachtung

Für die Eindringtiefe y ergibt sich aufgrund der Kantenrauigkeit (die Proben werden mit einer Kreissäge aus großen Platten herausgeschnitten) eine Ungenauigkeit von typischerweise $\delta y \simeq \pm 100 \mu\text{m}$. In den Fehler $\delta\Delta n$ gehen besonders Dicke und Brechungsindex der Proben ein. Der Fehler wird vor allem dann groß, wenn dünne Proben mit großem Brechungsindex untersucht werden. Erfreulich gering ist dabei der Einfluss des Phasenwinkelfehlers $\delta\theta$, welcher durch ungleichmäßige Ausdehnung des Piezotranslators bis zu 20° betragen kann. Dies bewirkt jedoch nur kleine Werte für $\delta\Delta\phi$ und $\delta\Delta\varphi_d$ von etwa ± 0.5 . Durch Abweichungen (z. B. Drift des Interferometers) zwischen der Transmissions- und der Nullmessung können sich weitere, zufällige Fehler für $\Delta\phi$ ergeben. Vergleicht man verschiedene Positionen auf der Probe, so erhöht sich der Fehler mit der Distanz dieser Positionen. Setzt man typische Werte für die durchgeführten Messungen ein, so bekommt man für PMMA einen Fehler von $\delta\Delta n_X \simeq \pm 2 \times 10^{-5}$. Für LiNbO_3 , welches im Kapitel „ LiNbO_3 “ auch interferometrisch untersucht wird, liegt ein ähnlich definierter Wert schon bei $\delta\Delta n_P \simeq \pm 1.2 \times 10^{-4}$, da diese Proben deutlich dünner sind und zusätzlich einen höheren Brechungsindex aufweisen. Allerdings wirkt sich hier die kleinere Distanz der verwendeten Vergleichspositionen mildernd auf den Fehler aus.

2.2.5 Messung der Verbreiterung des bestrahlten Bereichs

Um eine mögliche Verbreiterung in x -Richtung der durch die Bestrahlung hervorgerufenen Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$ zu messen, wird die Probe BT in den in Abb. 2.21 skizzierten Aufbau gestellt. Da der Winkel ζ bei der Bestrahlung in diesem Fall so gut wie möglich auf Null gesetzt wurde, treten im Interferogramm an den Grenzen zum bestrahlten Bereich Unstetigkeiten auf. Es wird nur ein Interferogramm aufgenommen, und die Unstetigkeiten werden lokalisiert. Dieses Verfahren wird vor und nach der Temperatur-Behandlung (Tab. 2.5) durchgeführt.

2.2.6 Messung von Wellenleitung

Um die wellenleitenden Eigenschaften der in PMMA durch Bestrahlung hervorgerufenen Brechungsindex-Strukturen nachzuweisen, werden zwei experimentelle Aufbauten verwendet. Die Probe WL10 wird in dem in Abb. 2.26 skizzierten Aufbau untersucht. Hierbei wird

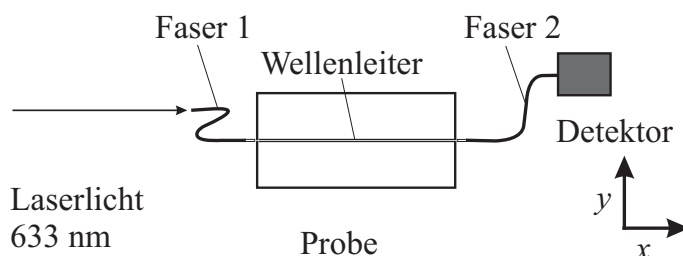
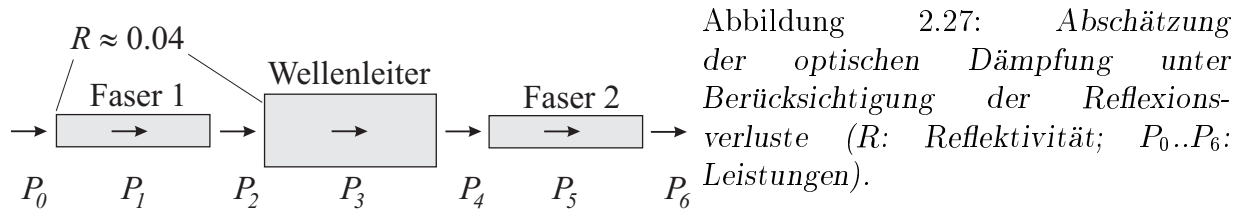


Abbildung 2.26: Aufbau zur Untersuchung von Wellenleitung.

zunächst das Licht eines HeNe-Lasers ($\lambda = 633 \text{ nm}$) in eine Glasfaser (Faser 1) eingekoppelt. Das am anderen Ende der Faser 1 austretende Licht wird in den Wellenleiter der Probe eingekoppelt. Am Austrittsbereich des Probenwellenleiters befindet sich Faser 2. In diese wird das

austretende Licht wieder eingekoppelt. Eine Fotodiode am Ende der Faser 2 misst die Lichtleistung P_6 . An allen Kopplungspunkten treten Verluste auf, welche es zu minimieren gilt. Ist die Lichtleistung P_0 direkt hinter dem Laser bekannt, kann man unter Berücksichtigung der Reflexionsverluste eine obere Grenze für die optische Dämpfung im Wellenleiter angeben. Abbildung 2.27 veranschaulicht die Abschätzung. Für einen Reflexionskoeffizienten von



$R = 0.04$ für die Faserenden sowie für den Ein- und Austritt beim PMMA gilt:

$$P_6 = 0.96^6 P_0 \simeq 0.78 P_0 \quad . \quad (2.45)$$

Für die optische Dämpfung Q in dB gilt damit:

$$Q = 10 \log_{10} \frac{0.78 P_0}{P_6} \quad . \quad (2.46)$$

Um die Einmodigkeit der in den Proben SMTP1-SMTP5 eingeschriebenen Wellenleiter zu überprüfen, wird der in Abb. 2.28 skizzierte Aufbau verwendet. Hier wird das Laserlicht mit einem Mikroskop-Objektiv in den ausgewählten Wellenleiter eingekoppelt. Der hintere Teil der Anordnung dient der Abbildung der Intensitätsverteilung in der (y, z) -Ebene auf den CCD-Chip der Kamera. Bei einem einmodigen Wellenleiter erwartet man einen einzelnen

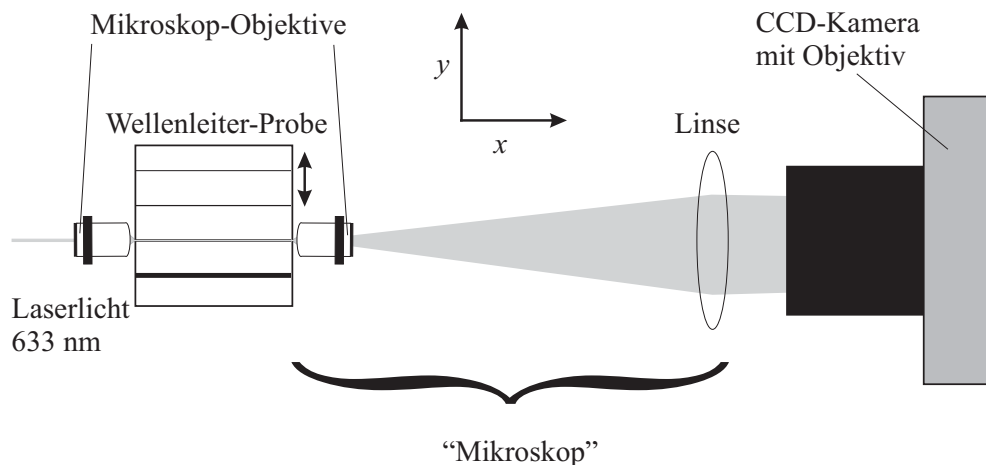


Abbildung 2.28: Aufbau zur Messung der Intensitätsverteilung in der (y, z) -Ebene am Austrittsbereich von Probenwellenleitern.

Fleck, während sich mit größeren Modenzahlen zunehmend komplexe Muster ausbilden.

2.3 Resultate

In diesem Abschnitt werden die Ergebnisse der Untersuchungen zur Strahlungseinwirkung auf PMMA präsentiert. Zunächst werden augenscheinliche Veränderungen, dann die strahlungsinduzierten Brechungsindex- und Dickenänderungen vorgestellt. Deren zeitliche Entwicklung ist Gegenstand des daran anschließenden Abschnitts. In PMMA geschriebene Wellenleiter werden im letzten Abschnitt präsentiert.

2.3.1 Veränderungen im äußeren Erscheinungsbild

Wird PMMA mit Synchrotronlicht bestrahlt, treten Änderungen im äußeren Erscheinungsbild auf. Abbildung 2.29 zeigt eine typische Probe. Zu erkennen sind eine Gelbfärbung a) und Schäden an der bestrahlten Oberfläche b).

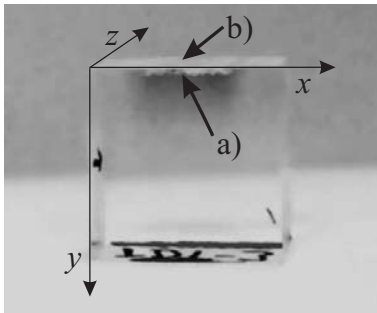


Abbildung 2.29: *Typisches Erscheinungsbild einer mit Synchrotronlicht bestrahlten PMMA-Probe. Zu erkennen ist eine Gelbfärbung a) und Schäden an der bestrahlten Oberfläche b).*

und Schäden an der bestrahlten Oberfläche b). Die Gelbfärbung geht auf eine Absorptionsänderung $\Delta\alpha = \alpha_2 - \alpha_1$ zurück, wobei α_2 im bestrahlten Bereich und α_1 im unbestrahlten Bereich gemessen wird. Für verschiedene Eindringtiefen y ist $\Delta\alpha$ in Abb. 2.30 über der Wellenlänge λ aufgetragen. Die Daten stammen aus Messungen mit einem CARY500-Spektrometer. Eine Lagerung bei 80 °C für 90 Stunden ist ausreichend, um die Gelbfärbung

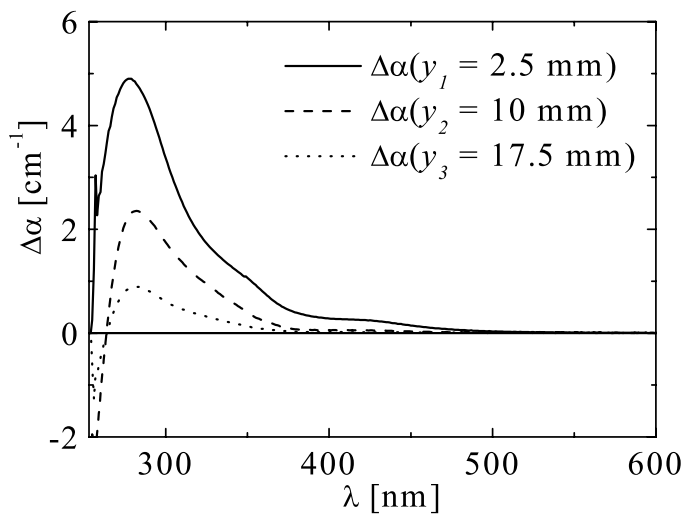


Abbildung 2.30: *Absorptionsänderung $\Delta\alpha$ von PMMA durch Bestrahlung mit Synchrotronlicht für verschiedene Eindringtiefen y über der Wellenlänge λ .*

komplett verschwinden zu lassen. Gleiches erreicht man durch kurze Erwärmung über ca. 110 °C.

Die Oberflächenschäden sind in Abb. 2.31 vergrößert dargestellt. Riss- und Blasenbildung bis in etwa 1 mm Tiefe.

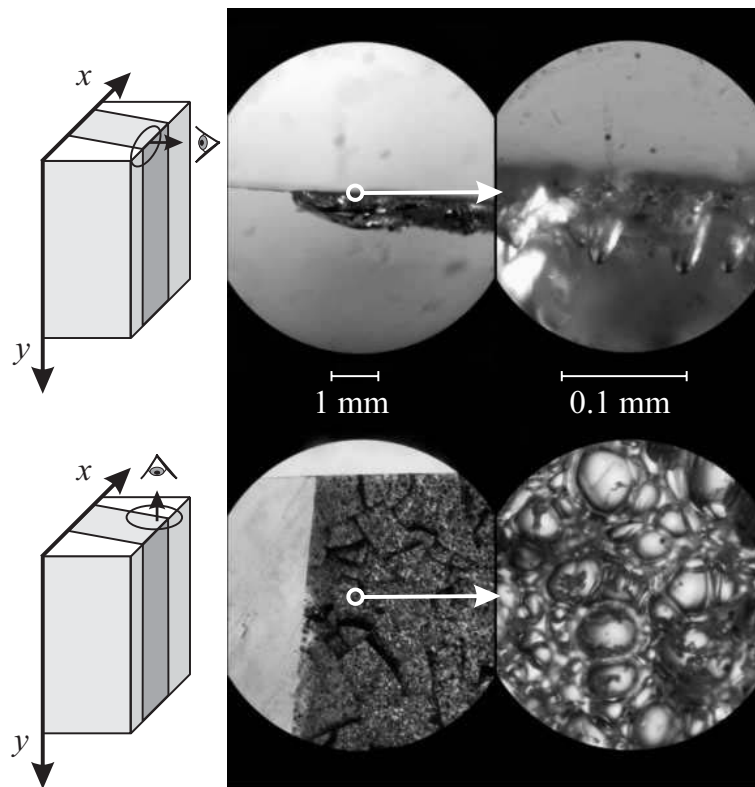


Abbildung 2.31: Mikroskopaufnahmen mit Synchrotronlicht bestrahlter PMMA-Proben. Man erkennt sowohl Riss- als auch Blasenbildung bis in etwa 1 mm Tiefe.

in etwa 1 mm Tiefe sind deutlich erkennbar. Der Grad der Schädigung ist dabei abhängig vom Bestrahlungswert B sowie von den verwendeten Vorfiltern. Für die in Abb. 2.31 dargestellte Probe wurden lediglich 12,5 μm dicke KAPTONTM-Folie als Filter verwendet. Die typischen Temperaturen der Proben bei Bestrahlung liegen dabei selten höher als 30 °C (Abb. 2.32). Verwendet man eine 50 μm dicke KAPTONTM-Folie und zusätzlich eine 1 mm dicke PMMA-Platte als Vorfilter, treten selbst beim dreifachen Bestrahlungswert keine Oberflächenschäden an der Probe auf. Allerdings ist der PMMA-Vorfilter nur einmal zu gebrauchen und muss danach ersetzt werden (Abb. 2.33).

2.3.2 Aufbau und räumliche Verteilung der Brechungsindex- und Dickenänderung

Abbildung 2.34 zeigt die Oberflächenverformung $\Delta d_1(x, y)$ der Vorderseite und die Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$ der Probe AT3 nach Bestrahlung mit Synchrotronlicht (Tab. 2.2). Eine Dickenvergrößerung um ca. 1 μm und eine Brechungsindexverringerung um ca. 3×10^{-4} im Bereich $x = 9..16$ mm und $y = 0..8$ mm sind deutlich zu erkennen. In Abb. 2.35 sind die x -Profile der Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$, der Vorder- und Rückseitendeformation $\Delta d_1(x, y)$ und $\Delta d_2(x, y)$ und der gesamten Dickenmodulation durch Oberflächenverformung, $\Delta d(x, y)$, mit $y = 2.8$ mm (gestrichelte Linien in Abb. 2.34)

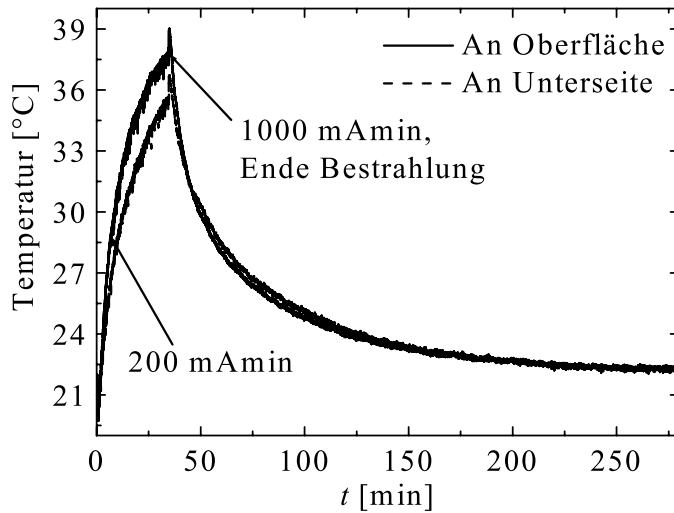


Abbildung 2.32: Zeitlicher Verlauf der Temperatur an der Oberfläche und Unterseite der Probe TT (Tab. 2.2, Abb. 2.12) bei Bestrahlung ($B = 1000 \text{ mAmin}$) und anschließendem Abkühlvorgang.

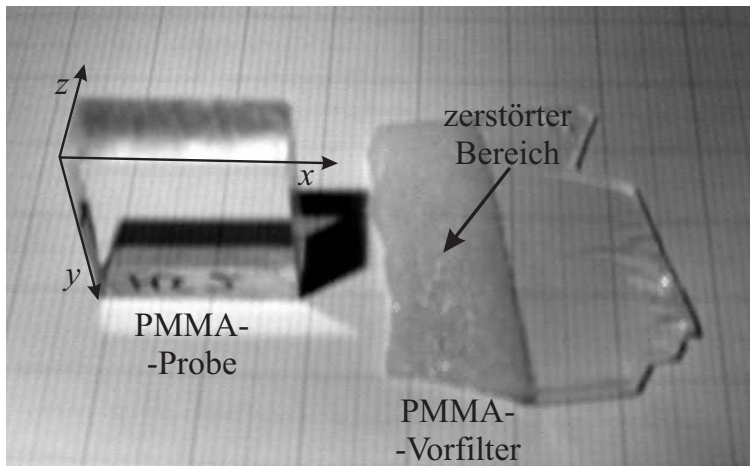


Abbildung 2.33: Mit Synchrotronlicht bestrahlte PMMA-Probe mit dem Teil eines PMMA-Vorfilters. Selbst bei Bestrahlungswerten von 1600 mAmin treten an der Probe keine Oberflächenschäden auf. Allerdings ist der Vorfilter nur einmal zu gebrauchen.

aufgetragen. Die Flanken im trapezförmigen Verlauf der Brechungsindexmodulation fallen räumlich zusammen mit den durch Verkipfung künstlich verbreiterten Übergängen zwischen bestrahltem und unbestrahltem Gebiet. Auch die Asymmetrie der Vorder- und Rückseitendeformationen steht im Zusammenhang mit der Verkipfung. Die gesamte Dickenmodulation durch Oberflächendeformation (Vorderseite + Rückseite) ist wieder symmetrisch. Außerdem fällt auf, dass die Brechungsindexmodulation einen kantigen Verlauf aufweist, während die Oberflächendeformationen stark abgerundet sind.

Die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ nach Gl. (2.44) und die analog definierte strahlungsinduzierte Dickenänderung $\Delta d_x(y)$ der Proben TCT1-TCT5 für verschiedene Bestrahlungswerte B ist in Abb. 2.36 aufgetragen. Der Brechungsindex wird durch die Bestrahlung im Volumen um einige 10^{-4} verringert, während er zur bestrahlten Oberfläche hin steil ansteigt. Im hinteren Teil der Probe nähert sich die Brechungsindexänderung quasi asymptotisch von unten der Null. Das Profil wird mit zunehmendem B breiter und tiefer, die Lage des Minimums wandert dabei ins Volumen. Die strahlungsinduzierte Dickenänderung bildet im Bereich des Brechungsindexminimums ihr Maximum von einigen Mikrometern aus.

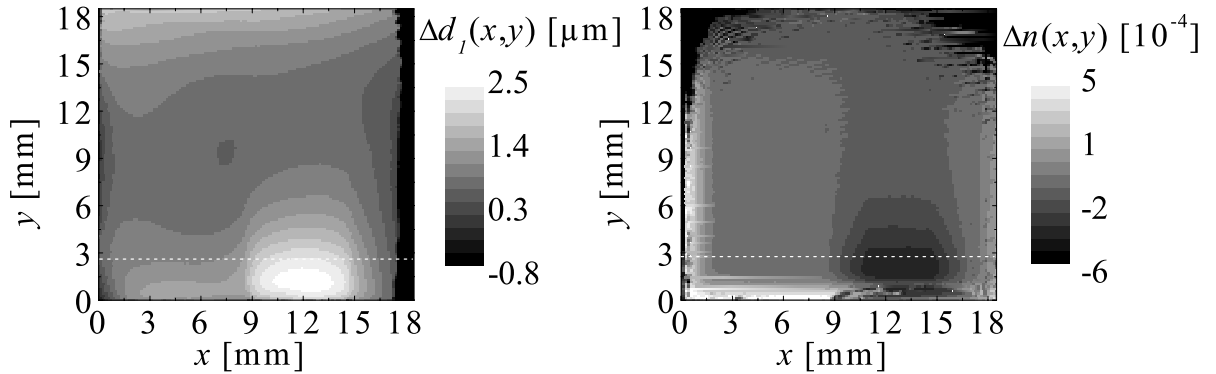


Abbildung 2.34: Oberflächenverformung $\Delta d_1(x, y)$ der Vorderseite und die Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$ der Probe AT3 nach Bestrahlung mit Synchrotronlicht (Tab. 2.2). Die gestrichelten Linien markieren die Positionen der Profile in Abb. 2.35.

Das Profil der Dickenänderung verläuft dabei analog zu dem der Brechungsindexänderung. Nur bei der Probe TCT5 zeigt sich zwischen $y = 0..3$ mm eine Abweichung vom sonst typischen Verlauf. Hier ist kein ausgeprägtes Maximum feststellbar. Dieses Verhalten ist typisch, wenn hohe Bestrahlungswerte verwendet werden. In Abb. 2.37 wird dies deutlich. Die Probe SA4 zeigt den für niedrige Bestrahlungswerte B typischen Verlauf, SA5 und SA6 den für hohe B . Bei welchem Bestrahlungswert dieser Wechsel stattfindet, ist dabei von der verwendeten Probensorte abhängig. Auch die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_X(y)$ fällt für verschiedene Sorten leicht anders aus (Abb. 2.38). Man sieht, dass sogar bei Proben der gleichen Sorte Unterschiede zwischen alten und neuen Chargen auftreten. Zwischen den Sorten PLEXIGLAS[®] GS 233 und PLEXIGLAS SUNACTIVE[®] GS ändert sich sogar die Form des $\Delta n_X(y)$ -Profils. Allerdings sei hier festgestellt, dass die Proben der Sorte SUNACTIVE[®] GS auch um 2 mm dünner sind, als die anderen Proben, was ggf. zu berücksichtigen ist.

Bei den bisher gezeigten Graphen ist aufgefallen, dass die Profile nicht bei $y \simeq 0$ mm anfangen. Dies ist auf die mit dem Bestrahlungswert B zunehmende Zerstörung der bestrahlten Oberfläche zurückzuführen. Diese Problematik ist in Abb. 2.39 für SUNACTIVE[®] GS dargestellt. Wie schon beschrieben lässt sich die Oberflächenzerstörung durch Verwendung eines zusätzlichen 1 mm dicken PMMA-Vorfilters verhindern. Dadurch ist es möglich, bei deutlich höheren Bestrahlungswerten Werte für kleinere y zu erhalten. Ebenfalls für SUNACTIVE[®] GS, allerdings mit PMMA-Vorfilter, sind die Ergebnisse in Abb. 2.40 für deutlich höhere B gezeigt. Das positive Δn_X bei kleinen y ist nun ohne Probleme messbar und evident. Dass man immer noch keine Werte für $y \simeq 0$ mm erhält, liegt an der starken seitlichen Oberflächenverformung, wie in Abb. 2.37 für SA5 und SA6 ersichtlich, und letztendlich an den relativ rauen Kanten zwischen der bestrahlten (x, z) -Fläche und den (x, y) -Seitenflächen.

Die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_X(y)$ ist mit der berechneten Dosis-

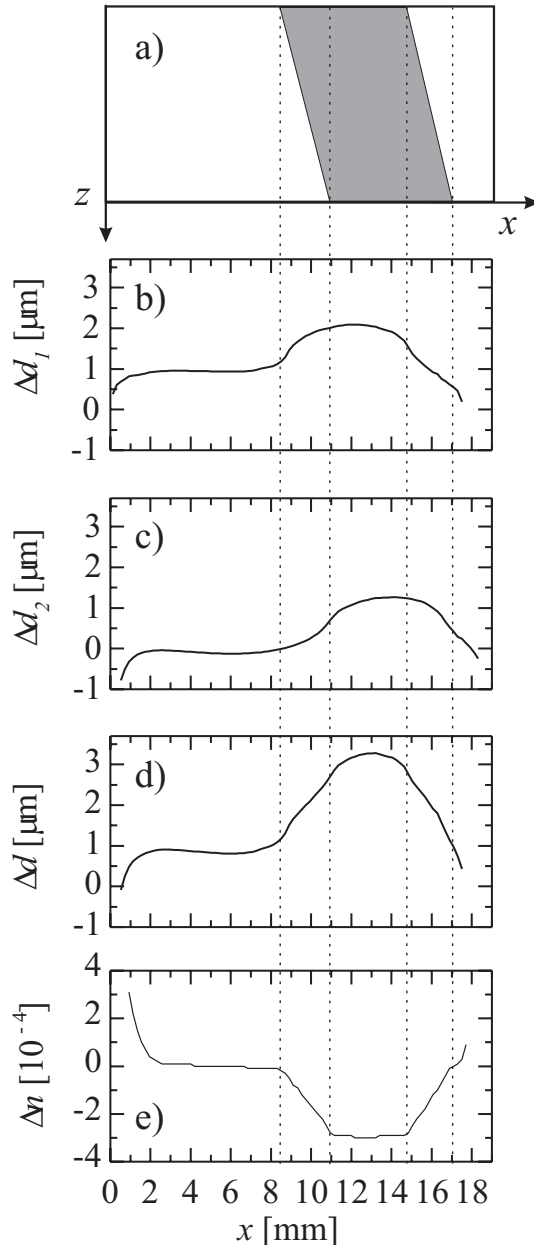


Abbildung 2.35: Profile der Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$, der Vorder- und Rückseitendeformation $\Delta d_1(x, y)$ und $\Delta d_2(x, y)$ und der gesamten Dickenmodulation durch Oberflächendeformation, $\Delta d(x, y)$, mit $y = 2.8$ mm. a) Probenskizze mit bestrahltem Bereich (grau). b) Oberflächenprofil der Vorderseite. c) Oberflächenprofil der Rückseite. d) Profil der gesamten Dickenmodulation durch Oberflächendeformation (Vorderseite + Rückseite). e) Brechungsindexprofil.

ablagerung $D(y)$ über die Eindringtiefe y der Synchrotronstrahlung verknüpft. Somit lässt sich ein Zusammenhang herstellen, und man erhält $\Delta n_x(D)$. Abbildung 2.41 zeigt dies für ausgewählte Proben der Sorte PLEXIGLAS SUNACTIVE[®] GS, welche mit verschiedenen Bestrahlungswänden und Vorfiltern bestrahlt werden. Die gleichen Dosen werden bei verschiedenen Proben daher jeweils in unterschiedlichen Tiefen y appliziert. Dennoch ist ein übereinstimmender Verlauf zu erkennen. Abweichungen von diesem Verlauf treten nur dann auf, wenn die Dosis bei Proben, die ohne PMMA-Vorfilter bestrahlt werden, in der Nähe der bestrahlten Oberfläche erreicht wird. Um den Einfluss der Oberfläche genauer zu untersuchen, wird die halb segmentierte Probe LS1 derart mit 200 mAmin bestrahlt, dass 4 Bereiche entstehen:

1. durchgängig unbestrahlt

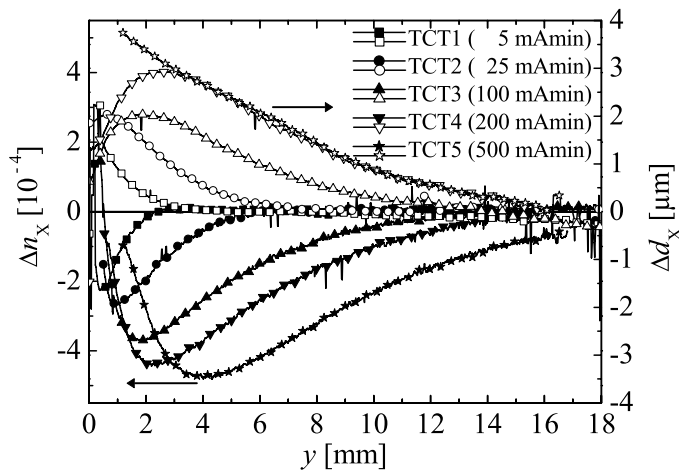


Abbildung 2.36: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ nach Gl. (2.44) und analog definierte strahlungsinduzierte Dickenänderung $\Delta d_x(y)$ der Proben TCT1-TCT5 für verschiedene Bestrahlungswerte B und sonst gleiche Bestrahlparameter.

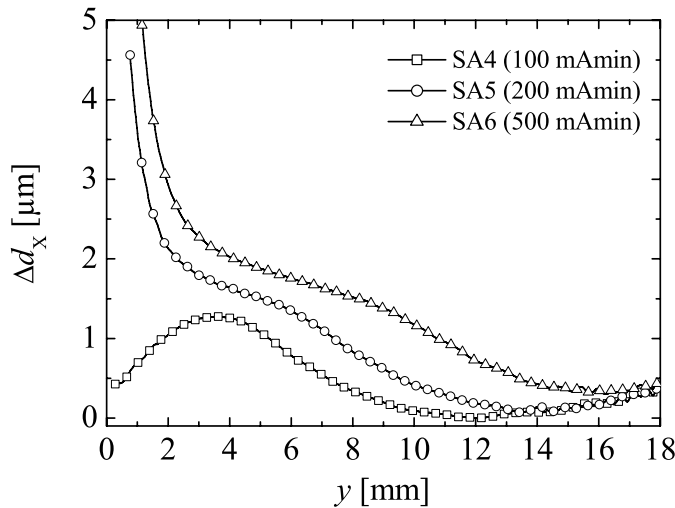


Abbildung 2.37: Strahlungsinduzierte Dickenänderung $\Delta d_x(y)$ der Proben SA4-SA6 für verschiedene Bestrahlungswerte B und sonst gleiche Bestrahlparameter. SA4 zeigt den für niedrige B typischen Verlauf, SA5 und SA6 den für hohe B .

2. durchgängig bestrahlt
3. segmentiert bestrahlt
4. segmentiert unbestrahlt

In den durchgängigen und segmentierten Bereichen wird jeweils wie üblich $\Delta n_x(y)$ bestimmt. Das Resultat sowie die zugehörige Probenskizze zeigt Abb. 2.42. Man erkennt, dass die künstlich herbeigeführten Oberflächen einen Anstieg des Brechungsindex bewirken, welcher fast 1 mm in das Volumen des Materials reicht. Um diesen Einfluss auch an den (x,y)-Seitenflächen zu überprüfen, werden die Proben AG1 mit $B = 400$ mAmin und AG2 mit $B = 800$ mAmin in der Geometrie, wie sie in Abb. 2.11 dargestellt ist, bestrahlt. Analog zu Gl. (2.44) wird $\Delta n_x(z)$ bestimmt. In Abb. 2.43 sind die Ergebnisse dargestellt. Wie man sieht, gibt es auch hier einen Anstieg des Brechungsindex zu den Seitenflächen. Die

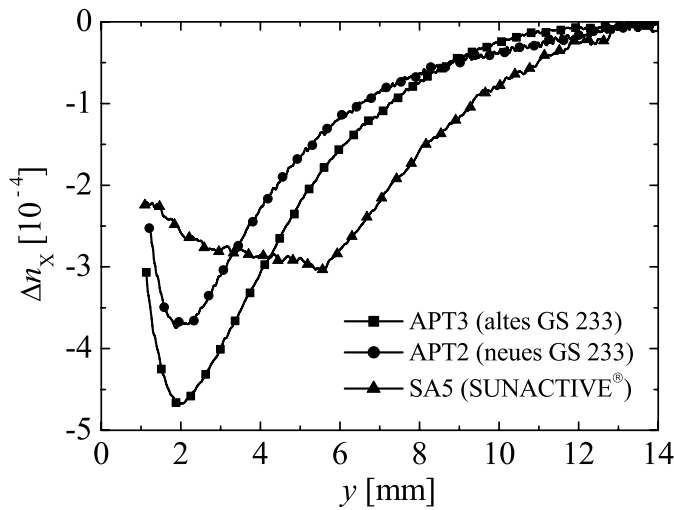


Abbildung 2.38: Abhängigkeit der strahlungsinduzierten Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ von der Probensorte bei sonst gleichen Bestrahlparametern.

