

---

MATERIALMODIFIKATIONEN IN  
LITHIUMNIOBAT- UND  
LITHIUMTANTALAT-KRISTALLEN DURCH  
IONENBESTRAHLUNG

---

**Dissertation**

zur

Erlangung des Doktorgrades (Dr. rer. nat.)

der

Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät

der

Rheinischen Friedrich-Wilhelms-Universität Bonn

vorgelegt von

**Niels Lennart Räth**

aus

Siegburg

Bonn 2017



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

1. Gutachter: Prof. Dr. Karl Maier  
2. Gutachter: Priv.-Doz. Dr. Elisabeth Soergel  
Tag der Promotion: 17.02.2017  
Erscheinungsjahr: 2017



# Inhalt

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Grundlagen</b>	<b>3</b>
2.1	Lithiumniobat . . . . .	3
2.1.1	Kristallstruktur . . . . .	3
2.1.2	Defekte und Dotierung . . . . .	4
2.1.3	Optisches Verhalten . . . . .	5
2.1.4	Ferroelektrische Domänen . . . . .	6
2.2	Lithiumtantalat . . . . .	7
2.2.1	Optisches Verhalten . . . . .	8
2.2.2	Ferroelektrische Domänen . . . . .	8
2.3	Schnelle Ionen in Materie . . . . .	8
2.3.1	Energieverlust und Reichweite . . . . .	8
2.3.2	Kernreaktionen . . . . .	9
2.3.3	Strahlenschäden in Lithiumniobat . . . . .	9
2.4	Brechungsindexänderungen in ferroelektrischen Kristallen . . . . .	10
2.4.1	Änderung des Volumens und der Polarisierbarkeit . . . . .	11
2.4.2	Änderung der ferroelektrischen Spontanpolarisierung . . . . .	12
2.4.3	Verzerrung oder Verspannung des Kristallgitters . . . . .	13
<b>3</b>	<b>Experimentelle Methoden</b>	<b>15</b>
3.1	Verwendete Proben . . . . .	15
3.1.1	Lithiumniobat . . . . .	16
3.1.2	Lithiumtantalat . . . . .	17
3.2	Bestrahlungen . . . . .	17
3.2.1	Zyklotron . . . . .	17
3.2.2	Automatischer Probenwechsler . . . . .	18
3.2.3	Bestrahlungsdosis . . . . .	20
3.2.4	Beschleunigerenergie . . . . .	20
3.3	Simulation von Energieverlust und Eindringtiefe . . . . .	21
3.4	Gamma-spektroskopie . . . . .	22
3.4.1	Totale Aktivierung . . . . .	23
3.4.2	Anfangsaktivität und Nuklidproduktion . . . . .	23
3.5	Interferometrische Messung des Brechungsindex . . . . .	24
3.5.1	Gesamtphasenänderung . . . . .	25
3.5.2	Phasenbestimmung aus den Interferenzbildern . . . . .	26
3.5.3	Dickenänderung . . . . .	27
3.5.4	Ermittlung der Brechungsindexänderung . . . . .	28

3.5.5	Fehlerabschätzung . . . . .	30
3.6	Tiefenaufgelöste Messungen . . . . .	30
3.6.1	Bestimmung der Ioneneindringtiefe . . . . .	30
3.6.2	Tiefenabhängiger Verlauf der Brechungsindexänderung . . . . .	31
3.7	Thermische Behandlungen . . . . .	32
3.8	Wiederholte Bestrahlungen . . . . .	33
3.9	Messungen der ferrolektrischen Eigenschaften . . . . .	33
3.9.1	Koerzitivfeldstärke . . . . .	34
3.9.2	Leitfähigkeit . . . . .	35
<b>4</b>	<b>Experimentelle Resultate</b>	<b>37</b>
4.1	Verfärbung, Verformung und Zerberchen . . . . .	37
4.2	Gammaspektroskopie . . . . .	38
4.2.1	Gammaspektren Lithiumniobat . . . . .	38
4.2.2	Gammaspektren Lithiumtantalat . . . . .	40
4.2.3	Totale Aktivierung . . . . .	42
4.2.4	Dosisabhängigkeit der Anfangsaktivität in Lithiumtantalat nach Bestrahlung mit Alphateilchen . . . . .	44
4.3	Tiefenaufgelöste Messungen in Lithiumniobat . . . . .	46
4.3.1	Eindringtiefe der Projektile . . . . .	46
4.3.2	Tiefenabhängige Brechungsindexänderung . . . . .	47
4.4	Brechungsindexänderungen in Lithiumniobat . . . . .	48
4.4.1	Vergleich der Projektile . . . . .	48
4.4.2	Brechungsindexänderung gegen nukleare Aktivierung . . . . .	49
4.4.3	Thermische Stabilität nach Bestrahlung mit Protonen . . . . .	51
4.4.4	Langzeitstabilität nach Bestrahlung mit Protonen . . . . .	52
4.4.5	Langzeitstabilität nach Bestrahlung mit $^3\text{He}$ -Ionen . . . . .	53
4.4.6	Brechungsindexänderungen nach wiederholter Bestrahlung . . . . .	54
4.5	Brechungsindexänderungen in Lithiumtantalat . . . . .	57
4.5.1	Allgemeine Beobachtungen . . . . .	57
4.5.2	Brechungsindexprofile . . . . .	57
4.5.3	Vergleich der Projektile . . . . .	59
4.5.4	Dosisabhängigkeit . . . . .	61
4.5.5	Thermische Stabilität nach Bestrahlung mit $^3\text{He}$ -Ionen . . . . .	61
4.5.6	Langzeitstabilität nach Bestrahlung mit $^3\text{He}$ -Ionen . . . . .	64
4.6	Änderungen der ferrolektrischen Eigenschaften in Lithiumtantalat . . . . .	65
4.6.1	Polungsverhalten . . . . .	65
4.6.2	Leitfähigkeit . . . . .	67
<b>5</b>	<b>Diskussion</b>	<b>69</b>
5.1	Verfärbung und Verformung . . . . .	69
5.2	Gammaspektroskopie . . . . .	69
5.2.1	Erzeugte Isotope . . . . .	70
5.2.2	Dosisabhängigkeit der erzeugten Aktivität . . . . .	71

5.3	Wahl des Projektils . . . . .	72
5.3.1	Totale Aktivierung . . . . .	72
5.3.2	Erzeugte Brechungsindexänderungen . . . . .	73
5.3.3	Brechungsindexänderung gegen nukleare Aktivierung . . . . .	73
5.3.4	Abschließende Bewertung . . . . .	74
5.4	Eindringtiefe der Projektile und tiefenabhängige Brechungsindexänderung .	74
5.5	Stabilität der Brechungsindexänderungen . . . . .	76
5.5.1	Lithiumniobat bei Bestrahlung mit Protonen . . . . .	77
5.5.2	Lithiumtantalat bei Bestrahlung mit $^3\text{He}$ -Ionen . . . . .	78
5.5.3	Langzeitverhalten . . . . .	79
5.6	Wiederholte Bestrahlungen von Lithiumniobat . . . . .	80
5.7	Verhalten der Brechungsindexänderung in Lithiumtantalat . . . . .	81
5.7.1	Vorzeichen der Brechungsindexänderung . . . . .	81
5.7.2	Dosisabhängigkeit . . . . .	81
5.8	Modell für die bestrahlungsinduzierten Brechungsindexänderungen . . . . .	82
5.8.1	Volumenänderung . . . . .	82
5.8.2	Änderung der Polarisierbarkeiten . . . . .	82
5.8.3	Änderung der ferroelektrischen Spontanpolarisierung . . . . .	84
5.8.4	Verzerrung oder Verspannung des Kristallgitters . . . . .	85
5.8.5	Gesamtbetrachtung . . . . .	86
5.9	Ferroelektrische Eigenschaften . . . . .	88
5.9.1	Polungsverhalten . . . . .	88
5.9.2	Leitfähigkeit . . . . .	88
<b>6</b>	<b>Ausblick</b>	<b>89</b>
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>91</b>
<b>A</b>	<b>Anhang</b>	<b>93</b>
A.1	SRIM-Simulationen . . . . .	93
A.1.1	Bestrahlung von Lithiumniobat . . . . .	93
A.1.2	Bestrahlung von Lithiumtantalat . . . . .	95
A.2	Übersicht über die Proben . . . . .	96
A.2.1	$\text{LiNbO}_3$ -Proben . . . . .	96
A.2.2	$\text{LiNbO}_3$ -Proben für wiederholte Bestrahlungen . . . . .	97
A.2.3	$\text{LiTaO}_3$ -Proben . . . . .	98
A.3	Maximale Brechungsindexänderung nach wiederholter Bestrahlung . . . . .	99
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>101</b>
	<b>Liste eigener Veröffentlichungen</b>	<b>113</b>
	<b>Danksagung</b>	<b>115</b>





# 1 Einleitung

In den 60er Jahren des 19. Jahrhunderts formulierte MAXWELL seine Gleichungen zur Beschreibung elektromagnetischer Felder [Max65] und legte damit die theoretische Grundlage zum späteren Verständnis elektromagnetischer Wellen. Die Bedeutung letzterer in der Technologie, insbesondere auch im optischen Bereich, nimmt in der heutigen Welt stetig zu: Neben vielfältigen Anwendungen in Medizin, Wissenschaft und Technik ist die (Festkörper-)Optik auch aus der digitalen Kommunikation nicht mehr wegzudenken. Immer größere Datenmengen und immer schnellere Übertragungsraten machen neben der bereits etablierten optischen Datenübertragung auch eine optische Datenverarbeitung unabdingbar. Die verlangsamende Um- und Rückwandlung von optischen in elektrische Signale kann so vermieden werden.

Die künstlichen Kristalle Lithiumniobat ( $\text{LiNbO}_3$ ) und das eng verwandte Lithiumtantalat ( $\text{LiTaO}_3$ ) finden bereits heutzutage weitläufige Verwendung bei der Realisierung der dafür benötigten aktiven und passiven Bauelemente. Durch gezielte Modifikationen der Materialparameter, wie z. B. dem Brechungsindex, wurden bereits holographische Speicher [Che68, Mok93] oder eingeschriebene Wellenleiter [dM82, Mat92] ebenso realisiert wie Wellenlängenfilter [Bre98], optische Modulatoren [Den67, Ram78, Des79] und integrierte Laser [Bec98]. Außerdem eignen sich beide Materialien sehr gut für die Filterung von akustischen Oberflächenwellen (SAW<sup>1</sup>) [Cam82] oder die effektive Frequenzverdopplung [Arm62] z. B. unter Nutzung der Quasiphasenanpassung [Fej92, Par02].

Die notwendigen Änderungen des Brechungsindex werden dabei oft durch photorefraktive Prozesse ( $\Delta n \leq 10^{-3}$ ) [Gla74], Ionenimplantation ( $\Delta n \approx 10^{-2}$ ) [Wei74] oder Protonenaustausch ( $\Delta n \approx 10^{-2}$ ) [Jac82] realisiert. Großvolumige und langzeitstabile Brechungsindexänderungen können jedoch auch mittels Durchstrahlung von Lithiumniobat mit schnellen leichten Ionen (z. B.  $^3\text{He}$  mit 40 MeV) erzielt werden [And04, Pei06a, ZM10, Pei11]. Dabei wurden Änderungen des ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindex von bis zu  $3 \times 10^{-3}$  beobachtet [Pei06a] und die Herstellung eines vergrabenen Wellenleiters demonstriert [Pei06b]. Auch in  $\text{LiNbO}_3$  mit Magnesiumdotierung, wo photorefraktive Methoden ineffizient sind, konnten auf diese Weise sogar Brechungsindexänderungen von  $6 \times 10^{-3}$  erreicht werden [Jen08a].

Für eine Anwendung der Quasiphasenanpassung zur Frequenzverdopplung muss im optisch einachsigen Lithiumniobat-Kristall mit wenigen Mikrometern Periodenlänge die Richtung der Spontanpolarisierung alternieren; ein derart präparierter Kristall wird „Periodically Poled Lithium Niobate“ (PPLN) genannt [Bat99]. Das für die Umkehrung der Polarisation notwendige elektrische Feld wird durch Bestrahlung mit 40 MeV  $^3\text{He}$ -Ionen

---

<sup>1</sup>Surface Acoustic Wave

um etwa 10 % verringert, was die Strukturierung erleichtert [Jen08a, Jen09]. Daneben wird durch die Bestrahlung die elektrische Leitfähigkeit des Materials um etwa eine Größenordnung erhöht [Jen10, Jen11].

Die vorliegende Arbeit weitet die Untersuchung der Modifikation des Brechungsindex durch Bestrahlung mit hochenergetischen Teilchen von den bisher untersuchten  $^3\text{He}$ -Ionen auf Protonen ( $^1\text{p}$ ), Deuteronen ( $^2\text{d}$ ) und Alphateilchen ( $^4\alpha$ ) aus. Neben Lithiumniobat wird zusätzlich auch das kristallographisch isomorphe Lithiumtantalat betrachtet. Von Interesse ist dabei, neben Größe und thermischer Stabilität der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderungen, auch die störende, durch die Bestrahlung auftretende, nukleare Aktivierung der Proben. Für verschiedene Anwendungsfälle soll angegeben werden können, welches Projektil und welche Bestrahlungsparameter je nach Anforderung am Besten geeignet sind. Ferner wird die bisher bestehende Modellvorstellung über die der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderung zu Grunde liegenden Effekte erweitert. Für Lithiumtantalat werden darüber hinaus auch erste Messungen der Koerzitivfeldstärke und Leitfähigkeit nach der Bestrahlung vorgestellt.

## 2 Grundlagen

Dieses Kapitel stellt zunächst die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Materialien Lithiumniobat und Lithiumtantalat vor und gibt deren relevante physikalische Größen an. Anschließend werden die grundlegenden Prozesse beim Durchgang schneller Ionen durch Materie behandelt.

### 2.1 Lithiumniobat

Lithiumniobat (LN) ist ein künstlich hergestelltes, kristallines Dielektrikum mit der chemischen Summenformel  $\text{LiNbO}_3$ . Es wird üblicherweise mittels des CZOCHRALSKI-Verfahrens direkt aus einer Schmelze bestehend aus  $\text{Li}_2\text{O}$  und  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  gezogen [Nas66]. Man erhält zylindrische „Boules“, die dann in dünne „Wafer“ geschnitten und kommerziell vertrieben werden. Die Dichte von Lithiumniobat beträgt  $\rho = 4,63 \text{ g/cm}^3$  und die Schmelztemperatur  $T_S = 1253 \text{ °C}$  [Wei85].

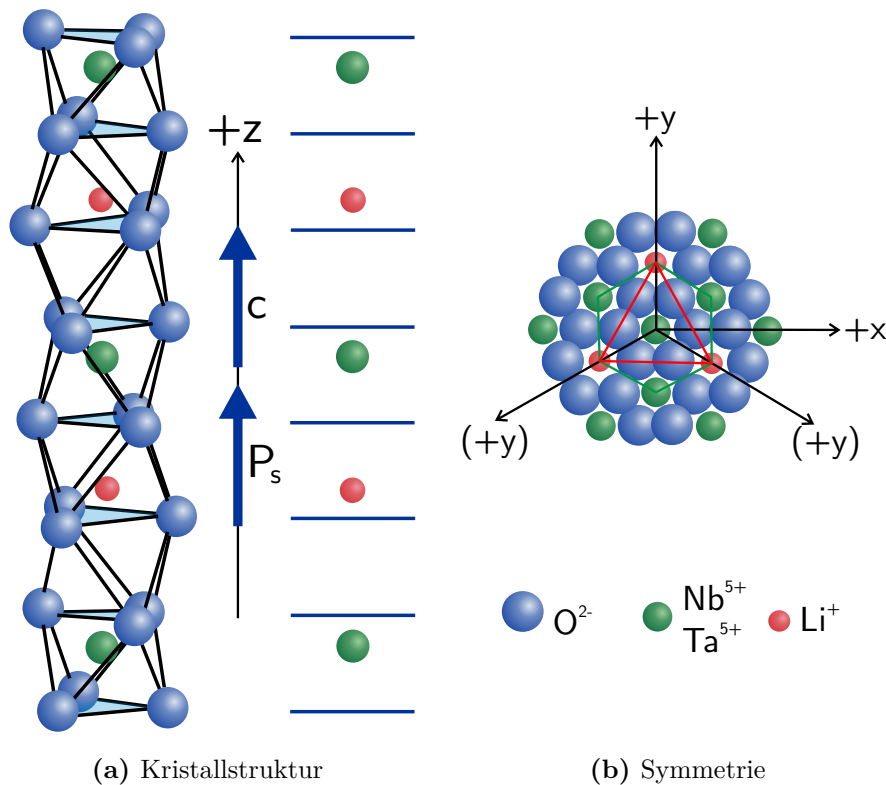
#### 2.1.1 Kristallstruktur

Lithiumniobat befindet sich unterhalb der CURIE-Temperatur ( $T_C \approx 1210 \text{ °C}$ ) in der in [Abbildung 2.1a](#) dargestellten ferroelektrischen Phase [Wei85]. Hierbei werden durch die Sauerstoff-Ionen ( $\text{O}^{2-}$ ) Ebenen in einer verzerrten hcp-Anordnung<sup>1</sup> gebildet. Die dadurch entstehenden Zwischengitterplätze sind entlang der kristallographischen  $\vec{c}$ -Achse abwechselnd jeweils zu einem Drittel mit Lithium ( $\text{Li}^+$ ), Niob ( $\text{Nb}^{5+}$ ) und Leerstellen ( $\square$ ) besetzt, wobei die Anionen durch elastische Kräfte gegen ihre symmetrischen Positionen verschoben sind [Abr66].

Auf diese Weise entsteht im Kristall eine Spontanpolarisierung  $\vec{P}_s$  entlang der  $\vec{c}$ -Achse, die an der Kristalloberfläche jedoch durch frei bewegliche Ladungsträger ausgeglichen wird. Um diese Achse herum besitzt der Kristall eine dreizählige Rotationssymmetrie, womit  $\text{LiNbO}_3$  der Punktgruppe  $3m$  angehört [Wei85]. Üblicherweise legt man bei der Beschreibung des Kristalls durch ein Koordinatensystem die  $\vec{z}$ -Achse entlang der  $\vec{c}$ -Achse. Für die Wahl der  $\vec{y}$ -Achse (und damit auch der  $\vec{x}$ -Achse) ergeben sich aufgrund der Symmetrie drei Möglichkeiten, wie [Abbildung 2.1b](#) verdeutlicht. Als Ferroelektrikum ist Lithiumniobat darüber hinaus auch pyro- und piezoelektrisch.

---

<sup>1</sup>hexagonal close-packed



**Abb. 2.1:** Kristallstruktur von kristallinem  $\text{LiNbO}_3$  bzw. dem in [Abschnitt 2.2](#) behandelten  $\text{LiTaO}_3$  unterhalb der CURIE-Temperatur aus [\[Jen10\]](#) nach [\[Wei85, Scr05, Gop07\]](#). (a) Die Spontanpolarisierung  $\vec{P}_s$  liegt entlang der  $\vec{c}$ -Achse und wird durch die verschobenen Li- und Nb/Ta-Ionen gebildet. (b) Die dreizählige Kristallsymmetrie bestimmt die Form der ferroelektrischen Domänen in  $\text{LiNbO}_3$  (grün) und  $\text{LiTaO}_3$  (rot).

### 2.1.2 Defekte und Dotierung

Wird Lithiumniobat aus einer zu Beginn stöchiometrisch, also aus  $\text{Li}_2\text{O}$  und  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  zu gleichen Teilen, zusammengesetzten Schmelze gezogen, entsteht beim Ziehen im Kristall ein Lithiumdefizit von etwa 5 mol% [\[Ler68, Bye70\]](#). Dadurch ändert sich fortlaufend die Schmelzzusammensetzung und damit auch die des Kristalls. Homogene Kristalle können durch Einstellen der sogenannten kongruent schmelzenden Zusammensetzung von  $\text{Li}_2\text{O}/\text{Nb}_2\text{O}_5 = 0,942$  produziert werden, dies entspricht 48,5 mol%  $\text{Li}_2\text{O}$  [\[Bye70, Sch91\]](#).

Nach LERNER et al. werden die durch den Lithiummangel entstehenden Leerstellen im kongruent schmelzenden Lithiumniobat-Kristall (CLN) teilweise durch  $\text{Nb}^{5+}$  besetzt [\[Ler68\]](#); es bilden sich sogenannte  $\text{Nb}_{\text{Li}^{4+}}$ -„Antisite“-Defekte<sup>2</sup>. Aus Gründen der Ladungskompensation wird nur ein Fünftel der Lithiumfehlstellen auf diese Weise besetzt, der Rest verbleibt als Leerstelle  $\square_{\text{Li}}^-$  und lagert sich in einem Cluster um den „Antisite“-Defekt an [\[Iyi92, Kim01b\]](#). Die exakte Kristallzusammensetzung lautet damit  $[\text{Li}_{1-5x}\square_{4x}\text{Nb}_x]\text{NbO}_3$  und hängt von der Lithiumkonzentration ab, wobei für kongruent schmelzendes  $\text{LiNbO}_3$   $x = 0,01$  beträgt [\[Ler68, Kim01b\]](#).

<sup>2</sup>Niob-auf-Lithium-Platz

Eine alternative Möglichkeit der Fehlstellenkonfiguration diskutierten SCHIRMER et al. in der Besetzung aller Lithiumfehlstellen durch  $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$  [Sch91]; die Ladungskompensation würde in dem Fall durch Leerstellen auf Niobplätzen  $\square_{\text{Nb}}^{5-}$  erreicht [Sch91]. Die exakte Summenformel lautet dann  $[\text{Li}_{1-5x}\text{Nb}_{5x}][\text{Nb}_{1-4x}\square_{4x}]\text{O}_3$  mit  $x = 0,01$  [Kim01b, Abd09]. Der Unterschied liegt also nur in der Konfiguration der Fehlstellen und nicht in der Kristallzusammensetzung. Die Bildung von Niobfehlstellen ist allerdings energetisch ungünstiger als die Bildung von Lithiumfehlstellen [Don91], was aber durch eine stellenweise Vertauschung der Lithium- und Niobionen gelöst werden könnte (Ilmenit-Struktur) [Sch91]. Auch eine Kombination der beiden genannten Modelle wäre möglich.

Durch geeignete Dotierung können die Niob-„Antisite“-Defekte vermieden werden, indem  $\text{Li}^+$ -Fehlstellen durch Dotierungsionen besetzt werden. In dieser Arbeit wird auch Magnesium dotiertes Material verwendet. Die  $\text{Nb}_{\text{Li}}^{4+}$  werden so durch  $\text{Mg}_{\text{Li}}^+$  ersetzt, was die benötigte Ladungskompensation und die verbleibenden Leerstellen verringert [Gra91]. Ab einer Magnesiumoxidkonzentration von etwa 1,25 mol% sind alle Niob-„Antisite“-Defekte durch Magnesium besetzt; ab 5 mol% MgO befinden sich an allen ursprünglichen Lithiumfehlstellen  $\text{Mg}_{\text{Li}}^+$ -„Antisite“-Defekte [Gra91]. Es entstehen entsprechend neue kompensierende  $\square_{\text{Li}}^-$  und die Kristallzusammensetzung lautet dann  $[\text{Li}_{0,8}\square_{0,1}\text{Mg}_{0,1}]\text{NbO}_3$  [Abd09].

Nahezu stöchiometrisches Lithiumniobat (NSLN) lässt sich mit der so genannten „double crucible CZOCHRALSKI method“ (DCCZ) herstellen. Hierbei wird die Schmelzzusammensetzung während des Ziehens des Kristalls mittels einer automatischen Pulverzuführung kontinuierlich angepasst und auf 58,5 mol%  $\text{Li}_2\text{O}$  gehalten [Kit92]. Durch die Veränderung der Defektstruktur unterscheiden sich die physikalischen Eigenschaften vom kongruent schmelzenden Material, sodass sich je nach Anwendung Vor- oder sogar Nachteile ergeben. Im Allgemeinen findet das kongruent schmelzende Lithiumniobat häufigere Verwendung, da seine Herstellung wesentlich unkomplizierter und somit kostengünstiger ist.

### 2.1.3 Optisches Verhalten

Die Kristallstruktur macht Lithiumniobat optisch einachsrig und damit doppelbrechend. Man erhält für ordentlich polarisiertes Licht (Polarisation des einfallenden Lichts senkrecht zur  $\vec{c}$ -Achse) den Brechungsindex  $n_o$  und für außerordentlich polarisiertes Licht (Polarisation des einfallenden Lichts parallel zur  $\vec{c}$ -Achse) den Brechungsindex  $n_e$ . Die Doppelbrechung  $\delta n$  ist definiert als

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

und hängt von der Licht-Wellenlänge  $\lambda$  und der Temperatur  $T$  ab. Für Licht mit  $\lambda = 633 \text{ nm}$  (HeNe-Laser) und bei Raumtemperatur liegt der ordentliche Brechungsindex für kongruent schmelzendes Lithiumniobat bei  $n_o = 2,2866$  und der außerordentliche Brechungsindex beträgt  $n_e = 2,2028$  [Wei85]. Somit besitzt  $\text{LiNbO}_3$  im sichtbaren Bereich eine negative Doppelbrechung ( $\delta n < 0$ ). Der außerordentliche Brechungsindex  $n_e$  hängt dabei von der Lithiumkonzentration ab und nimmt zwischen (46 – 50) mol%  $\text{Li}_2\text{O}$  mit steigender Konzentration linear mit etwa  $7,2 \times 10^{-3} \text{ mol}\%^{-1}$  ab,  $n_o$  zeigt keine derartige Abhängigkeit [Ber68, Sch93].

Mit Eisen oder Kupfer dotiertes oder verunreinigtes Lithiumniobat ist photorefraktiv: Eine inhomogene Beleuchtung des Kristalls führt über den volumen-photovoltaischen Effekt zu einem räumlich inhomogenem Ladungstransport, der vom Lichtmuster abhängt. Es bauen sich Raumladungsfelder auf, die über den elektro-optischen Effekt den Brechungsindex ändern (Größenordnung  $\Delta n \leq 10^{-3}$ ) [Ash66]. Dieses Phänomen kann zur holographischen Datenspeicherung genutzt werden [Mok93], wird allerdings auch oft als „Optischer Schaden“ bezeichnet, da auch im Kristall geführte Lichtstrahlen selbst den Brechungsindex ändern und damit die Lichtleitungseigenschaften verschlechtern können. Dieser Effekt ist im Allgemeinen unerwünscht, insbesondere wenn das Material als optisch nichtlinearer Kristall zur effizienten Frequenzkonversion (z. B. SHG, OPO, OPA)<sup>3</sup> genutzt werden soll [Kie09]. Um den optischen Schaden zu unterdrücken, können geeignete Dotierungen wie Magnesium, Indium oder Zink verwendet werden [Vol96]; mit 5 mol% Magnesium<sup>4</sup> dotiertes Lithiumniobat ( $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$ ) zeigt eine mehr als hundertfache Erhöhung der Resistenz gegen optischen Schaden [Bry84]. Eine gezielte Strukturierung mit stabilen Brechungsindexänderungen ist mit herkömmlichen Techniken wie thermischem Fixieren im Falle einer zusätzlichen geringfügigen Dotierung mit Eisen ( $\text{LiNbO}_3\text{:Mg,Fe}$ ) dann zwar noch möglich, erreicht aber nur Brechungsindexänderungen von wenigen  $10^{-5}$  [Ari06].