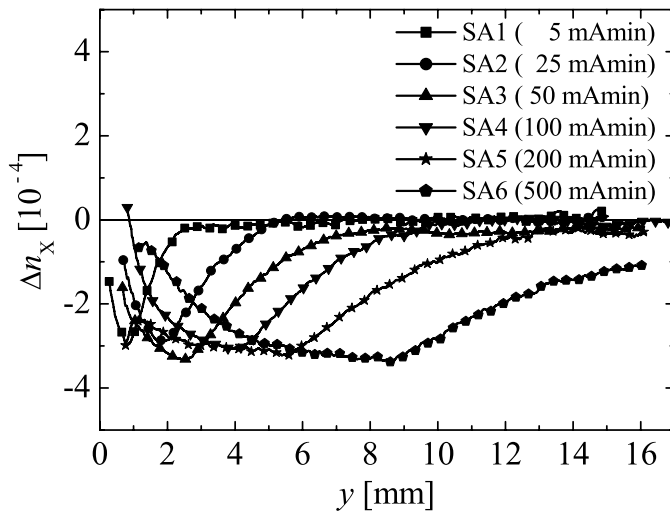


Abbildung 2.39: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ der Proben SA1-SA6 für verschiedene Bestrahlungsdosen B (und sonst gleiche Bestrahlparameter).

Randbereiche sind wegen zu starker Oberflächen deformation nicht charakterisierbar. Die Proben sind bei der Bestrahlung auf der links dargestellten Seite mit Doppelklebeband am Probenhalter befestigt. Eine der (x, y) -Flächen grenzt also nicht direkt an das Vakuum in der Bestrahlungsapparatur. Des weiteren ist eine zusätzliche, äußerst kleine Verkippung um die x -Achse (Abb. 2.11) nicht ganz auszuschließen. Relativ zur Probenmitte, entlang der z -Achse, sind Asymmetrien erkennbar.

Vernachlässigbare Einflüsse auf die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung

Die Intensität der Synchrotronstrahlung, wie sie sich im Rahmen der Möglichkeiten an ELSA variieren lässt, hat keinen Einfluss auf die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung

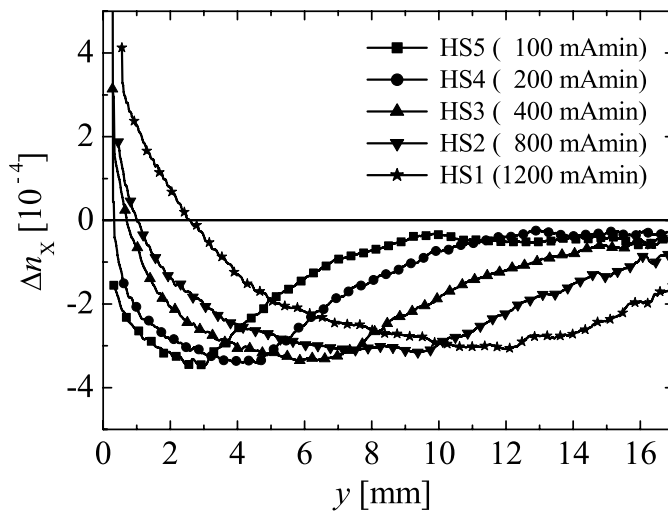


Abbildung 2.40: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ der Proben HS1-HS5 für verschiedene Bestrahlungswände B (und sonst gleiche Bestrahlparameter) bei Verwendung eines zusätzlichen 1 mm dicken PMMA-Vorfilters.

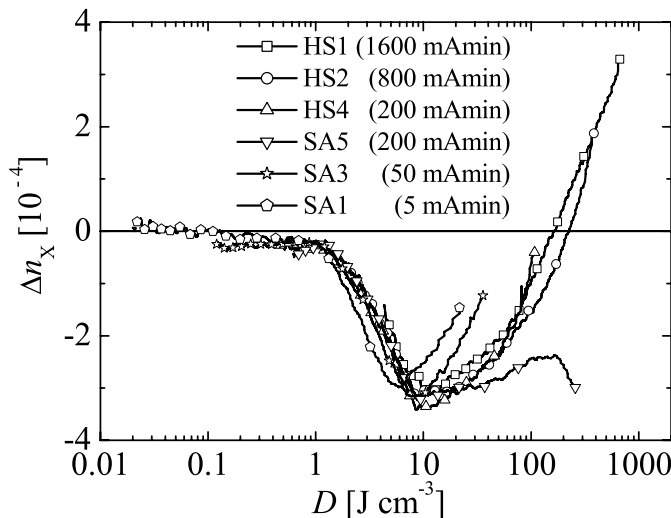


Abbildung 2.41: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung Δn_x über der berechneten Dosis D für ausgewählte Proben der Sorte PLEXIGLAS SUNACTIVE® GS, welche mit verschiedenen Bestrahlungswänden und Vorfiltern bestrahlt werden (Tab. 2.2).

$\Delta n_x(y)$ (Abb. 2.44). Eine Variation der bestrahlten Fläche bewirkt ebenfalls keine Änderung von $\Delta n_x(y)$ (Abb. 2.45). Dreht man die Polarisation des Laserlichts im Interferometer, ergeben sich dadurch auch keinerlei Änderungen im gemessenen $\Delta n_x(y)$.

In-situ-Beobachtung von Interferogrammen

Mit dem in Abb. 2.18 skizzierten Aufbau wird die zeitliche Entwicklung des Interferogramms einer PMMA-Probe während der Bestrahlung verfolgt. Die wichtigsten Ereignisse sowie die Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$ einen Tag nach Bestrahlung sind in Abb. 2.46 zusammengestellt. Zunächst ist zu beobachten, dass die Interferenzstreifen vom bestrahlten Bereich aus beim Übergang zum unbestrahlten Bereich nur in eine Richtung umbiegen. Erst nach einem Bestrahlungswand $B_x \simeq 250$ mAmin ist der Übergangsbereich gut erkennbar, wo ein

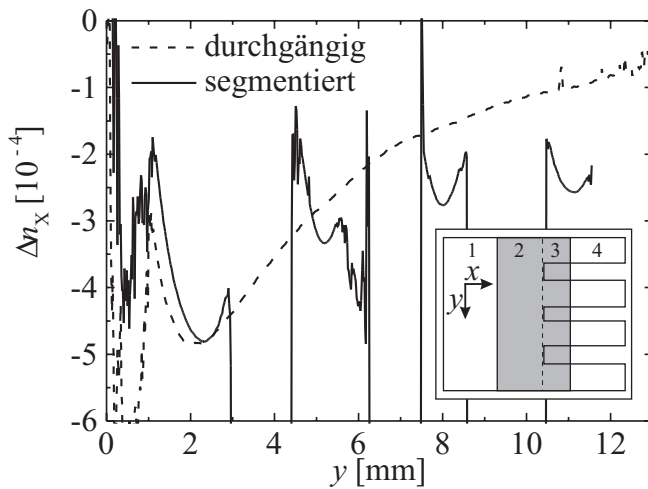


Abbildung 2.42: Untersuchung zum Einfluss von Oberflächen auf die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$. Die halb segmentierte Probe LS1 (Skizze) wird so bestrahlt (grau), dass 4 Bereiche entstehen (siehe Text!). In den durchgängigen und segmentierten Bereichen wird jeweils wie üblich $\Delta n_x(y)$ bestimmt [Gl. (2.44)].

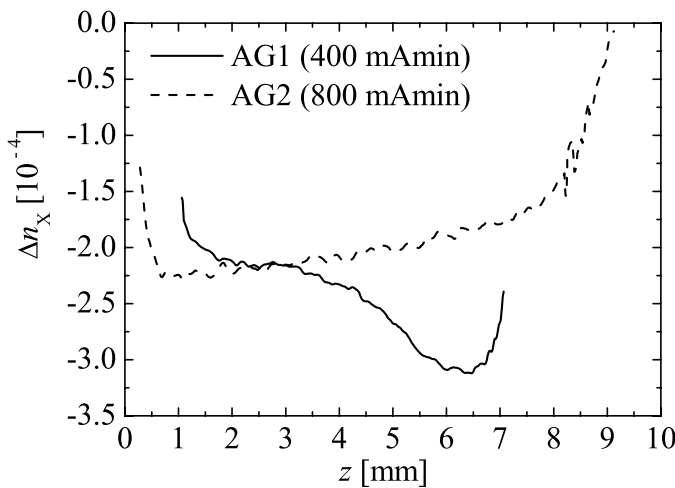


Abbildung 2.43: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(z)$ der Proben AG1 und AG2 in alternativer Bestrahlungsgemetrie (Abb. 2.11).

Richtungswechsel in der Biegerichtung der Interferenzstreifen auftritt. Dieser Bereich wird mit zunehmendem Bestrahlungsaufwand breiter und wandert ins Volumen. Die Messung der Brechungsindexmodulation einen Tag nach Bestrahlung zeigt einen erhöhten Brechungsindex am Eintrittsbereich der Röntgenstrahlung und einen stark verringerten Brechungsindex im Volumen. Das Vakuum wird bis kurz vor der Messung aufrechterhalten. Der Belüftungsvorgang hat (bis auf einen Phasenshift) keinen erkennbaren Einfluss auf das Interferogramm der Probe. Die Bestrahlungen der Proben IS2 und IS3 werden bei Stickstoff- bzw. Sauerstoff-Atmosphäre unter Normaldruck durchgeführt. Das prinzipielle Verhalten ist jedoch identisch mit dem der Probe IS1, und es können keine signifikanten Unterschiede in der Brechungsindexmodulation (ein Tag nach Bestrahlung) festgestellt werden.

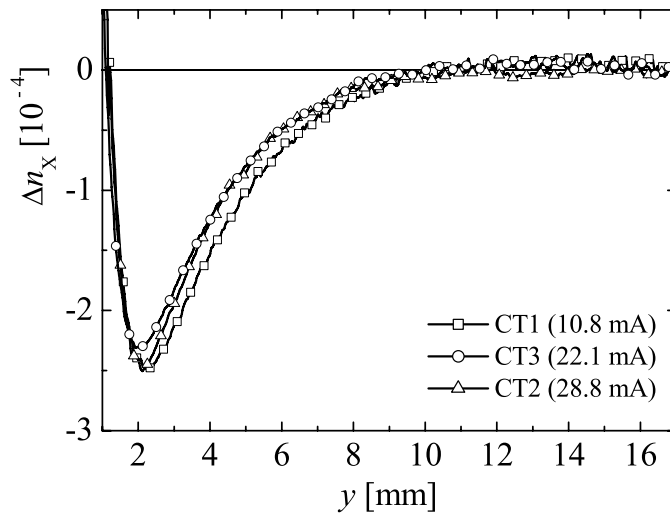


Abbildung 2.44: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ bei verschiedenen Beschleunigerströmen und sonst gleichen Bestrahlparametern.

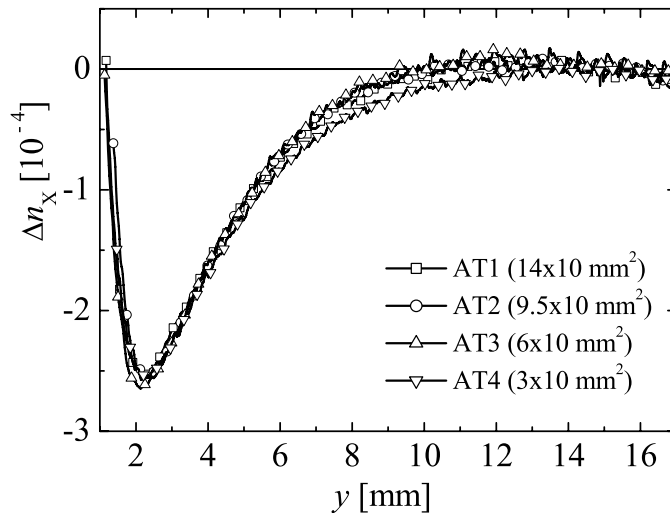


Abbildung 2.45: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ bei verschiedenen großen bestrahlten Flächen und sonst gleichen Bestrahlparametern.

2.3.3 Zeitliche Entwicklung

Die strahlungsinduzierten Brechungsindex- und Dickenänderungen $\Delta n_x(y)$ und $\Delta d_x(y)$ sind nach der Bestrahlung zeitlich nicht stabil. Abbildung 2.47 zeigt $\Delta n_x(y)$ und $\Delta d_x(y)$ der Probe TDT2 zu verschiedenen Zeitpunkten nach der Bestrahlung. Das Minimum im Δn_x -Profil flacht ab, wird breiter und wandert ins Volumen, wodurch sich der Brechungsindex nahe der Oberfläche weiter erhöht. Auch das Δd_x -Profil flacht mit der Zeit ab. Wie beim Δn_x -Profil gibt es auch hier einen Kreuzungspunkt der Linien bei $y \simeq 3.5$ mm. Trägt man die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung Δn_{\min} im Minimum sowie die Position y_{\min} des Minimums über der Zeit nach der Bestrahlung auf, erkennt man, dass es für beide Größen nach einem anfänglich steilen Anstieg einen stabilen Endzustand zu geben scheint (Abb. 2.48). Das zeitliche Verhalten kann sehr gut mit einer exponentiellen Funktion der

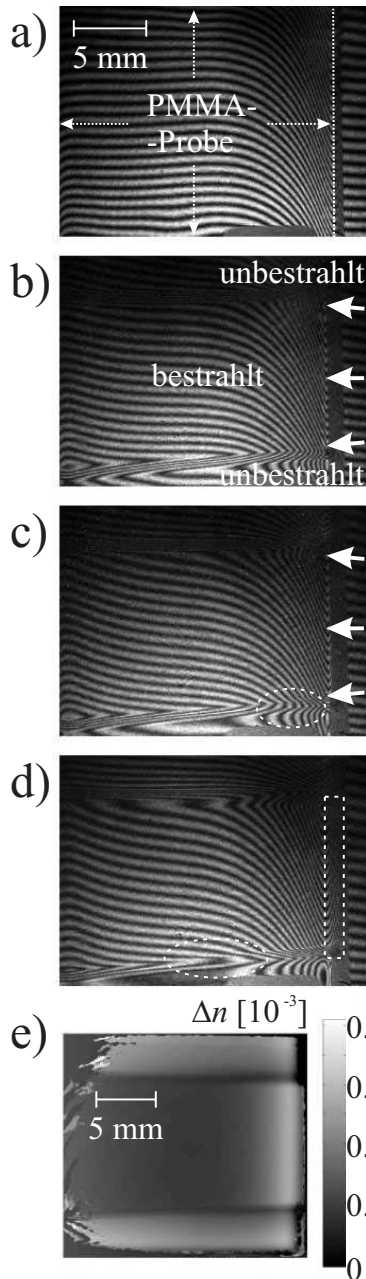


Abbildung 2.46: Interferogramme der PMMA-Probe IS1 vor, während und nach Bestrahlung mit Licht einer Röntgenröhre im Vakuum (2-3 hPa) und Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$ der Probe einen Tag nach Bestrahlung. a) Vor der Bestrahlung; die gestrichelte Linie markiert die rechte Kante der Probe. b) Nach $B_X = 202$ mAh, die Pfeile kennzeichnen die Richtung der Röntgenstrahlung. Der mittlere Teil wird bestrahlt. Zu den oben und unten dargestellten Rändern biegen sich die Interferenzstreifen nach links. c) Nach $B_X = 256$ mAh, Ellipse: hier ist erstmals ein Übergang von links umbiegenden nach rechts umbiegenden Streifen erkennbar. d) Nach $B_X = 334$ mAh, Ellipse: der Übergangsbereich ist breiter geworden und ins Volumen gewandert. Rechteck: Ablenkung der Signalwelle nach rechts, die Probenkante wird unscharf. e) Brechungsindexmodulation $\Delta n(x, y)$ einen Tag nach Bestrahlung in der gleichen Orientierung der Probe.

Form

$$f(t) = f_\infty (1 - e^{-t/\tau}) + c \quad (2.47)$$

beschrieben werden. Die verwendeten Anpassungsparameter sind in Tab. 2.6 aufgelistet.

Einflüsse auf die zeitliche Entwicklung

Es wird eine 51-tägige Lagerung der Proben nach Bestrahlung durchgeführt, um die Einflüsse auf die zeitliche Entwicklung der strahlungsinduzierten Brechungsindex- und Dickenänderungen $\Delta n_X(y)$ und $\Delta d_X(y)$ zu klären. Drei Tage nach Bestrahlung wird die

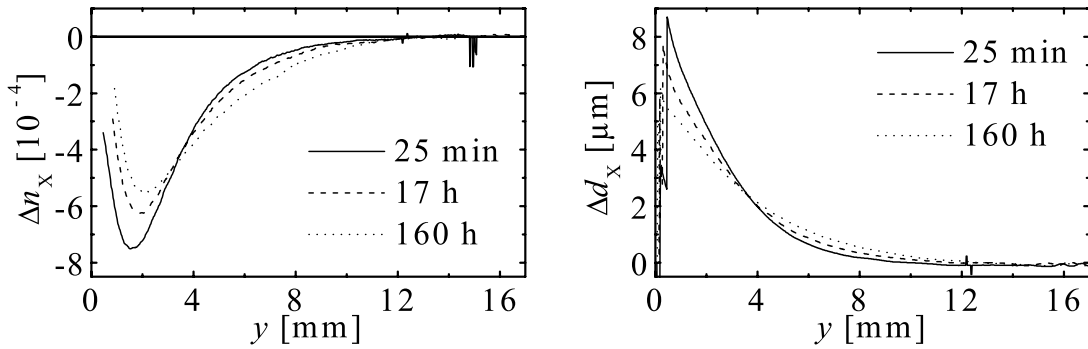


Abbildung 2.47: Strahlungsinduzierte Brechungsindex- und Dickenänderungen $\Delta n_x(y)$ und $\Delta d_x(y)$ der Probe TDT2 zu verschiedenen Zeitpunkten nach der Bestrahlung mit $B = 200 \text{ mAmin}$.

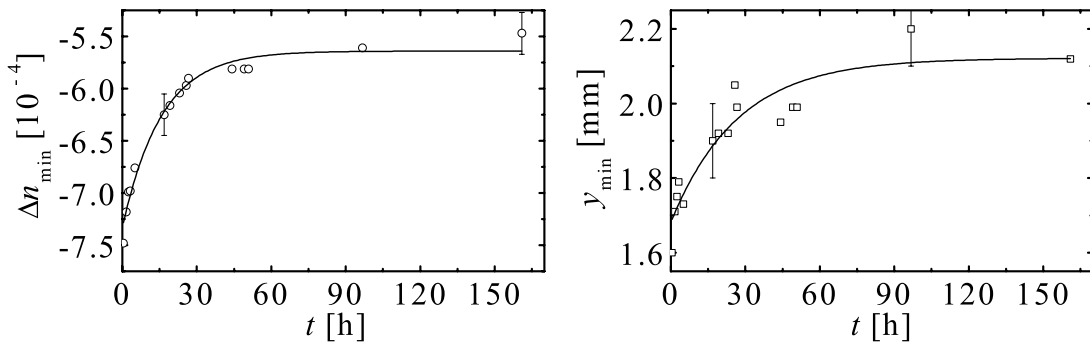


Abbildung 2.48: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung Δn_{\min} im Minimum sowie die Position y_{\min} des Minimums über der Zeit nach der Bestrahlung. Die Symbole sind Messpunkte, die Linien sind exponentielle Anpassungen an die Daten [Gl. (2.47)].

Größe	f_{∞}	δf_{∞}	τ	$\delta \tau$	c	δc
Δn_{\min}	1.69×10^{-4}	$\pm 0.07 \times 10^{-4}$	16 h	$\pm 2 \text{ h}$	-7.34×10^{-4}	$\pm 0.06 \times 10^{-4}$
y_{\min}	$0.44 \mu\text{m}$	$\pm 0.05 \mu\text{m}$	27 h	$\pm 8 \text{ h}$	$1.68 \mu\text{m}$	$\pm 0.03 \mu\text{m}$

Tabelle 2.6: Parameter einer exponentiellen Anpassung [Gl. (2.47)] an die zeitliche Entwicklung von Δn_{\min} und y_{\min} (siehe Text u. Abb. 2.48!).

erste Messung durchgeführt. Dann beginnt die Lagerung. Die zweite Messung erfolgt unmittelbar nach der Lagerung. Die Lagerungsbedingungen sind in Tab. 2.5 zusammengestellt. Zwischen der im Dunkeln (ST1) und der bei Tageslicht (ST4) gelagerten Probe gibt es keinen signifikanten Unterschied. Die Ergebnisse der Lagerung in verschiedenen Atmosphären

sind in Abb. 2.49 zusammengestellt. Wie man sieht, ergibt sich zwischen der an Luft (ST1)

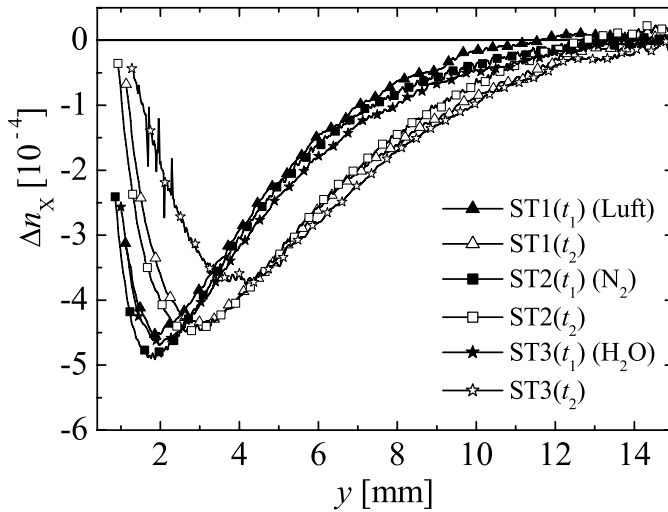


Abbildung 2.49: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_X(y)$ vor (t_1) und nach (t_2) Lagerung in verschiedenen Atmosphären, (ST1-ST3: siehe Tab. 2.5).

und der in Stickstoff (ST2) gelagerten Probe kein signifikanter Unterschied in der zeitlichen Änderung. Demgegenüber hat die im Wasser gelagerte Probe (ST3) einen deutlichen Anstieg des Brechungsindexes bis in $y = 4$ mm Tiefe aufzuweisen. Einen starken Einfluss auf die zeitliche Entwicklung von $\Delta n_X(y)$ hat die Lagerungstemperatur. Dies wird in Abb. 2.50 verdeutlicht. Das Profil der bei -19 °C gelagerten Probe (ST5) ist nach der Lagerung un-

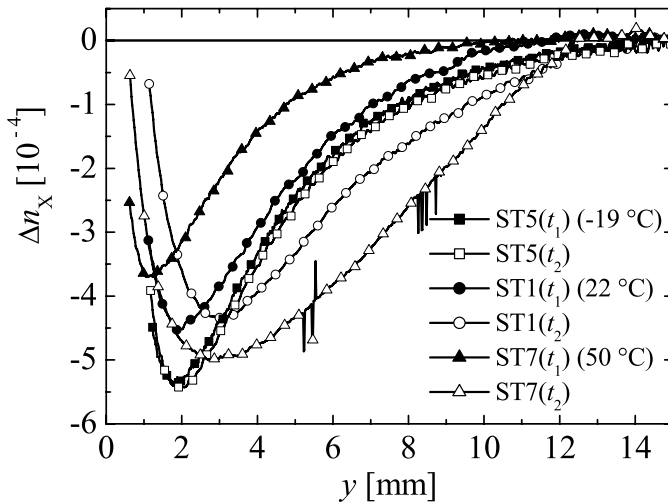


Abbildung 2.50: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_X(y)$ vor (t_1) und nach (t_2) Lagerung bei verschiedenen Temperaturen, (ST1, ST5, ST7: siehe Tab. 2.5).

verändert geblieben. Die bei 22 °C gelagerte Probe (ST1) zeigt das gleiche Verhalten wie Probe TDT2 (s. o.). Eine drastische Veränderung im $\Delta n_X(y)$ ist bei der bei 50 °C gelagerten Probe (ST7) zu erkennen. Das anfänglich eher schwach ausgeprägte Profil entwickelt sich durch die Wärmebehandlung stark weiter. Ferner fällt auf, dass das entwickelte Profil dieser Probe einen Knick bei $y \simeq 12$ mm aufweist. In Abb. 2.51 ist nochmal $\Delta n_X(y)$ zusammen mit der Dickenänderung $\Delta d_X(y)$ der Probe ST7 aufgetragen. Man kann sehr gut

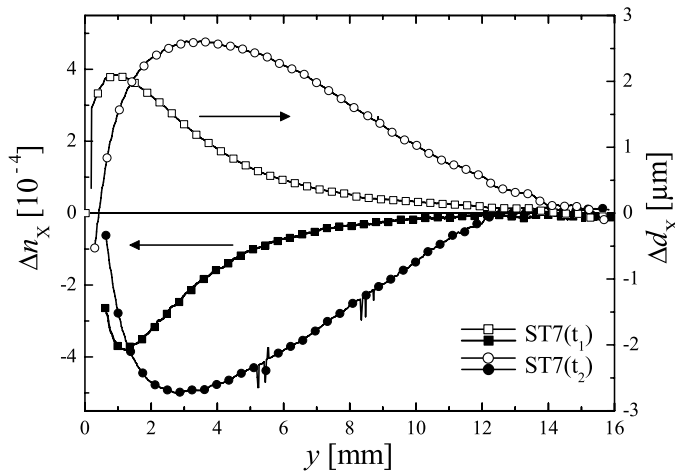


Abbildung 2.51: Strahlungsinduzierte Brechungsindex- und Dickenänderung zu $\Delta n_x(y)$ und $\Delta d_x(y)$ der Probe ST7 vor (t_1) und nach (t_2) Lagerung bei 50°C .

die Korrelation zwischen Brechungsindex- und Dickenänderung erkennen, die auch nach der Lagerung erhalten bleibt. Ob diese Verbreiterung von Δn_x auch in x -Richtung vorliegt, wird über die Messung der Verbreiterung des bestrahlten Bereichs untersucht. Die Unstetigkeiten im Interferogramm der Probe BT1 vor und nach einer 51-tägigen Lagerung bei 50°C sind in Abb. 2.52 über dem Probenort dargestellt. In Abb. 2.53 ist zu erkennen, dass sich

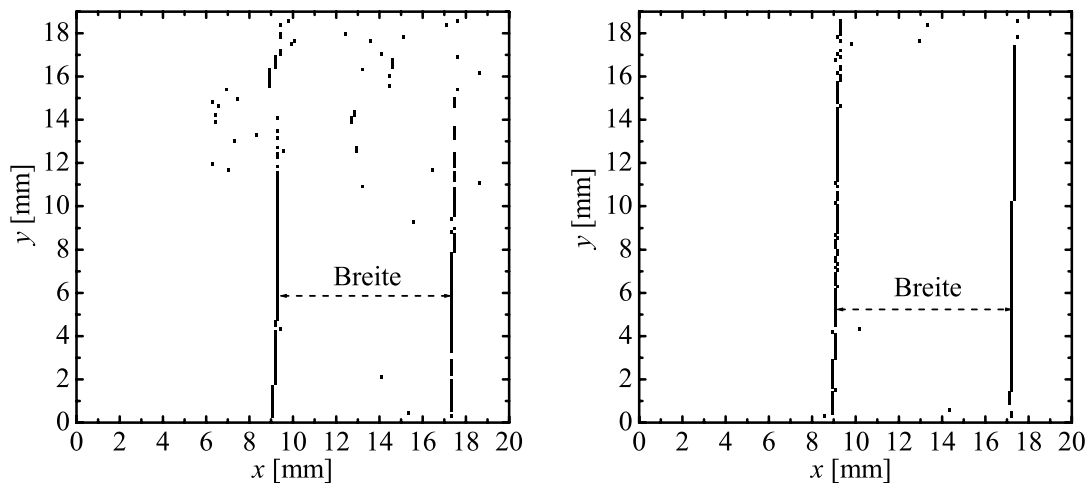


Abbildung 2.52: Unstetigkeiten im Interferogramm der Probe BT1 vor und nach einer 51-tägigen Lagerung bei 50°C über dem Probenort. Links: vor der Lagerung, rechts: nach der Lagerung.

durch die Wärmebehandlung keine messbare Verbreiterung der Brechungsindexänderung in x -Richtung eingestellt hat. Die gesamte Einheit aus Schlitzblende und Probe ist bei der Bestrahlung leicht um die z -Achse gegen die Strahlungsrichtung verkippt. Daraus ergibt sich eine verringerte Breite (effektive Breite) für den bestrahlten Bereich in der Probe.

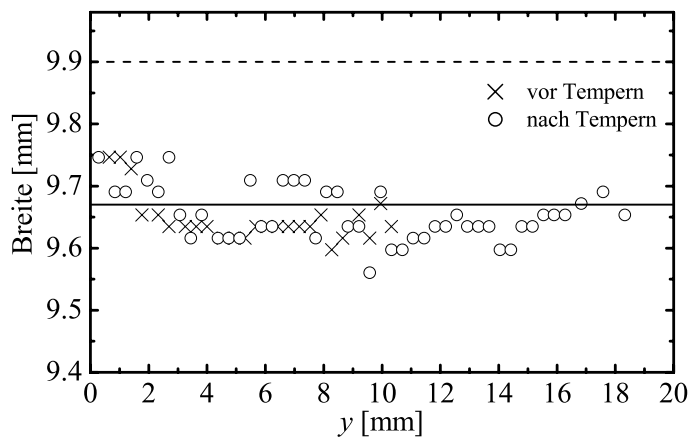


Abbildung 2.53: Breite in x -Richtung des Bereichs mit strahlungsinduzierter Brechungsindexänderung über der Eindringtiefe y vor und nach einer 51-tägigen Lagerung der Probe BT1 bei 50°C . Gestrichelte Linie: Breite der Schlitzblende (siehe Abb. 2.12, b)), durchgezogene Linie: effektive Breite durch Verkipfung (siehe Text).

2.3.4 Wellenleitung

Die Probe WL10 wird mit dem in Abb. 2.26 skizzierten Aufbau untersucht. Es gelingt bis zu 14 % der anfänglichen Lichtleistung durch die gesamte Anordnung zu schicken. Wellenleitung ist also möglich. Mit Gl. (2.46) folgt, dass die optische Dämpfung des Wellenleiters $Q \leq 7.5 \text{ dB}$ ist. Bezogen auf die Länge $x \simeq 4.2 \text{ cm}$ des Wellenleiters ergibt sich $Q/x \leq 1.8 \text{ dB cm}^{-1}$.

Die Proben SMTP1-SMTP5 werden 5 Tage nach ihrer Bestrahlung nacheinander in den in Abb. 2.28 skizzierten Aufbau eingebaut. Durch Verschieben der Proben in y -Richtung werden nacheinander alle Intensitätsverteilungen $I(y, z)$ für jeden Wellenleiter aufgenommen. Die Ergebnisse sind in Abb. 2.54 zusammengefasst. Die Intensität ist hier proportional zur Schwärzung. Die leeren Felder deuten an, dass dort keine Wellenleitung festgestellt werden kann. Die Anzahl der Moden steigt sowohl in y - wie auch in z -Richtung mit der Streifenbreite der Maske und dem Bestrahlaufwand. Die Einmodigkeit in y -Richtung ist dabei viel häufiger erfüllt als die Einmodigkeit in z -Richtung.

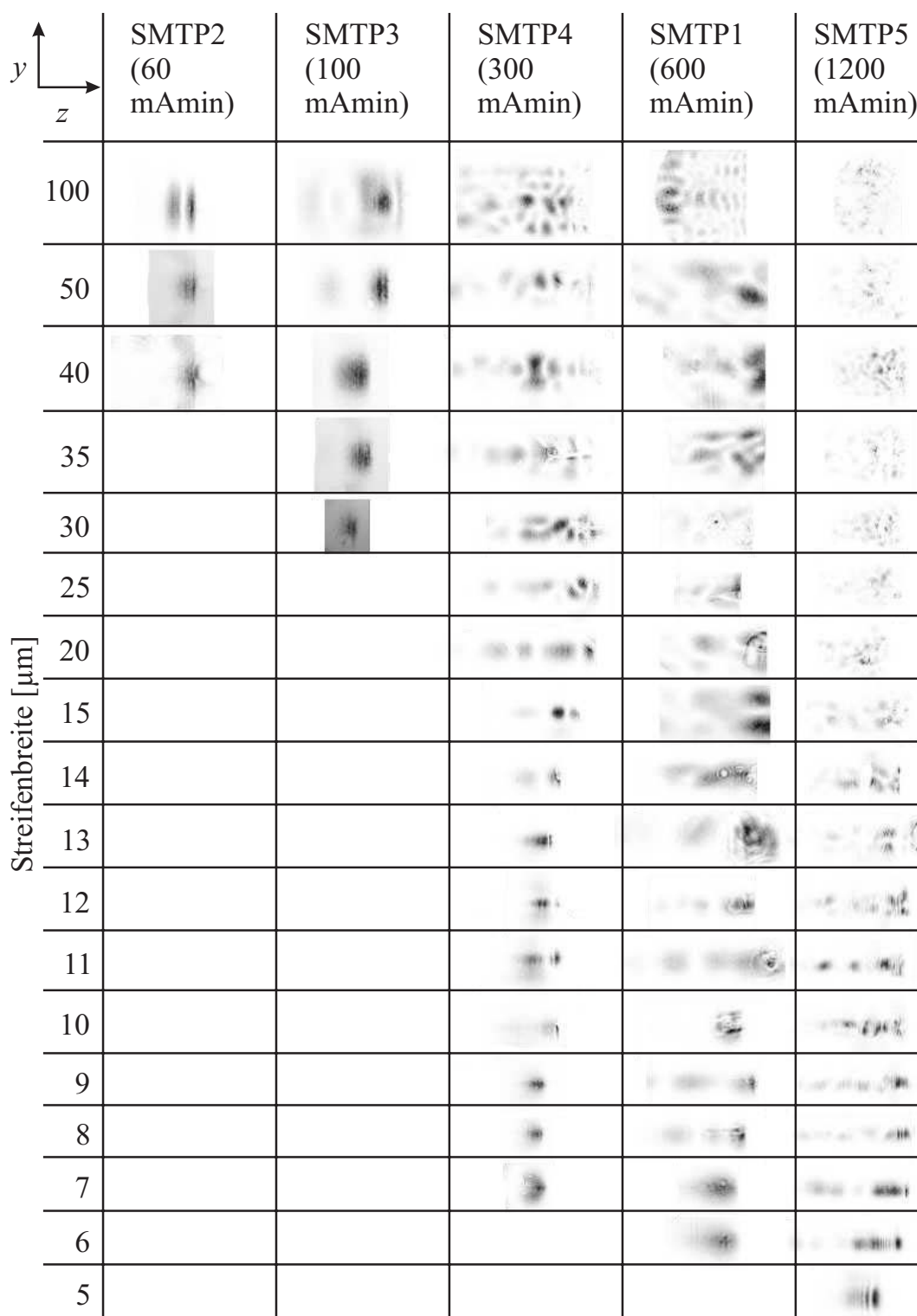


Abbildung 2.54: Intensitätsverteilungen $I(y, z)$ der Wellenleiter-Proben SMTP1-SMTP5 am Austrittsbereich (siehe Abb. 2.28). Die Intensität ist proportional zur Schwärzung. Die Größe der Bilder ist jeweils an die Größe der Felder angepasst. Leere Felder: keine Wellenleitung feststellbar.

2.4 Diskussion

In diesem Kapitel geht es zunächst um einen Vergleich der Messergebnisse mit den Vorhersagen des im Grundlagen-Teil vorgestellten Modells. Anschließend werden die Resultate im Hinblick auf mögliche praktische Anwendungen diskutiert.

2.4.1 Vergleich mit dem Modell

Abbildung 2.55 zeigt die gemessene strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ der Probe ST1 im Vergleich mit den Modellrechnungen Gl. (2.7). In das Modell gehen die

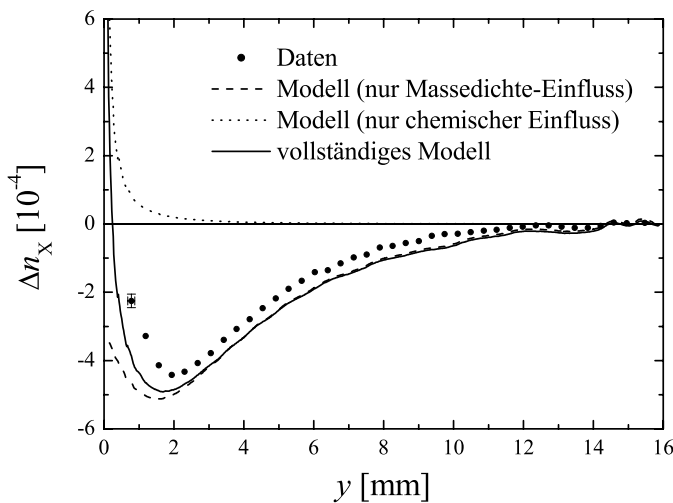


Abbildung 2.55: Gemessene strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ der Probe ST1 im Vergleich mit den Modellrechnungen Gl. (2.7). Gestrichelte Linie: ohne chemischen Einfluss (Dosis $D(y) = 0$). Gepunktete Linie: ohne Dickenänderung ($\Delta d_x(y) = 0$). Durchgezogene Linie: Mit Berücksichtigung des chemischen Einflusses und der Dickenänderung.

gemessene Dickenänderung $\Delta d_x(y)$ und die mit LITOP 2.0 berechnete Dosis $D(y)$ ein. Hier sei nochmal darauf hingewiesen, dass das Modell keine Anpassungsparameter verwendet. Man erkennt, dass der direkte chemische Einfluss, also die Änderung der Polarisierbarkeit der Polymer-Bestandteile, nur positive Brechungsindexänderungen bewirken kann. Die geänderte Massedichte hingegen bewirkt eine Brechungsindexverringerung, deren Form die gemessenen Werte im Volumen wiedergibt. Qualitativ verstehen lässt sich diese Form, wenn man die Dickenvergrößerung auf einen Druck zurückführt, der durch gasförmige Reaktionsprodukte im Volumen entsteht. Dieser ist dann groß, wenn es relativ viel eingeschlossenes Gas in einer noch weitgehend erhaltenen Polymer-Struktur gibt. Erst wenn die Polymer-Ketten durch Degradation soweit zerhackt sind, dass eine Umordnung möglich ist, kann das Material wieder dichter werden. Die Auftragung der Brechungsindexänderung über der Dosis (Abb. 2.41) für verschieden stark bestrahlte Proben und die In-Situ-Experimente mit der Röntgenröhre (Abb. 2.46) belegen, dass diese Prozesse ausschließlich von der absorbierten Dosis und nicht von der Position innerhalb der Probe (mit Ausnahme der Oberflächenregionen) abhängen. Im Bereich $y < 2$ mm reicht die geänderte Massedichte allein nicht aus, um die Daten zu beschreiben. Das vollständige Modell, d. h. die gleichzeitige Berücksichtigung chemischer Änderungen und Dichteänderungen, liefert hier eine bessere Beschreibung. Es fällt allerdings auf, dass fast im gesamten y -Bereich die Vorhersage des

vollständigen Modells unter den Messdaten liegt. Erst ab einer Tiefe von $y = 10$ mm sieht man Übereinstimmung. Dies liegt in erster Linie an einer überhöhten Deformation der seitlichen Probenoberflächen, welche sich in erster Näherung nicht auf die Massedichte im Volumen auswirkt (Abb. 2.56). Es sollen hier zwei Möglichkeiten der Verformung betrachtet

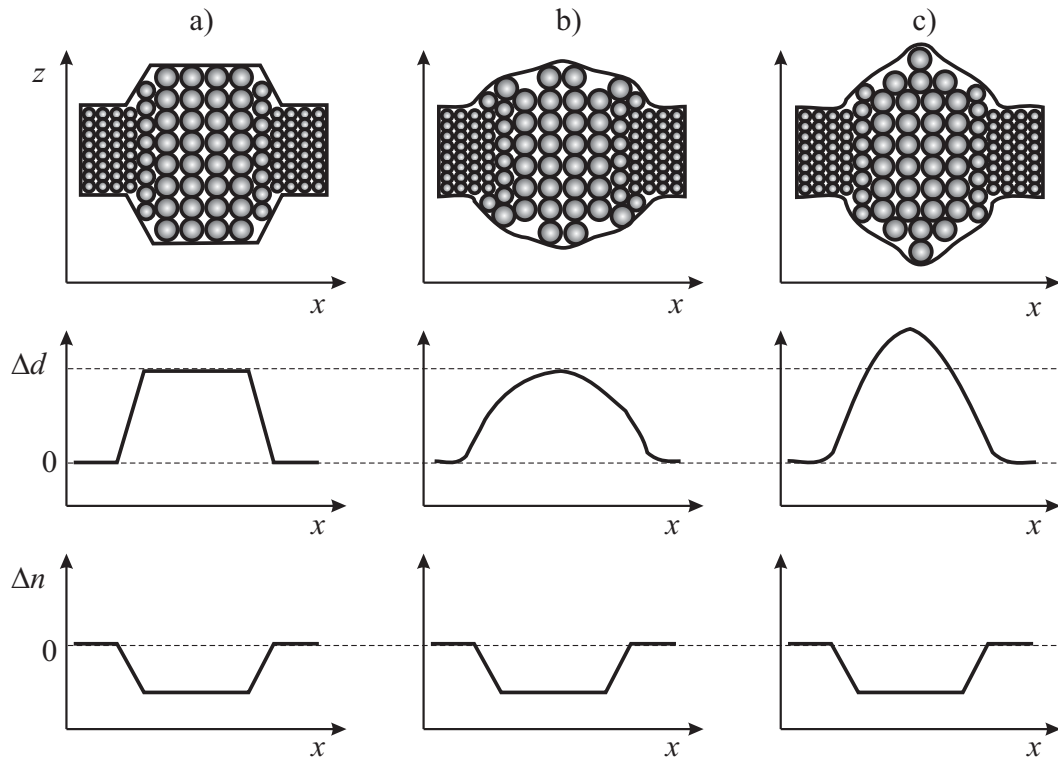


Abbildung 2.56: Strahlungsinduzierte Deformation der seitlichen Probenoberflächen $\Delta d_x(x)$ und resultierendes Brechungsindexprofil $\Delta n_x(x)$. a) Diese Form ist energetisch ungünstig und wird in der Natur nicht realisiert. b) Im Elastizitätsbereich: das Material verteilt sich gleichmäßig c) Die Elastizitätsgrenzen sind überschritten, das Material türmt sich auf.

werden:

1. Elastische (lineare) Verformung: das Material verteilt sich gleichmäßig.
2. Inelastische (nichtlineare) Verformung: das Material türmt sich auf.

Wie in Abb. 2.37 gezeigt, hat man es bei niedrigen Bestrahlungswänden B mit einer elastischen Verformung zu tun, während ab einer gewissen Grenze die inelastische Verformung einsetzt, da der Druck im Material mit der deponierten Dosis zunimmt. Zudem ist denkbar, dass die Elastizität des Materials durch die Strahlung verringert wird, was die Auftürmung noch begünstigen würde. Die Folge ist, dass die interferometrisch ermittelte Dickenänderung Δd_x nicht mehr zur Ermittlung der realen Massedichte im Volumen verwendet werden kann. Eine Modellierung der Brechungsindexänderung ist dann unmöglich. Abbildung 2.57 zeigt dies für die Proben SA1-SA6. Bei den Proben SA1-SA4 ist Übereinstimmung erkennbar, während bei SA5 und SA6 eine korrekte Modellierung nicht gelingt. Um zu überprüfen, ob mit einer

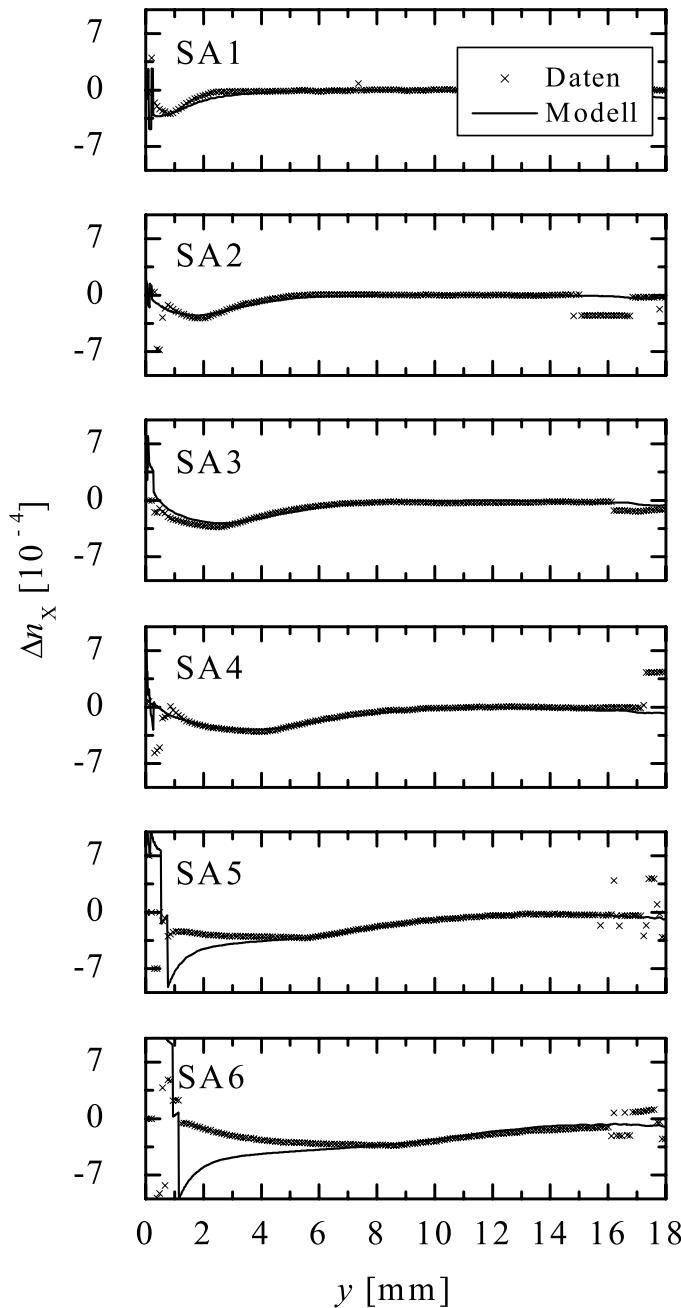


Abbildung 2.57: Gemessene strahlungsinduzierte Brechungsindexänderungen $\Delta n_X(y)$ der Proben SA1-SA6 im Vergleich mit den Modellvorhersagen [Gl. (2.7)]. Der Bestrahlungsaufwand steigt in der Reihenfolge von oben nach unten.

naheliegenden Annahme für die Massedichte ρ_X eine Beschreibung der Δn_X -Profile möglich ist, wird eine empirische Formel für ρ_X aus den interferometrisch ermittelten Massedichten der Proben SA1-SA4 und den jeweiligen simulierten Dosen $D(y)$ verwendet:

$$\rho_X(y) = \rho_{\text{offset}} + a_1 e^{b_1 D(y)} + a_2 [1 - e^{b_2 D(y)}] \quad . \quad (2.48)$$

Die Anpassungsparameter sind in Tab. 2.7 aufgelistet. Die angegebenen Parameter gelten im Speziellen nur für PMMA der Sorte PLEXIGLAS SUNACTIVE[®] GS und genau genommen nur für die Zeit 2 Tage nach Bestrahlung, wenn die Proben bei 22 °C gelagert werden.

Parameter	Wert
a_1	$8.8 \times 10^{-4} \text{ g cm}^{-3}$
b_1	$-0.28 \text{ cm}^3 \text{ J}^{-1}$
a_2	$5.2 \times 10^{-4} \text{ g cm}^{-3}$
b_2	$-0.027 \text{ cm}^3 \text{ J}^{-1}$
ρ_{offset}	1.1892 g cm^{-3}

Tabelle 2.7: Anpassungsparameter der empirischen Formel für die Abhängigkeit der Massedichte $\rho_X(y)$ von der Dosis $D(y)$ nach Gl. (2.48) für PLEXIGLAS SUNACTIVE® GS wenige Tage nach Bestrahlung.

Wenn man für die stark bestrahlten Proben das $\rho_X(y)$ anhand Gl. (2.7) durch Extrapolation der $\rho_X(D)$ -Werte für kleinere Dosen D bestimmt, können die Δn_X -Profile der Proben SA1-SA6 und HS1-HS5 mit weitgehend befriedigender Übereinstimmung beschrieben werden (Abb. 2.58 u. Abb. 2.59). Vor allem bei stark bestrahlten Proben (z. B. HS1) bleiben jedoch Regionen, in denen die Modellrechnungen von den Daten abweichen. Dies kann zum einen an der Unzulänglichkeit des extrapolierten ρ_X liegen, zum anderen auch daran, dass die chemischen Veränderungen im Material nur als direkte Strahlenschäden beschrieben werden. Wie man aber feststellt, sind die Brechungsindex- und Dickenprofile zeitlichen Veränderungen unterworfen. Die zeitliche Entwicklung kann mit einem exponentiellen Gesetz beschrieben werden [Abb. 2.48, Gl. (2.47), Tab. 2.6] und läuft bei verschiedenen Temperaturen verlangsamt oder beschleunigt ab, wobei sich auch die Form der Profile durch die Temperatur beeinflussen lässt (Abb. 2.50). Außerdem tritt im Material durch die Bestrahlung eine gelbliche Färbung auf (Abb. 2.30) welche in der Literatur Radikale zugeschrieben wird [66–68]. Diese Radikale bleiben dort vorhanden, wo sie erzeugt werden, und lösen Kettenreaktionen aus, bis sie auf ein anderes Radikal stoßen und sich durch Verbindung unschädlich machen (Kettenabbruch). Die Mobilität der Radikale ist sehr begrenzt. Hierfür gibt es mehrere Anhaltspunkte:

1. Die zeitliche Entwicklung der Profile ist sehr langsam. Als grober Richtwert ist aus dem exponentiellen Gesetz nach Gl. (2.47) für die Probe TDT2 ein mittleres $\tau \simeq (22 \pm 5) \text{ h}$ ableitbar.
2. Das $\Delta n_X(y)$ -Profil der Probe ST7 weist nach der Lagerung bei $50 \text{ }^\circ\text{C}$ einen Knick auf. Die enormen Änderungen bei $y < 12 \text{ mm}$ enden abrupt bei $y \simeq 12 \text{ mm}$ (Abb. 2.51).
3. Die strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung bleibt auf den bestrahlten Bereich beschränkt. Die Probe BT zeigt in x -Richtung keine Verbreiterung von Δn_X (Abb. 2.52 u. 2.53).

Es deutet also alles darauf hin, dass auch nach der Bestrahlung noch chemische Reaktionen ablaufen, welche durch schwer bewegliche Radikale ausgelöst werden. Diese Reaktionen, deren Ablauf noch ungeklärt ist, sind den direkten, bei Bestrahlung ablaufenden Reaktionen (Abb. 2.2) zumindest in den Auswirkungen sehr ähnlich. Durch Erhöhung der Temperatur kann die Beweglichkeit der Moleküle im Polymer vergrößert werden, so dass chemische Reaktionen beschleunigt ablaufen. Erst wenn die Radikale vollständig abgebaut sind (die gelbliche Färbung ist dann verschwunden), kommt es zum Stillstand der zeitlichen Entwicklung.

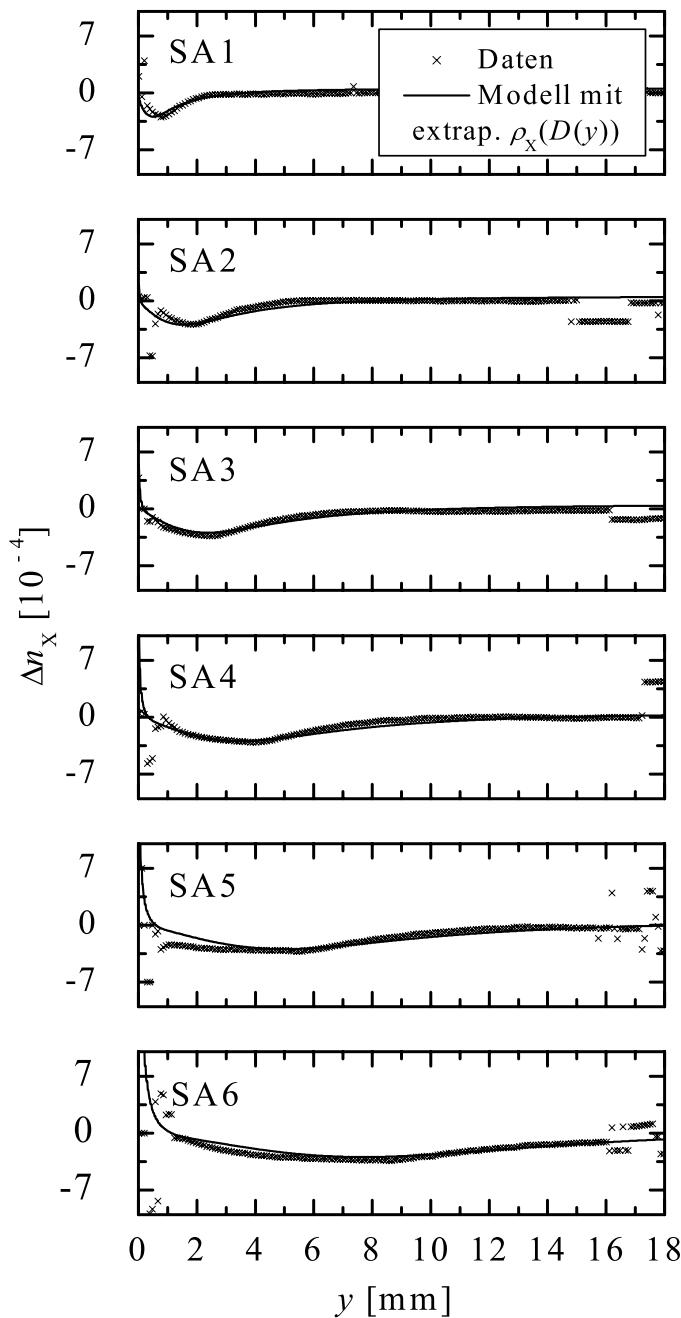


Abbildung 2.58: Gemessene strahlungsinduzierte Brechungsindexänderungen $\Delta n_x(y)$ der Proben SA1-SA6 im Vergleich mit den Modellvorhersagen nach Gl. (2.7), wenn hierfür die aus Messungen mit kleinen Dosen extrapolierte Massedichte $\rho_x(y)$ [Gl. (2.48), Tab. 2.7] verwendet wird. Der Bestrahlungswand steigt in der Reihenfolge von oben nach unten.

Ein weiterer Effekt kann den mit dem Interferometer ermittelten Brechungsindex beeinflussen: Wie in Abb. 2.42 und Abb. 2.43 zu sehen ist, steigt der Brechungsindex in der Nähe von Oberflächen an. Wie in der Literatur häufig beschrieben [7–11, 14, 15, 18], liegt dies am Ausgasen von flüchtigen Reaktionsprodukten. Hierbei handelt es sich überwiegend um abgespaltene Methylester-Seitenketten und deren mögliche Fragmente. Durch das Fehlen der Seitenketten können sich die Hauptketten näher kommen. Dies bewirkt eine Kompaktierung des Materials, was Massedichte und Brechungsindex soweit erhöht, dass der entgegengesetzte Einfluss des Masseverlusts mehr als kompensiert wird. Da dieser Effekt auf Diffusion

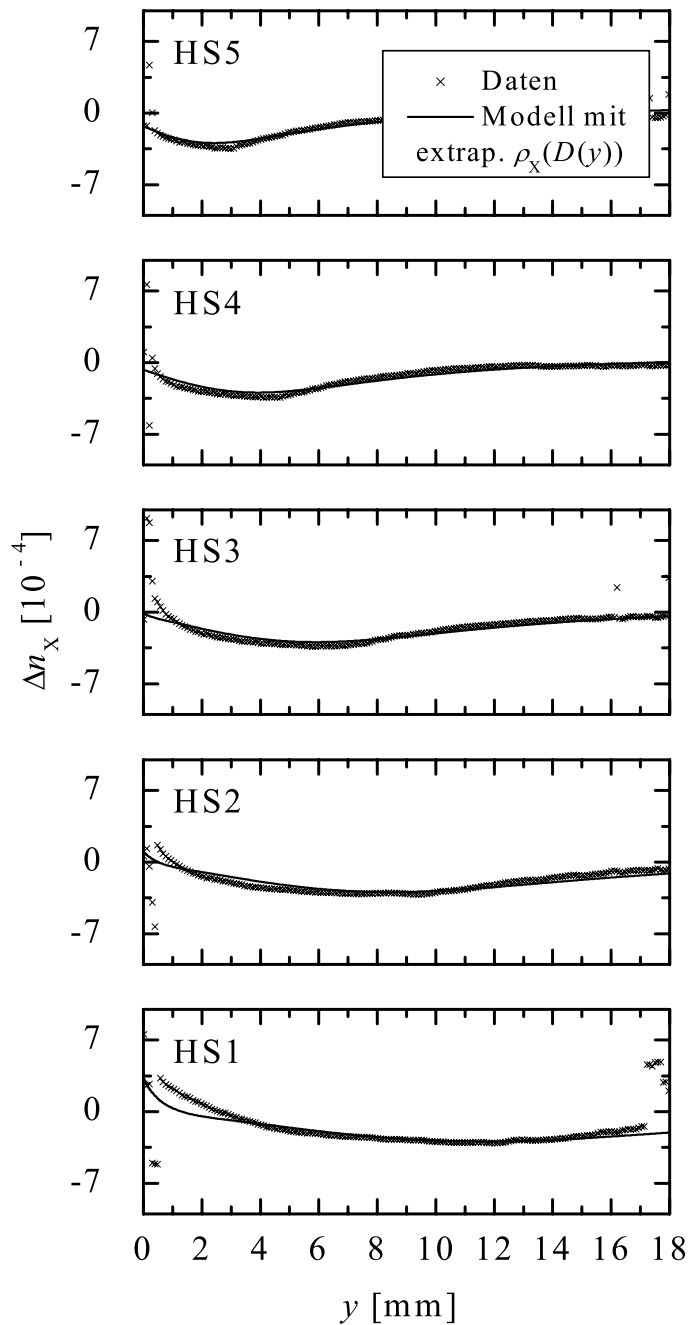


Abbildung 2.59: Gemessene strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung $\Delta n_x(y)$ der Proben HS1-HS5 im Vergleich mit den Modellvorhersagen nach Gl. (2.7), wenn hierfür die aus Messungen mit kleinen Dosen extrapolierte Massedichte $\rho_x(y)$ [Gl. (2.48), Tab. 2.7] verwendet wird. Der Bestrahlungsaufwand steigt in der Reihenfolge von oben nach unten.

basiert, kann er nur nahe der bestrahlten (x, z) -Oberfläche sowie an den (x, y) -Seitenflächen eine Rolle spielen, denn Diffusion kann im Volumen ausgeschlossen werden, weil sich die Breite des bestrahlten Bereichs nicht messbar verändert (Abb. 2.52 u. 2.53). Die Erhöhung des Brechungsindex an den (x, y) -Seitenflächen kann aber die interferometrischen Messungen mit steigendem Bestrahlungsaufwand beeinträchtigen. Sehr wahrscheinlich sind auch die mechanischen Eigenschaften der Seitenflächen von der Kompaktierung nahe der Oberfläche betroffen. Inwieweit dies die Elastizität, und damit die seitliche Deformation beeinflusst, welche für die Bestimmung der Massedichte so wichtig ist, kann hier nicht geklärt werden.

2.4.2 Anwendbarkeit in der Praxis

Für Anwendungen ist die Vorhersagbarkeit des Brechungsindex-Profiles wünschenswert. Das vorgestellte Modell liefert allerdings keine theoretische Beschreibung der Änderung der Masseeichte. Es kommt hinzu, dass sich die Materialveränderungen nach der Bestrahlung zeitlich und temperaturabhängig weiterentwickeln, was auf chemische Reaktionen zurückzuführen ist, die nach der Bestrahlung ablaufen und vom Modell ebenfalls nicht erfasst werden können. Dabei ist nicht nur die Sorte sondern sogar die Charge der verwendeten PMMA-Proben zu berücksichtigen. Eine umfassende theoretische Beschreibung müsste also spezielle Materialparameter mit einschließen. Zunächst ist zu klären, welche Parameter dazu notwendig sind. Hierzu wäre es erforderlich, alle Details des Herstellungsprozesses der Proben zu kennen.

Aber auch ohne umfassendes Verständnis ist die Anwendbarkeit in der Praxis nicht ausgeschlossen. Nach der eigentlichen Bestrahlung können durch geeignete thermische Nachbehandlungen zeitlich stabile Brechungsindexprofile erzeugt werden. Für bestimmte Chargen bestimmter PMMA-Sorten kann man dann empirische Formeln aufstellen, die für festgelegte Nachbehandlungen Brechungsindexprofile sicher vorhersagen. Als einzige unabhängige Variable bleibt letztendlich die im Material abgelagerte Dosis. Die notwendigen empirischen Parameter lassen sich mit den in dieser Arbeit vorgestellten Methoden aus wenigen Experimenten bestimmen.

Eine Anwendung wurde sogar demonstriert: Die Untersuchungen zur Wellenleitung zeigen, dass es prinzipiell möglich ist, Lichtwellenleiter in PMMA durch Bestrahlung mit Synchrotronlicht direkt zu schreiben. In Abb. 2.54 finden sich dort, wo jeweils nur ein einzelner Fleck erkennbar ist, sogar einmodige Wellenleiter. In Kombination mit einer thermischen Nachbehandlung sollte es zudem möglich sein, zeitlich stabile Wellenleiter herzustellen.

Die Verwendung von Synchrotronstrahlung ist mit großem technischen Aufwand verbunden. Leider gibt es derzeit noch keine kompakten Ersatzquellen für weiche Röntgenstrahlung mit vergleichbaren Leistungen. Die Experimente mit der Röntgenröhre haben u. a. gezeigt, dass Brechungsindexänderungen, welche mit einem Synchrotron in wenigen Minuten erreicht werden, mit einer Röntgenröhre nur durch tagelange Bestrahlungen hervorgerufen werden können. An die Herstellung von Wellenleitern ist hier gar nicht zu denken, da sich Brechungsindexerhöhungen nur sehr mühsam aufbauen und wegen der relativ hohen Energie der Strahlung sehr breite Δn -Profile in Strahlungsrichtung entstehen.

2.5 Ausblick

Diese Arbeit liefert einen ersten Eindruck, wie komplex die Problematik der strahlungsinduzierten Brechungsindexänderungen in PMMA eigentlich ist. Für eine Fortsetzung der Arbeiten wäre es zunächst sinnvoll, zeitlich stabile Profile für ausgewählte Chargen einer Sorte PMMA herzustellen und mittels empirischer Formeln zu beschreiben. Damit könnten dann erste Anwendungen, wie z. B. ein integriert-optisches Bragg-Gitter realisiert werden. Im Anschluss wäre es sinnvoll, den PMMA-Herstellungsprozess selbst in die Hand zu nehmen, um zum einen reproduzierbare Proben herstellen zu können und zum anderen den Einfluss diverser Herstellungsparameter auf die strahlungsinduzierten Effekte zu studieren. Später wäre dann die Optimierung des Materials sowie ggf. ein theoretisch umfassendes Verständnis der Vorgänge während und nach Bestrahlung möglich.