### 2.1.4 Ferroelektrische Domänen

Die Spontanpolarisierung  $\vec{P}_s$  in Lithiumniobat kann sich nur entlang der  $\vec{c}$ -Achse orientieren; Bereiche mit gleicher Richtung werden dabei ferroelektrische Domänen genannt. Im Gegensatz zu den Bloch-Wänden bei ferromagnetischen Domänen verlaufen die ferroelektrischen Domänenwände ausschließlich entlang der Kristallrichtungen. Bedingt durch die dreizählige Symmetrie des Kristalls bilden die Domänenwände in kongruent schmelzendem  $\text{LiNbO}_3$  bevorzugt eine hexagonale Form entlang der  $\vec{y}$ -Achse, in [Abbildung 2.1b](#) in grün dargestellt [Scr05].

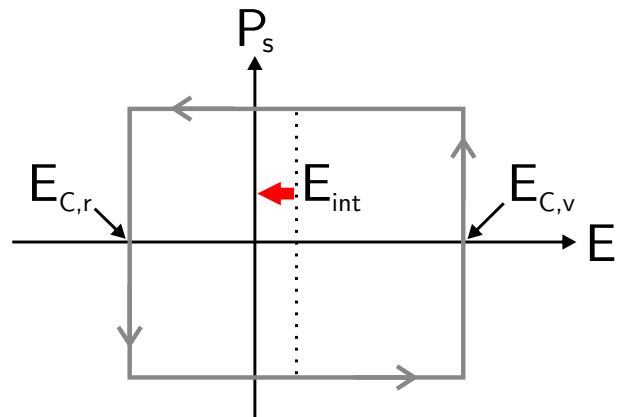
Durch Anlegen eines externen elektrischen Feldes entgegen der Richtung der Spontanpolarisierung kann diese invertiert werden. Die Lithium-Ionen werden dabei durch die Sauerstoffebenen gedrückt und die Niob-Ionen verlagern sich ebenfalls in ihre neue Gleichgewichtslage. Diesen Vorgang nennt man „Domäneninversion“ oder auch schlicht „Umpolen“. Die dafür benötigte Feldstärke heißt Koerzitivfeldstärke  $E_C$  [Gop07].

Dieser Prozess ist durch Anlegen eines elektrischen Feldes in umgekehrter Richtung reversibel. Das für Polung in Rückwärtsrichtung (also wieder zurück in die ursprünglich vorliegende Richtung) benötigte Koerzitivfeld  $E_{C,r}$  ist bei Lithiumniobat niedriger als das für die Vorwärtsrichtung  $E_{C,v}$ , sodass die in [Abbildung 2.2](#) dargestellte Hysterese asymmetrisch verläuft. Der entstehende Versatz wird durch ein internes elektrisches Feld  $E_{\text{int}} = (E_{C,v} - E_{C,r})/2$  erklärt, dessen Ursache in polaren Defekten im ursprünglichen Kristall gesucht wird [Gop97, Kim01b, Yao04]. Es lässt sich die intrinsische Koerzitivfeldstärke definieren als  $E_C = (E_{C,v} + E_{C,r})/2$ .

<sup>3</sup>Second Harmonic Generation, Optical Parametric Oscillator, Optical Parametric Amplifier

<sup>4</sup>Diese oft in der Literatur verwendete Angabe meint in der Regel 5 mol% MgO

**Abb. 2.2:** Hysterese der Spontanpolarisierung beim „Umpolen“ eines idealisierten, einkristallinen  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalls nach [Gop97]. Aufgetragen ist die Spontanpolarisierung  $P_s$  gegen das angelegte elektrische Feld  $E$ . Das zur Umpolung nötige Feld in Vorwärtsrichtung  $E_{C,v}$  ist größer als jenes in Rückwärtsrichtung  $E_{C,r}$ , erklärbar durch ein internes elektrisches Feld  $E_{\text{int}}$ .



Im Falle von nominell undotiertem, kongruent schmelzendem  $\text{LiNbO}_3$  betragen Koerzitivfeld  $E_C = 18,5 \text{ kV mm}^{-1}$  und internes elektrisches Feld  $E_{\text{int}} = 3,35 \text{ kV mm}^{-1}$  [Gop97]. Geeignete Dotierungen sowie die Verringerung des Lithiummangels (NSLN) können das Koerzitivfeld enorm herabsetzen, was auf eine verringerte Anzahl der intrinsischen Kristalldefekte zurückgeführt wird [Kim01b].

YAO et al. fanden für  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$  (5 mol% Mg)  $E_{C,v} = 8 \text{ kV mm}^{-1}$ ,  $E_{C,r} = 7 \text{ kV mm}^{-1}$  und  $E_{\text{int}} = 0,5 \text{ kV mm}^{-1}$  [Yao04]. JENTJENS ermittelte mit einem Verfahren, wie es auch in dieser Arbeit verwendet wird,  $E_{C,v} = (6,0 \pm 0,2) \text{ kV mm}^{-1}$ ,  $E_{C,r} = (5,0 \pm 0,2) \text{ kV mm}^{-1}$  und  $E_{\text{int}} = (0,5 \pm 0,2) \text{ kV mm}^{-1}$  [Jen10]. Sie zeigte außerdem, dass im Falle von zuvor mit Ionen bestrahltem Lithiumniobat der bestrahlte Bereich gegenüber dem unbestrahlten ein nochmals signifikant niedrigeres Koerzitivfeld aufweist [Jen08a, Jen10].

## 2.2 Lithiumtantalat

Lithiumtantalat (LT) ist in vielen Aspekten ähnlich zu Lithiumniobat, da es dieselbe Kristallstruktur besitzt (vgl. Abb. 2.1a). Wie an der Summenformel  $\text{LiTaO}_3$  zu erkennen ist, befindet sich nun Tantal an der Stelle des Niob-Ions [Abr67]. Es treten jedoch einige Unterschiede auf, die im Folgenden aufgeführt werden.

Zunächst besitzt der Kristall durch das höhere Atomgewicht von Tantal gegenüber Niob mit  $\rho = 7,46 \text{ g/cm}^3$  eine höhere Dichte. Die Schmelztemperatur von Lithiumtantalat ist mit  $T_S = 1650 \text{ °C}$  höher, die CURIE-Temperatur  $T_C = 601 \text{ °C}$  jedoch geringer als bei Lithiumniobat [Bal67, Kit98]. Auch  $\text{LiTaO}_3$  kommt in der Natur nicht vor und wird künstlich hergestellt. Wie bei  $\text{LiNbO}_3$  sind kongruent schmelzende  $\text{LiTaO}_3$ -Kristalle nicht stöchiometrisch, sondern weisen ebenfalls einen Lithiummangel auf [Miy71]. Die kongruente Schmelzzusammensetzung liegt mit  $\text{Li}_2\text{O}/\text{Ta}_2\text{O}_5 = 0,953$  (48,75 mol%  $\text{Li}_2\text{O}$ ) leicht über der von Lithiumniobat [Miy71, Kim01a]. Die sich daraus ergebenden intrinsischen „Antisite“-Defekte und Leerstellen verhalten sich jedoch analog zu  $\text{LiNbO}_3$  (vgl. Abschn. 2.1.2) [Kim01b].

### 2.2.1 Optisches Verhalten

Auch Lithiumtantalat ist doppelbrechend; für  $\lambda = 633$  nm (HeNe-Laser) und Raumtemperatur liegt der ordentliche Brechungsindex bei  $n_o = 2,1772$ , der außerordentliche Brechungsindex beträgt  $n_e = 2,1835$  [Yam12]. Kongruent schmelzendes  $\text{LiTaO}_3$  besitzt damit nach Gleichung 2.1 eine positive Doppelbrechung  $\delta n$ , die zudem betragsmäßig kleiner ausfällt als bei  $\text{LiNbO}_3$ . Auch hier nimmt der außerordentliche Brechungsindex zwischen (48 – 50) mol%  $\text{Li}_2\text{O}$  mit steigender Konzentration um etwa  $5,9 \times 10^{-3} \text{ mol}\%^{-1}$  ab. Der ordentliche Brechungsindex zeigt wie bei Lithiumniobat keine Abhängigkeit von der Lithiumkonzentration [Bae04].

Für ein Verhältnis von  $\text{Li}_2\text{O}/\text{Ta}_2\text{O}_5 = 0,980$  (49,47 mol%  $\text{Li}_2\text{O}$ ) verschwindet bei Raumtemperatur die Doppelbrechung für Licht der Wellenlänge  $\lambda = 633$  nm [Bae04].

### 2.2.2 Ferroelektrische Domänen

Ferroelektrische Domänen wachsen in kongruent schmelzendem Lithiumtantalat bei Raumtemperatur entlang der  $\vec{x}$ -Achsen und damit in dreieckiger Form, in Abbildung 2.1b in rot dargestellt. Oberhalb einer Temperatur von 125 °C zeigt sich die von Lithiumniobat bekannte hexagonale Form [Scr05].

Nominell undotiertes, kongruent schmelzendes  $\text{LiTaO}_3$  zeigt ähnlich wie Lithiumniobat sehr hohe Werte für Koerzitivfeld und internes elektrisches Feld; GOPALAN et al. fanden  $E_C = 16 \text{ kV mm}^{-1}$  und  $E_{\text{int}} = 5 \text{ kV mm}^{-1}$  [Gop96]. Auch hier senkt eine Magnesiumdotierung mit 7 mol% das Koerzitivfeld für Vorwärtspolung auf bis zu  $E_{C,v} = 2,6 \text{ kV mm}^{-1}$  [Ish08]. Die von ISHIZUKI et al. verwendete Messmethode konnte jedoch die Koerzitivfeldstärke für Rückwärtspolung  $E_{C,r}$  und, das wahrscheinlich ebenfalls geringere, interne elektrische Feld  $E_{\text{int}}$  nicht ermitteln [Ish08].

## 2.3 Schnelle Ionen in Materie

Die folgenden Abschnitte behandeln die, im Hinblick auf die vorliegende Arbeit relevanten, physikalischen Prozesse im Inneren eines mit hochenergetischen Ionen beschossenen Festkörpers und geben eine kurze Übersicht über bisherige Untersuchungen zu Strahlenschäden in Lithiumniobat.

### 2.3.1 Energieverlust und Reichweite

Dringen hochenergetische Ionen in einen Festkörper ein, verlieren diese ihre kinetische Energie hauptsächlich über elektronische Wechselwirkungen mit dem Kristallgitter. Mit zunehmender Eindringtiefe nimmt die kinetische Energie der Ionen ab, sodass nukleare Wechselwirkungen mit den Kernen des Festkörpers zunehmen. Elastische Stöße können



die Gitteratome verlagern und auf diese Weise Leerstellen erzeugen [Zie84, Zie85]. Im sogenannten BRAGG-Peak wird der Energieverlust pro Strecke maximal; kurz danach wird die Stopptiefe erreicht und die Ionen bleiben im Kristall stecken.

Der Energieverlust pro Strecke  $\frac{dE}{dx}$  und damit die Reichweite der Ionen können mittels der BETHE-BLOCH-Gleichung beschrieben werden [Bet30, Blo33a, Blo33b] und hängen von Parametern wie z. B. den Targetatomen, den Projektilionen und der Energie ab.

### 2.3.2 Kernreaktionen

Inelastische nukleare Wechselwirkungen der schnellen Ionen mit den Atomen des Targetmaterials sind selten, können aber zu einer deutlichen Aktivierung der bestrahlten Probe führen. Die Wahrscheinlichkeit für eine Kernreaktion wird dabei durch den entsprechenden Wirkungsquerschnitt angegeben und ist abhängig von der Art und Energie des einfallenden Teilchens sowie der Art des getroffenen Kerns [LB99]. Des Weiteren nimmt die Aktivierung des Targets linear mit der Anzahl der einfallenden Teilchen (Ionendosis) zu [Jen10].

### 2.3.3 Strahlenschäden in Lithiumniobat

Eine Bestrahlung von Lithiumniobat mit schnellen leichten Ionen (z. B. 26 MeV  $^2\text{d}$  oder 40 MeV  $^3\text{He}$ ) erhöht den außerordentlichen Brechungsindex  $\Delta n_e$  und reduziert den ordentlichen Brechungsindex  $\Delta n_o$ . Die Doppelbrechung des Materials wird damit verringert, die Änderungen  $\Delta n_e$  und  $\Delta n_o$  sind dabei betragsmäßig etwa gleich. Ebenso erfolgt eine leichte Deformation und damit auch eine Dickenzunahme des Kristalls im bestrahlten Bereich, ebenso wie eine Braunfärbung, die in Form und Intensität den Ionenstrahl widerspiegelt (vgl. auch [And05, ZM07, Hat07, Jen08b, Rae10, Jen10]). Zu beachten ist hierbei, dass keine Implantation von Ionen stattfindet und die Effekte im nur durchstrahlten Bereich entstehen. Die in der Literatur relativ gut verstandenen Effekte im Bereich der Stopptiefe der Ionen haben in diesem Fall also keine Bedeutung.