2.6 Zusammenfassung zu PMMA

Durch Bestrahlung von PMMA mit Röntgenlicht lassen sich Brechungsindexänderungen hervorrufen. Die Strahlung verursacht eine durch Photoionisation ausgelöste Degradation. Es entsteht Gas, das über Expansion des Materials eine verringerte Dichte bzw. einen verringerten Brechungsindex bewirkt. Wird die Dosis weiter erhöht, kommt es wieder zur Kompaktierung, da sich durch die fortschreitende Verkürzung der Kettenlängen des Polymers Möglichkeiten zur Umordnung bieten. Dichte und Brechungsindex werden damit wieder erhöht. Außerdem entstehen chemisch veränderte Moleküle mit erhöhter Polarisierbarkeit, was eine Brechungsindexerhöhung bewirkt. Während die Diffusion der Gase im Volumen weitgehend ausgeschlossen werden kann, kommt es in Oberflächenregionen zur Ausdiffusion was eine Kompaktierung des Materials und eine Erhöhung des Brechungsindex bewirkt. Durch die eben beschriebenen Einflüsse ergibt sich entlang der Bestrahlungsrichtung ein Brechungsindexprofil, was einen erhöhten Brechungsindex an der bestrahlten Oberfläche und einen verringerten Brechungsindex im Volumen bewirkt. Diese Profile sind zeitlich nicht stabil, da sich durch die Bestrahlung Radikale im Material bilden, welche nach der Bestrahlung weitere Reaktionen auslösen können. Das Vorhandensein der Radikale wird von einer gelblichen Färbung begleitet. Nach einiger Zeit stellen sich stabile Endzustands-Profile ein, deren Form von der Lagerungstemperatur und der PMMA-Sorte abhängt. Die zeitliche Entwicklung der Profile läuft bei erhöhten Temperaturen beschleunigt ab. Die Profile sind geeignet, um Streifenwellenleiter in PMMA zu realisieren. Das Licht wird im Bereich nahe der bestrahlten Oberfläche geführt. Einmodigkeit bei Dämpfungen kleiner als 1.8 dB cm^{-1} und einer Lichtwellenlänge von 633 nm ist prinzipiell erreichbar.

3

Lithiumniobat

3.1 Grundlagen

Es wird zunächst das Material Lithiumniobat vorgestellt. Dann geht es allgemein um den Energieverlust beim Durchgang schneller Ionen durch kondensierte Materie. Der letzte Abschnitt behandelt die Wechselwirkung mit Kristallen und wie sich daraus Brechungsindexänderungen ergeben können.

3.1.1 Das Material

Lithiumniobat (LiNbO_3) ist ein künstlich hergestelltes kristallines Material, das in der Natur nicht vorkommt. LiNbO_3 -Einkristalle werden großtechnisch hergestellt und stehen einer breiten Palette von Anwendungen in Optik und Hochfrequenztechnik in großen Stückzahlen zur Verfügung. Am häufigsten wird zur Kristallzucht das Czochralski-Verfahren angewendet. Hierbei zieht man die Kristalle bei einer Temperatur von 1253 °C direkt aus der Schmelze [69, 70]. Von kongruent schmelzender Zusammensetzung spricht man, wenn Kristall und Schmelze die gleiche Zusammensetzung aufweisen. Diese Kristalle haben ein Li-Defizit von ca. 4 % [71–73]. LiNbO_3 ist unterhalb der Curie-Temperatur von ca. 1210 °C ferroelektrisch. Die Li- und Nb-Ionen sind dabei spontan in Richtung der kristallographischen c -Achse gegen ihre symmetrischen Positionen verschoben, was eine makroskopische Polarisierung des Kristalls in dieser Richtung bewirkt („Spontanpolarisierung“). Der Kristall besitzt eine dreifache Rotationssymmetrie um die c -Achse und gehört damit zur Punktgruppe $3m$ (Abb. 3.1) [70, 74]. Das Material ist zudem doppelbrechend: Licht, das entlang der c -Achse polarisiert ist, erfährt den außerordentlichen Brechungsindex n_e . Senkrecht zur c -Achse polarisiertes Licht „sieht“ den ordentlichen Brechungsindex n_o . Die Doppelbrechung

$$\delta n(\lambda, T) = n_e(\lambda, T) - n_o(\lambda, T) \quad (3.1)$$

ist von der Lichtwellenlänge λ und der Temperatur T abhängig. Für LiNbO_3 gilt $\delta n < 0$ [70, 74].

Lithiumniobat ist linear elektrooptisch. Das bedeutet, der Brechungsindex kann durch elektrische Felder E_k über den linearen elektrooptischen Effekt, beschrieben durch den Tensor

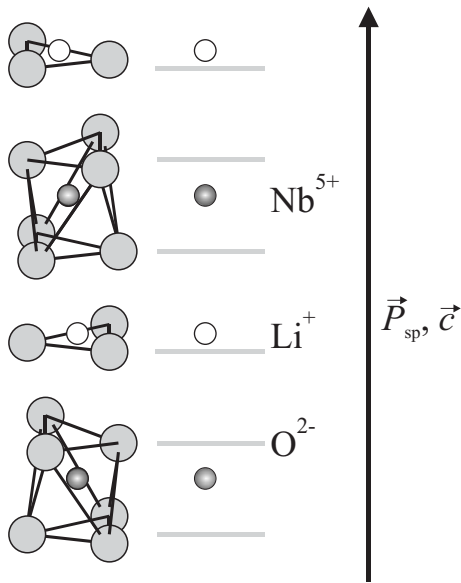


Abbildung 3.1: Anordnung der Ionen entlang der kristallographischen c -Achse eines LiNbO_3 -Kristalls in der ferroelektrischen Phase. Durch die Verschiebung der Li- und Nb-Ionen aus ihren symmetrischen Positionen bildet sich eine spontane Polarisierung \vec{P}_{sp} entlang der c -Achse.

r_{ijk} , geändert werden [75]:

$$\Delta(1/n^2)_{ij} = \sum_k r_{ijk} E_k \quad . \quad (3.2)$$

Das $\Delta(1/n^2)_{ij}$ ist ein Tensor, der die relative Änderung der Permittivität beschreibt (inverser Dielektrizitätstensor). Ein elektrisches Feld E_3 , also entlang der c -Achse, führt zu Änderungen im n_o sowie im n_e :

$$\Delta n_{ii} = -\frac{1}{2} n_{ii}^3 r_{ii3} E_3 \quad , \quad (3.3)$$

wobei $n_{11} = n_{22} = n_o$ und $n_{33} = n_e$. Die jeweiligen Tensor-Elemente $r_{113} = r_{223}$ und r_{333} werden in der Voigt-Notation als elektrooptische Koeffizienten r_{13} und r_{33} bezeichnet. Für einen freien (nicht eingespannten) Kristall beträgt der elektrooptische Koeffizient $r_{33} = 32.2 \text{ pm V}^{-1}$ und der $r_{13} = 10.0 \text{ pm V}^{-1}$ [74]. Diese Werte enthalten kleine Beiträge ($< 6 \%$), die auf weitere Effekte (umgekehrter piezoelektrischer und photoelastischer Effekt) zurückgehen [74].

Mit Fe, Cu oder Mn dotierte LiNbO_3 -Kristalle sind photorefraktiv: Licht verteilt über den volumenphotovoltaischen Effekt Ladungen aus Störstellen um [76]. Es bauen sich Raumladungsfelder auf, die den Brechungsindex über den linearen elektrooptischen Effekt modulieren [77].

Außerdem besitzt LiNbO_3 gute akustische und akustooptische Eigenschaften. Ferner ist es auch wegen seiner nichtlinearen optischen Eigenschaften für Anwendungen wie Frequenzverdopplung und parametrische Verstärkung interessant. Auch ist das Material pyro- und piezoelektrisch [70, 74]. Zusammenfassend kann man sagen, dass LiNbO_3 aufgrund der Vielfalt an Effekten zu einem der interessantesten Materialien für verschiedenste Anwendungen vor allem in der Optik zählt [30, 31].

3.1.2 Durchgang schneller Ionen durch Materie

Wenn schnelle (z. B. 10-100 MeV) \tilde{Z} -fach positiv geladene Ionen durch Materie fliegen, werden sie auf ihrer Trajektorie überwiegend durch die Wechselwirkung mit atomaren Elektronen ihrer unmittelbaren Umgebung gebremst. Hinzu kommen elastische Stöße, welche die Teilchen im Mittel nur unwesentlich von ihrer Bahn abbringen. Dies ändert sich erst, wenn die Partikel deutlich langsamer werden [78]. Nukleare Wechselwirkungen sind selten [78], führen bei hohen Energien aber zu einer messbaren Aktivierung des Target-Materials. Der Energieverlust pro Wegstrecke durch die abbremsende Wirkung der atomaren Elektronen im Target wird durch die Bethe-Bloch-Gleichung beschrieben [78–83]:

$$\frac{dE}{dx} = \frac{N_e e^4 \tilde{Z}^2}{4\pi\epsilon_0^2 m_e c^2 \beta^2} \left[\ln \left(\frac{W_{\max}}{I} \right) - \beta^2 - U - \frac{\delta}{2} \right] . \quad (3.4)$$

Hierbei bezeichnet N_e die Dichte der atomaren Elektronen, e die Elementarladung, ϵ_0 die Vakuum-Permittivität, m_e die Elektronenmasse, c die Lichtgeschwindigkeit, β das Verhältnis v/c mit v als Geschwindigkeit des Ions, $W_{\max} = 2m_e c^2 \beta^2 \gamma^2$ die maximale kinetische Energie, die in einem Stoß an ein atomares Elektron abgegeben werden kann, γ den Term $(1 - \beta^2)^{-1/2}$, I das mittlere Ionisationspotenzial des Materials, U einen Innerschalen-Korrekturterm und $\delta/2$ einen Korrekturterm der relativistische Dichte-Effekte berücksichtigt. Für eine grobe Abschätzung nehmen wir nun eine homogene Elektronendichte an:

$$N_e = \frac{\sum_i s_i Z_i}{\sum_i s_i A_i} N_A \rho \quad , \quad (3.5)$$

Es ist s_i der stöchiometrische Anteil, Z_i die Ordnungszahl und A_i die molare Masse des betreffenden Elements der chemischen Verbindung, aus der das Target-Material besteht. Es sind ferner ρ die Massedichte des Materials und N_A die Avogadro-Konstante. Abbildung 3.2 zeigt das berechnete dE/dx von ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen mit einer kinetischen Energie von anfänglich 40 MeV beim Durchgang durch LiNbO_3 . Bei der Rechnung wird nach jedem Wegstück dx

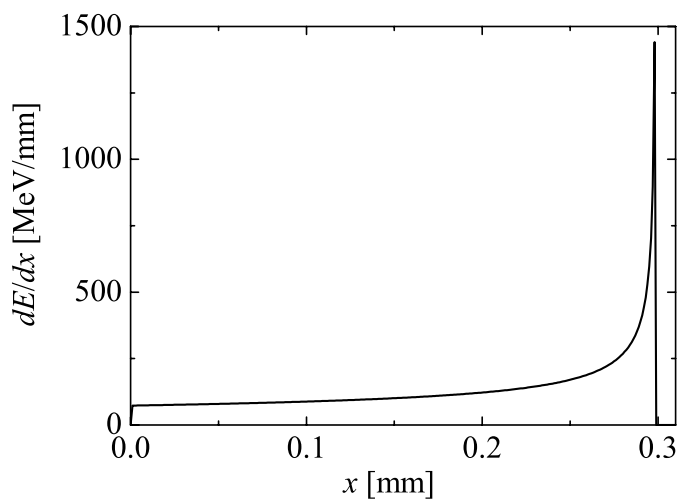


Abbildung 3.2: Berechneter Energieverlust dE/dx von 40 MeV- ${}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen in LiNbO_3 [Gl. (3.4) und (3.5)]. Das scharfe Maximum wird als „Bragg-Peak“ bezeichnet und markiert die sog. „Stopp-tiefe“, bei der die Ionen im Material stecken bleiben.

der Energieverlust dE berücksichtigt und ein neues dE/dx berechnet. Für genügend kleine

dx konvergiert die Simulation. Man erkennt folgendes: Je langsamer die Ionen werden, desto stärker ist die Verzögerung. Der Energieverlust dE/dx der Ionen steigt mit zunehmender Eindringtiefe, bis es zu einer relativ abrupten Abbremsung kommt. Das scharfe Maximum wird auch als „Bragg-Peak“ bezeichnet und markiert die sog. „Stopptiefe“, bei der die Ionen im Material stecken bleiben.

Der Verlauf von dE/dx ist in Abb. 3.2 schon recht gut wiedergegeben. Allerdings ist, wie sich noch herausstellen wird, der Wert für die Stopptiefe nicht korrekt. Der tatsächliche Wert ist in diesem Fall um ca. 0.25 mm größer. Das mag zum Teil daran liegen, dass wir für das mittlere Ionisationspotenzial I nur grobe Schätzwerte annehmen und den Innerschalen-Korrekturterm U sowie den relativistischen Korrektur-Faktor $\delta/2$ vernachlässigen. Die Hauptursache ist aber, dass die Elektronendichte nicht homogen ist. Vielmehr müssen Wirkungsquerschnitte berücksichtigt werden, was in der obigen Rechnung nicht der Fall ist. Eine sehr ausgefeilte Monte-Carlo-Simulation, die sowohl die Wirkungsquerschnitte der einzelnen Elemente, als auch elastische Stöße berücksichtigt, ist das Programm SRIM2003 [78, 83]. Wenn man die gleiche Situation des Durchgangs von 40 MeV ${}^3\text{He}^{2+}$ durch LiNbO_3 mit SRIM2003 simuliert, kommt man auf eine Stopptiefe von 0.51 mm, was, wie noch gezeigt wird, dem tatsächlichen Wert schon sehr nahe kommt. Das zugehörige Histogramm in halb-logarithmischer Auftragung zeigt Abb. 3.3. Bei einem 0.5 mm dicken Kristall würden 993 ‰

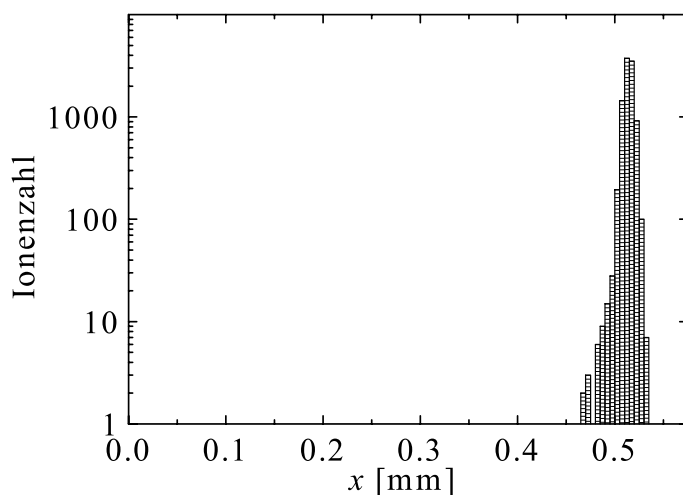


Abbildung 3.3: *Stopptiefen-Histogramm von 40 MeV ${}^3\text{He}^{2+}$ in LiNbO_3 in halblogarithmischer Auftragung. Der Anteil, der in Tiefen $x < 0.5$ mm stecken bleibt, macht etwa 7 ‰ der insgesamt 9999 Ionen aus, die für diese mit SRIM2003 [78, 83] durchgeführte Simulation verwendet werden.*

der Ionen den Kristall vollständig durchqueren. Warum es dabei aber dennoch zu einer nennenswerten Wechselwirkung mit dem Kristall kommt, behandelt der nächste Abschnitt.

3.1.3 Einfluss auf den Brechungsindex

Beim Durchgang schneller Ionen durch Materie wird durch Wechselwirkung mit atomaren Elektronen im Bereich der Trajektorie eine Spur ionisierter Atome erzeugt. Ist die Leitfähigkeit des Materials groß genug, bleibt dies ohne Folgen, da die entstandenen Elektronenlücken umgehend durch freie Elektronen wieder aufgefüllt werden können. Für Isolatoren, wie LiNbO_3 , ist dies i. d. R. nicht erfüllt [82]. In Abb. 3.4 ist schematisch dargestellt, was in

einem Isolator-Kristall passiert, wenn ein Ion eine Spur ionisierter Atomrümpfe hinterlässt. Nach der Ionisation beim Durchgang schneller Ionen, die später zu Farbzentren und anderen

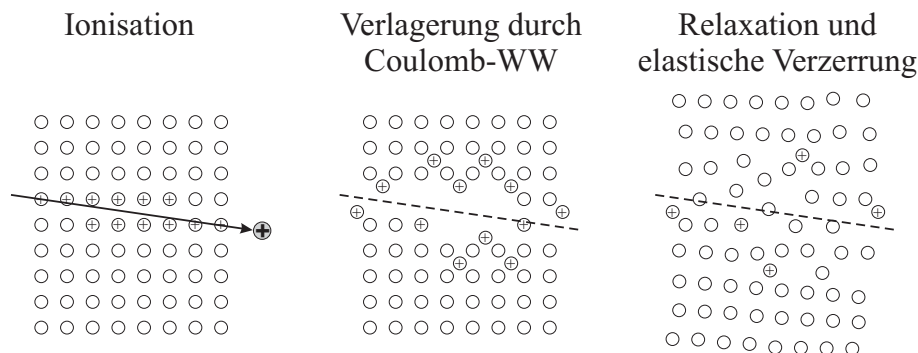


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung einer „Ionen-Explosions-Spitze“ in Anlehnung an die Veröffentlichung [82]. Nach der Ionisation beim Durchgang schneller Ionen kommt es zur Coulomb-Abstoßung, anschließender Relaxation und Kristallgitter-Verzerrung.

elektronischen Effekten führt, kommt es zur Coulomb-Abstoßung der nun positiv geladenen Atomrümpfe, was eine Verlagerung bewirkt. Erst danach kann die Relaxation einsetzen und sich das Kristallgitter verzerren, um die entstandenen mechanischen Spannungen auszugleichen [82]. So kann sich eine Reihe von stabilen Defekten entlang der Ionen-Trajektorie ausbilden.

Hinzu kommen Defekte, die durch elastische Stöße der Target-Atome mit den schnellen Ionen ausgelöst werden. Hier könnten besonders Rückstoß-Ereignisse, obwohl sie sehr selten sind, einen relativ großen Anteil an der Defektbildung haben, da sie einen großen Impuls- und Energieübertrag liefern. Für die bei einem 180° -Rückstoß auf ein Atom mit Masse M_2 übertragene Energie E_2 gilt [78]:

$$E_2 = \frac{4 E_1 M_1 M_2}{(M_1 + M_2)^2} \quad , \quad (3.6)$$

wobei E_1 und M_1 Energie und Masse des schnellen Ions darstellen. Man erreicht z. B. mit $53 \text{ MeV-}^4\text{He}$ -Ionen Energieüberträge von 49 MeV auf Li-, 34 MeV auf O- und 8.4 MeV auf Nb-Atome. Für eine einfache (sehr ungenaue) Abschätzung könnte man ausrechnen, wie viele Bindungen damit aufzubrechen wären. Genau genommen muss man dazu allerdings ganze Kollisions-Kaskaden simulieren, was im Prinzip nur mit Monte-Carlo-Simulationen möglich ist [78].

Um Brechungsindexänderungen in LiNbO_3 zu beschreiben, kann man näherungsweise auf eine zu Gl. (2.7) analoge Gleichung zurückgreifen. Die Auswirkungen geänderter Polarisierbarkeiten lassen sich damit ebenso simulieren, wie die von Dichteänderungen. Zusätzlich können für Kristalle typische, makroskopische Brechungsindexänderungen, beschrieben durch die jeweiligen Tensoren, einen Beitrag liefern. So kann es z. B. durch Materialverspannungen über den photoelastischen Effekt ebenfalls zu Brechungsindexänderungen kommen [74]. Zusammenfassend sind also einige der folgenden Beobachtungen mit großer Wahrscheinlichkeit in LiNbO_3 nach Ionenbeschuss möglich:

1. Änderung des Brechungsindex durch Änderungen im lokalen elektrischen Feld und/oder geänderte Polarisierbarkeiten

2. Änderung des Brechungsindex durch Massedichteänderungen
3. Verzerrung des Kristallgitters
4. Änderung des Brechungsindex durch Materialverspannungen
5. Verfärbung des Materials durch Farbzentren oder andere elektronische Defekte

Die Brechungsindexänderungen, welche in der Region des Bragg-Peaks durch Kollisions-Kaskaden stattfinden, werden hier nicht betrachtet, da sie nicht Gegenstand der Untersuchungen sind.

Für relativ kleine Ionen-Energien finden sich in der Literatur bereits Ergebnisse über Brechungsindexänderungen im durchflogenen Bereich. Bei der Ionenimplantation in LiNbO_3 mit 1 MeV- He^+ -Ionen erhält man hier Brechungsindexänderungen für Δn_o von -2% und für Δn_e von $+1\%$ des Brechungsindex [22]. Als Ursachen werden u. a. eine Gitterverzerrung durch Kontraktion in z -Richtung und Expansion in x - und y -Richtung, Li-Diffusion [25] sowie eine Verlagerung von Li^+ [23] durch Coulomb-Abstoßung vorgeschlagen. Gesicherte Erkenntnis über die wahren Ursachen gibt es bislang jedoch nicht.

3.2 Methoden

In diesem Abschnitt wird zunächst auf die Probenpräparation eingegangen. Es folgen Beschreibungen der experimentellen Methoden zur Bestrahlung, der Messung wichtiger Größen und der thermischen Nachbehandlung der bestrahlten Kristalle. Abschließend wird der Aufbau zum Nachweis von Wellenleitung vorgestellt.

3.2.1 Probenpräparation

Für die Untersuchungen werden undotierte LiNbO_3 -Wafer in kongruent schmelzender Zusammensetzung verwendet. Drei verschiedene Probengeometrien werden mit einer Wafersäge aus X-Cut- und Z-Cut-Wafern herausgeschnitten. Tabelle 3.1 enthält alle Angaben zu den Probenabmessungen und gibt an mit welcher Ionensorte und gesamten Ladungsmenge sie bestrahlt werden. Die WL-Proben werden für die Herstellung von Wellenleitern verwendet.

Probe	x [mm]	y [mm]	z [mm]	Partikel	Ladung [μAh]
Alpha	10	10	0.5	$^4\text{He}^{2+}$	1
Deuteron	10	10	0.5	$^2\text{H}^+$	1
LNHEP-Serie	0.5	9	10	$^3\text{He}^{2+}$	k.A.
WL-Proben	1	5	6	$^3\text{He}^{2+}$	k.A.

Tabelle 3.1: *Abmessungen der verwendeten Proben mit Angaben zur Bestrahlung (Partikelsorte und durchgehende Ladung). Bei den Wellenleiter-Proben (WL) werden je nach Anforderung entweder die (x, y) - oder die (x, z) -Stirnflächen poliert.*

Je nach Ausrichtung des Wellenleiters werden die (x, y) - oder die (x, z) -Stirnflächen poliert.

3.2.2 Bestrahlung

Für die Bestrahlungen der Proben, welche von Mitarbeitern des Helmholtz-Instituts für Strahlen- und Kernphysik in Bonn durchgeführt werden, finden zwei Aufbauten Verwendung. In dem in Abb. 3.5 skizzierten Aufbau werden die Proben Alpha, Deuteron und die LNHEP-Serie bei relativ hohen Ionenströmen bestrahlt. Die Kristalldicke ist so gewählt, dass nahezu alle Partikel den Kristall wieder verlassen. Die hierzu nötigen Simulationen werden mit dem Programm SRIM2003 [78, 83] durchgeführt. Der für die Ionenimplantation typische Kollisionsbereich ist in so bestrahlten Kristallen nicht vorhanden. Lediglich für die mit $40 \text{ MeV-}^3\text{He}^{2+}$ -Ionen bestrahlten Proben ist die Kristalldicke etwas knapp kalkuliert (Abb. 3.3). In den Resultaten wird gezeigt, dass die Kristalle nur um ca. $50 \mu\text{m}$ zu dünn sind, um die Teilchen zu stoppen. Bei den Proben Alpha und Deuteron werden Lochblenden mit 5 mm Durchmesser verwendet. Bis auf wenige Ausnahmen finden bei den LNHEP-Proben 1 mm breite Schlitzblenden Verwendung.

Die Wellenleiter-Proben werden in einem anderen Aufbau bei relativ geringen Strömen bestrahlt. Damit sich auch hier die Proben nicht überhitzen, werden sie in einen Graphit-Halter eingeklebt. Im Gegensatz zur obigen Bestrahlung sind die Proben nun so dick, dass alle Ionen

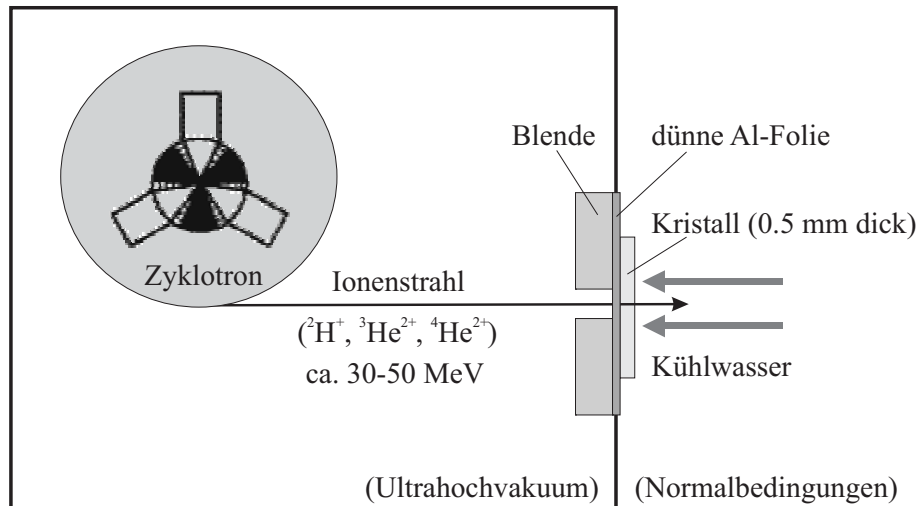


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung des Bestrahlungsaufbaus für relativ hohe Ionenströme. Eine dünne Al-Folie trennt das Ultrahochvakuum im Zyklotron von der Umgebung. Der Kristall wird bei Bestrahlung von der Rückseite gekühlt, um thermische Schäden zu verhindern.

im Material gestoppt werden. Die Bestrahlungsgeometrie wird in Abb. 3.6 veranschaulicht. Es bilden sich verschieden stark bestrahlte Regionen. Die Wolframfolie dient als Blende. Der

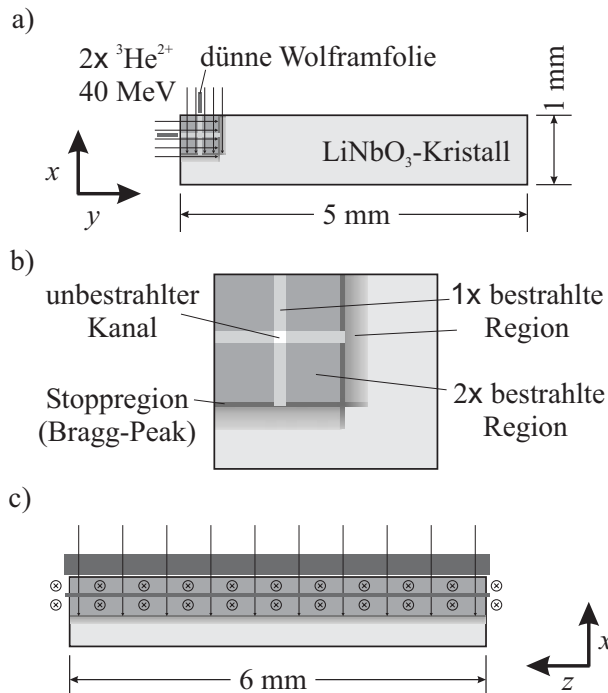


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Bestrahlung zur Herstellung von Wellenleiter-Proben. Es finden zwei zeitlich getrennte Bestrahlungen aus unterschiedlichen Richtungen (relativ zum Proben-Koordinatensystem) statt. Die Wolframfolie dient jeweils als Blende. a) Ansicht einer (x, y) -Stirnfläche. b) Vergrößerte Ansicht des Bereichs im Kristall oben links: Es bilden sich verschieden stark bestrahlte Regionen. Der unbestrahlte Kanal in der Mitte soll Licht führen. c) Ansicht der (x, z) -Seitenfläche.

unbestrahlte Kanal in der Mitte soll Licht führen. Voraussetzung ist, dass sich n_o bei der Bestrahlung ausreichend verringert. Die verwendeten Wolframfolien sind ca. $25 \mu\text{m}$ dick, so dass der 6 mm lange Kanal als (x, y) -Profil ein Quadrat mit $25 \mu\text{m}$ Kantenlänge bilden sollte. Licht, das durch diesen Kanal propagiert (Ausbreitung entlang der optischen Achse), erfährt nur n_o . Vertauscht man y mit z in Abb. 3.6, bekommt man einen 5 mm langen Kanal, der

für propagierendes Licht beide Brechungsindizes, n_o und n_e , anbietet.

3.2.3 Messung von Absorptionsänderungen

Messungen der Absorption α werden mit einem Gitterspektrometer CARY500 im Wellenlängenbereich von 300-3000 nm durchgeführt. Die Änderung $\Delta\alpha$ der Absorption durch den Ionenbeschuss erhält man, wenn von der Absorption α_2 im bestrahlten Bereich die Absorption α_1 im unbestrahlten Bereich subtrahiert wird.

3.2.4 Messung von Brechungsindexänderungen

Die Messung der Brechungsindexänderungen verläuft analog zu der im Kapitel 2.2.4 dieser Dissertation vorgestellten interferometrischen Methode. Allerdings ist die Verwendung der Referenzplatte nicht erforderlich, da die Keiligkeit der Proben nicht nachweisbar von der Keiligkeit der Referenzplatte abweicht. Auf die Bestimmung der Keilwinkel kann daher verzichtet werden. Die durch Ionenbeschuss hervorgerufene Brechungsindexänderung Δn_P wird mit der über der Anzahl k gemittelten Differenz zwischen der extremalen Brechungsindexmodulation $\Delta n(y_{\text{extr}}, z_{\text{extr}})$ im bestrahlten Bereich und einzelnen Punkten $\Delta n(y_i, z_i)$ der Modulation im unbestrahlten Bereich definiert:

$$\Delta n_P = \frac{1}{k} \sum_{i=1}^k \Delta n(y_{\text{extr}}, z_{\text{extr}}) - \Delta n(y_i, z_i) \quad . \quad (3.7)$$

3.2.5 Dosisbestimmung

Die Bestimmung der absoluten Dosis, wenn derzeit überhaupt möglich, ist nur sehr ungenau, da die Ionenstrahlage nicht über längere Zeit stabil gehalten werden kann. Eine Messung des Anteils, der auf die Blende fällt, ist im jetzigen Aufbau nicht vorgesehen, und entsprechende Vorrichtungen sind nicht vorhanden. Daher beschränken wir uns im Rahmen dieser Arbeit auf eine relative Angabe der aufgewendeten Dosen. Hierfür wird ausgenutzt, dass die Proben durch die Bestrahlung durch vereinzelte Kernreaktionen radioaktiv werden. Hat man die aktiven Isotope identifiziert und kennt man deren Lebensdauer, kann man aus den gemessenen Aktivitäten auf die Anfangsaktivität zurückrechnen. Die Messungen hierzu werden in der Arbeitsgruppe von K. Maier am Helmholtz-Institut für Strahlen- und Kernphysik in Bonn mit einem Ge-Detektor mit angeschlossenen Mehrkanal-Analysator durchgeführt. Aus den interferometrischen Messungen wird die Größe der bestrahlten Fläche ermittelt. Abschließend normiert man die Anfangsaktivitäten auf die bestrahlte Fläche. Diese normierte Anfangsaktivität N_0 dient als relative Dosisangabe.

Da diese Methode nur für Proben der LNHEP-Serie angewendet wird, die ausschließlich mit ${}^3\text{He}^{2+}$ bestrahlt werden, gilt das in Abb. 3.7 gezeigte Schema [84]. Die γ -Linie bei 934 keV wird für die Bestimmung der relativen Dosis verwendet. Die Halbwertszeit des ${}^{92}\text{Nb}$ beträgt 10 Tage, was für die Dosisbestimmung einen Zeitraum von mehreren Wochen nach der Bestrahlung zulässt.

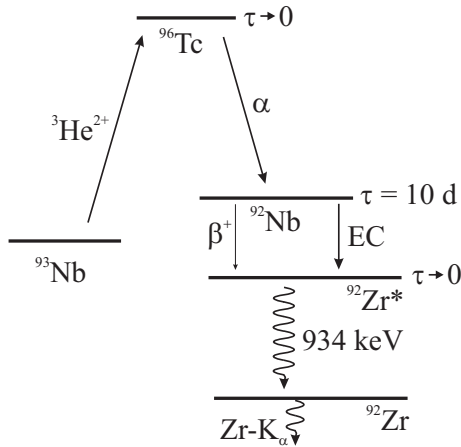


Abbildung 3.7: Schematische Darstellung einer der möglichen Kernreaktionen bei ^3He -Beschuss von LiNbO_3 [84]. Die γ -Linie bei 934 keV und die charakteristische K_{α} -Linie des Zr, ein Nebeneffekt des Elektroneneinfangs (EC), können für die Bestimmung der relativen Dosis verwendet werden (die relativen Höhen der Energieniveaus sind schematisch dargestellt).

3.2.6 Thermische Behandlungen

Einige der Proben werden nach der Bestrahlung Temperbehandlungen unterzogen. Hierzu kommen sie in einen auf $\pm 1\text{ K}$ stabilisierten Ofen, wo sie bei Normalatmosphäre getempert werden. Unter anderem werden auch isochrone Erholungen durchgeführt. Hierfür wählt man für eine Reihe von Behandlungen ein festes Zeitintervall, in dem die Probe einer konstanten Temperatur T ausgesetzt ist, welche in der nächsten Behandlung um immer den gleichen Wert erhöht wird. Diese Temperatur wird im Ofen am Probenort gemessen und überwacht. Zwischen den Behandlungen bringt man die Proben wieder auf Zimmertemperatur, wobei darauf zu achten ist, dass die Zeiten dieser Rampen klein sind gegenüber dem für die Behandlungen verwendeten Zeitintervall. Zwischen den Behandlungen werden die Proben untersucht, um die Auswirkungen der einzelnen Behandlungen aufzuzeichnen.

3.2.7 Messung der elektrooptischen Koeffizienten

Die Messung der elektrooptischen Koeffizienten r_{13} und r_{33} erfolgt mit der in der Veröffentlichung [85] beschriebenen interferometrischen Methode, wobei die Probe nicht, wie dort, als Spiegel verwendet wird, sondern einfach im Signalarm des Mach-Zehnder-Interferometers steht. Die an die Probe angelegte Spannung $U_{\text{SS}} = 10\text{ V}$ hat eine Frequenz von 73.5 kHz. Als Lichtquelle dient ein kollimierter Diodenlaser ($\lambda = 685\text{ nm}$). Die Fotodiode wird so positioniert, dass sie entweder nur Licht aus dem bestrahlten oder aus dem unbestrahlten Bereich auffängt. Somit ist ein direkter Vergleich der Koeffizienten möglich.

Eine weniger gut geeignete Methode, um auf elektrooptische Koeffizienten zu schließen, sind interferometrische Messungen unter Verwendung von hohen Gleichspannungen, da der inverse piezoelektrische und der photoelastische Effekt zu den Brechungsindexänderungen beitragen [74]. Ein Aufbau, wie er in Abb. 3.8 dargestellt ist, eignet sich also nicht so gut, um elektrooptische Koeffizienten zu bestimmen. Wie sich noch zeigen wird, ist er aber für andere Beobachtungen von großem Wert. Trägt man die gemessene Lichtleistung P über dem angelegten elektrischen Feld E auf, kann man durch Anpassen einer Sinusfunktion an die Messdaten die elektrooptischen Koeffizienten, je nach verwendeter Lichtpolarisation r_{13}

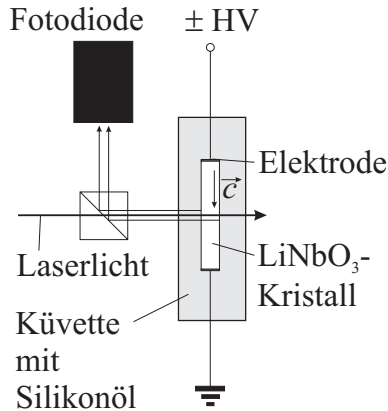


Abbildung 3.8: Schematische Darstellung der Messung von elektrooptisch erzeugten Brechungsindexänderungen. Die Oberflächenreflexe der Vorder- und Rückseite interferieren auf der Fotodiode. Die gemessene Lichtleistung hängt sinusförmig von der angelegten Hochspannung (HV) ab.

bzw. r_{33} , bestimmen:

$$P = A \sin(EB + C) + D \quad ;$$

$$r_{i3} = -\frac{B \lambda}{\pi d n_{ii}^3} \quad . \quad (3.8)$$

Dabei ist d die Kristalldicke, λ die Lichtwellenlänge, und A, B, C und D sind Anpassungsparameter.

3.2.8 Messung von Wellenleitung

Der Aufbau zur Messung von Wellenleitung ist in Abb. 3.9 dargestellt. Das Licht eines HeNe-

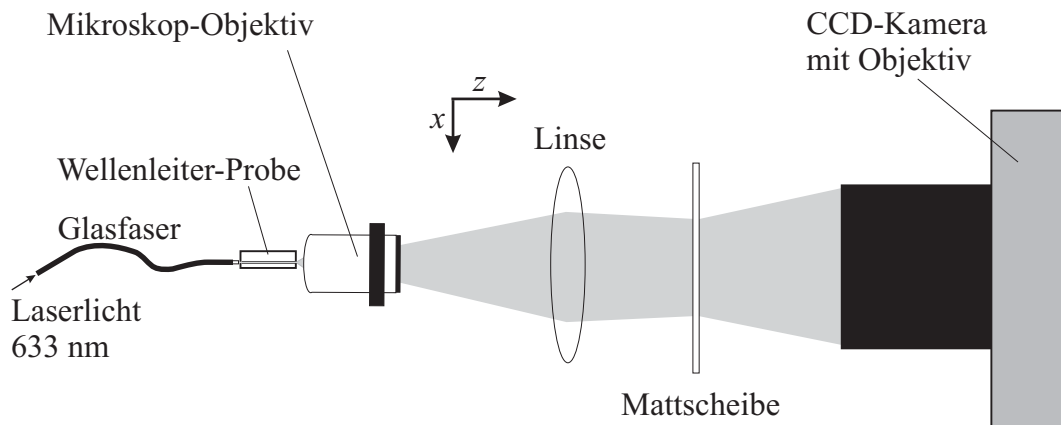


Abbildung 3.9: Aufbau zur Messung der Intensitätsverteilung in der (x,y) -Ebene am Austrittsbereich von Wellenleiter-Proben.

Lasers ($\lambda = 633 \text{ nm}$) wird aus einer Glasfaser kommend direkt in den Wellenleiter der Probe eingekoppelt. Im hinteren Teil wird die Austrittsfläche mit Mikroskop-Objektiv und Linse auf die Mattscheibe abgebildet. Das Kamera-Objektiv dient der Abbildung des Bildes auf den CCD-Chip der Kamera. Die so gemessenen Intensitätsverteilungen lassen Rückschlüsse auf die wellenleitenden Eigenschaften der Probenwellenleiter zu. Das Laserlicht verlässt die Glasfaser unpolarisiert. Mit einer Polarisationsfolie als Analysator lässt sich aber hinter

3. LITHIUMNIOBAT

dem Mikroskop-Objektiv feststellen, ob das Licht nach dem Passieren des Wellenleiters eine Vorzugspolarisation aufweist.

3.3 Resultate

Zunächst werden die Absorptionsänderungen und dann die Brechungsindexänderungen vorgestellt, die Ionenbeschuss in LiNbO_3 -Kristallen hervorruft. Anschließend geht es um Materialverspannungen, die sich mit verschiedenen Methoden nachweisen lassen. Der Einfluss von thermischen Behandlungen auf die Brechungsindexänderungen wird im darauf folgenden Abschnitt präsentiert. Nachfolgend wird die Frage, ob sich der elektrooptische Effekt durch die Bestrahlung wesentlich verändert, beantwortet. Der letzte Abschnitt behandelt Wellenleiter, die mit der oben vorgestellten Methode realisiert werden.

3.3.1 Absorptionsänderungen

Die verwendeten LiNbO_3 -Kristalle sind nach der Bestrahlung im Wechselwirkungsbereich dunkel verfärbt. In Abb. 3.10 ist die Absorptionsänderung $\Delta\alpha$ der Probe Alpha über der Lichtwellenlänge λ aufgetragen. Die breite Bande im sichtbaren Wellenlängenbereich (VIS)

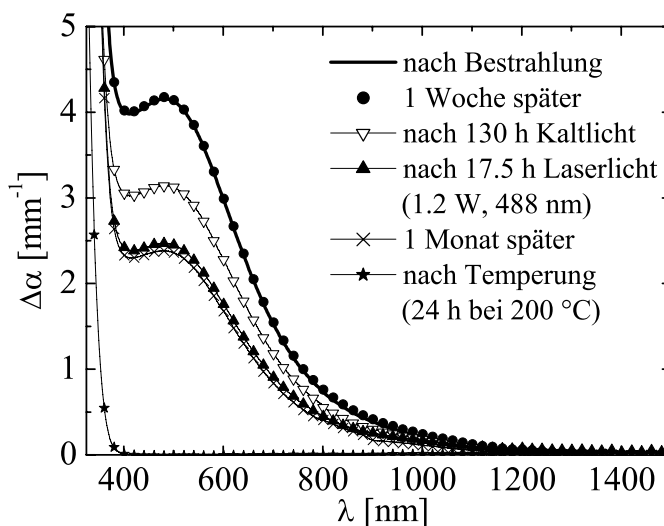


Abbildung 3.10: Absorptionsänderung $\Delta\alpha$ der Probe Alpha aufgetragen über der Lichtwellenlänge λ nach Bestrahlung und nach weiteren Behandlungen.

ist über mind. eine Woche stabil und lässt sich nur mühsam mit Beleuchtung abbauen. Die damit erreichte Reduktion von $\Delta\alpha$ ist aber über mind. einen Monat stabil. Tempern bei 200 °C für 24 h ist ausreichend, um die Verfärbung im VIS vollständig abzubauen. Es bleibt allerdings eine Änderung im UV, die sich effektiv so auswirkt, als ob die Bandkante verschoben wäre (Abb. 3.11). Eine Messung weiter ins UV ist aufgrund der hohen Absorption nicht ohne weiteres möglich. Aus einer Gauß-Anpassung (Abb. 3.12) geht hervor, dass die Absorptionsbande im VIS ihr Maximum bei der Photonenenergie $h\nu_{\text{max}} = 2.453\text{ eV} \pm 1\text{ meV}$ hat. Der relativ kleine Fehler für $h\nu_{\text{max}}$ gibt nicht den physikalischen Fehler der Messung sondern nur die statistische Abweichung der Daten von der Anpassung wieder. Der tatsächliche Wert kann also um mehr als 1 meV vom gemessenen abweichen. Zum Vergleich sind in Abb. 3.13 die Spektren der Proben Alpha und Deuteron nach Bestrahlung und ein Bipolaronen-Spektrum [86,87] eines im Vakuum reduzierten, undotierten LiNbO_3 -Kristalls

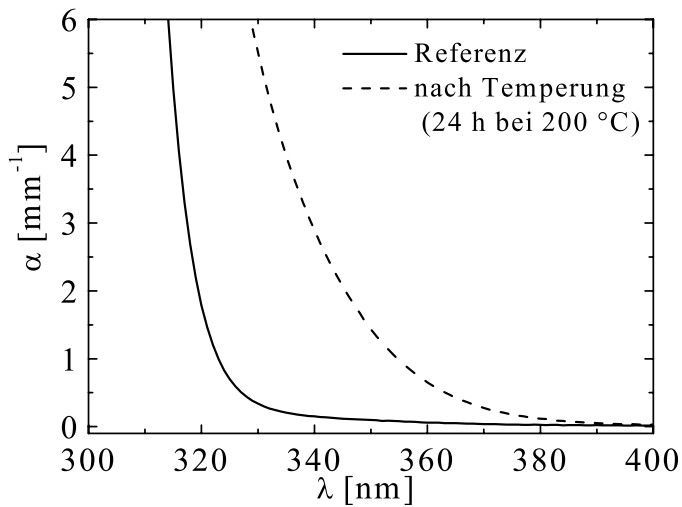


Abbildung 3.11: Absorption α von unbehandeltem LiNbO_3 (Referenz) und der Probe Alpha nach Bestrahlung und Temperung bei 200°C aufgetragen über der Lichtwellenlänge λ .

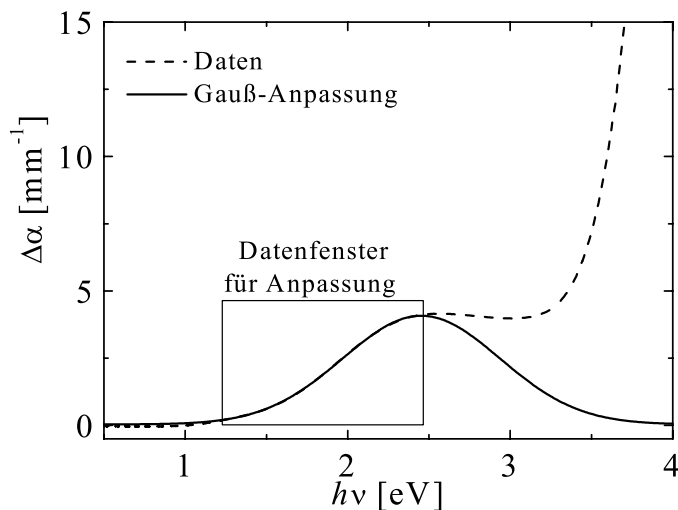


Abbildung 3.12: Absorptionsänderung $\Delta\alpha$ der Probe Alpha nach Bestrahlung aufgetragen über der Photonenenergie $h\nu$ mit Gauß-Anpassung. Die Daten für die Anpassung werden nur aus dem mit dem Rechteck markierten Bereich entnommen.

mit kongruent schmelzender Zusammensetzung aufgetragen. Man erkennt, dass die durch den Partikel-Beschuss erzeugten Banden etwas schmaler sind als die Bipolaronen-Bande und von der Form her abweichen.

Abbildung 3.14 zeigt die Absorption im Bereich der OH-Bande [88]. Im unbestrahlten Bereich ist der typische Verlauf erkennbar: Die Bande besitzt ihr Maximum bei 2869 nm. Durch die Bestrahlung wird das Hauptmaximum bei 2869 nm kleiner und ein neuer Peak entsteht bei 2816 nm. Diese Messung ist reproduzierbar, und die Veränderung des Spektrums ist ohne Zweifel signifikant. Nach der Temperung wird der Peak bei 2816 nm größer, während der bei 2869 nm kleiner wird. Diese Änderung im Spektrum liegt außerhalb des statistisch ermittelten Messfehlers für die Messungen vor der Temperung.

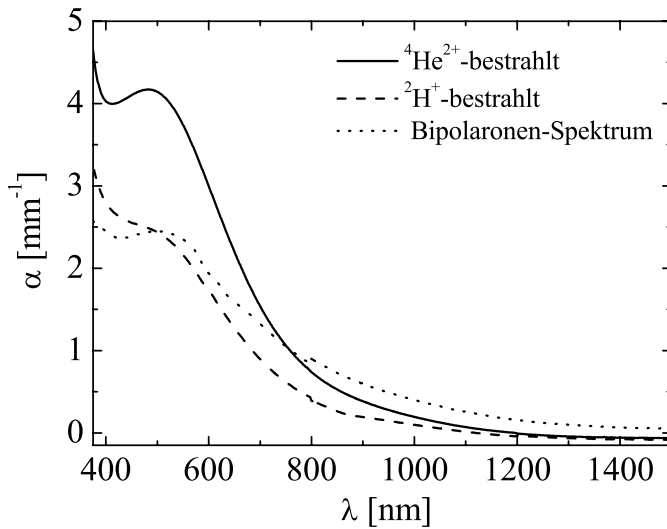


Abbildung 3.13: Absorption α über der Lichtwellenlänge λ der Proben Alpha und Deuteron nach Bestrahlung und ein Bipolaronen-Spektrum [86, 87] eines im Vakuum reduzierten, undotierten LiNbO_3 -Kristalls mit kongruent schmelzender Zusammensetzung.

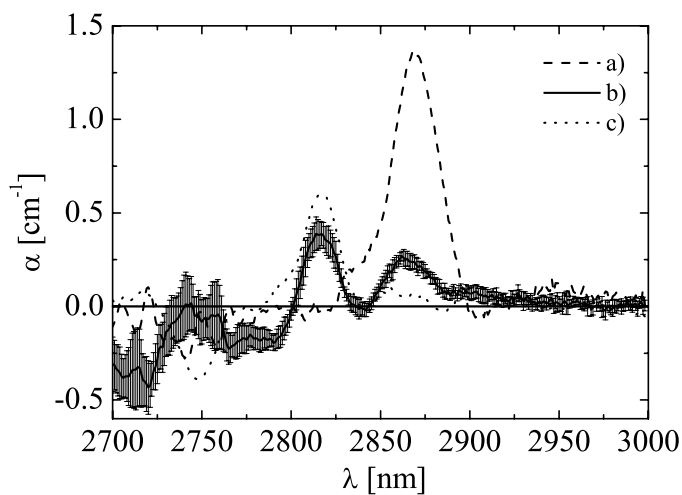


Abbildung 3.14: Absorption α über der Lichtwellenlänge λ der Probe Alpha. a) Unbestrahlter Bereich der sonst unbehandelten Probe. b) Über 7 Messungen gemittelt aus dem bestrahlten Bereich vor der Temperung incl. statistischem Fehler. c) Bestrahlter Bereich nach Temperung für 24 h bei 200°C .

3.3.2 Brechungsindexänderungen

Durch die Bestrahlung der Proben entstehen Brechungsindexänderungen. Abbildung 3.15 zeigt einen Schnitt durch die Modulation des ordentlichen Brechungsindex $\Delta n_o(x, y)$ der Proben Alpha und Deuteron über der Querabmessung, einer beliebigen Geraden in der (x, y) -Ebene durch das Minimum der Brechungsindexmodulation¹. Man erkennt, dass sich n_o durch die Bestrahlung verringert. Die Proben Alpha und Deuteron werden etwa von der gleichen Gesamtladung durchflogen. Dennoch ist die Änderung bei Probe Alpha mit -6×10^{-3} etwa doppelt so groß wie bei Probe Deuteron. In Abb. 3.16 sieht man einen Schnitt durch die Modulation des ordentlichen Brechungsindex $\Delta n_o(x, y)$ der Probe Alpha zu verschiede-

¹Der prinzipielle Verlauf von $\Delta n_o(x, y)$ ist unabhängig von der Orientierung der so definierten Querabmessung.

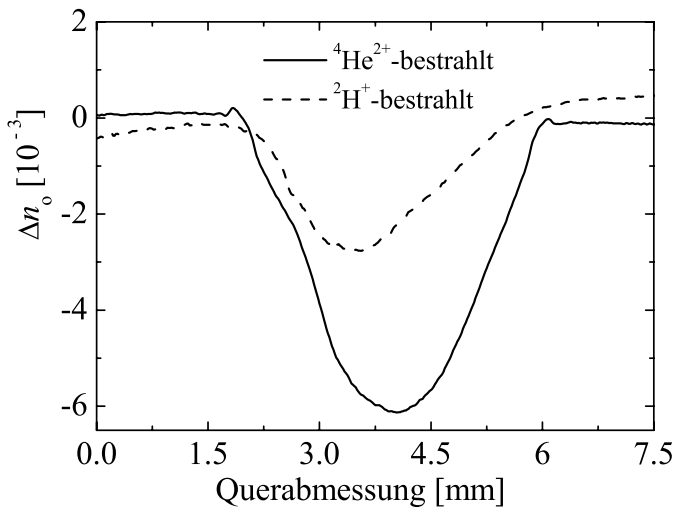


Abbildung 3.15: Schnitt durch die Modulation des ordentlichen Brechungsindex $\Delta n_o(x, y)$ über der Querabmessung (siehe Text) der Proben Alpha und Deuteron.

nen Zeitpunkten: nach Bestrahlung, direkt vor einer Temperung für 24 h bei 200 °C und direkt nach der Temperung. Die Messungen nach der Bestrahlung und vor der Temperung

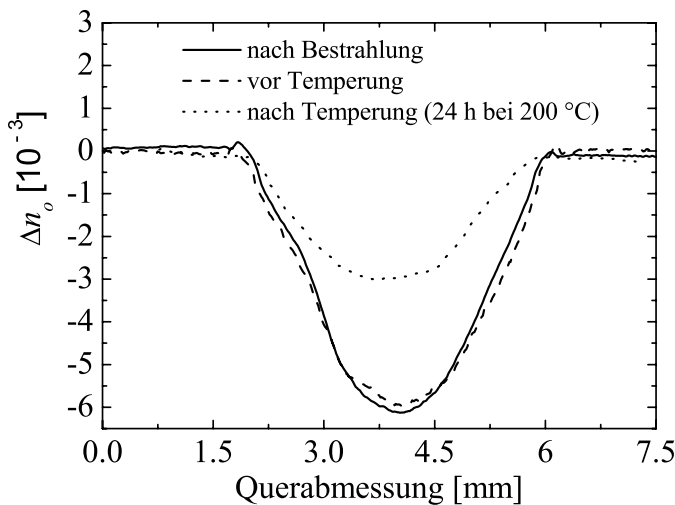


Abbildung 3.16: Schnitt durch die Modulation des ordentlichen Brechungsindex $\Delta n_o(x, y)$ über der Querabmessung (siehe Text) der Probe Alpha zu verschiedenen Zeitpunkten.

stimmen überein, obwohl sie im Abstand von fast zwei Monaten durchgeführt werden, in denen eine Reihe von intensiven Beleuchtungen vorgenommen wird (vgl. Abschnitt Absorptionsänderungen, Abb. 3.10). Die Temperung reduziert die Brechungsindexänderung auf etwa die Hälfte.

Die Proben Alpha und Deuteron sind so geschnitten, dass man ohne besondere Maßnahmen unmöglich Δn_e messen kann. Daher wird nach allen obigen Messungen aus Probe Alpha, wie in Abb. 3.17 skizziert, ein Streifen heraus gesägt, und die Schnittflächen werden poliert. Im Interferometer lässt man die Signalwelle parallel zur Normalen dieser Schnittflächen durch die Probe laufen. Da nun die z -Achse senkrecht zur Ausbreitungsrichtung der Signalwelle

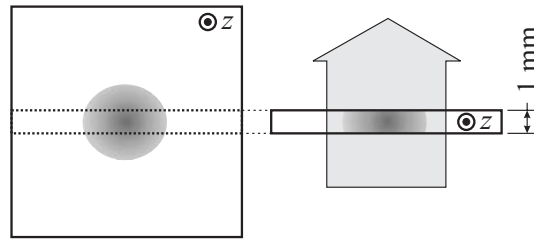


Abbildung 3.17: Skizze der Probe Alpha. Die runde Fläche markiert das bestrahlte Gebiet. Der gestrichelte Bereich wird heraus gesägt, und die Schnittflächen werden poliert. Der Pfeil kennzeichnet die Ausbreitungsrichtung der Signalwelle im Interferometer.

steht, ist durch geeignete Wahl der Lichtpolarisation auch die Messung des außerordentlichen Brechungsindex möglich. Abbildung 3.18 präsentiert das Ergebnis dieser Messungen für beide Polarisationen. Zwei wesentliche Fakten sind erkennbar:

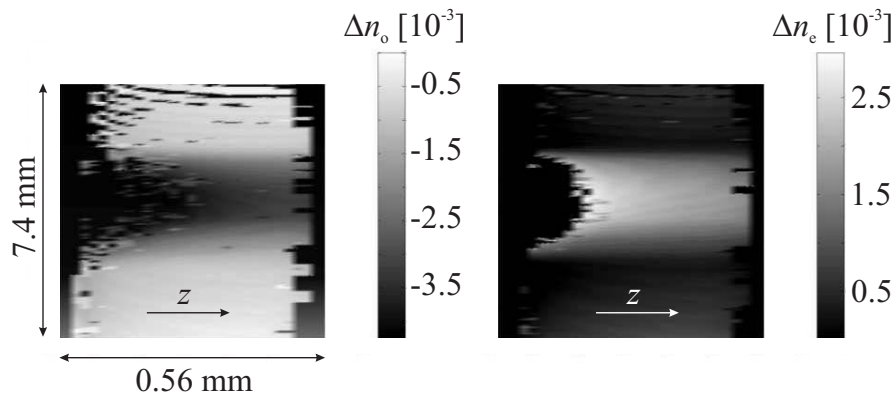


Abbildung 3.18: Modulation des ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindex, n_o (links) und n_e (rechts), des ausgesägten Streifens der Probe Alpha (Abb. 3.17). Bei der Bestrahlung durchqueren die Teilchen die Probenmitte entlang der kurzen Achse.

1. Die Brechungsindexänderungen sind homogen über den gesamten durchflogenen Bereich verteilt.
2. Während sich n_o durch die Bestrahlung verringert, wird n_e erhöht.

In Abb. 3.19 sind Schnitte entlang der langen Achse durch die in Abb. 3.18 dargestellte Brechungsindexmodulation gezeigt. Für die Schnitte durch die Daten für beide Lichtpolarisationen werden identische Probenkoordinaten verwendet. Dennoch fällt die Änderung in n_e mit 2×10^{-3} geringer aus als bei n_o mit -3×10^{-3} .

Abbildung 3.20 zeigt Δn_P [Gl. (3.7)] für verschiedene Proben der LNHEP-Serie über der normierten Aktivität N_0 für außerordentliche und ordentliche Polarisation, im folgenden mit $epol$ und $opol$ bezeichnet. Man erkennt einen nichtlinearen Verlauf mit Bereichen unterschiedlich starker Abhängigkeiten. Bis etwa $N_0 \simeq 15 \text{ s}^{-1} \text{ mm}^{-2}$ verläuft Δn_P für beide Polarisationen symmetrisch zur Null-Linie. Ab dann knickt $\Delta n_{P,opol}$ stärker ab als $n_{P,epol}$.

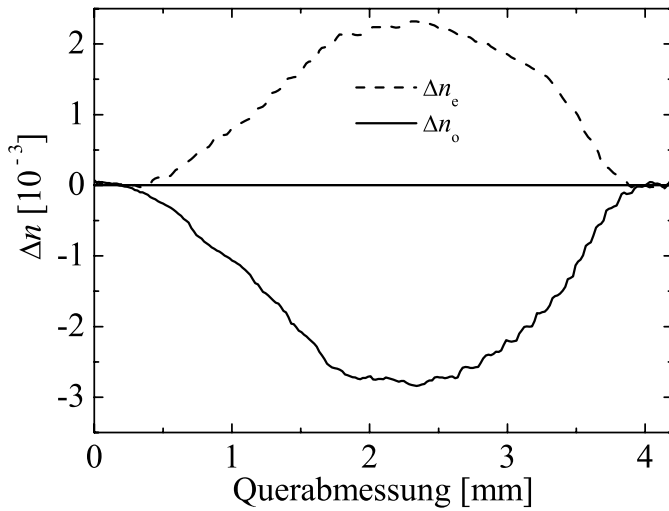


Abbildung 3.19: Schnitte entlang der langen Achse durch die in Abb. 3.18 dargestellte Brechungsindexmodulation. Für die Schnitte durch die Daten für beide Lichtpolarisationen werden identische Probenkoordinaten verwendet.

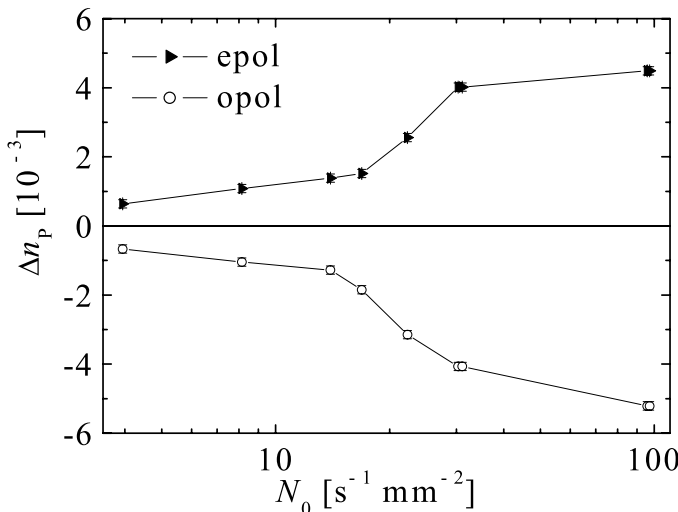


Abbildung 3.20: Durch Bestrahlung hervorgerufene Brechungsindexänderung Δn_p [Gl. (3.7)] über der normierten Aktivität N_0 für außerordentliche und ordentliche Polarisation (epol und opol; halblogarithmische Darstellung).

In Abb. 3.21 ist die normierte Aktivität N_0 über der jeweiligen Bestrahlzeit der LNHEP-Proben aufgetragen. Der Ionenstrom beträgt in allen Fällen 500 nA. Im Idealfall würde man einen linearen Zusammenhang erwarten. Aufgrund von Schwankungen der Strahlage und der Schwierigkeit, die Probe mittig zu treffen, ergeben sich Abweichungen.

3.3.3 Materialverspannungen

Dass sich die Proben durch die Bestrahlung verspannen, bzw. verzerren, ist in Abb. 3.22 zu sehen. Es stellt sich heraus, dass sich die Proben entlang der Bestrahlungsrichtung durchbiegen, und zwar immer so, dass die der Strahlungsquelle abgewandte Seite konvex wird. Die Oberflächen nehmen in erster Näherung die Form sphärischer Spiegel an, so dass der Biege-Radius über die Fokussierungseigenschaften bei Reflexion an der konkaven Seite er-

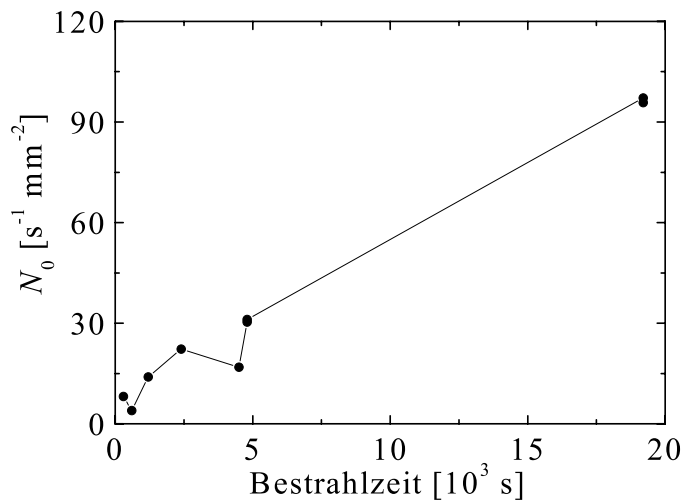
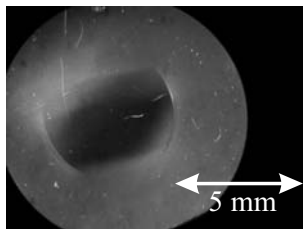
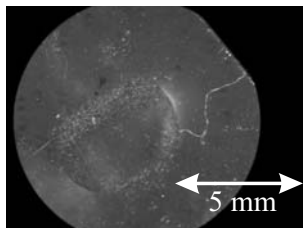


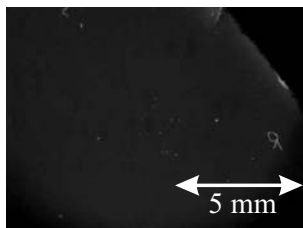
Abbildung 3.21: Normierte Aktivität N_0 über der jeweiligen Bestrahlzeit der LNHEP-Proben. Der Ionenstrom beträgt in allen Fällen 500 nA.