Für die Beschreibung der nach Bestrahlung von  $\text{LiNbO}_3$ -Kristallen im lediglich durchstrahlten Bereich erzeugten Schäden existieren noch keine zufriedenstellenden Modelle. Neben Untersuchungen zu Bestrahlungen mit Elektronen und Neutronen [Ubi00] gibt es vor allem Forschungen mit mittelschweren Ionen von  $^{16}\text{O}$  bis  $^{63}\text{Cu}$  bei Energien von (5 – 50) MeV [GN06, GN07] oder leichten Ionen wie  $^4\text{He}$  im hauptsächlich für Implantation genutzten Energiebereich von (1 – 2) MeV [Cha86, Gla88], in beiden Fällen entsprechend deutlich unter einem MeV pro Nukleon. Im hochenergetischen Bereich von bis zu 10 MeV pro Nukleon finden oft schwere Ionen wie  $^{112}\text{Sn}$  oder gar  $^{238}\text{U}$  mit bis zu einem GeV Energie Anwendung [Can98].

Im Wesentlichen werden bei der Modellbildung zwei Ansätze verfolgt:

**Coulomb-explosion-model:** Die eindringenden Ionen ionisieren die Targetatome entlang ihrer Trajektorie und die COULOMB-Abstoßung der dadurch positiv geladenen Atomrümpfe führt zu Störungen im Kristallgitter. Nach der Bestrahlung relaxiert das Gitter wieder, es verbleiben jedoch einige stabile Defekte [Fle65], wie zum Beispiel die für die Braunfärbung verantwortlichen Farbzentren an Sauerstofffehlstellen [Hod88]. Vorgeschlagen wird des Weiteren eine Verlagerung von Lithiumatomen [Gla88], insbesondere aus dem durchstrahlten Bereich heraus [Cha89, Zha91a, Zha91b]. KOSTRITSKII et al. fanden jedoch keinerlei Hinweise auf Lithium-arme Bereiche und stellen eine bestrahlungsinduzierte Diffusion von Lithium als unwahrscheinlich dar [Kos04, Kos07].

**Thermal-spike-model:** Hochenergetische Ionen können entlang ihres Weges im Festkörper einen sogenannten „thermal spike“ bilden [Sig77, Tou94]. Hierfür muss der Energieverlust pro Strecke  $\frac{dE}{dx}$  des Projektils einen gewissen Schwellwert überschreiten, sodass das Gitter lokal aufgeschmolzen wird und beim Abkühlen ein „latent track“ zurückbleibt, der entweder aus amorphem Material oder einer anderen kristallinen Phase besteht [Sze95, GN06]. Um den Kern des „latent tracks“ entsteht ein Ring mit einer Gitterverzerrung und damit einhergehenden Spannungsfeldern im Kristall [Riv11]. Des Weiteren zeigt der Effekt eine Abhängigkeit von der Ionengeschwindigkeit: Bei kleinen Geschwindigkeiten ist der Wirkungsquerschnitt für die Schadensbildung größer als bei hohen Geschwindigkeiten [Sze95, Can96].

ZAMANI-MEYMIAN et al. untersuchten die durch 40 MeV  $^3\text{He}$ -Ionen entstehenden Schäden mithilfe der Transmissionselektronenmikroskopie (TEM) und fanden Hinweise auf die Entstehung von „latent tracks“ [ZM07, ZM09]. Die Heliumionen allein erreichen jedoch nicht den in  $\text{LiNbO}_3$  nötigen Energieverlust von etwa  $500 \text{ eV } \text{Å}^{-1}$  [Can98, GN07]. Sie erfahren hingegen zentrale elastische Stöße mit Niob- oder Sauerstoffkernen, die ihrerseits auf ihrem Weg durch den Kristall genügend Energieverlust pro Strecke erleiden, um den Kristall lokal zu amorphisieren. Nach den Erkenntnissen von ZAMANI-MEYMIAN et al. enthalten die „latent tracks“ eine dichtere Kristallphase, wahrscheinlich das Lithiumärmere  $\text{LiNb}_3\text{O}_8$  [ZM09].

BRINGA et al. regen an, dass die beiden genannten Modelle keine konkurrierenden Interpretationen sind, sondern „Coulomb explosion“ bei hohen Energiedichten in Isolatoren auch zur Bildung von „latent tracks“ führen kann [Bri02].

## 2.4 Brechungsindexänderungen in ferroelektrischen Kristallen

Um die Auswirkungen der beschriebenen Effekte durch eine Bestrahlung mit schnellen leichten Ionen auf den Brechungsindex qualitativ und quantitativ zu beschreiben, werden im Folgenden einige, für Brechungsindexänderungen in ferroelektrischen Kristallen wie Lithiumniobat relevante, Mechanismen vorgestellt und im Hinblick auf die Modellbildung in [Abschnitt 5.8](#) die benötigten theoretischen Hintergründe erläutert.

### 2.4.1 Änderung des Volumens und der Polarisierbarkeit

Der Brechungsindex  $n$  eines homogenen Dielektrikums lässt sich mithilfe der LORENTZ-LORENZ-Gleichung [Lor80a, Lor80b] mit der sogenannten elektronischen Polarisierbarkeit  $\alpha$  und dem molaren Volumen  $V_M$  in Verbindung setzen [Boe73]:

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{4\pi}{3} \frac{\alpha}{V_M} \quad (2.2)$$

Aus historischen Gründen wird  $\alpha$  üblicherweise wie in Gleichung 2.2 im GAUSSSCHEN CGS-Einheitensystem<sup>5</sup> definiert und besitzt dann die Einheit eines Volumens.

Ist das Material nicht homogen, modifiziert sich Gleichung 2.2 mit den einzelnen Polarisierbarkeiten der Konstituenten  $\alpha_i$  und deren molaren Anteilen  $c_i$  zu [Sha93, Ram94]:

$$\frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} = \frac{4\pi}{3V_M} \sum_i c_i \alpha_i \quad (2.3)$$

Die Polarisierbarkeit von LiNbO<sub>3</sub> lässt sich damit z. B. wie folgt zerlegen:

$$\begin{aligned} \alpha(\text{LiNbO}_3) &= \frac{1}{2} [\alpha(\text{Li}_2\text{O}) + \alpha(\text{Nb}_2\text{O}_5)] \\ &= \alpha(\text{Li}^+) + \alpha(\text{Nb}^{5+}) + 3\alpha(\text{O}^{2-}) \end{aligned} \quad (2.4)$$

In Oxiden wie Lithiumniobat ist dabei zu beachten, dass die Polarisierbarkeit des Sauerstoffs in ionischen Kristallen von der Kristallkonfiguration abhängt und daher nicht einfach  $\alpha(\text{O}^{2-})$  für freien Sauerstoff in Gleichung 2.4 eingesetzt werden kann [Ish94].

Für eine exaktere Beschreibung optisch nicht isotroper Medien mit Brechungsindizes  $n_k$  (mit  $k = 1, 2, 3$ ) für in  $\vec{k}$ -Richtung polarisiertes Licht, lässt sich ein Korrekturfaktor  $b_{ik} = \alpha'_{ik}/\alpha_i$  definieren. Dieser beschreibt den Zusammenhang von anisotroper Polarisierbarkeit  $\alpha'_{ik}$  des  $i$ -ten Ionen-Strukturtyps entlang der  $\vec{k}$ -Achse und der zugehörigen isotropen Polarisierbarkeit  $\alpha_i$  [Yat01]:

$$\begin{aligned} \frac{n_k^2 - 1}{n_k^2 + 2} &= \frac{4\pi}{3V_M} \sum_i c_i \alpha'_{ik} \quad \text{mit } \alpha'_{ik} := b_{ik} \alpha_i \\ &= \frac{4\pi}{3} \frac{\alpha'_k}{V_M} \end{aligned} \quad (2.5)$$

Für ein optisch einachsiges Material gilt  $n_1 = n_2 = n_o$  und  $n_3 = n_e$  sowie  $\alpha'_1 = \alpha'_2 = \alpha_o$  und  $\alpha'_3 = \alpha_e$ , sodass folgt:

$$\frac{n_{o,e}^2 - 1}{n_{o,e}^2 + 2} = \frac{4\pi}{3} \frac{\alpha_{o,e}}{V_M} \quad (2.6)$$

bzw.

$$n_{o,e} = \sqrt{\frac{\frac{3}{4\pi} V_M + 2\alpha_{o,e}}{\frac{3}{4\pi} V_M - \alpha_{o,e}}} \quad (2.7)$$

<sup>5</sup>Im SI-Einheitensystem gilt unter Nutzung der Vakuum-Permittivität  $\epsilon_0$ :  $\alpha(\text{SI}) = 4\pi\epsilon_0 \cdot \alpha(\text{CGS})$

### Volumenänderung

Eine Volumenänderung  $\Delta V \ll V$  führt damit zu einer Brechungsindexänderung  $\Delta n_{o,e}^V$  des ordentlichen ( $n_o$ ) bzw. außerordentlichen ( $n_e$ ) Brechungsindex [Del77]:

$$\Delta n_{o,e}^V = -\frac{(n_{o,e}^2 - 1)(n_{o,e}^2 + 2)}{6n_{o,e}} \cdot \frac{\Delta V}{V} = -K_{o,e} \cdot \frac{\Delta V}{V} \quad (2.8)$$

mit den Faktoren  $K_{o,e}$ :

$$\begin{aligned} K_o &= \frac{(n_o^2 - 1)(n_o^2 + 2)}{6n_o} \\ K_e &= \frac{(n_e^2 - 1)(n_e^2 + 2)}{6n_e} \end{aligned} \quad (2.9)$$

### Änderung der Polarisierbarkeit

Ändert sich die Gesamtpolarisierbarkeit  $\alpha_{o,e}$  für die jeweilige Lichtpolarisation um  $\Delta\alpha_{o,e} \ll \alpha_{o,e}$  durch eine Änderung in der Zusammensetzung oder der Struktur des Kristalls, führt dies zu einer Brechungsindexänderung  $\Delta n_{o,e}^\alpha$  [Del77]:

$$\Delta n_{o,e}^\alpha = \frac{(n_{o,e}^2 - 1)(n_{o,e}^2 + 2)}{6n_{o,e}} \cdot \frac{\Delta\alpha_{o,e}}{\alpha_{o,e}} = K_{o,e} \cdot \frac{\Delta\alpha_{o,e}}{\alpha_{o,e}} \quad (2.10)$$

## 2.4.2 Änderung der ferroelektrischen Spontanpolarisierung

In ferroelektrischen Kristallen unterhalb der CURIE-Temperatur führt die Spontanpolarisierung  $P_s$  über den elektro-optischen Effekt zu einer Brechungsindexänderung  $\Delta n^*$  gegenüber der paraelektrischen Phase [Wem68]. In der Nähe des Phasenüberganges besitzen z. B. sowohl  $\text{LiNbO}_3$  als auch  $\text{LiTaO}_3$  für  $\lambda = 633 \text{ nm}$  eine Doppelbrechung von etwa  $\delta n(T_C) = +0,06$  [Mil66], die auf die rhomboedrische Kristallstruktur zurückzuführen ist [Wem68, Abr73]. Bei Raumtemperatur weist Lithiumniobat dann die bekannte negative Doppelbrechung auf, während die Doppelbrechung von Lithiumtantalat zwar geringer ausfällt, aber immer noch ein positives Vorzeichen besitzt.

Der Einfluss einer elektrischen Polarisierung  $P_l$  auf den inversen Dielektrizitätstensor  $(1/n^2)_{ij}$  kann als linearer elektro-optischer Effekt mit dem Tensor  $f_{ijl}$  beschrieben werden:

$$\Delta \left( \frac{1}{n^2} \right)_{ij} = \sum_l f_{ijl} P_l \quad \text{mit } i, j, l = 1, 2, 3 \quad (2.11)$$

In einem Ferroelektrikum entspricht dieser einem quadratischen elektro-optischen Effekt in einem unpolarisierten Kristall, verzerrt durch eine Polarisierung  $P_k$  [Wem68, DiD69]:

$$\Delta \left( \frac{1}{n^2} \right)_{ij} = \sum_{k,l} g'_{ijkl} P_k P_l \quad \text{mit } i, j, k, l = 1, 2, 3 \quad (2.12)$$

Mittels der VOIGT-Notation<sup>6</sup> lässt sich der Tensor vierter Ordnung  $g'_{ijkl}$  durch Kontrahieren der Indices als  $6 \times 6$  Matrix  $g'_{mn}$  (mit  $m, n = 1..6$ ) schreiben [Nye79]. Je nach Symmetrie des Kristallsystems sind von den Komponenten dieser Matrix einige Null oder linear von anderen abhängig.

Die Spontanpolarisierung  $P_s$  eines Kristalles liegt des Weiteren definitionsgemäß in Richtung der  $\vec{z}$ -Achse, entsprechend  $n = 3$ , sodass für die Änderung des Brechungsindex  $\Delta n_m^*$  verbleibt [DiD69]:

$$\Delta n_m^* = -\frac{1}{2}n_m'^3 g'_{m3} P_s^2 \quad \text{mit } m = 1..6 \quad (2.13)$$

Für die Brechungsindices des unpolarisierten Kristalls  $n'_o = n'_1$  und  $n'_e = n'_3$  folgt dann:

$$\begin{aligned} \Delta n_o^* &= -\frac{1}{2}n_o'^3 g'_{13} P_s^2 \\ \Delta n_e^* &= -\frac{1}{2}n_e'^3 g'_{33} P_s^2 \end{aligned} \quad (2.14)$$

Die Koeffizienten  $g'_{13}$  und  $g'_{33}$  sind dabei die relevanten quadratisch-elektro-optischen Koeffizienten des unpolarisierten Kristalls.

Findet in einem ferroelektrischen Kristall nun eine Änderung der Spontanpolarisierung  $\Delta P_s \ll P_s$  statt, verändern sich die Werte von  $\Delta n_{o,e}^*$ , sodass sich auch die erreichten Brechungsindices  $n_{o,e}$  ändern. Der Einfluss von  $\Delta P_s$  auf den Brechungsindex  $n_o$  bzw.  $n_e$  des polarisierten Kristalls lautet demnach [Sug78]:

$$\begin{aligned} \Delta n_o^P &= \Delta(\Delta n_o^*) = -n_o^3 g'_{13} P_s^2 \cdot \frac{\Delta P_s}{P_s} = -G_o \cdot \frac{\Delta P_s}{P_s} \\ \Delta n_e^P &= \Delta(\Delta n_e^*) = -n_e^3 g'_{33} P_s^2 \cdot \frac{\Delta P_s}{P_s} = -G_e \cdot \frac{\Delta P_s}{P_s} \end{aligned} \quad (2.15)$$

mit den Faktoren  $G_{o,e}$ :

$$\begin{aligned} G_o &= n_o^3 g'_{13} P_s^2 \\ G_e &= n_e^3 g'_{33} P_s^2 \end{aligned} \quad (2.16)$$

### 2.4.3 Verzerrung oder Verspannung des Kristallgitters

Eine Verzerrung des Kristallgitters  $\epsilon_{kl}$  führt über den elasto-optischen Effekt zu einer Änderung des inversen Dielektrizitätstensors  $(1/n^2)_{ij}$  [Wei85]:

$$\Delta \left( \frac{1}{n^2} \right)_{ij} = \sum_{k,l} p_{ijkl} \epsilon_{kl} \quad \text{mit } i, j, k, l = 1, 2, 3 \quad (2.17)$$

<sup>6</sup> $ij \rightarrow m, kl \rightarrow n: 11 \rightarrow 1, 22 \rightarrow 2, 33 \rightarrow 3, 23/32 \rightarrow 4, 31/13 \rightarrow 5, 12/21 \rightarrow 6$

Wieder lässt sich der elasto-optische Tensor  $p_{ijkl}$  als  $p_{mn}$  (mit  $m, n = 1 \dots 6$ ) darstellen<sup>7</sup>, auch hier sind meist nur einige wenige Komponenten linear unabhängig. Beim Kontrahieren von  $\epsilon_{kl}$  ist für die Nicht-Diagonalelemente abweichend ein Faktor 2 einzufügen:  $\epsilon_n = \epsilon_{kl}$  für  $n = 1, 2, 3$  und  $\epsilon_n = 2\epsilon_{kl}$  für  $n = 4, 5, 6$  [Nye79].

Wird statt der Verzerrung  $\epsilon_{kl}$  die Verspannung  $\sigma_{rs}$  im Kristall betrachtet gilt:

$$\Delta \left( \frac{1}{n^2} \right)_{ij} = \sum_{r,s} \pi_{ijrs} \sigma_{rs} \quad \text{mit } i, j, r, s = 1, 2, 3 \quad (2.18)$$

Auch beim Kontrahieren der Indices<sup>7</sup> von  $\pi_{ijrs}$  gilt abweichend  $\pi_{mq} = \pi_{ijrs}$  für  $q = 1, 2, 3$  und  $\pi_{mq} = 2\pi_{ijrs}$  für  $q = 4, 5, 6$ . Für die Änderung des Brechungsindex  $\Delta n_m^\epsilon$  folgt dann aus Gleichung 2.17 bzw. 2.18 jeweils:

$$\Delta n_m^\epsilon = -\frac{1}{2} n_m^3 \sum_n p_{mn} \epsilon_n \quad \text{mit } m, n = 1 \dots 6 \quad (2.19)$$

$$= -\frac{1}{2} n_m^3 \sum_q \pi_{mq} \sigma_q \quad \text{mit } m, q = 1 \dots 6 \quad (2.20)$$

Die Verzerrung  $\epsilon_n$  und die Verspannung  $\sigma_q$  und damit auch die beiden elasto-optischen Tensoren  $\pi_{mq}$  und  $p_{mn}$  sind über die Nachgiebigkeit  $s_{nq}$  miteinander verbunden [Nye79]:

$$\begin{aligned} \epsilon_n &= \sum_q s_{nq} \sigma_q & \text{mit } n, q = 1 \dots 6 \\ \pi_{mq} &= \sum_n p_{mn} s_{nq} & \text{mit } m, n, q = 1 \dots 6 \end{aligned} \quad (2.21)$$

Dabei gilt für Komponenten von  $s_{nq}$  mit kontrahierten Indices<sup>7</sup>:

$$\begin{aligned} s_{nq} &= s_{klrs} & \text{für } n, q = 1, 2, 3 \\ s_{nq} &= 2s_{klrs} & \text{für } n \text{ oder } q = 4, 5, 6 \\ s_{nq} &= 4s_{klrs} & \text{für } n \text{ und } q = 4, 5, 6 \end{aligned} \quad (2.22)$$

Abschließend ergibt sich für die Brechungsindexänderung aus Gleichung 2.19 bzw. 2.20 für die Brechungsindices  $n_o = n_1$  und  $n_e = n_3$ :

$$\begin{aligned} \Delta n_o^\epsilon &= -\frac{1}{2} n_o^3 \sum_{n=1}^6 p_{1n} \epsilon_n = -\frac{1}{2} n_o^3 \sum_{q=1}^6 \pi_{1q} \sigma_q \\ \Delta n_e^\epsilon &= -\frac{1}{2} n_e^3 \sum_{n=1}^6 p_{3n} \epsilon_n = -\frac{1}{2} n_e^3 \sum_{q=1}^6 \pi_{3q} \sigma_q \end{aligned} \quad (2.23)$$

Für ferroelektrische Materialien enthalten  $p_{mn}$  bzw.  $\pi_{mq}$  Anteile zweiter Ordnung durch eine Kombination aus piezoelektrischem und elektro-optischem Effekt [Der71, Nel72].

---

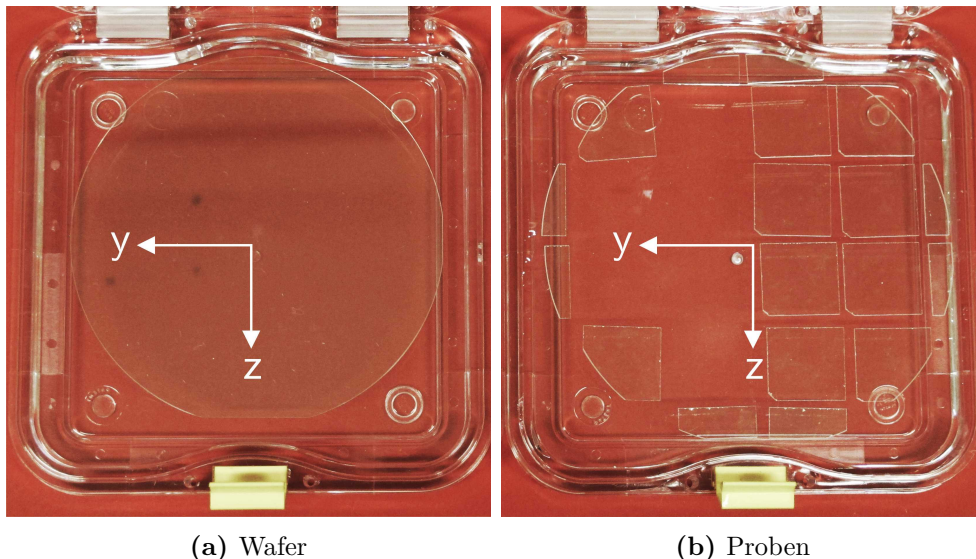
<sup>7</sup> $ij \rightarrow m, kl \rightarrow n, rs \rightarrow q: 11 \rightarrow 1, 22 \rightarrow 2, 33 \rightarrow 3, 23/32 \rightarrow 4, 31/13 \rightarrow 5, 12/21 \rightarrow 6$

# 3 Experimentelle Methoden

Im Folgenden werden zunächst die in dieser Arbeit verwendeten Proben und ihre Geometrien vorgestellt. Anschließend werden das für die Ionenbestrahlung verwendete Zyklotron, der Bestrahlungsaufbau und die Wahl der Beschleunigerenergie erläutert. Es folgen Darstellungen der verwendeten experimentellen Techniken zur Behandlung und Auswertung der bestrahlten Proben.

## 3.1 Verwendete Proben

Alle in dieser Arbeit verwendeten Lithiumniobat- und Lithiumtantalat-Kristalle werden als Wafer (vgl. [Abb. 3.1a](#)) von Yamaju Ceramics Co. Ltd. (Japan) bezogen und anschließend im Oberflächenlabor des Feinmechanik-Werkstattverbunds Physik der Universität Bonn in die gewünschten Probengeometrien zersägt (vgl. [Abb. 3.1b](#)). Die beschafften Wafer liegen entweder als „ $x$ -cut“ oder als „ $z$ -cut“ vor, was jeweils die Schnitttrichtung des Wafers beschreibt. Die auf optische Qualität polierten Oberflächen eines „ $x$ -cuts“ sind demnach die  $yz$ -Flächen, manchmal auch als  $+x$ - und  $-x$ -Fläche bezeichnet.



**Abb. 3.1:** (a) Lithiumniobat-Wafer in „ $x$ -cut“-Geometrie und (b) daraus gesägte Proben.

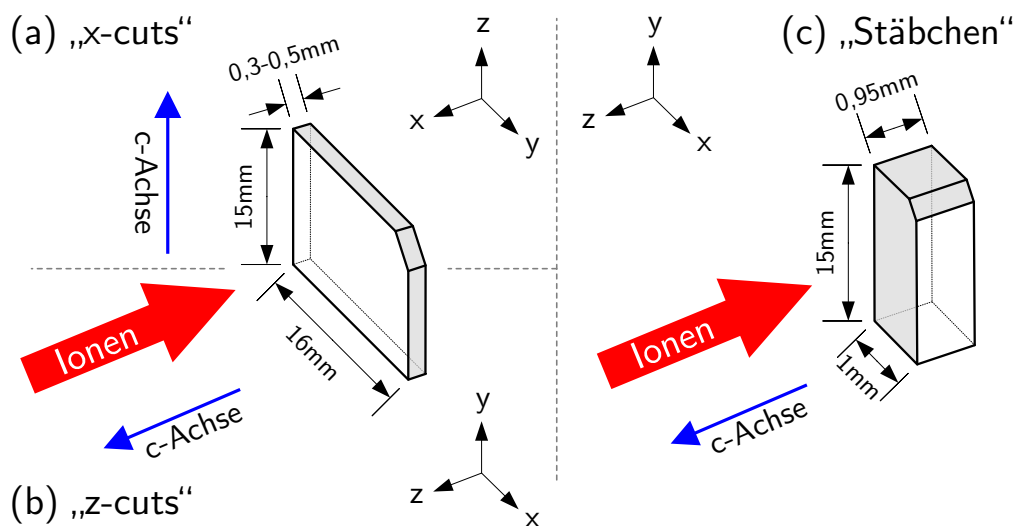
### 3.1.1 Lithiumniobat

Die standardmäßigen Probengeometrien bei  $\text{LiNbO}_3$  sind in [Abbildungen 3.2a/b](#) dargestellt und besitzen folgende Abmessungen:

- „x-cuts“:  $(x \times y \times z) = 0,5 \times 15 \times 16 \text{ mm}^3$
- „z-cuts“:  $(x \times y \times z) = 16 \times 15 \times 0,5 \text{ mm}^3$

Die Proben behalten dabei jeweils die auf optische Qualität polierten Flächen des Ursprungswafers.

Alle „z-cuts“ sind mit 5 mol% Magnesium dotiert, eine Auflistung der in dieser Arbeit behandelten  $\text{LiNbO}_3$ -„z-cuts“ findet sich in [Tabelle A.1](#). Die für die wiederholten Bestrahlungen in [Abschnitt 4.4.6](#) verwendeten „x-cuts“ sind nominell undotiert und in [Tabelle A.2](#) aufgelistet. Die Probenbezeichnungen lauten in beiden Fällen LNC, gefolgt von einer laufenden Nummer.



**Abb. 3.2:** Standardmäßige Probengeometrien (a) eines „x-cuts“ und (b) eines „z-cuts“ sowie (c) „Stäbchen“-Geometrie eines „x-cuts“. Auf optische Qualität polierte Flächen sind weiß dargestellt.

Für die Bestrahlung in [Abschnitt 4.3](#) kommt eine andere Probengeometrie zum Einsatz. Wie in [Abbildung 3.2c](#) zu sehen, wird der Kristall senkrecht zur Schnittrichtung des Ursprungswafers bestrahlt.

- „Stäbchen“ (x-cut):  $(x \times y \times z) = 1 \times 5 \times 0,95 \text{ mm}^3$

Die Proben in „Stäbchen“-Geometrie sind nominell undotiert und werden mit ST bezeichnet, eine Auflistung findet sich in [Tabelle 4.6](#).



### 3.1.2 Lithiumtantalat

Bei  $\text{LiTaO}_3$  kommen die Standardgeometrien (vgl. [Abb. 3.2a/b](#)) in verschiedenen Dicken zum Einsatz:

- „*x*-cuts“:  $(x \times y \times z) = 0,5 \times 15 \times 16 \text{ mm}^3$
- „*x*-cuts“:  $(x \times y \times z) = 0,3 \times 15 \times 16 \text{ mm}^3$
- „*z*-cuts“:  $(x \times y \times z) = 16 \times 15 \times 0,5 \text{ mm}^3$
- „*z*-cuts“:  $(x \times y \times z) = 16 \times 15 \times 0,4 \text{ mm}^3$

Die  $300 \mu\text{m}$  dicken „*x*-cuts“ stammen dabei aus einem Wafer entsprechender Dicke und besitzen somit, analog zu den  $500 \mu\text{m}$  dicken Proben, die polierten Flächen des Ursprungswafers. Die  $400 \mu\text{m}$  dicken „*z*-cuts“ wurden hingegen im Oberflächenlabor durch Herunterschleifen und anschließendes Polieren aus dickeren „*z*-cuts“ hergestellt.