Alpha vor Temperung



Alpha getempert



Referenzprobe

Abbildung 3.22: Vergrößerte Aufnahmen der Probe Alpha vor und nach Temperung für 24 h bei 200 °C und einer unbestrahlten, unbehandelten Referenzprobe. Die Proben befinden sich zwischen zwei gekreuzten Polarisationsfolien. Für diese Geometrie ist das Material normalerweise nicht doppelbrechend (die Referenzprobe bleibt dunkel). Spannungen induzieren Doppelbrechungsänderungen, die das zunächst linear polarisierte Licht in elliptisch polarisiertes Licht umwandeln. Das elliptisch polarisierte Licht kann die zweite Polarisationsfolie, den Analysator, zum Teil passieren. Die runde Struktur in der Mitte von Probe Alpha ist durch die Bestrahlung verursacht. Man erkennt links und rechts die Ränder der bei der Bestrahlung verwendeten Lochblende. Außerdem ist die Farbänderung als dunkler Fleck zu erkennen (nur vor der Temperung).

mittelt werden kann. Der so bestimmte maximale Abstand von der ursprünglich planen Oberfläche beträgt hierbei für die Probe Alpha 1.9 μm . Über interferometrische Messungen werden hierfür 1.3 μm ermittelt, was aufgrund der relativ ungenauen Fokus-Methode eine gute Übereinstimmung darstellt. Die Probe Deuteron ist nur etwa halb so stark verbogen. Mit der Fokus-Methode wird ermittelt, dass die Durchbiegung der Probe Alpha nach

der Temperung um ca. 30 % zurück geht. In Abb. 3.23 sind die interferometrisch gemessenen Oberflächendeformationen Δd_1 der Vorderseite (der Strahlungsquelle zugewandt) und der Rückseite Δd_2 der Probe LNHEP11 über den (y, z) -Ortskoordinaten dargestellt. Zur

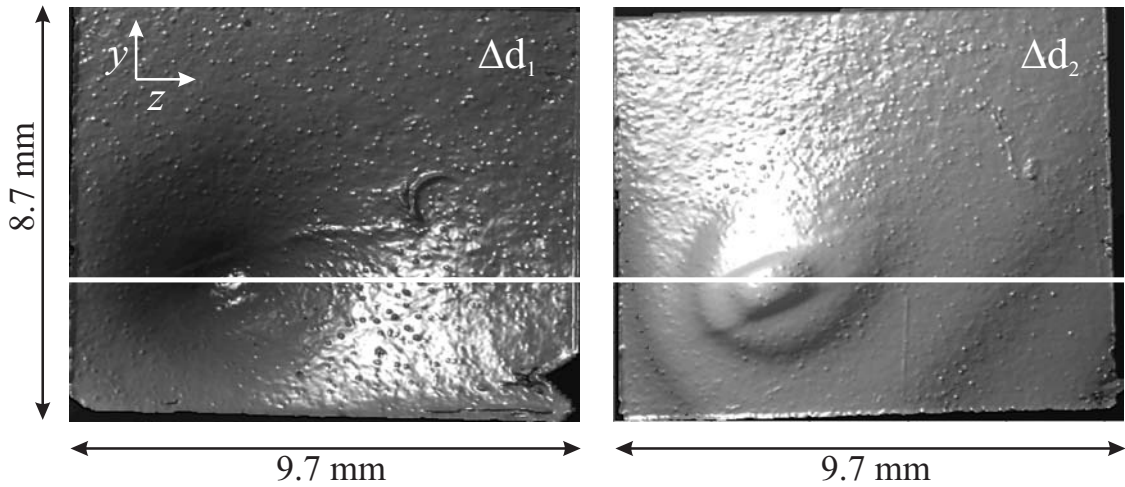


Abbildung 3.23: Interferometrisch gemessene Oberflächendeformationen der Probe LNHEP11 über den (y, z) -Ortskoordinaten: Δd_1 , Vorderseite (der Strahlungsquelle zugewandt); Δd_2 , Rückseite. Weiße Linie: Position des Schnitts für die Auftragung in Abb. 3.24

besseren Sichtbarkeit der Oberflächenstruktur werden bei der Darstellung der Daten in Abb. 3.23 Beleuchtungseffekte (Lichtquelle links) simuliert. Man sieht, dass sich bei Δd_2 in eine Art „Nase“ herausgebildet hat. Ein Schnitt durch die Oberflächendeformationen sowie die Gesamtdickenänderung Δd_{ges} ist in Abb. 3.24 über z aufgetragen. Auch hier ist eine

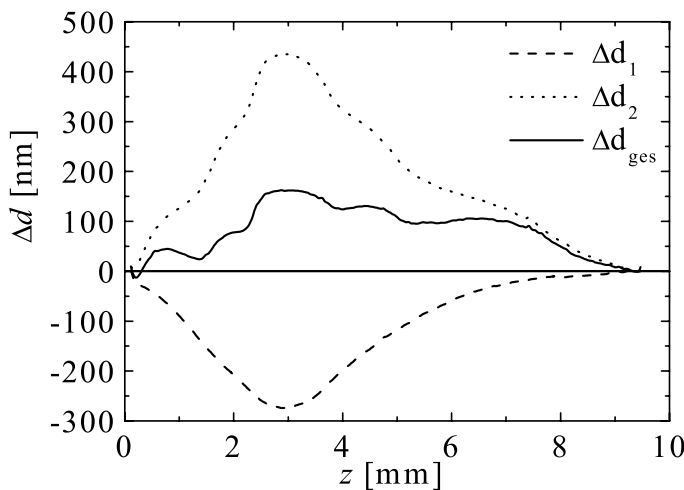


Abbildung 3.24: Interferometrisch gemessene Oberflächendeformationen der Probe LNHEP11 über z : Δd_1 , Vorderseite (der Strahlungsquelle zugewandt); Δd_2 , Rückseite; Δd_{ges} , Gesamtdickenänderung ($\Delta d_{\text{ges}} = \Delta d_1 + \Delta d_2$).

deutliche, wenn auch kleinere Durchbiegung als bei der Probe Alpha zu erkennen. Diese Probe weist allerdings auch eine kleinere Brechungsindexänderung von $n_{\text{P,epol}} \simeq -1.3 \times 10^{-3}$ und $n_{\text{P,epol}} \simeq 1.2 \times 10^{-3}$ auf. Außerdem fällt auf, dass die Gesamtdickenänderung Δd_{ges}

nicht null ist, sondern positive Werte bis zu 150 nm annimmt. Durchbiegung und Gesamtdickenänderung nehmen im Verlauf der isochronen Erholung ab (siehe nächster Abschnitt). Nach der Temperung bei 215 °C sind diese nur noch etwa halb so groß und nach der bei 515 °C ist keine Durchbiegung mehr feststellbar.

3.3.4 Thermische Behandlungen

Die Probe LNHEP6 wird getempert: 12 h bei 200 °C, nochmal 12 h bei 200 °C, 12 h bei 300 °C, nochmal 12 h bei 300 °C und 12 h bei 400 °C. Vor, zwischen und nach den Behandlungen wird Δn_P für außerordentliche und ordentliche Lichtpolarisation ermittelt. Der Verlauf ist in Abb. 3.25 zu sehen. Man erkennt, soweit im Rahmen des Messfehlers

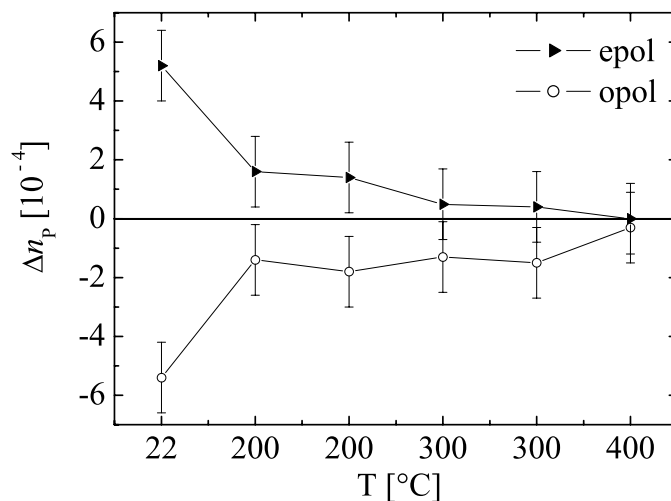


Abbildung 3.25: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung Δn_P [Gl. (3.7)] der Probe LNHEP6 vor, zwischen und nach den Temper-Behandlungen (siehe Text) für außerordentliche (epol) und ordentliche (opol) Lichtpolarisation über der jeweiligen Temperatur.

möglich, dass wiederholte Temper-Behandlungen bei der gleichen Temperatur keine weitere Änderung des Brechungsindex bewirken. Eine Zeit von 12 h ist demnach ausreichend, um ein stabiles Gleichgewicht bei den jeweiligen Temperaturen herzustellen.

Die Probe LNHEP11 wird einer isochronen Erholung unterzogen. Als Zeitintervall werden 30 min, als Temperaturintervall 50 °C gewählt. Abbildung 3.26 zeigt das Ergebnis. Man erkennt, dass Δn_P bis 100 °C stabil bleibt. Daran anschließend gibt es für beide Polarisationen einen Bereich mit großer Steigung (positiv bzw. negativ) und ab ca. 300 °C einen Bereich mit kleinerer Steigung. Bei 500 °C ist kein Δn_P mehr feststellbar. Bei $\Delta n_{P,epol}$ scheint es am vierten Messpunkt einen Knick zu geben, der im Rahmen des Messfehlers aber nicht signifikant ist. Um dies näher zu untersuchen, wird das Experiment in abgewandelter Form mit der Probe LNHEP21 wiederholt (Abb. 3.27). Durch die verbesserte Auflösung ist zu erkennen, dass bis ca. 100 °C keine Änderung eintritt, sich dann zwischen 100 °C und 200 °C ein steilerer Verlauf zeigt, der bis 300 °C wieder abflacht. Ab 300 °C ist die Steigung etwa gleichbleibend. Der scharfe Knick bei LNHEP11 kann also als kleiner Ausreißer entlarvt werden.

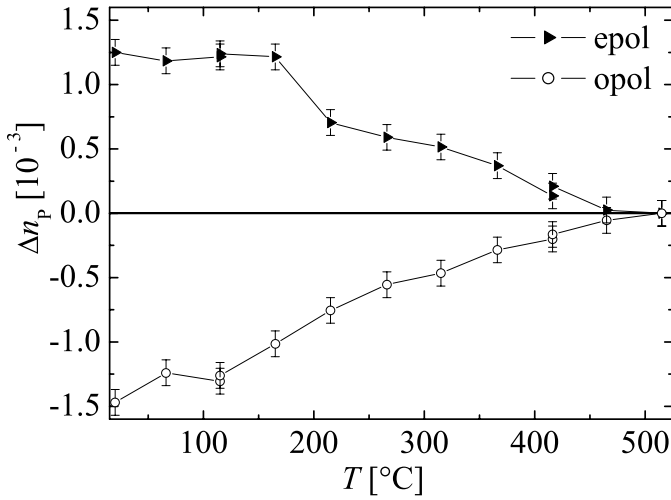


Abbildung 3.26: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung Δn_P [Gl. (3.7)] für außerordentliche (epol) und ordentliche (opol) Polarisation bei der isochronen Erholung der Probe LNHEP11 über der jeweiligen Temperatur. Als Zeitintervall werden 30 min, als Temperaturintervall $50\text{ }^\circ\text{C}$ gewählt. (Zwischen den doppelt gemessenen Datenpunkten liegen 12 h bzw. 1 Woche Wartezeit).

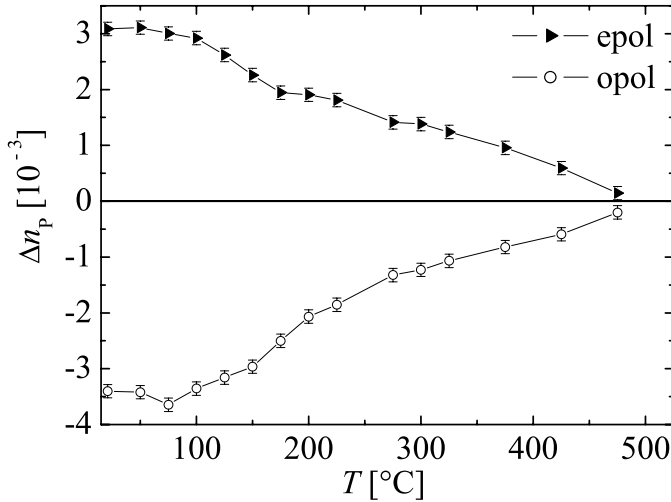


Abbildung 3.27: Strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung Δn_P [Gl. (3.7)] für außerordentliche (epol) und ordentliche (opol) Polarisation bei der isochronen Erholung der Probe LNHEP21 über der jeweiligen Temperatur. Als Zeitintervall werden 15 min, als Temperaturintervall $25\text{ }^\circ\text{C}$ gewählt.

3.3.5 Elektrooptischer Effekt

Die Probe LNHEP1 wird in dem in Abb. 3.8 skizzierten Aufbau untersucht. Die Ergebnisse zeigt Abb. 3.28. Während man im unbestrahlten Bereich bei der Wellenlänge $\lambda = 488\text{ nm}$ einen Wert für $r_{33} \simeq 30\text{ pm V}^{-1}$ ermitteln kann, der dem Literaturwert entspricht [74], ist im bestrahlten Bereich keine Modulation erkennbar, das Material ist wahrscheinlich zu leitfähig und baut die externen Felder ab.

Die Probe LNHEP1 wird nun bei $200\text{ }^\circ\text{C}$ für 12 h getempert. Anschließend wird das Experiment wiederholt, diesmal mit $\lambda = 633\text{ nm}$ (Abb. 3.29). Nun ist in beiden Fällen Modulation zu beobachten. Für den unbestrahlten Bereich erhält man $r_{33} \simeq 23\text{ pm V}^{-1}$ und für den bestrahlten Bereich $\tilde{r}_{33} \simeq 27\text{ pm V}^{-1}$. Eine Nachmessung mit der anderen Methode [85] ergibt im unbestrahlten Bereich $r_{33} \simeq 30\text{ pm V}^{-1}$ und $r_{13} \simeq 6\text{ pm V}^{-1}$ und im bestrahlten Bereich $\tilde{r}_{33} \simeq 33\text{ pm V}^{-1}$ und $\tilde{r}_{13} \simeq 8\text{ pm V}^{-1}$.

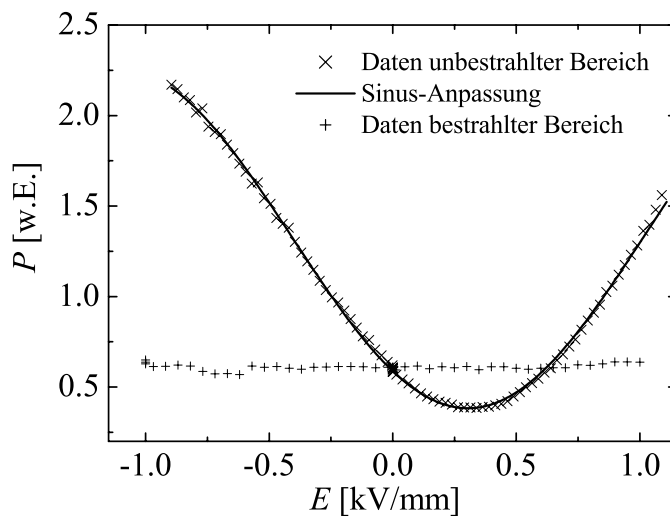


Abbildung 3.28: Variation der Lichtleistung P über dem angelegten Feld E der Probe LNHEP1 bei der Bestimmung von r_{33} mit dem Aufbau in Abb. 3.8.

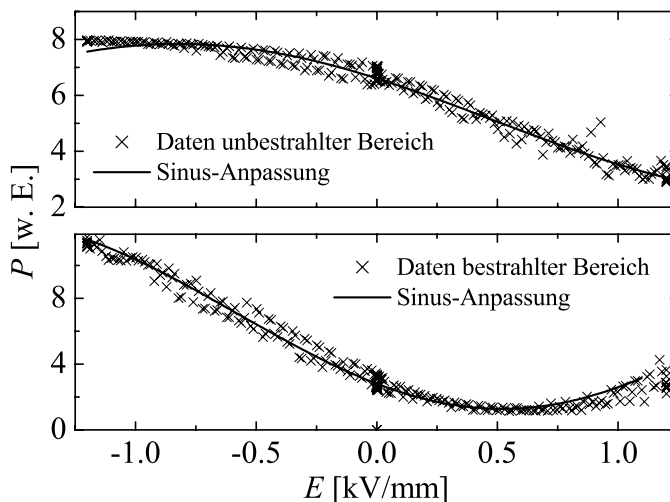


Abbildung 3.29: Variation der Lichtleistung P über dem angelegten Feld E der Probe LNHEP1 bei der Bestimmung von r_{33} nach dem Aufbau in Abb. 3.8. Die Probe wird vorher bei $200\text{ }^{\circ}\text{C}$ für 12 h getempert. Oben: Messung im unbestrahlten Bereich. Unten: Messung im bestrahlten Bereich.

3.3.6 Wellenleitung

In Abb. 3.30 ist die vergrößerte Aufnahme einer (x,y)-Stirnfläche einer bestrahlten WL-Probe gezeigt. Wie in Abb. 3.6 angedeutet, erkennt man die verschieden stark bestrahlten Regionen. Die doppelt bestrahlten Flächen weisen die oben gezeigten Verfärbungen auf. Die Bragg-Peaks sind klar als dunkle Linien erkennbar. Durch Schattenwurf an den W-Folien entstehen hellere (nur $1\times$ bestrahlte) Bereiche, die Bragg-Peaks sind dadurch unterbrochen. Die Stopptiefe ist mit 0.55 mm etwas größer als gemäß der SRIM2003-Simulation zu erwarten war. Das Bild stimmt gut mit den in Abb. 3.6 angedeuteten Erwartungen überein. Der Bereich, in dem sich die W-Folien-Schatten kreuzen, führt Licht, wie in Abb. 3.31 dargestellt ist. Wenn man die gesamte Lichtleistung hinter der Probe im Fall a) und b) in Abb. 3.31 misst und vergleicht, kommt man bei b) auf den doppelten Wert. Die Dämpfung beträgt demnach 3 dB , was normiert auf die Länge von 6 mm eine spezifische Dämpfung von 5 dB/cm ergibt.

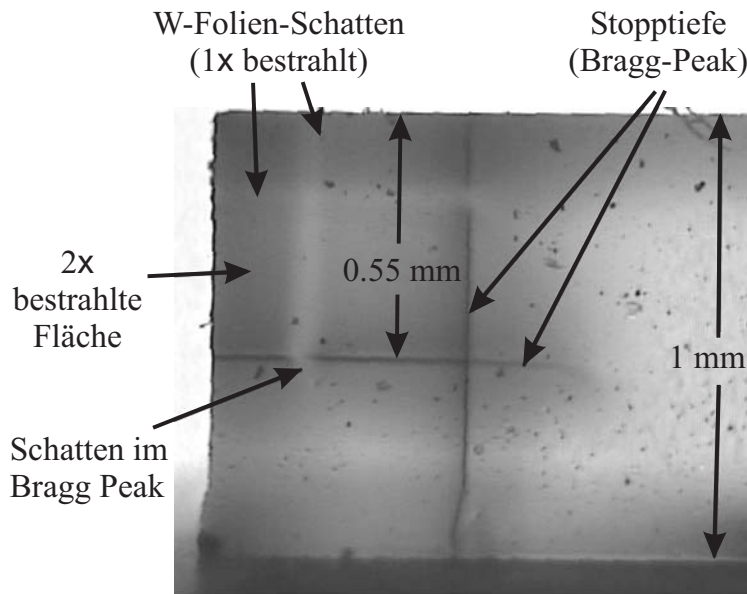


Abbildung 3.30: Vergrößerte Aufnahme einer (x,y)-Stirnfläche einer bestrahlten WL-Probe (vgl. Abb. 3.6).

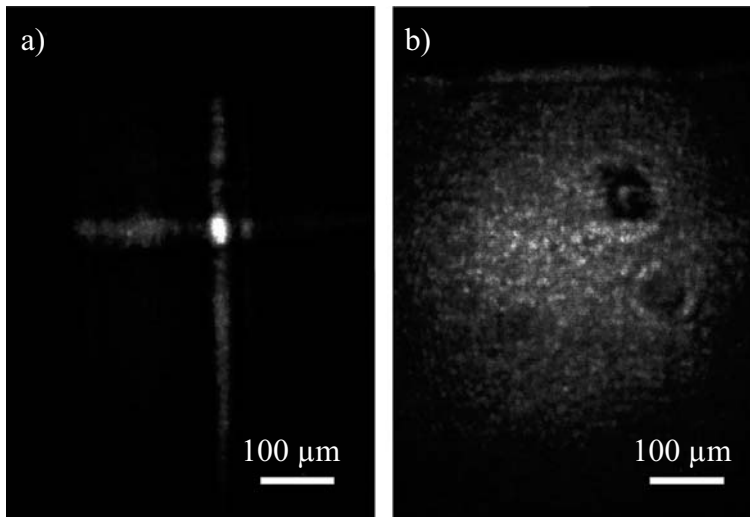


Abbildung 3.31: Intensitätsverteilung im Lichtaustrittsbereich einer WL-Probe im Messaufbau nach Abb. 3.9. a) Das Licht wird in den unbestrahlten Kanal eingekoppelt (vgl. Abb. 3.6). b) Um Faktor 6 gegenüber a) verstärkte Aufnahme der Intensitätsverteilung, wenn das Licht weit außerhalb des bestrahlten Bereichs durch den Kristall propagiert.

Abbildung 3.32 zeigt einen Schnitt entlang der vertikalen Achse durch die Mitte des hellen Flecks in Abb. 3.31, a). Die Daten können sehr gut mit einer Gauß-Anpassung wiedergegeben werden. Die volle Breite an der halben Höhe des Maximums (FWHM) beträgt $27 \mu\text{m}$. Eine weitere WL-Probe wird so bestrahlt, dass der unbestrahlte Kanal senkrecht zur c -Achse liegt. Durch eine Polarisationsfolie, die hinter dem Austrittsbereich der Probe angeordnet ist, kann das ordentlich polarisierte Licht getrennt vom außerordentlich polarisierten Licht betrachtet werden. In Abb. 3.33 ist die Intensitätsverteilung für beide Polarisierungen dargestellt. Man erkennt, dass nur ordentlich polarisiertes Licht geführt wird.

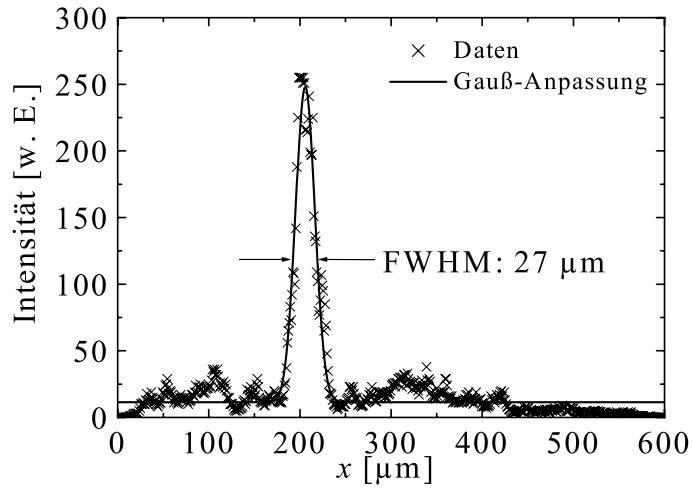


Abbildung 3.32: Schnitt entlang der vertikalen Achse durch die Mitte des hellen Flecks in Abb. 3.31 a) mit Gauß-Anpassung. Die Anpassung hat eine FWHM-Breite (volle Breite an der halben Höhe des Maximums) von 27 μm .

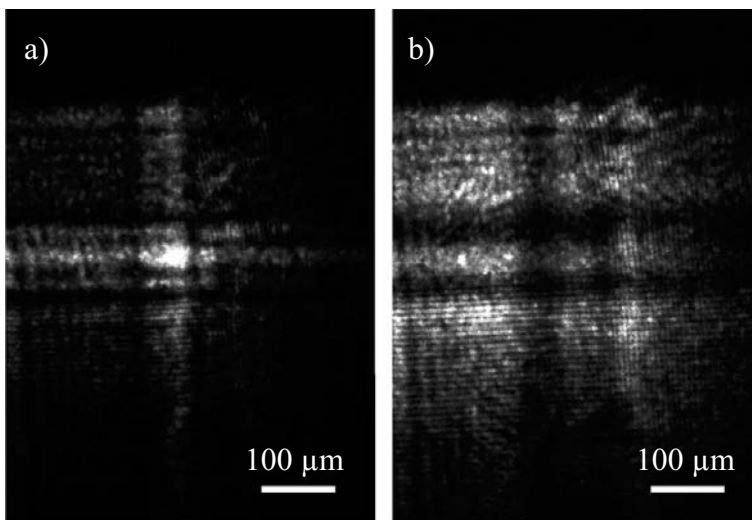


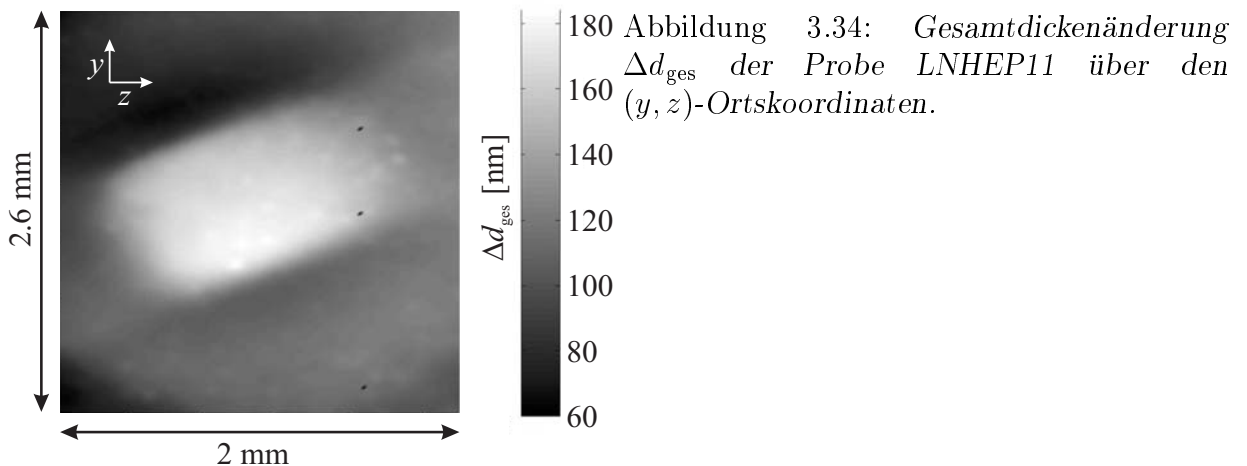
Abbildung 3.33: Intensitätsverteilung im Lichtaustrittsbereich einer WL-Probe im Messaufbau nach Abb. 3.9. Das Licht wird in den unbestrahlten Kanal eingekoppelt (vgl. Abb. 3.6). Die c -Achse liegt hier parallel zur Austrittsfläche. Durch Drehen einer Polarisationsfolie kann das ordentlich polarisierte Licht a) getrennt vom außerordentlich polarisierten Licht b) betrachtet werden.

3.4 Diskussion

In diesem Kapitel wird versucht, anhand einfacher Abschätzungen zu klären, welche Ursachen für die Brechungsindexänderungen im Durchgangsbereich schneller, leichter Ionen in LiNbO_3 in Frage kommen. Zunächst werden Volumenänderungen und daraus abgeleitete Effekte diskutiert. Im Anschluss geht es darum, das Ausmaß der Strahlenschäden abzuschätzen und die möglichen Ursachen einzustufen. Es folgt eine qualitative Deutung. Die Ausheilung der Strahlenschäden ist Gegenstand des nächsten Abschnitts. Dann wird die Absorptionsänderung im VIS und die Verschiebung der Bandkante diskutiert. Schließlich werden die Beobachtungen zur Wellenleitung interpretiert.

3.4.1 Volumenänderungen

Aus den Oberflächendeformationen der Probe LNHEP11 lässt sich schon deutlich erahnen, dass es bei der Bestrahlung auch zu Volumenänderungen kommt (Abb. 3.23 u. 3.24). Es ist nicht klar, warum sich diese auch auf den unbestrahlten Bereich auswirkt. Vermutlich ist dies die Folge der starken Verzerrung, die sich auch in der Durchbiegung äußert. Durchbiegung und Volumenänderung zeigen bei Temperaturerhöhung etwa die gleiche Relaxation wie die Brechungsindexänderung. Dies legt den Schluss nahe, dass die Effekte korreliert sind. Um die Größenordnung des Einflusses des photoelastischen Effekts sowie der geänderten Massedichte auf die Brechungsindexänderung abzuschätzen, wird die Volumenänderung aus dem Bereich der „Nase“ von Probe LNHEP11 vor der ersten Temperung bestimmt. Diese „Nase“ gibt sehr gut die Form der bei der Bestrahlung verwendeten Schlitzblende wieder. Abbildung 3.34 zeigt den entsprechenden Ausschnitt der Gesamtdickenänderung Δd_{ges} über den (y, z) -Ortskoordinaten. Aus der Durchbiegung von ca. 300 nm (Abb. 3.24) kann



man einfachen geometrischen Überlegungen folgend, wobei man eine sphärische Form des durchgebogenen Kristalls annimmt, die gleichmäßige Ausdehnung in y - und z -Richtung bestimmen. Diese ist vernachlässigbar klein ($\Delta y/y \simeq \Delta z/z \simeq 2.4 \times 10^{-9}$). Die Volumenänderung $\Delta V/V$ geht also im wesentlichen auf eine Ausdehnung in x -Richtung zurück, die mit $\Delta x/x \simeq 150 \text{ nm}/500 \text{ } \mu\text{m} = 3 \times 10^{-4}$ recht groß ist (Abb. 3.24). Aus dem in Abb. 3.34

gezeigten Ausschnitt erhält man ein Wert $\Delta V/V = 2.3 \times 10^{-4}$. Hieraus folgt eine Massedichteänderung $\Delta \rho = -1.1 \times 10^{-3} \text{ g cm}^{-3}$, wenn man für LiNbO_3 eine Dichte $\rho = 4.65 \text{ g cm}^{-3}$ ansetzt [89]. Mit einer zu Gl. (2.6) äquivalenten Gleichung erhalten wir für LiNbO_3 und beide Polarisierungen (epol u. opol): $R_{\text{LL}}^e/M_{\text{mol}} = 0.121 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$ und $R_{\text{LL}}^o/M_{\text{mol}} = 0.126 \text{ cm}^3 \text{ g}^{-1}$. Durch partielle Ableitung von Gl. (2.6) nach ρ und austauschen der Material-Terme erhält man

$$\Delta n_{\rho}^{\text{pol}} = \frac{\partial n_{\rho}^{\text{pol}}}{\partial \rho} \Delta \rho = \frac{3 \frac{R_{\text{LL}}^{\text{pol}}}{M_{\text{mol}}}}{2 \left(1 - \rho \frac{R_{\text{LL}}^{\text{pol}}}{M_{\text{mol}}}\right)^2 \sqrt{\left(1 + \rho \frac{R_{\text{LL}}^{\text{pol}}}{M_{\text{mol}}}\right) / \left(1 - \rho \frac{R_{\text{LL}}^{\text{pol}}}{M_{\text{mol}}}\right)}} \Delta \rho \quad , \quad (3.9)$$

wobei $\Delta n_{\rho}^e = -4.7 \times 10^{-4}$ und $\Delta n_{\rho}^o = -5.3 \times 10^{-4}$ sind. Betragsmäßig sind das jeweils ca. 40 % der Messwerte $\Delta n_{\text{p}}^e = 1.2 \times 10^{-3}$ und $n_{\text{p}}^o = -1.3 \times 10^{-3}$. Obwohl dies nur eine grobe Abschätzung ist, wird deutlich, dass der Einfluss der Volumenänderung nicht vernachlässigt werden kann. Es muss außerdem noch mindestens einen weiteren Effekt geben, der zusammen mit $\Delta n_{\rho}^{\text{pol}}$ die gemessenen Brechungsindexänderungen erzeugt:

$$\begin{aligned} \Delta n_{\xi}^e &= \Delta n_{\text{p}}^e - \Delta n_{\rho}^e \simeq 1.7 \times 10^{-3} \quad , \\ \Delta n_{\xi}^o &= \Delta n_{\text{p}}^o - \Delta n_{\rho}^o \simeq -7.7 \times 10^{-4} \quad . \end{aligned} \quad (3.10)$$

Der gesuchte Effekt sollte die Brechungsindizes für Licht der beiden Polarisierungen also mit dem Faktor $\Delta n_{\xi}^e/\Delta n_{\xi}^o \simeq -2$ unterschiedlich stark beeinflussen.