Alle „*z*-cut“-Proben sind mit 7 mol% Magnesium dotiert, alle „*x*-cuts“ sind nominell undotiert. Die Probenbezeichnungen lauten LTC, gefolgt von einer laufenden Nummer; eine Auflistung der in dieser Arbeit behandelten  $\text{LiTaO}_3$ -Proben findet sich in [Tabelle A.3](#).

## 3.2 Bestrahlungen

Die Bestrahlung der Proben findet am Bonner Isochron-Zyklotron des Helmholtz-Instituts für Strahlen- und Kernphysik statt [[Zyk06](#)]; es werden folgende Projektile genutzt:

- Protonen ( $^1\text{p}^+$ , bezeichnet als  $^1\text{p}$ )
- Deuteronen ( $^2\text{d}^+$ , bezeichnet als  $^2\text{d}$ )
- $^3\text{He}$ -Ionen ( $^3\text{He}^{2+}$ , bezeichnet als  $^3\text{He}$ )
- Alphateilchen ( $^4\alpha^{2+}$ , bezeichnet als  $^4\alpha$ )

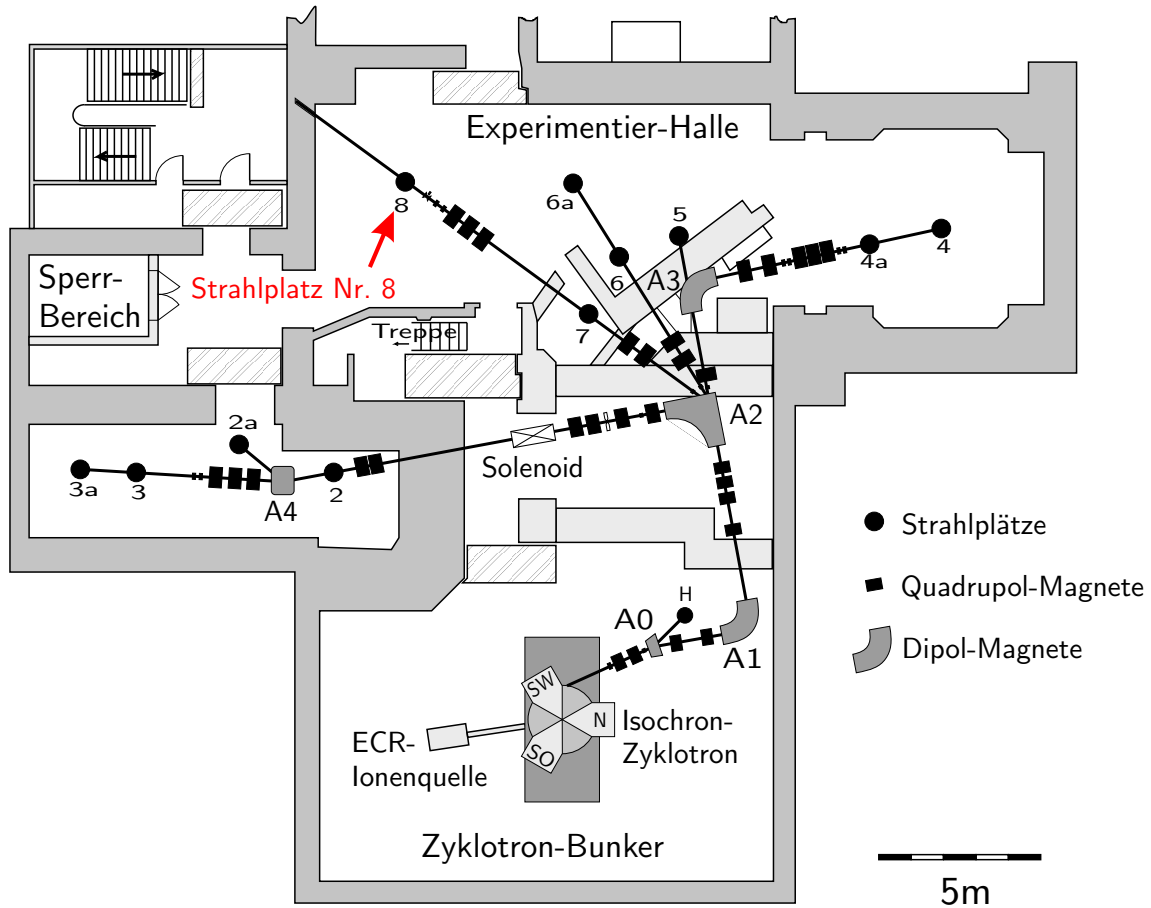
### 3.2.1 Zyklotron

[Abbildung 3.3](#) stellt das Zyklotron und die zugehörige Strahlführung dar. Alle in dieser Arbeit betrachteten Proben werden an Strahlplatz 8 auf dem so genannten „D-Weg“ bestrahlt. Die in der ECR-Ionenquelle<sup>1</sup> erzeugten Ionen werden im Isochron-Zyklotron auf die gewünschte Endenergie beschleunigt. Der Ionenstrahl wird durch Schlitzblenden, Dipol- und Quadrupolmagnete geformt und in der evakuierten Strahlführung zum Strahlplatz geleitet. Das Quadrupoltripllett unmittelbar vor Strahlplatz 8 bleibt ungenutzt, so dass sich der letzte strahlformende Magnet etwa 8 m vor dem Probenort befindet, um

---

<sup>1</sup>Electron Cyclotron Resonance

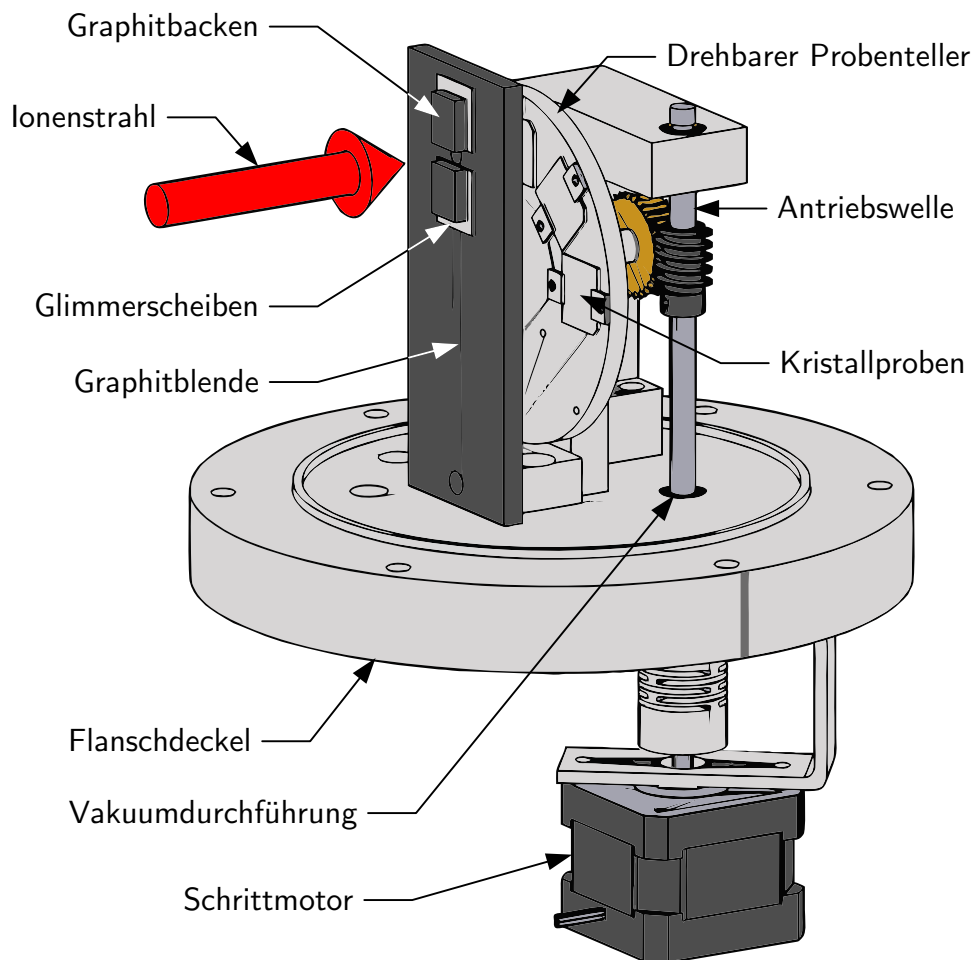
einen möglichst parallelen Strahl auf dem Kristall zu erhalten. Form und Lage des Ionenstrahls können unmittelbar vor dem Probenort durch einen ferngesteuerten und mit einer Kamera betrachteten Leuchtschirm aus Europium(III)-Oxid überprüft werden.



**Abb. 3.3:** Strahlführung am Bonner Isochron-Zyklotron [Zyk06]. In der vorliegenden Arbeit wird der Strahlplatz 8 (rot gekennzeichnet) verwendet.

### 3.2.2 Automatischer Probenwechsler

Um ohne Umbauten mehrere Kristalle während einer Strahlzeit bestrahlen zu können, wird ein Aufbau benutzt, bei dem die Proben auf einem drehbaren Teller befestigt sind (siehe Abb. 3.4). Der bis zu 8 Proben fassende Drehteller aus Aluminium wird über ein Schneckenradgetriebe und eine Welle von einem Schrittmotor angetrieben, der außerhalb der Vakuumkammer am Strahlplatz sitzt. Vor dem Teller befindet sich eine Abschirmung aus Graphit, die eine Blende besitzt. Im Rahmen dieser Arbeit werden entweder eine kreisförmige Blende mit 4 mm Durchmesser oder eine schlitzförmige Blende mit den Abmessungen  $2 \times 11,5 \text{ mm}^2$  verwendet. Der Ionenstrahl trifft durch die Blende dabei nur die jeweils dahinter befindliche Probe.



**Abb. 3.4:** Mit dem hier dargestellten automatischen Probenwechsler können bis zu acht Proben in derselben Strahlzeit bestrahlt werden. Ein außerhalb des Zyklotronvakuum befindlicher Schrittmotor treibt einen Drehteller an, auf dem die Proben mittels Wärmeleitpaste oder Silikonöl kontaktiert werden.

Zur Kontrolle der Strahlage wird an drei Stellen der auftreffende Ionenstrom gemessen. Dazu sind neben der Blendenöffnung, vom restlichen Aufbau durch Glimmerscheiben isoliert, zwei Graphitbacken montiert und, ebenso wie der Probenteller selbst, elektrisch mit einem Kabel kontaktiert (nicht grafisch dargestellt). Der Probenteller fungiert als Strahlstopper, der den gesamten die Blende durchtretenden Ionenstrom absorbiert. Bei optimaler Strahlage sollte der gemessene Ionenstrom dabei symmetrisch auf beide Backen verteilt und auf dem Teller maximal sein. Zur Wärmeableitung ist der Teller über ein elektrisch isolierendes Wärmeleitpad mit der Welle verbunden.

Während einer Strahlzeit kann der Schrittmotor mittels eines LabVIEW-Programms zeit- oder ereignisgesteuert automatisch den Teller weiterdrehen und somit den nächsten Kristall hinter die Blende und in den Strahl bringen. Auf diese Weise entfallen Wartezeiten zwischen den Bestrahlungen, die bei einem manuellen Umbau notwendig wären.

### 3.2.3 Bestrahlungsdosis

Zur Ermittlung der auf den Kristall aufgetroffenen Ionendosis wird, unter der Annahme, dass alle Ionen den Kristall auch wieder verlassen (siehe [Abschn. 3.3](#)), der auf den Teller treffende Strom mit einem Pikoamperemeter (KEITHLEY 6485) gemessen und an ein LabVIEW-Programm übergeben. Dieses integriert den Strom zur Gesamtdosis  $D_Q$  auf; die Angabe erfolgt aus praktikablen Gründen in nAh. Nach Umrechnung mit der Ionenladung kann die Dosis auch als Gesamtanzahl der Ionen  $D_N$  angegeben werden. Ist eine definierte Ionendosis erreicht, dreht der automatische Probenwechsler die nächste Probe in den Strahl. Durch die Messung in Echtzeit wird eine hohe Reproduzierbarkeit der Ionendosis erreicht. Aufgrund systembedingter Totzeiten bei der Stromintegration verbleibt eine Unsicherheit in der Dosisbestimmung von etwa 5%. Die Dosis kann auch normiert auf die bestrahlte Fläche  $A_b$  angegeben werden und wird dann als Fluenz  $\Phi_N$  bezeichnet; hierbei kommt die Unsicherheit von  $\delta A_b = \pm 0,5 \text{ mm}^2$  bei der Bestimmung der bestrahlten Fläche aus dem Bestrahlungsbild hinzu.

### 3.2.4 Beschleunigerenergie

Um die durch verschiedene Projektile in Lithiumniobat bzw. Lithiumtantalat hervorgerufenen Effekte vergleichen zu können, ist es notwendig relevante Bestrahlungsparameter einheitlich zu definieren. Form und Größe des Strahlflecks werden vor allem zwischen vergleichenden Messungen unter Nutzung des Leuchtschirms bestmöglich reproduziert.

Daneben stellt auch die Beschleunigerenergie einen solchen Parameter dar, da sie maßgeblich die Eindringtiefe der Ionen in den Kristall und damit die Geometrie der Schädigung innerhalb desselben beeinflusst. Bei den vergleichenden Messungen wird durch geeignete Wahl der Energie (siehe [Abschn. 3.3](#)) sichergestellt, dass die verschiedenen Projektile eine vergleichbare Reichweite im jeweiligen Kristall erreichen. Die Reichweite soll dabei im Regelfall die Kristalldicke übersteigen, sodass keine Implantation von Ionen erfolgt. Eine Ausnahme bildet die Bestrahlung der  $\text{LiNbO}_3$ -Proben in „Stäbchen“-Geometrie, da hierbei die Stopptiefe explizit innerhalb des Kristalls liegen soll.