Verzerrungen eines LiNbO_3 -Kristalls führen i. a. zu Brechungsindexänderungen. Hierfür ist der photoelastische Effekt verantwortlich [74]:

$$\Delta n_{\text{pe}}^{ij} = -\frac{1}{2} n_{ij}^3 p_{ijkl} S_{kl} \quad , \quad (3.11)$$

mit dem photoelastischen Tensor p_{ijkl} und dem dimensionslosen Verzerrungstensor S_{kl} . Aus Abb. 3.24 kann man abschätzen, dass sich die x -Achse des Kristalls, wie erwähnt, um $\Delta x/x = 150 \text{ nm}/500 \text{ } \mu\text{m} = 3 \times 10^{-4}$ verzerrt. Die Verzerrung in y - und z -Richtung ist zu vernachlässigen. Wir benötigen die entsprechenden photoelastischen Koeffizienten $p_{11} = -0.026$ und $p_{31} = 0.179$ [74,90] und erhalten $\Delta n_{\text{pe}}^e = -2.9 \times 10^{-4}$ und $\Delta n_{\text{pe}}^o = 4.7 \times 10^{-5}$. Für den Fall, dass die hierfür verwendete Vereinfachung nicht zu stark von der Realität abweicht, kommt man zu dem Ergebnis, dass diese Werte erstens zu klein sind und zweitens jeweils das falsche Vorzeichen haben, um den dominierenden Teil der beobachteten Brechungsindexänderungen zu erklären. Lediglich der p_{31} könnte zu dem etwas ungleichen Verhältnis zwischen n_{p}^e und n_{p}^o beitragen. Es ist also unwahrscheinlich, dass der photoelastische Effekt den unbekanntem Beitrag $\Delta n_{\xi}^{\text{pol}}$ vollständig beschreibt. Eine Kombination aus piezoelektrischem und elektrooptischem Effekt kommt auch nicht in Frage, da das ebenfalls nicht zu den richtigen Vorzeichen führt und zudem wegen der stark erhöhten Leitfähigkeit (Abb. 3.28) keine genügend großen elektrischen Felder aufzubauen wären.

3.4.2 Vergleich mit Simulationsdaten

Die Simulation der Strahlenschäden wird mit dem Programm SRIM2003 durchgeführt [78,83]. Es werden insgesamt 10000 $53 \text{ MeV}^{-4} \text{He}^{2+}$ -Ionen beim Durchgang durch $100 \text{ } \mu\text{m}$

dicke Al-Folie und 500 μm dickes LiNbO_3 simuliert. Die Ergebnisse werden auf die Versuchsbedingungen der Bestrahlung von Probe Alpha hochgerechnet. Geht man davon aus, dass alle Ionen bei der Bestrahlung die Probe treffen, kommt man auf eine Zahl von 1.12×10^{16} in einem Volumen von $V \simeq 9.82 \text{ mm}^3$. Abbildung 3.35 zeigt die so berechneten Konzentrationen C_{Vac} für Li-, Nb- und O-Leerstellen. Die Simulation kommt auf beachtliche Konzentrationen

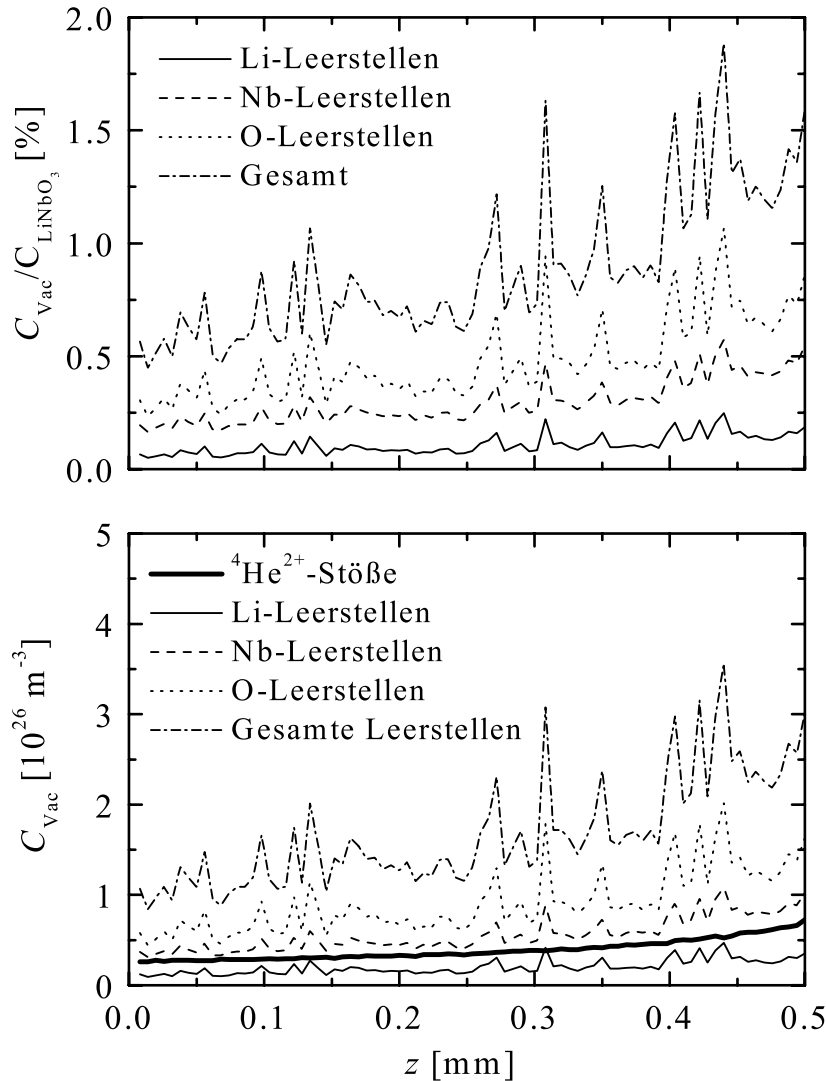


Abbildung 3.35: Mit SRIM2003 simulierte Konzentrationen C_{Vac} der Li-, Nb- und O-Leerstellen über der Eindringtiefe z . Oben: Verhältnis C_{Vac} zur Konzentration (hypothetischer) LiNbO_3 -„Moleküle“ C_{LiNbO_3} . Unten: C_{Vac} + Ereignisdichte der $^4\text{He}^{2+}$ -Stöße.

nen, welche für die beobachteten Effekte mehr als ausreichend sein sollten. Einschränkend ist folgendes über Simulationen mit SRIM2003 zu sagen:

1. Das Target-Material ist immer amorph, Atome werden zufällig angeordnet.
2. Es werden keine Nuklear-Reaktionen simuliert [78].
3. Sättigungseffekte werden nicht berücksichtigt [78].

4. Es können nicht mehr als 8000 Atome pro Kaskade berechnet werden.
5. Selbstreparatur-Mechanismen des Materials werden nicht berücksichtigt [78].

Die zweite Aussage ist unkritisch: Aus den gemessenen Aktivitäten kann man abschätzen, dass das Verhältnis der radioaktiven Nb-Kerne zu den unberührten Nb-Kernen etwa 3×10^{-10} beträgt. Aus der vierten Aussage folgt, dass die tatsächlichen Strahlenschäden größer sein könnten, als in der Simulation. Bei den anderen Aussagen ist es umgekehrt. Dennoch ist der Verlauf der Leerstellenkonzentration analog zur Brechungsindexänderung zu großen Eindringtiefen hin ansteigend ¹ (Abb. 3.36).

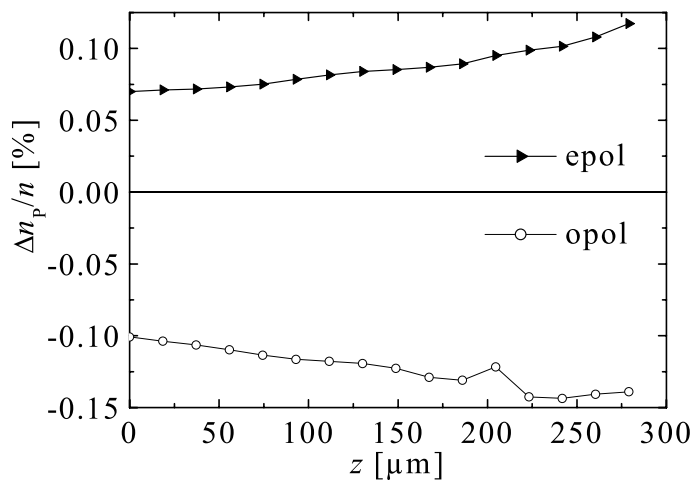


Abbildung 3.36: Relative Brechungsindexänderung $\Delta n_p/n$ der Probe Alpha über der Eindringtiefe z für außerordentlich (epol) und ordentlich (opol) polarisiertes Licht.

In der Simulation ist kein einziges 180°-Rückstoß-Ereignis aufgetreten. Allerdings ist mindestens einmal eine Kollisionskaskade mit potentiell mehr als 8000 Atomen entstanden. Bis auf 5 haben alle Ionen den Kristall wieder verlassen. Das bedeutet, dass nicht mal 1 ‰ im Kristall verblieben ist.

In dem Grundlagen-Abschnitt 3.1.3 wird die Möglichkeit der „Ionen-Explosion“ als Mechanismus für Strahlenschäden behandelt. Hierfür wird die von den Ionen an die Kristallatome abgegebene Ionisationsenergie benötigt. Auch diese lässt sich mit SRIM2003 berechnen (Abb. 3.37). Man findet, dass die abgegebene Energie mehr als ausreichend ist, um jedes Atom mehrfach zu ionisieren. Was das nun für die These der Ionen-Explosion bedeutet, ist nicht einfach zu interpretieren. Dieser Mechanismus scheint jedenfalls nicht sehr effektiv zu sein, da sonst der ganze Kristall zerstört würde. Dennoch, oder gerade deswegen kann er natürlich eine große Rolle bei der Defektbildung haben. Integriert man die Ionisationsenergie über das durchstrahlte Volumen, kommt man auf 56.5 kJ. Das sind etwa 30 % der elektrischen Energie des über die Bestrahlzeit integrierten Ionenstroms ($1 \mu\text{Ah} \times 53 \text{ MV}$).

¹Dies ist nur eine naheliegende Vermutung. Es ist nicht bekannt, wie herum die Probe Alpha bei der Bestrahlung eingebaut war.

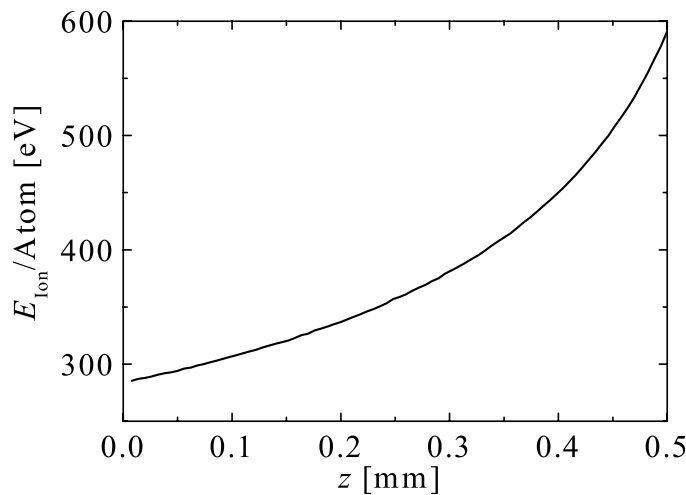


Abbildung 3.37: SRIM2003-Simulation der pro Atom abgegebenen Ionisationsenergie E_{ion} über der Eindringtiefe z .

3.4.3 Deutung

Die OH-Bande im IR (Abb. 3.14) wird durch Streckschwingungen von Wasserstoff-Atomen in der Umgebung des Sauerstoffs verursacht. Man kann dieses System in guter Näherung als harmonischen Oszillator betrachten. Die Verschiebung der Resonanzfrequenz zu kürzeren Wellenlängen lässt vermuten, dass sich die Umgebung des Sauerstoffs so verändert hat, dass der Wasserstoff enger gebunden wird. Die Federkonstante wird dabei um ca. 4 % größer, d. h. die Bindung wird enger. Aus dem Verhältnis der Höhen an der Stelle des unverschobenen Peaks (Abb. 3.14) kann man abschätzen, dass etwa 75 % der OH-Systeme von der Änderung betroffen sind. Nach der Temperung sind es sogar mehr als 90 %. Hier kann man sich wiederum vorstellen, dass der Wasserstoff bevorzugt an andere Stellen gewandert ist, die einen tieferen Potentialtopf besitzen. Dass die Höhe des neuen Peaks kleiner ist als die des alten, kann man z. B. mit einem verringerten Wirkungsquerschnitt bzw. einer reduzierten Oszillatorstärke erklären. In der Schadensimulation sind Sauerstoff-Leerstellen am häufigsten vertreten (Abb. 3.35). Diese Fakten legen den Schluss nahe, dass sich die Umgebung des Sauerstoffs in großem Umfang verändert haben muss. Sei es durch Verlagerung der nächsten Kationen (Nb oder Li) oder durch Verlagerung des Sauerstoffs selbst.

Sauerstoff ist hauptverantwortlich für die Anisotropie des Brechungsindex [74]. Er wirkt sich je nach Richtung eines angelegten äußeren Feldes polarisierend oder depolarisierend auf seine nächsten Nachbarn aus. In Abb. 3.38 ist dies schematisch für Li gezeigt. Dabei ist E das schnell oszillierende elektrische Feld einer Lichtwelle, das in den Atomen Dipole erzeugt. Im links dargestellten Fall ist die gesamte Polarisierung geringer als im rechten Teil. Dies wirkt sich mit gleichem Vorzeichen auf den Brechungsindex aus. Im Prinzip kann man sich so die Ursache des verringerten Brechungsindex für außerordentliche (epol) und des erhöhten für ordentliche (opol) Lichtpolarisation vorstellen. Greift man hier nun ein, in dem man einzelne Atome verlagert, sind die beobachteten Brechungsindexänderungen qualitativ erklärbar.

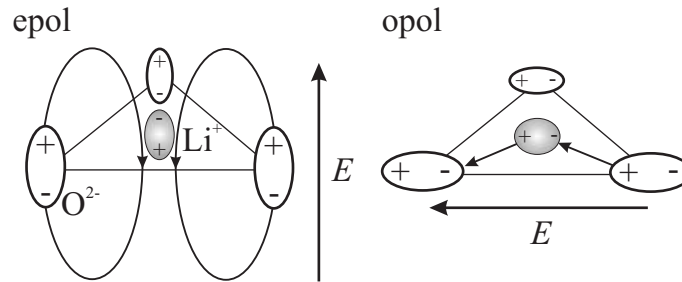


Abbildung 3.38: Schematische Darstellung der depolarisierenden (links) und polarisierenden (rechts) Wirkung von O^{2-} auf Li^+ . E ist das schnell oszillierende elektrische Feld einer Lichtwelle, das in den Atomen Dipole erzeugt.

3.4.4 Ausheilung

Im Verlauf der Brechungsindexänderung über der Temperatur treten bei der isochronen Erholung unterschiedlich große Steigungen in verschiedenen Temperatur-Bereichen auf (Abb. 3.27). Ab ca. 100 °C fängt der Abbau der Brechungsindexänderung an, bei 150 °C ist ein besonders steiler Verlauf zu erkennen, der ab 300 °C wieder flacher wird und bei ca. 500 °C gegen Null geht. Dieses Verhalten lässt sich prinzipiell über die Diffusion von Ionen erklären, die bei verschiedenen Temperaturen beweglich werden. Abbildung 3.39 zeigt schematisch, wie Ionen sich im periodischen Potential eines Kristalls durch sog. „Hopping“ fortbewegen. Die Wahrscheinlichkeit pro Sekunde p (auch Sprungfrequenz genannt), dass ein

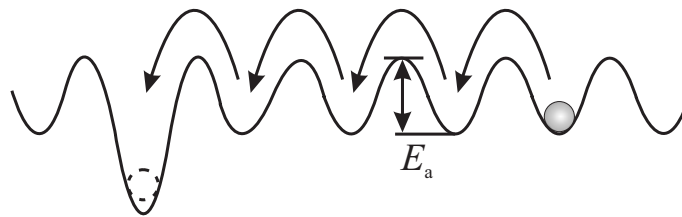


Abbildung 3.39: Schematische Darstellung der Diffusion von Ionen im periodischen Potential eines Kristalls und Definition der Aktivierungsenergie E_a .

Ion eine Barriere überwindet, ist im wesentlichen über die Aktivierungsenergie E_a und die Temperatur T gegeben:

$$p = \nu e^{-E_a/k_B T} \quad , \quad (3.12)$$

mit der Boltzmann-Konstanten k_B und einer charakteristischen atomaren Schwingungsfrequenz ν [91]. Setzt man, als groben Richtwert für $\nu \simeq 1 \times 10^{13} \text{ s}^{-1}$, was in etwa der Frequenz von Gitterschwingungen entspricht, und für die Aktivierungsenergie die entsprechenden Werte der Veröffentlichung [92], $E_a^{\text{Li}} = 1.98 \text{ eV}$, $E_a^{\text{Nb}} = 1.07 \text{ eV}$ und $E_a^{\text{O}} = 1.27 \text{ eV}$, ein, kann man für p den in Abb. 3.40 gezeigten Verlauf erkennen. Dieses Resultat ist nur mit größter Vorsicht zu interpretieren, da die Aktivierungsenergien aus der Veröffentlichung [92] bei Temperaturen von ca. 1000 °C bestimmt wurden, und die genauen Werte der Schwingungsfrequenzen ν der Ionen i. a. unterschiedlich sein können. Nimmt man aber tatsächlich an, dass die Annahmen weitgehend korrekt sind, lässt sich der Ausheilprozess folgendermaßen

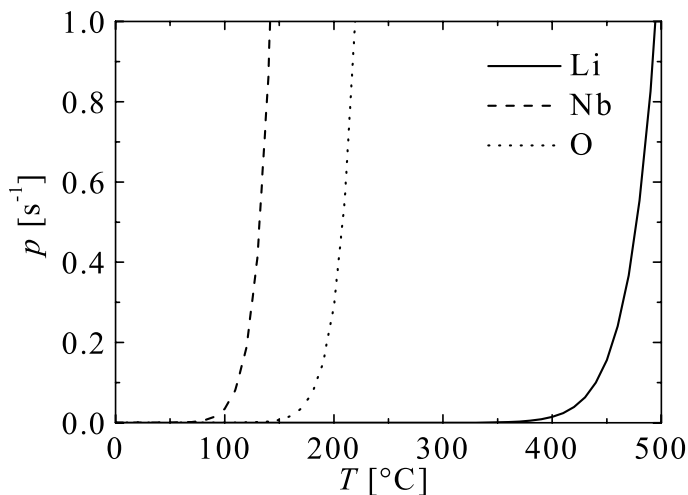


Abbildung 3.40: Sprungfrequenzen p nach Gl. (3.12) für Li, Nb, und O in Lithiumniobat über der Temperatur T . Es werden Werte für die Aktivierungsenergien E_a aus der Veröffentlichung [92] verwendet.

verstehen: Zuerst wird Niob mobil, dann folgt der Sauerstoff, der bei ca. 150 °C den steilen Verlauf in der isochronen Erholung verursacht. Ab ca. 200 °C gibt es nur noch Lithium, das erst nur schwer, bei höheren Temperaturen aber immer schneller umverteilt wird. Bei 500 °C sind im wesentlichen alle Defekte abgebaut.

3.4.5 Farbänderung

Da bei der Bestrahlung viele Elektronen von schnellen Ionen mitgerissen werden, können sich leicht elektronische Defekte bilden. Hierbei kann es sich sowohl um Lochpolaronen (die Elektronen werden fortgerissen) oder auch um Farbzentren handeln, wenn ein Elektron eine Sauerstoff-Leerstelle vorfindet [91,93]. Lochpolaronen sollten durch Anregung aus dem Valenzband und damit verbundene Löcherleitung langsam wieder abgebaut werden können. Die schwerfällige Abnahme der Absorptionsänderung durch die Beleuchtung mit blauem Laserlicht spricht für diese These [87,94]. Es verwundert nicht, dass diese elektronischen Defekte durch Temperaturbehandlung schnell wieder abgebaut werden können, da Elektronen bei 200 °C schon sehr beweglich sind.

Die Verschiebung der Bandkante wird vermutlich durch die ionischen Defekte verursacht, die bei 200 °C noch teilweise vorhanden sind und effektiv die Bandlücke verkleinern. Es bliebe zu überprüfen, ob die bei 500 °C ausgeheilten Proben im bestrahlten Bereich wieder eine normal breite Bandlücke aufweisen.

3.4.6 Wellenleitung

Mit der Methode des Teilchendurchschusses ist es möglich, Wellenleiter in Lithiumniobat herzustellen (Abb. 3.31). Die relativ hohe Dämpfung von 5 dB/cm ist möglicherweise dadurch zu erklären, dass der an den lichtführenden Kanal angrenzende Bereich eine hohe Absorption aufweist. Der Lichtfleck am Austrittsbereich hat eine gaußförmige Intensitätsverteilung mit einer FWHM-Breite von 27 μm (Abb. 3.32), was gut mit der Dicke der verwendeten

Wolframfolie (Abb. 3.6) übereinstimmt. Aus Berechnungen zu Existenzbereichen von Wellenleitermoden [30] kann man folgern, dass sich bei einer Brechungsindexänderung zwischen Kanal und Umgebung von ca. -1×10^{-3} nur fünf Moden ausbilden. Das man hingegen nur einen einzelnen gaußförmigen Fleck beobachten kann, legt den Schluss nahe, dass es sich hierbei um einen einmodigen Wellenleiter handelt. Für diesen Fall dürfte die Brechungsindexänderung aber nur ca. -1×10^{-4} betragen, was in Anbetracht der Tatsache, dass die direkt an den Kanal angrenzenden Bereiche nur einfach bestrahlt werden, durchaus plausibel scheint. Diese nur einfach bestrahlten Bereiche grenzen an die zweifach bestrahlten Bereiche (Abb. 3.6 u. 3.30), und bilden somit Schichtwellenleiter an den zentralen Wellenleiter ankoppeln, und so Verluste verursachen; Abb. 3.33 a) legt diese Vermutung nahe. Über die Optimierung der Bestrahlung sollte es aber möglich sein, diese Bereiche ebenso stark im Brechungsindex zu verringern, wie den Rest der Umgebung, wodurch allerdings die Modenzahl zunehmen könnte.

Durch geeignete Wahl der Bestrahlungsgeometrie kann man einen Lichtwellenleiter erzeugen, der lediglich eine Polarisationsrichtung zulässt (Abb. 3.33). Da ja der Brechungsindex für außerordentlich polarisiertes Licht nach der Bestrahlung im Kanal kleiner als in der Umgebung ist, kann dieses Licht nicht geführt werden. Somit stellt dieser Wellenleiter einen neuartigen integriert-optischen Polarisator dar.

3.5 Ausblick

Die gezeigten Arbeiten mit LiNbO_3 stehen noch am Anfang. Durch die Untersuchungen sind vor allem viele neue Fragen entstanden, die es zu beantworten gilt. Zunächst müsste die absolute Dosisabhängigkeit geklärt werden. Voraussetzung dafür ist aber, dass man sicherstellt, dass die gesamte Ladung, die die Probe durchläuft, bekannt ist. Mit einem ortsauflösenden Röntgendetektor könnte man die Aktivität in Abhängigkeit vom Probenort messen und mit der orts aufgelösten Brechungsindexänderung vergleichen. Kennt man die Gesamtladung, kann man die Gesamtaktivität darauf normieren. Man bekommt so eine lokale Abhängigkeit der Brechungsindexänderung von der durchgehenden Ladung pro Fläche q/dA . Die Dosis pro Fläche D_P/dA kann man über die Anzahl pro Fläche N_P/dA , die Wertigkeit \tilde{Z} und die kinetische Energie der Ionen E_P definieren:

$$\frac{D_P}{dA} := \frac{N_P}{dA} E_P = \frac{q}{\tilde{Z} e dA} E_P \quad . \quad (3.13)$$

Es ist e die Elementarladung. Abb. 3.41 zeigt die lokale Modulation des außerordentlichen Brechungsindex Δn_e der Probe LNHEP12 und die Aktivität, welche mit einem Pixel-detektor in der Arbeitsgruppe von N. Wermes am Physikalischen Institut der Universität Bonn gemessen wurde, über dem Probenort. Die daraus bestimmte Abhängigkeit entlang der ge-

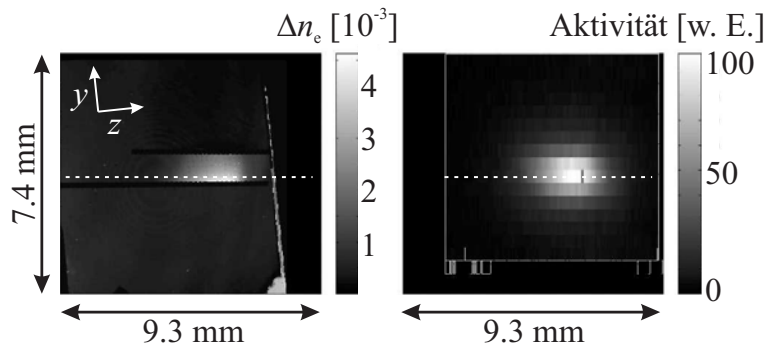


Abbildung 3.41: Lokale Modulation des außerordentlichen Brechungsindex Δn_e der Probe LNHEP12 und die Aktivität (rechts), welche mit einem Pixel-detektor gemessen wurde, über dem Probenort (gestrichelte Linie: siehe Text).

strichelten Linie in Abb. 3.41 ist in Abb. 3.42 aufgetragen. Man erkennt, dass die Zuordnung nicht eindeutig ist, da sich zwei unterschiedliche Verläufe ergeben. Ein wesentliches Problem ist die Verbreiterung der lokalen Aktivität durch die isotrop verteilte Abstrahlung der radioaktiven Kerne (Abb. 3.43). Hier könnte man vielleicht mit geeigneten Blenden, die nur einen kleinen Raumwinkel erfassen, Abhilfe schaffen.

Des Weiteren gilt es, mehr über die durch die Bestrahlung gebildeten Defekte in Erfahrung zu bringen. Interessant könnte die Entwicklung der beiden OH-Peaks nach Temperbehandlungen mit zunehmender Temperatur sein. Das Ausmaß der Strahlenschäden könnte mit Röntgenbeugung und die Ursache der Farbveränderungen mit Elektronen-Spin-Resonanz-Messungen untersucht werden.

Wenn mehr über die der Brechungsindexänderung zugrundeliegenden Effekte bekannt ist, lässt sich vermutlich auch die Bestrahlung der Wellenleiter so optimieren, dass die optische

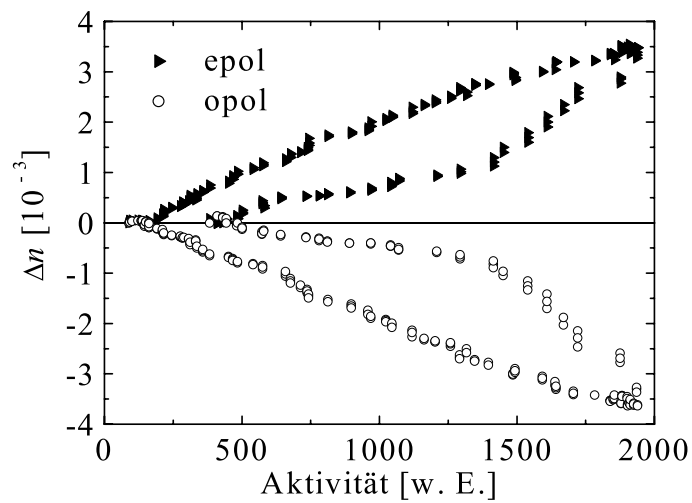


Abbildung 3.42: Lokale Modulation des Brechungsindex Δn der Probe LNHEP12 für außerordentliche (epol) und ordentliche (opol) Lichtpolarisation über der Aktivität.

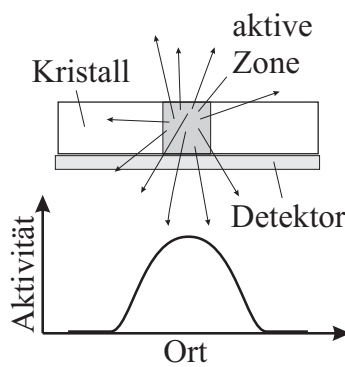


Abbildung 3.43: Schematische Darstellung der Verbreiterung der lokalen Aktivität durch die isotrop verteilte Abstrahlung der radioaktiven Kerne.

Dämpfung deutlich kleiner wird. Als nächstes sollte man klären, ob die Dämpfung durch eine nachträgliche Temperaturbehandlung bei ca. 150-200 °C nicht schon sehr viel kleiner wird. Außerdem könnte man über eine Anwendung nachdenken, die die Vorteile dieser Bestrahlungs-Methode ausnutzt.

3.6 Zusammenfassung zu LiNbO_3

Lithiumniobat zeigt im Durchgangsbereich schneller, leichter Ionen eine anisotrope Brechungsindexänderung. Der ordentliche Brechungsindex n_o wird verringert, der außerordentliche n_e wird um fast den gleichen Betrag erhöht. Mit 53 MeV- $^4\text{He}^{2+}$ - und 40 MeV- $^3\text{He}^{2+}$ -Ionen werden für Licht der Wellenlänge $\lambda = 633$ nm betragsmäßig Brechungsindexänderungen bis zu 6×10^{-3} erzielt. Die Doppelbrechung wird dadurch um bis zu 14 % reduziert.

Außerdem ist eine Kristallverzerrung zu beobachten, die sich in einer Durchbiegung der Proben äußert. Durch Abschätzung der daraus resultierenden Volumenvergrößerung kann man auf eine geänderte Massedichte schließen. Die damit verbundenen Brechungsindexverringereungen betragen etwa 40 % der gemessenen Werte. Daraus folgt, dass es einen oder mehrere weitere Effekte geben muss, die n_e etwa doppelt so stark erhöhen, wie sie n_o verringern. Hierfür kommen makroskopische Effekte wie der photoelastische Effekt nicht in Frage, da die entsprechenden Tensorelemente zu klein sind und zudem falsche Vorzeichen haben.

Die wahrscheinlichste Ursache ist eine Verlagerung von Ionen des Kristallgitters, die jeweils eine veränderte mittlere Polarisierbarkeit für n_e und n_o bewirkt. Diese Defekte können durch Temperaturbehandlungen ab ca. 100 °C ausgeheilt werden. Bei ca. 500 °C ist keine strahlungsinduzierte Brechungsindexänderung mehr feststellbar.