Die gewünschte Beschleunigerenergie kann dabei am Zyklotron nicht direkt eingestellt werden, sondern wird über die Stromstärke des Hauptmagneten (und somit dessen magnetische Flußdichte  $B$ ) gewählt. Die Energie  $E$  eines in einem Zyklotron mit dem maximalen Bahnradius  $R$  beschleunigten Projektils der Ladung  $q$  und der Masse  $m$  ergibt sich in nichtrelativistischer Näherung nach [\[Hin08\]](#):

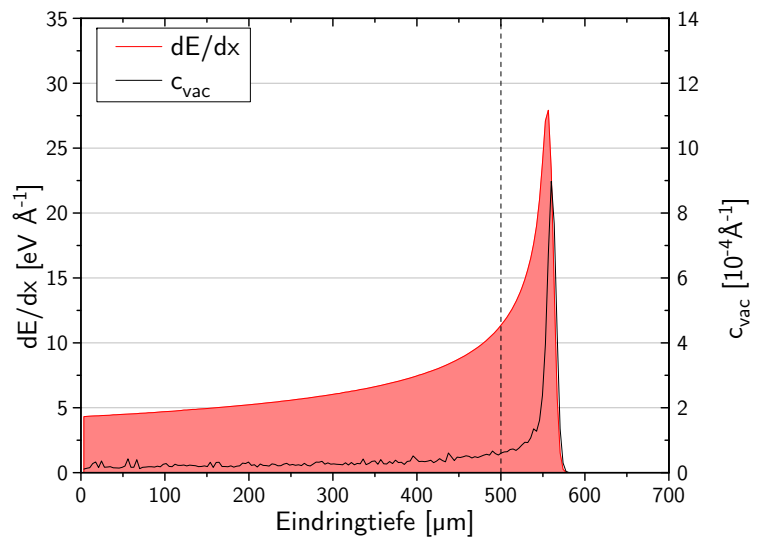
$$E = \frac{q^2}{2m}(RB)^2 \quad (3.1)$$

Durch Hystereseeffekte im Hauptmagneten können deshalb gelegentlich leichte Abweichungen der Energie vom gewünschten Wert auftreten. Die genaue Strahlenergie kann jedoch nach Inbetriebnahme vermessen werden.

### 3.3 Simulation von Energieverlust und Eindringtiefe

Der Energieverlust pro Strecke  $\frac{dE}{dx}$  und die Reichweite der Ionen im Kristall (vgl. [Abschn. 2.3.1](#)) können mit dem Programm SRIM<sup>2</sup> [[Zie08](#)] simuliert werden [[Zie84](#), [Zie85](#)]. Das Programm macht dabei einige vereinfachende Annahmen: Das Targetmaterial wird als amorph und vor jedem Ionentreffer unbeschädigt angenommen. Effekte, die durch Beteiligung mehrerer Ionen oder durch die Kristallstruktur hervorgerufen werden, bleiben damit unberücksichtigt.

**Abb. 3.5:** Simulation des Energieverlustes  $\frac{dE}{dx}$  und der Leerstellenkonzentration  $c_{\text{vac}}$  entlang der Probentiefe, berechnet mit SRIM-2008 [[Zie08](#)] für die Bestrahlung von  $\text{LiNbO}_3$  mit 42 MeV  $^3\text{He}$ -Ionen. Die gestrichelte Linie kennzeichnet die üblicherweise verwendete Probendicke.

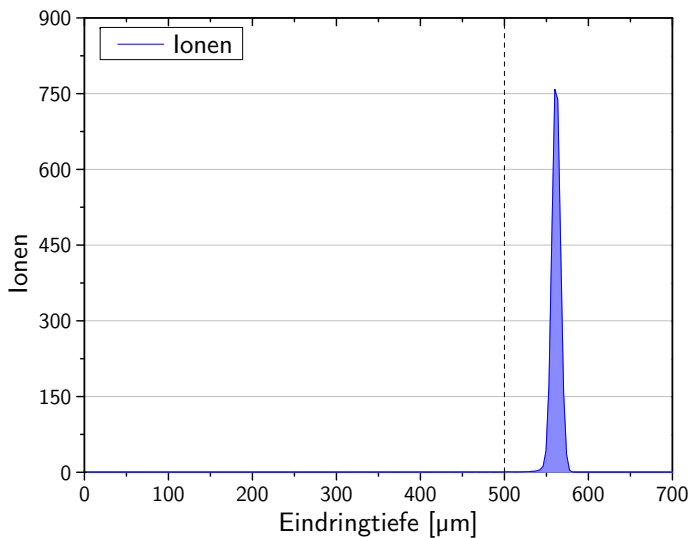


Die [Abbildung 3.5](#) zeigt beispielhaft den Energieverlust  $\frac{dE}{dx}$  von 42 MeV  $^3\text{He}$ -Ionen und die Konzentration entstehender Leerstellen  $c_{\text{vac}}$  in Lithiumniobat entlang der Probentiefe. Aus der in [Abbildung 3.6](#) dargestellten Verteilung der Projektile entlang der Eindringtiefe lässt sich die Reichweite der Ionen ablesen (vgl. [Tab. 3.1](#)). Eine  $\text{LiNbO}_3$ -Probe der Dicke 500  $\mu\text{m}$  wird von 99,9% der  $^3\text{He}$ -Ionen mit einer Energie von 42 MeV vollständig durchdrungen.

Target	Projektile	Energie [MeV]	Reichweite [ $\mu\text{m}$ ]
$\text{LiNbO}_3$	$^1\text{p}$	11,7 – 12,0	551 – 576
	$^2\text{d}$	15,6 – 17,2	549 – 647
	$^3\text{He}$	40 – 42	515 – 560
	$^4\alpha$	46 – 50	531 – 614
$\text{LiTaO}_3$	$^3\text{He}$	41 – 42	429 – 446
	$^4\alpha$	53 – 54	544 – 562

**Tab. 3.1:** Mit SRIM-2008 [[Zie08](#)] simulierte Eindringtiefen bzw. Reichweiten für die in dieser Arbeit verwendeten Targets, Projektile und Energiebereiche.

<sup>2</sup>Stopping and Range of Ions in Matter



**Abb. 3.6:** Simulation der Reichweite von 42 MeV  $^3\text{He}$ -Ionen in  $\text{LiNbO}_3$ , berechnet mit SRIM-2008 [Zie08]. Die gestrichelte Linie kennzeichnet die üblicherweise verwendete Proben Dicke.

Die Simulation der Projektilreichweite mit SRIM wird verwendet, um die Beschleunigerenergie derart zu wählen, dass die Stopptiefe der Ionen außerhalb der verwendeten Proben Dicke liegt. Die SRIM-Simulationen für in dieser Arbeit verwendete Kombinationen aus Projektil, Energie und Targetmaterial finden sich in [Anhang A.1](#).

[Tabelle 3.1](#) führt die verwendeten Projektile und ihre Energien sowie die mit SRIM-2008 [Zie08] berechneten Reichweiten für  $\text{LiNbO}_3$ - und  $\text{LiTaO}_3$ -Targets auf. Die angegebenen Energiebereiche umfassen dabei alle bei verschiedenen Bestrahlungen verwendeten Energien.

### 3.4 Gammaspektroskopie

Die nukleare Aktivierung der Probenkristalle durch die Bestrahlung mit schnellen leichten Ionen wird mit einem Gammaspektrometer vermessen. Hierzu nimmt ein stickstoffgekühlter Germanium-Halbleiterdetektor (ORTEC GMX-40195-S) das Energiespektrum der entstehenden Gammastrahlung auf. Probe und Detektor befinden sich während der Messung innerhalb einer Bleiabschirmung, die Messzeit beträgt jeweils 1200 s. Für den Detektor wurde zuvor aus einer Messung der Linien des Isotops  $^{152}\text{Eu}$  eine Eichfunktion für die Energieeichung und die energieabhängige Detektoreffizienzkorrektur ermittelt.

Die Anwendung der Energieeichung und der Energieeffizienzkorrektur auf die nun vom Vielkanalanalysator aufgenommenen Spektren erfolgt mit dem Computerprogramm M\_Spec 2 [Haa14]. Zur weiteren Auswertung passt M\_Spec 2 eine COMPTON-Untergrund-korrigierte GAUSS-Funktion an die identifizierten Gammalinien der Probe an. Das Integral dieser GAUSS-Funktion entspricht den Gammaereignissen innerhalb der entsprechenden Linie. Aus der Aufnahme mehrerer Spektren im Abstand einiger Tage bzw. Wochen können auch die zugehörigen Halbwertszeiten ermittelt werden. Mithilfe

der Datenbank des LBNL<sup>3</sup>-Isotopen-Projektes [Chu99] werden diesen Werten die jeweiligen Isotope zugeordnet. Ebenso werden aus Untergrundmessungen Gammalinien des Untergrundes identifiziert und bei der eigentlichen Auswertung nicht berücksichtigt.

### 3.4.1 Totale Aktivierung

Zur Bewertung der Einschränkung in der Nutzbarkeit der bestrahlten Proben durch die erzeugte Radioaktivität werden die Ereignisse aller in Betracht gezogenen Gammalinien aufsummiert und durch die Messzeit geteilt, um die totale Aktivierung der Probe als praktikables Maß zu erhalten. Bei einem Detektorabstand zur Probe von  $(35,5 \pm 0,5)$  cm deckt der Detektorkristall mit seinem Durchmesser von 58,3 mm einen Raumwinkel von  $(0,169 \pm 0,005)$  % ab. Die gemessenen Ereignisse können daher auf den vollen Raumwinkel korrigiert werden.

### 3.4.2 Anfangsaktivität und Nuklidproduktion

Im Allgemeinen sendet ein instabiles Nuklid beim Zerfall über eine Kaskade von mehreren angeregten Zuständen mehrere Gammaquanten aus. Die Energien und Intensitäten der so entstehenden verschiedenen Gammalinien hängen von der Besetzung der Energieniveaus und der Kombination innerhalb der Kaskade ab. Jede einzelne Gammalinie besitzt damit eine relative Wahrscheinlichkeit  $I_\gamma$  beim Zerfall eines Kerns aufzutreten. Im Umkehrschluss lässt sich die Anzahl der pro Zeiteinheit zerfallenden Kerne eines Isotops  $A(t)$  damit aus der Zählrate  $A_\gamma(t)$  einer einzelnen Gammalinie ermitteln:

$$A(t) = \frac{A_\gamma(t)}{I_\gamma} \quad (3.2)$$

Um  $A_\gamma(t)$  zu erhalten wird für das gewünschte Isotop die eindeutigste Linie aus dem bereits effizienzkorrigierten Gammaskopie ausgewählt und die ermittelte Zählrate anschließend auf den vollen Raumwinkel korrigiert.

Die Anfangsaktivität  $A_0$  lässt sich dann aus  $A(t)$ , der Halbwertszeit  $T_{1/2}$  und der seit der Bestrahlung verstrichenen Zeit  $t$  bestimmen:

$$A_0 = A(t) \cdot \exp\left(\frac{\ln(2)}{T_{1/2}} \cdot t\right) \quad (3.3)$$

Die durch Bestrahlung erzeugte Anzahl von radioaktiven Kernen  $N_0$  eines Isotops ist wiederum über die Halbwertszeit  $T_{1/2}$  mit der Anfangsaktivität  $A_0$  verknüpft:

$$N_0 = \frac{T_{1/2}}{\ln(2)} \cdot A_0 \quad (3.4)$$

---

<sup>3</sup>Lawrence Berkeley National Laboratory

Legt man die bei der Bestrahlung verwendete Ionendosis  $D_N$  zu Grunde, lässt sich für jedes Isotop eine Produktionseffizienz  $\eta$  definieren:

$$\eta = \frac{N_0}{D_N} \quad (3.5)$$

### 3.5 Interferometrische Messung des Brechungsindexes

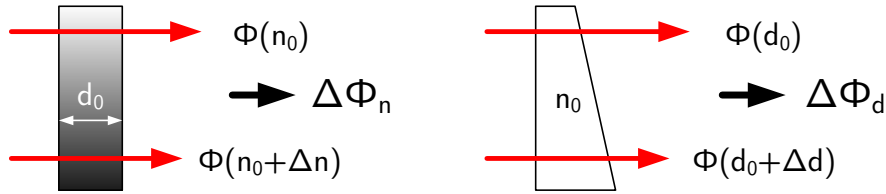
Nach der Bestrahlung von Lithiumniobat mit schnellen leichten Ionen treten Änderungen des Brechungsindex und der Probendicke auf [And05]. Das interferometrische Verfahren zur orts aufgelösten Messung dieser Modifikationen wird in diesem Abschnitt erläutert.

Tritt Licht der Wellenlänge  $\lambda$  durch ein Medium hindurch, so hängt die Phase  $\Phi$  von der im Medium zurückgelegten Strecke  $d$  und dem Brechungsindex  $n$  ab:

$$\Phi = \frac{2\pi}{\lambda} nd \quad (3.6)$$

Eine lokale Veränderung des Brechungsindex oder der Probendicke führt somit direkt zu einer Änderung der Phase des austretenden Lichts. Die [Abbildung 3.7](#) illustriert die Beiträge der ortsabhängigen Brechungsindexänderung  $\Delta n(x, y)$  und der Dickenänderung  $\Delta d(x, y)$  zur Gesamtphasenänderung  $\Delta \Phi_{\text{ges}}(x, y)$ , wobei angenommen wird, dass sich die Gesamtphasenänderung in partielle Differentiale zerlegen lässt:

$$\Delta \Phi_{\text{ges}}(x, y) = \frac{\partial \Phi}{\partial n} \Delta n(x, y) + \frac{\partial \Phi}{\partial d} \Delta d(x, y) = \Delta \Phi_n(x, y) + \Delta \Phi_d(x, y) \quad (3.7)$$



**Abb. 3.7:** Die lokale Gesamtphasenänderung  $\Delta \Phi_{\text{ges}}(x, y)$  resultiert aus den Phasenänderungen durch Brechungsindex  $\Delta \Phi_n(x, y)$  und Probendicke  $\Delta \Phi_d(x, y)$ .