Außerdem tritt eine breite Absorptionsbande auf, die ihr Maximum bei einer Photonenenergie von 2.45 eV hat. Durch Beleuchtung mit Laserlicht der Wellenlänge 488 nm kann diese Farbänderung nur langsam und nur teilweise abgebaut werden. Bereits nach einer Temperbehandlung bei 200 °C ist diese Absorptionsänderung aber vollständig verschwunden, während sich die Brechungsindexänderung dabei nur auf die Hälfte reduziert. Eine Verschiebung der Bandkante um ca. 10 nm zu längeren Wellenlängen ist nach der Bestrahlung mit hochenergetischen Ionen und anschließender Temperbehandlung bei 200 °C feststellbar. Neben der Verfärbung tritt auch eine stark erhöhte Leitfähigkeit im bestrahlten Bereich auf, die elektrooptische Änderungen des Brechungsindex durch das Anlegen äußerer Spannungen erschwert. Nach einer Temperbehandlung bei 200 °C ist auch die erhöhte Leitfähigkeit verschwunden. Die elektrooptischen Koeffizienten r_{13} und r_{33} sind dann messbar und weisen die normalen Werte auf. Ursache der Verfärbung sind vermutlich Farbzentren, Polaronen oder vergleichbare elektronische Defekte.

Die durch den Ionendurchgang erzeugten Brechungsindexänderungen sind ausreichend, um Wellenleiter herzustellen. Außerdem ist es gelungen, durch geeignete Wahl der Bestrahlungsgeometrie einen neuartigen integriert-optischen Polarisator zu realisieren.

4

Zusammenfassung

In dieser Arbeit werden Brechungsindexänderungen untersucht, die sich durch Wechselwirkung von ionisierender Strahlung mit dielektrischen, optisch transparenten Festkörpern ergeben. Durch diese Wechselwirkungen ist es prinzipiell möglich, nur durch geeignete Bestrahlungen Strukturen zu erzeugen, die für viele Anwendungen in der integrierten Optik nützlich sein können. Beispielfhaft werden zwei Materialien untersucht. Zum einen geht es um **PolyMethylMethAcrylat** (PMMA), ein Polymer, welches mit Synchrotronlicht bestrahlt wird, und zum anderen um Lithiumniobat (LiNbO_3), einen oxidischen Kristall, welcher mit schnellen Helium-Ionen durchschossen wird. Ein grundlegendes Verständnis der für die Brechungsindexänderungen verantwortlichen strahlungsinduzierten Prozesse zu erlangen und eine Machbarkeitsanalyse für die Herstellung optischer Komponenten zu liefern, ist das Ziel dieser Arbeit.

Ein wesentlicher Bestandteil der hier vorgestellten Untersuchungen ist ein im Rahmen dieser Dissertation entwickeltes Interferometer, mit dem sich sowohl Brechungsindex- als auch Dickenänderungen über dem Probenort messen lassen. Mit diesem Aufbau ist die Charakterisierung der jeweiligen Brechungsindexänderungen durchgeführt worden.

Bei PMMA kommt es durch Degradation des Materials zu Dichteänderungen, die den Brechungsindex um einige 10^{-4} ändern. Bei niedrigen Dosen dominiert dabei eine Expansion des Materials; der Brechungsindex wird dadurch kleiner. Bei hohen Dosen führen chemische Veränderungen und eine Kompaktierung des Materials zu einer Brechungsindexerhöhung. Die dadurch entstehenden Brechungsindexprofile sind zunächst nicht zeitlich stabil, da durch chemisch aktive Moleküle, Radikale, der Zersetzungsprozess in Gang gehalten wird. Durch Lagerung bei erhöhten Temperaturen lassen sich diese Reaktionen beschleunigen und die Radikale vollständig abbauen, was die zeitliche Entwicklung der Profile stoppt. Die Form der Profile hängt dabei von unbekanntem Herstellungsparametern ab, so dass eine genaue Vorhersage nur mit empirischen Formeln für eine bestimmte Probensorte bei festgelegter Nachbehandlung möglich ist. Die Profile sind geeignet, um Wellenleiter zu realisieren. Das Licht wird dabei im Bereich nahe der bestrahlten Oberfläche geführt.

Lithiumniobat-Kristalle zeigen beim Durchgang schneller He-Ionen mit kinetischen Energien im Bereich von 40-50 MeV anisotrope Brechungsindexänderungen im Bereich 10^{-3} . Der außerordentliche Brechungsindex des doppelbrechenden Kristalls wird um etwa den gleichen Betrag erhöht, wie sich der ordentliche Brechungsindex verringert. Die negative Doppelbre-

chung dieses Materials wird dadurch kleiner. Die Ursache hierfür sind hauptsächlich Strahlenschäden, die beim Ionenbeschuss entstehen. Der Einfluss einer Volumenvergrößerung ist ebenfalls zu berücksichtigen. Des Weiteren treten Materialverspannungen auf, die zu einer geringen Durchbiegung der Kristalle führen, was aber keinen großen Einfluss auf den Brechungsindex hat. Außerdem ist durch den Ionenbeschuss eine dunkle Verfärbung der sonst transparenten Kristalle und eine erhöhte Leitfähigkeit im bestrahlten Bereich zu beobachten. Beide Effekte lassen sich durch eine kurze Temperbehandlung bei 200 °C vollständig abbauen. Die Brechungsindexänderung hat nach so einer Behandlung noch etwa den halben Betrag des ursprünglichen Wertes, was für Anwendungen in der integrierten Optik immer noch völlig ausreichend ist. Typische Kristalleigenschaften, wie der lineare elektrooptische Effekt, welcher über das Anlegen eines elektrischen Feldes den Brechungsindex beeinflusst, werden durch die Bestrahlung nicht wesentlich beeinträchtigt. Der Durchschuss schneller Ionen kann für die Herstellung von Wellenleitern verwendet werden, wenn man durch geschickte Bestrahlung einen Kanal erzeugt, der nur von bestrahltem Material umgeben ist, selbst aber unbestrahlt bleibt. Dieser Kanal führt nur ordentlich polarisiertes Licht. Auf diesem Prinzip beruht ein neuartiger, integriert-optischer Polarisator, der im Rahmen der vorgestellten Arbeiten realisiert werden konnte.

Die Modifikation des Brechungsindex von Dielektrika mit Hilfe ionisierender Strahlung ist eine viel versprechende Methode, die viele Anwendungen in der Photonik ermöglicht, z. B. Wellenleiter und Bragg-Wellenlängenfilter in optischen Netzen, Sensoren oder in Lasersystemen.

Literaturverzeichnis

- [1] W. C. Röntgen, „Über eine neue Art von Strahlen“, *Sitzungsberichte Würzburger Physik-med. Gesellschaft* **137**, 132–141 (1895).
- [2] A. H. Becquerel, „On the rays emitted by phosphorescence“, *Comptes Rendus* **122**, 420 (1896).
- [3] A. H. Becquerel, „On the invisible rays emitted by phosphorescence“, *Comptes Rendus* **122**, 501–503 (1896).
- [4] J. Lilley *Nuclear Physics - Principles and Applications*. Chichester: John Wiley & Sons, 2001.
- [5] J. P. Biersack and R. Kallweit, „Ion Beam Induced Changes of the Refractive Index of PMMA“, *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. B* **46**, 309–312 (1990).
- [6] A. K. Baker and P. E. Dyer, „Refractive-Index Modification of PolyLethylMethAcrylate (PMMA) Thin Films by KrF-Laser Irradiation“, *Appl. Phys. A* **57**, 543–544 (1993).
- [7] W. F. X. Frank, A. Schösser, S. Brunner, F. Linke, T. K. Stempel, and M. Eich, „Optical Properties of Waveguiding Structures in Polymers“, *SPIE* **1774**, 268–277 (1993).
- [8] W. F. X. Frank et al., „Passive Optical Devices in Polymers“, *SPIE* **2042**, 405–413 (1994).
- [9] W. F. X. Frank et al., „Waveguidess in Polymers“, *SPIE* **2290**, 125–132 (1994).
- [10] A. Schmoldt, „Veränderung der optischen Eigenschaften von PMMA durch Ionenbeschuß.“ Dissertation, TU Berlin, 1994.
- [11] A. Schösser et al., „Optical components in polymers“, *SPIE* **2540**, 110–117 (1995).
- [12] V. White et al., „A New Method for Producing Graded Index PMMA Waveguides“, *IEEE Phot. Tech. Lett.* **7**, 772–773 (1995).
- [13] P. J. Scully, S. Caulder, and R. Bartlett, „UV-Laser Photo-induced Refractive Index Changes in Poly Methyl Methacrylate and Plastic Optical Fibres for Application as Sensors and Devices“, *Central Laser Facility Ann. Report* 145–147 ((1999/2000)).
- [14] C. Wochnowski, S. Metev, and G. Sepold, „UV-laser-assisted modification of the optical properties of polymethylmethacrylate“, *Appl. Surf. Sci.* **154-155**, 706–711 (2000).

- [15] T. Fujimura et al., „Film Density Dependence of Polymethylmethacrylate Ablation under Synchrotron Radiation Irradiation“, *Jpn. J. Appl. Phys.* **40**, 916–917 (2001).
- [16] T. Kada et al., „Fabrication of Refractive Index Profiles in Poly (Methyl Methacrylate) using Ultraviolet Rays Irradiation“, *Jpn. J. Appl. Phys.* **41**, 876–880 (2002).
- [17] A. A. Bettiol, T. C. Sum, J. A. van Kan, and F. Watt, „Fabrication of micro-optical components in polymer using proton beam micro-machining and modification“, *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. B* **210**, 250–255 (2003).
- [18] F. Vollertsen, and C. Wochowski, „UV-Laser assisted Fabrication of integrated-optical Waveguides“, *Ann. CIRP* **53**, 199–202 (2004).
- [19] A. Zoubir, C. Lopez, M. Richardson, and K. Richardson, „Femtosecond laser fabrication of tubular waveguides in poly(methyl methacrylate)“, *Opt. Lett.* **29**, 1840–1842 (2004).
- [20] D. T. Y. Wei, W. W. Lee, and L. R. Bloom, „Large refractive index change induced by ion implantation in lithium niobate“, *Appl. Phys. Lett.* **25**, 329–331 (1974).
- [21] G. L. Destefanis, J. P. Gailliard, E. L. Ligeon, S. Valette, B. W. Farmery, P. D. Townsend, and A. Perez, „The formation of waveguides and modulators in LiNbO₃ by ion implantation“, *J. Appl. Phys.* **50**, 7898–7905 (1979).
- [22] P. J. Chandler, and P. D. Townsend, „Detailed Analysis of Refractive Index Effects Produced by Ion Implantation“, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **19/20**, 921–926 (1987).
- [23] E. Glavas, L. Zhang, P. J. Chandler, and P. D. Townsend, „Thermal Stability of Ion Implanted LiTaO₃ and LiNbO₃ Optical Waveguides“, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **32**, 45–50 (1988).
- [24] P. D. Townsend, „An Overview of Ion-Implanted Optical Waveguide Profiles“, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **46**, 18–25 (1990).
- [25] L. Zhang, P. J. Chandler, and P. D. Townsend, „Optical analysis of damage profiles in ion implanted LiNbO₃“, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. B* **59/60**, 1147–1152 (1991).
- [26] D. Kip, „Photorefractive waveguides in oxide crystals: fabrication, properties, and applications“, *Appl. Phys. B* **67**, 131–150 (1998).
- [27] C. Mignotte, „Determination of lattice site locations of erbium ions implanted into LiNbO₃ single crystals after annealing at moderate and high temperature“, *Appl. Surf. Sci.* **185**, 11–26 (2001).
- [28] F. Lu, T. Zhang, X. Wang, S. Li, K. Wang, D. Shen, and H. Ma, „Formation of waveguides by implantation of 3.0 MeV Ni²⁺“, *J. Appl. Phys.* **96**, 3463–3466 (2004).
- [29] X. L. Wang et al., „Optical properties of stoichiometric LiNbO₃ waveguides formed by low-dose oxygen ion implantation“, *Appl. Phys. Lett.* **86**, Art.–No. 041103 (2005).

-
- [30] T. Tamir (Editor) *Guided-Wave Optoelectronics, Second Edition*. Berlin: Springer, 1990.
- [31] R. G. Hunsperger *Integrated Optics, Fourth Edition*. Berlin: Springer, 1995.
- [32] A. Yariv, P. Yeh *Optical Waves in Crystals*. New York: John Wiley & Sons, 1984.
- [33] P. Ruther, B. Gerlach, J. Göttert, M. Ilie, J. Mohr, A. Müller, and C. Oßmann, „Fabrication and characterization of microlenses realized by a modified LIGA process“, *Pure Appl. Opt.* **6**, 643–653 (1997).
- [34] A. Yariv *Optical Electronics in Modern Communications*. New York, Oxford: Oxford University Press, 1997.
- [35] E. Hecht *Optics, Second Edition*. Reading, MA: Addison-Wesley, 1987.
- [36] A. Todd, „The Mechanisms of Radiation-Induced Changes in Vinyl Polymers“, *J. Polym. Sci.* **42**, 223–247 (1960).
- [37] M. Dole *The Radiation Chemistry of Macromolecules, Vol. 2*. New York: Academic Press, 1973.
- [38] J. O. Choi and J. A. Moore, „Degradation of poly(methylmethacrylate) by deep ultraviolet, x-ray, electron beam and proton beam irradiations“, *J. Vac. Sci. Technol. B* **6**, 2286–2891 (1988).
- [39] B. W. Yates and D. M. Shinozaki, „Radiation Degradation of Poly(methyl Methacrylate) in the Soft X-Ray Region“, *J. Polym. Sci. B* **31**, 1779–1784 (1993).
- [40] M. C. K. Tinone and K. Tanaka, „Photodecomposition of poly(methylmethacrylate) thin films by monochromatic soft x-ray radiation“, *J. Vac. Sci. Technol. A* **13**, 1885–1892 (1995).
- [41] O. Wollersheim, H. Zumaqué, J. Hormes, D. Kadereit, J. Langen, L. Häußling, P. Hoesel, and G. Hoffmann, „Quantitative studies of the radiation chemical behaviour of PMMA and poly(lactides)“, *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. B* **97**, 273–278 (1995).
- [42] O. Wollersheim, and J. Hormes, „Quantitative in situ FTIR studies of polymers irradiated with synchrotron radiation“, *Chem. Phys.* **204**, 129–134 (1996).
- [43] O. Schmalz, M. Hess, and R. Kosfeld, „Structural changes in poly(methyl methacrylate) during deep-etch X-ray synchrotron radiation lithography, Part I: Degradation of the molar mass“, *Die Angew. Makrom. Chem.* **239**, 63–77 (1996).
- [44] O. Schmalz, M. Hess, and R. Kosfeld, „Structural changes in poly(methyl methacrylate) during deep-etch X-ray synchrotron radiation lithography, Part II: Radiation effects on PMMA“, *Die Angew. Makrom. Chem.* **239**, 79–91 (1996).
- [45] E. H. Lee, G. R. Rao, and L. K. Mansur, „LET effect on cross-linking and scission mechanisms of PMMA during irradiation“, *Rad. Phys. and Chem.* **55**, 293–305 (1999).

- [46] A. El-Kholi, J. Mohr, and V. Nazmov, „Study of properties of irradiated PMMA by the method of thin sections“, *Nucl. Instrum. Methods. Phys. Res. A* **448**, 497–500 (2000).
- [47] J. C. M. Suarez, E. B. Mano, E. E. D. C. Monteiro, M. I. B. Tavares, „Influence of γ -Irradiation on Poly(methyl methacrylate)“, *J. Appl. Polym. Sci.* **85**, 886–895 (2002).
- [48] S. R. Tatro, G. R. Baker, K. Bishit, and J. P. Harmon, „A MALDI, TGA, TG/MS, and DEA study of the irradiation effects on PMMA“, *Polymer* **44**, 167–176 (2003).
- [49] C. J. F. Böttcher *Theory of electric polarisation*. Amsterdam: Elsevier, 1973.
- [50] D. W. Van Krevelen *Properties of Polymers, Third Edition*. Amsterdam: Elsevier, 1990.
- [51] B. Andreas, K. Peithmann, E. Soergel, K. Buse, „Photorefractive Lithography with Synchrotron Light in Poly(Methyl Methacrylate)“, *Applied Physics Letters* **83**, 1116–1118 (2003).
- [52] Röhm GmbH & Co. KG, „product data sheet 211-1“, 5–6 (2003).
- [53] K. Wille *Physik der Teilchenbeschleuniger und Synchrotronstrahlungsquellen*. Teubner, 1992.
- [54] J. D. Jackson *Klassische Elektrodynamik, 2. Auflage*. Berlin: de Gruyter, 1982.
- [55] A. Hofmann, „Characteristics of synchrotron radiation.“ Proceedings of the Cern accelerator school, Synchrotron radiation and free electron lasers, CERN, 1998.
- [56] B. Maid, „Anpassung der spektralen Verteilung der Synchrotronstrahlung für die Röntgentiefenlithografie.“ Dissertation, Universität Bonn, 1989.
- [57] O. Knüppel, D. Kadereit, B. Neff, and J. Hormes, „Compact synchrotron radiation depth lithography facility“, *Rev. Sci. Instrum.* **63**, 757–760 (1991).
- [58] O. Wollersheim, J. Hormes, F. J. Hünerbein, G. Fußhöller, and J. Bargon, „In situ ESR investigations of synchrotron radiation-induced degradations of polymers“, *Rad. Phys. and Chem.* **55**, 103–106 (1999).
- [59] P. Meyer, C. Cremers, A. El-Kholi, D. Haller, J. Schulz, L. Hahn, and S. Megtert, „A MS-Windows simulation tool for synchrotron X-ray exposure and subsequent development“, *Microsys. Technol.* **9**, 104–108 (2002).
- [60] W. M. J. Veigle, „Photon Cross Sections“, *Atomic Data* **5**, 1 (1973).
- [61] B. L. Henke et al., „Low-Energy X-Ray Interaction Coefficients“, *Atomic Data and Nuclear Tables* **27**, 1 (1982).
- [62] E. B. Saloman, J. H. Hubbel, J. H. Scofield, „X-ray Attenuation Cross Sections“, *Atomic Data and Nuclear Tables* **38**, 2 (1988).
- [63] D. C. Ghiglia, M. D. Pritt *Two-dimensional Phase Unwrapping*. New York: John Wiley & Sons, 1998.

- [64] D. P. Towers, T. R. Judge, and P. J. Bryanston-Cross, „Automatic Interferogram Analysis applied to Quasi-heterodyne Holography and ESPI“, *Opt. Laser. Eng.* **14**, 239–281 (1991).
- [65] T. R. Judge, and P. J. Bryanston-Cross, „A Review of Phase Unwrapping Techniques in Fringe Analysis“, *Opt. Laser. Eng.* **21**, 199–239 (1994).
- [66] J. P. Harmon, and J. F. Gaynor, „The Effect of Gamma Irradiation on Color Center Formation in Optical Polymers“, *J. Polym. Sci. B* **31**, 235–236 (1993).
- [67] P. R. H. Bertolucci, and J. P. Harmon, E. Biagtan, G. Schuenemann, and E. Goldberg, P. Schuman and W. Schuman, „Radiation Effects on Low Refractive Index, Fluorinated Methacrylate Polymers for Fiber Cladding“, *Polym. Eng. Sci.* **38**, 699–705 (1998).
- [68] B. A. Briskman, E. R. Klinshpoint, V. F. Stepanov, and K. B. Tlebaev, „Determination of Dose Rate Effects in Polymers Irradiated in Vacuum“, *J. Spacecraft and Rockets* **41**, 360–365 (2004).
- [69] K. H. Hellwege (Editor) *Landolt Börnstein - Numerical Data and Functional Relationships in Science and Technology, New Series*. Berlin, Heidelberg, New York: Springer, 1981.
- [70] A. M. Prokhorov, and Yu. S. Kuz'minov *Physics and Chemistry of Crystalline Lithium Niobate*. Bristol: Adam Hilger, 1990.
- [71] B. C. Grabmaier, W. Wersing, and W. Koestler, „Properties of undoped and MgO-doped LiNbO₃; correlation to the defect structure“, *J. Cryst. Growth* **110**, 339–347 (1991).
- [72] N. Iyi et al., „Comparative study of defect structures in lithium niobate with different compositions“, *J. Solid State Chem.* **101**, 340–352 (1992).
- [73] N. Zotov, H. Boysen, F. Frey, T. Metzger, and E. Born, „Cation Substitution Models of Congruent LiNbO₃ Investigated by X-Ray and Neutron Powder Diffraction“, *J. Phys. Chem. Solids* **55**, 145–152 (1994).
- [74] R. S. Weis, and T. K. Gaylord, „Lithium Niobate: Summary of Physical Properties and Crystal Structure“, *Appl. Phys. A* **37**, 191–203 (1985).
- [75] J. F. Nye *Physical Properties of Crystals*. Oxford: Oxford University Press, 1972.
- [76] A. M. Glass, D. von der Linde, and T. J. Negran, „High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO₃“, *Appl. Phys. Lett.* **25**, 233–235 (1974).
- [77] K. Buse, „Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals I: Models and experimental methods“, *Appl. Phys. B* **64**, 273–291 (1997).
- [78] J. F. Ziegler, J. P. Biersack, and U. Littmark *The Stopping and Range of Ions in Solids*. New York: Pergamon Press, 1985.

- [79] H. Bethe, „Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie“, *Ann. Physik* **5**, 325–400 (1930).
- [80] F. Bloch, „Bremsvermögen von Atomen mit mehreren Elektronen“, *Z. Physik* **81**, 363–376 (1933).
- [81] U. Fano, „Penetration of Protons, Alpha Particles, and Mesons“, *Annu. Rev. Nucl. Sci.* **13**, 1–66 (1963).
- [82] R. L. Fleischer, P. B. Price, and R. M. Walker *Nuclear Tracks in Solids*. Berkley: University of California Press, 1975.
- [83] J. F. Ziegler, „The Stopping of Energetic Light Ions in Elemental Matter“, *J. Appl. Phys. / Rev. Appl. Phys.* **85**, 1249–1272 (1999).
- [84] K. Maier, Helmholtz-Institut für Strahlen- und Kernphysik, Nussalle 14-16, D-53115 Bonn *Priv. Commun.* (2005).
- [85] R. P. Bertram et al., „Strong electro-optic effect in electrically poled photoaddressable polymers“, *J. Appl. Phys.* **94**, 6208–6211 (2003).
- [86] O. F. Schirmer, S. Juppe, and J. Koppitz, „ESR-, Optical and Photovoltaic Studies of Reduced Undoped LiNbO₃“, *Cryst. Lattice Defects Amorphous Mater.* **16**, 353–357 (1987).
- [87] O. F. Schirmer, O. Thiemann, and M. Wöhlecke, „Defects in LiNbO₃ - I. Experimental Aspects“, *J. Phys. Chem. Solids* **52**, 185–200 (1991).
- [88] J. R. Herrington, B. Dischler, A. Räuber, and J. Schneider, „An optical study of the stretching absorption band near 3 microns from OH⁻ defects in LiNbO₃“, *Solid State Commun.* **12**, 351–354 (1973).
- [89] Crystal Technology, Inc., „Lithium Niobate - optical crystals (data sheet)“, DC-12 (1999).
- [90] M. Jazbinšek, and M. Zgonik, „Material tensor parameters of LiNbO₃ relevant for electro- and elasto-optics“, *Appl. Phys. B* **74**, 407–414 (2002).
- [91] C. Kittel *Einführung in die Festkörperphysik*. München: R. Oldenbourg, 1980.
- [92] D. P. Birnie III, „Analysis of diffusion in lithium niobate“, *J. Mat. Sci.* **28**, 302–315 (1993).
- [93] B. Henderson *Defects in Crystalline Solids*. Bath: Edward Arnold, 1972.
- [94] O. F. Schirmer, D. von der Linde, „Two-photon- and x-ray-induced Nb⁴⁺ and O⁻ small polarons in LiNbO₃“, *Appl. Phys. Lett.* **33**, 35–38 (1978).

Danksagung

Zum Gelingen der für diese Arbeit durchgeführten Experimente haben sehr viele Menschen beigetragen:

Großer Dank gilt Professor Karsten Buse für die freundliche Aufnahme in seine Arbeitsgruppe, die Betreuung meiner Promotion und dass er mir besonders im letzten Drittel meiner Promotion sehr viele Freiheiten bei der Verwirklichung eigener experimenteller Ideen eingeräumt und dafür notwendige Anschaffungen immer unterstützt hat.

Besonders bedanken möchte ich mich auch bei Herrn Professor K. Maier, der die Untersuchungen zum Ionendurchschuss erst ermöglicht und selbst viel dazu beigetragen hat. Darüber hinaus danke ich ihm für die ständige Diskussionsbereitschaft und die freundliche Übernahme des Korreferats.

Herzlicher Dank gilt Dr. Konrad Peithmann, der mir in den letzten Jahren mehr als ein guter Kollege war. Er hatte ständig zwei offene Ohren für Probleme aller Art und konnte mir immer wertvolle Tipps geben. Desweiteren hatte er großen Einfluss auf die hier vorgestellten Experimente und hat selbst den größten Teil der Bestrahlungen mit dem Zyklotron durchgeführt. Auch sein Sinn für Humor war immer eine Bereicherung.

Ich danke Professor J. Hormes für die Einladung ans CAMD nach Baton Rouge, wo mir die Möglichkeit zur Einarbeitung in Bestrahlungsexperimente mit Synchrotronlicht gegeben wurde. Für die dortige Betreuung danke ich Dr. J. Göttert. Bei beiden sowie bei Yohannes M. Desta und Lin Wang bedanke ich mich für die Fertigung der lithographischen Wellenleitermaske.

Besonderer Dank gilt auch Dr. Hartwig Modrow, der mir den Einstieg ins Syli-Business sehr erleichtert hat und von dem ich viel lernen konnte. Von seinem unermüdlichen Einsatz für mehr Strahlzeit habe ich in großem Umfang profitiert. Auch waren die Strahlzeiten mit ihm nie langweilig. Herrn Dr. Boris Brendebach danke ich für die von ihm durchgeführten XAS-Messungen.

Bei Dr. Ákos Hoffmann möchte ich mich für seine genialen Einfälle bei elektronischen und mechanischen Problemen aller Art bedanken. Ohne seine Unterstützung wäre so manche Idee schon im Ansatz gescheitert. Frau Dr. Elisabeth Soergel und Dr. T. Woike danke ich für die Diskussionsbereitschaft und die wertvollen Tipps. Herrn Professor Boris Sturman möchte ich für die sorgfältige Überprüfung des Modells zur Brechungsindexänderung in PMMA und seine Diskussionsbereitschaft danken.

Sehr dankbar bin ich meinem ehemaligen Diplomanden Ingo Breunig. Er war im Rahmen seiner Diplomarbeit maßgeblich am Aufbau des Interferometers, an den Experimenten und der Modellbildung zur Brechungsindexänderung in PMMA beteiligt. Durch seine tatkräftige Unterstützung, ständige Diskussionsbereitschaft und konstruktive Kritik hat er sehr zum Gelingen dieser Arbeiten beigetragen. Auch seine Hilfe bei der Gebrauchtwagensuche weiß ich sehr zu schätzen.

Herrn Mohammad Reza Zamani Meymian danke ich für die Übernahme der Arbeiten zum Ionendurchschuss, für seinen unermüdlichen Einsatz und die gute Zusammenarbeit. Außerdem danke ich Dr. Matz Haaks für seine Hilfe bei der Messung der Aktivierung und für seinen Beitrag zur den

Bestrahlungsexperimenten mit dem Zyklotron.

Ich danke Professor N. Wermes, Dr. F. Hügging und Herrn J. Weingarten für die Messungen der orts aufgelösten Aktivität mit einem Pixeldetektor.

Bei Prof. B. Tieke und Dr. I. Heim von der Universität Köln möchte ich mich für die Möglichkeit der Nutzung ihrer GPC-Anlage bedanken, die wertvolle Informationen über das Molekulargewicht von bestrahltem PMMA liefern konnte.

Herrn André Engelbertz und Dr. C. Schalley danke ich für die Diskussionsbereitschaft und Frau Christine Negrini für das Aufstöbern eines extrem wichtigen Buches, was mir sehr geholfen hat. Bei Dr. Ralph Bertram, Helge Eggert und Ulrich Hartwig möchte ich mich für die Mitwirkung bei der Messung elektrooptischer Koeffizienten von Lithiumniobat bedanken.

Herrn Hubert Blank danke ich für die Mikrotomschnitte und für technischen Beistand im Syli-Keller. Herrn J. Karthaus danke ich für das Ausrichten der Beamline. Ohne ihn wären die Bestrahlungen zur Herstellung der Wellenleiter nicht möglich gewesen. Außerdem möchte ich dem ganzen ELSA-Team für die regelmäßige Erzeugung von Synchrotronstrahlung und der Bedienungsmannschaft des Bonner Zyklotrons für die Beschleunigung von Heliumkernen danken.

Herrn J. Vorzopf danke ich für das Zuschneiden und die Politur der LiNbO_3 -Kristalle. Besonders die Präparation des Schnitts aus der Probe Alpha war virtuos. Auch bei allen anderen Mitarbeitern der Feinmechanischen Werkstätten der physikalischen Institute möchte ich mich für die sehr gute Arbeit bedanken, die viele Experimente erst ermöglicht hat.

Großer Dank gebührt auch allen Mitgliedern und Ehemaligen der Arbeitsgruppe „Hertz“ für das ausgezeichnete Arbeitsklima, dass ich in den etwas mehr als dreieinhalb Jahren meiner Promotion genießen konnte. Besonders hervorheben möchte ich die „Kellerkinder“, oder „Morlocks“, mit denen ich in den letzten Jahren die größte Wechselwirkungsdauer hatte. Ich denke, es ist noch untertrieben, wenn ich sage: Es hat mir da unten sehr viel Spaß mit Euch gemacht!

Der Deutschen Telekom AG, dem BIGS-Programm der Universität Bonn sowie der Deutschen Forschungsgemeinschaft (FOR557) danke ich für die finanzielle Unterstützung. Der Firma Röhm GmbH & Co. KG sowie der Cadillac Plastic GmbH möchte ich für ihr Entgegenkommen danken.

Ein ganz besonders herzliches Dankeschön gilt meiner Frau Alina, weil sie nach wie vor zu mir hält und mich immer wieder daran erinnert, dass es auch noch ein Leben neben der Physik gibt.

Danke!!!

Liste eigener Veröffentlichungen

- M. P. Petrov, A. P. Paugurt, V.V. Bryskin, S. Wevering, B. Andreas, and E. Krätzig, „Dynamic light beam deflection caused by space charge waves in photorefractive crystals“, *Appl. Phys. B* **69**, 341-344 (1999).
- D. Berben, B. Andreas, and K. Buse, „X-ray induced photochromic effects in copper-doped lithium niobate crystals“, *Appl. Phys. B* **72**, 729-732 (2001).
- D. Berben, B. Andreas, and K. Buse, „Photorefractive x-ray imaging“, *Appl. Phys. Lett.* **81**, 1567-1569 (2002).
- B. Andreas, K. Peithmann, E. Soergel, and K. Buse, „Photorefractive lithography with synchrotron light in poly(methyl methacrylate)“, *Appl. Phys. Lett.* **83**, 1116-1118 (2003).
- B. Andreas, K. Peithmann, K. Buse, and K. Maier „Modification of the refractive index of lithium niobate crystals by transmission of high energy $^4\text{He}^{2+}$ and D^+ particles“, *Appl. Phys. Lett.* **84**, 3813-3815 (2004).
- B. Andreas, I. Breunig, and K. Buse, „Modeling of x-ray-induced refractive-index changes in poly(methyl methacrylate)“, *Accepted: Chem. Phys. Chem.* (April 2005).
- K. Peithmann, M. R. Z. Meymian, M. Haaks, K. Maier, B. Andreas, K. Buse, and H. Modrow „Fabrication of embedded waveguides in lithium-niobate crystals by radiation damage“, *Submitted: Opt. Lett.* (March 2005).