Es folgen

$$\Delta \Phi_n(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} d_0 \Delta n(x, y) \quad (3.8)$$

$$\Delta \Phi_d(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} (n_0 - n_L) \Delta d(x, y) \quad (3.9)$$

die zusammengesetzt ergeben:

$$\Delta \Phi_{\text{ges}}(x, y) = \frac{2\pi}{\lambda} [d_0 \Delta n(x, y) + (n_0 - n_L) \Delta d(x, y)] \quad (3.10)$$

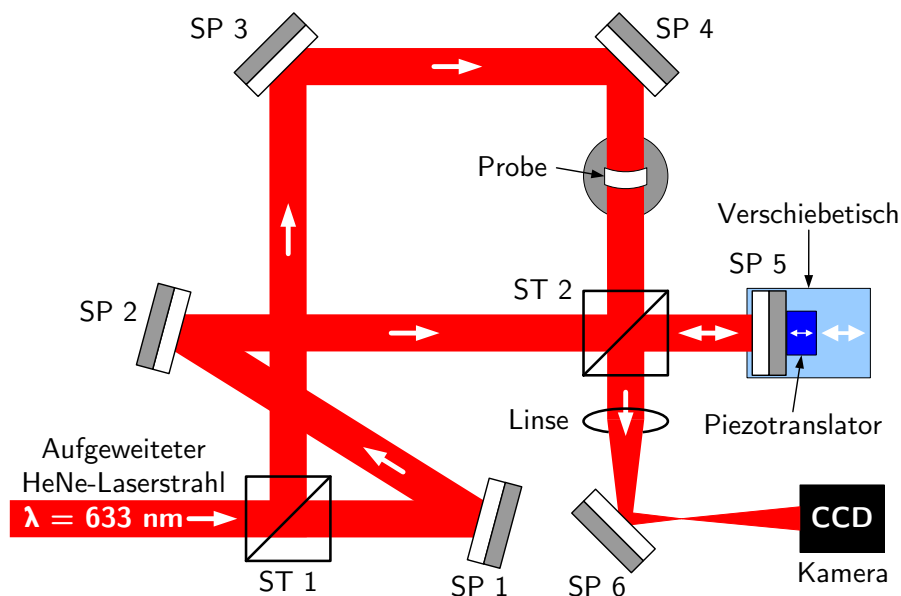


Hierbei ist  $d_0$  die ursprüngliche Kristalldicke,  $n_0$  der ursprüngliche Brechungsindex und  $n_L \approx 1$  der Brechungsindex der umgebenden Luft. Die Brechungsindexänderung  $\Delta n(x, y)$  kann somit aus der getrennten Messung der Gesamtphasenänderung  $\Delta\Phi_{\text{ges}}(x, y)$  und der Dickenänderung  $\Delta d(x, y)$  bestimmt werden.

$$\Delta n(x, y) = \frac{\lambda}{2\pi d_0} \Delta\Phi_{\text{ges}}(x, y) - \frac{n_0 - n_L}{d_0} \Delta d(x, y) \quad (3.11)$$

Die Messung wird mit einem kombinierten MACH-ZEHNDER-MICHELSON-Interferometer [And05] durchgeführt, dessen Funktionsweise im Folgenden erklärt wird.

### 3.5.1 Gesamtphasenänderung



**Abb. 3.8:** Interferometer in MACH-ZEHNDER-Konfiguration zur Messung der Gesamtphasenänderung mit Strahlteilern (ST) und Spiegeln (SP).

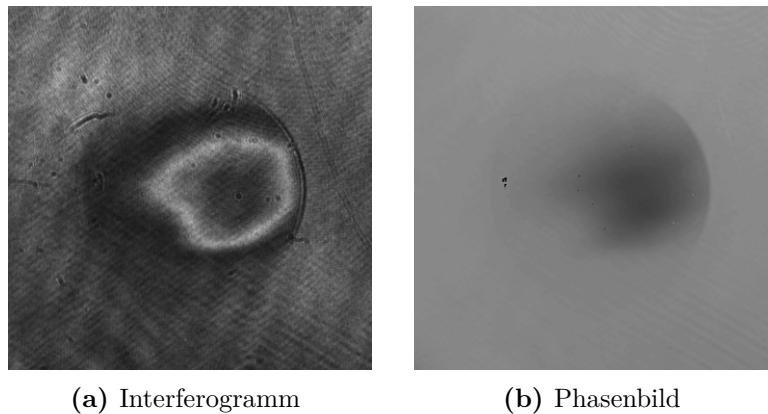
Die Gesamtphasenänderung  $\Delta\Phi_{\text{ges}}(x, y)$  wird mit einem MACH-ZEHNDER-Interferometer bestimmt, dessen Aufbau in [Abbildung 3.8](#) dargestellt ist. Der aufgeweitete Strahl eines HeNe-Lasers ( $\lambda_{\text{HeNe}} = 633 \text{ nm}$ ) wird am Strahlteiler ST 1 aufgespalten, wobei der abgelenkte Signalstrahl über zwei Spiegel (SP 3 und SP 4) umgelenkt wird, bevor er durch die Probe und anschließend den Strahlteiler ST 2 tritt. Der Referenzstrahl gelangt über zwei Spiegel (SP 1 und SP 2) und durch den Strahlteiler ST 2 hindurch auf den piezoelektrisch verstellbaren Spiegel SP 5. Der an SP 5 reflektierte Strahl wird am Strahlteiler ST 2 abgelenkt und interferiert dort mit dem von der Probe kommenden Signalstrahl. Die interferierenden Strahlen werden gemeinsam durch eine Linse und den Spiegel SP 6 ins Kameraobjektiv einer CCD-Kamera ( $1280 \times 1024$  Pixel, 8 Bit Intensitätsauflösung) gelenkt.

Das resultierende Interferogramm kann in Echtzeit auf einem Computer betrachtet werden. Um Reflexe der Oberfläche und FABRY-PEROT-Interferenzen innerhalb der Probe zu verhindern, wird die Probe über den vertikal und horizontal verdrehbaren Probentisch ein wenig verkippt. Die dadurch entstehende Versetzung des Signalstrahls ist vernachlässigbar klein.

Um bei „*x*-cut“-Kristallen eine getrennte Messung des ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindex durchführen zu können, ist der Laserstrahl polarisiert und die Polarisationssebene kann mittels einer  $\lambda/4$ -Platte und eines Polarisationsfilters um  $90^\circ$  gedreht werden.

Der Abbildungsmaßstab beträgt 1:1, sodass man direkt aus den Pixeln des Kamerabildes Entfernungen im Interferogramm ermitteln kann; die Pixelgröße des CCD-Sensors beträgt  $18,6 \times 18,6 \mu\text{m}^2$ . Durch Veränderung der Positionen von Linse und Kamera, sowie dem baulich bedingten Hinzufügen eines weiteren Spiegels kann auch ein vergrößernder Maßstab von 4:1 erreicht werden.

### 3.5.2 Phasenbestimmung aus den Interferenzbildern



**Abb. 3.9:** (a) Beispiel für ein Transmissionsinterferogramm  $I(x, y)$  und (b) aus diesem und zwei weiteren mit FRAN NT [Jud02] verstetigtes Phasenbild  $\Delta\Phi(x, y)$ . Dargestellt ist ein Probenausschnitt mit sichtbarem Strahlfleck nach Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen.

Die eigentliche Messung der jeweiligen Phasenänderung erfolgt nun durch das piezoelektrische Verschieben des Spiegels SP 5, wodurch sich die Phase zwischen Referenz- und Signalstrahl um den Phasenwinkel  $\theta$  verändern lässt. Dafür wird die am Piezoantrieb anliegende Spannung schrittweise von 70 V bis 80 V variiert und alle 0,5 V mit dem PC ein Interferogramm aufgenommen. Die [Abbildung 3.9a](#) zeigt beispielhaft ein solches Interferogramm. Von diesen werden drei Bilder mit einem Abstand von  $\theta \approx 90^\circ$  ausgewählt.

Der Phasenwinkel  $\theta$  zwischen den Interferogrammen hängt von der Wellenlänge ab und kann einmalig ermittelt werden, indem man den Verlauf der Intensität an einer Stelle im Interferogramm aufzeichnet, während man die Steuerspannung des Piezoverstellers variiert. Bei  $\lambda_{\text{HeNe}} = 633 \text{ nm}$  erhält man für diesen Aufbau  $\theta_{\text{HeNe}}(2 \text{ V}) = 86^\circ$ .

Für die Intensitäten  $I_i(x, y)$  der drei ausgewählten Bilder gilt dann:

$$\begin{aligned} I_1 &= a + b \cdot \cos(\Delta\Phi) \\ I_2 &= a + b \cdot \cos(\Delta\Phi + \theta) \\ I_3 &= a + b \cdot \cos(\Delta\Phi + 2\theta) \end{aligned} \quad (3.12)$$

Hierbei bezeichnet  $a$  die Hintergrundintensität und  $b$  die Amplitude der Interferenzstreifen. Für die Phasenänderung  $\Delta\Phi$  folgt dann [And05]:

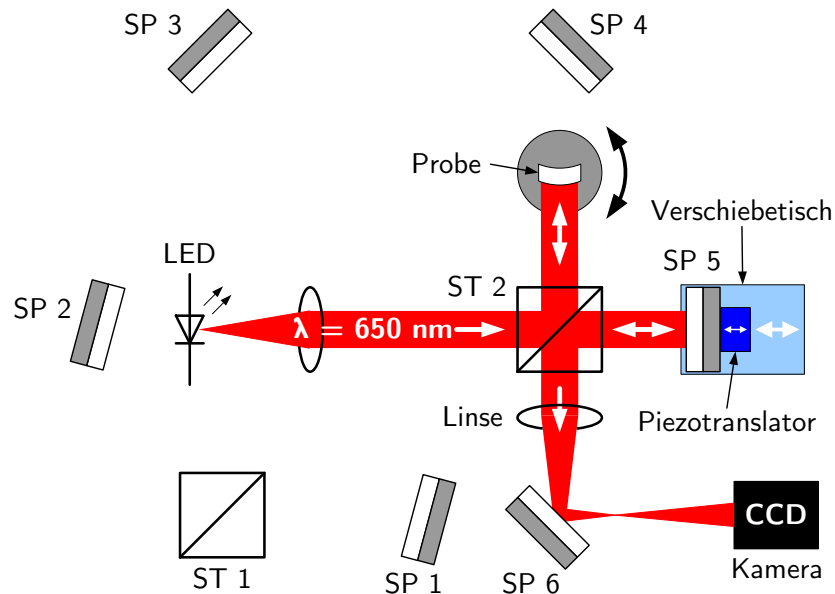
$$\Delta\Phi = \arctan \left[ \frac{(I_3 - I_1)(\cos \theta - 1) - (I_2 - I_1)(\cos 2\theta - 1)}{(I_3 - I_1) \sin \theta - (I_2 - I_1) \sin 2\theta} \right] \quad (3.13)$$

Da der Arcustangens nur Werte im Intervall  $[-\frac{\pi}{2}, +\frac{\pi}{2}]$  annimmt, können Unstetigkeiten auftreten. Um aus den drei Intensitätsbildern ein verstetigtes Phasenbild zu erzeugen, wird das Programm FRAN NT [Jud94, Jud02] verwendet. Die Abbildung 3.9b zeigt das fertige Phasenbild  $\Delta\Phi_{\text{trans}}$  nach der Verstetigung mit FRAN NT [Jud02].

Um Justagefehler und Untergrundeffekte des Interferometers zu eliminieren, wird anschließend auch die Phasenänderung  $\Delta\Phi_0(x, y)$  ohne eingebaute Probe gemessen. Die Gesamtphasenänderung  $\Delta\Phi_{\text{ges}}(x, y)$  ergibt sich dann aus:

$$\Delta\Phi_{\text{ges}}(x, y) = \Delta\Phi_{\text{trans}}(x, y) - \Delta\Phi_0(x, y) \quad (3.14)$$

### 3.5.3 Dickenänderung



**Abb. 3.10:** Interferometer in MICHELSON-Konfiguration zur Messung der Oberflächen deformation mit Strahlteilern (ST) und Spiegeln (SP). Vorder- und Rückseite werden separat gemessen und aus der Verformung der Oberflächen die Dickenänderung ermittelt.

Da die Dickenänderung  $\Delta d(x, y)$  interferometrisch nicht direkt bestimmt werden kann, werden stattdessen die Deformationen der Vorder- und Rückseite  $\Delta\epsilon_{v,r}(x, y)$  bestimmt.

Um die Deformation der Oberflächen mit einem MICHELSON-Interferometer zu messen, wird der bekannte Aufbau aus [Abbildung 3.8](#) zu dem in [Abbildung 3.10](#) modifiziert. Die Abbildungsgeometrie der Probe wird dadurch beibehalten. An die Stelle des Laserlichts tritt nun das Licht einer LED ( $\lambda_{\text{LED}} = 650 \text{ nm}$ ) und es wird nur ein Strahlteiler genutzt. Im Gegensatz zum Aufbau aus [Abbildung 3.8](#) ist es nun notwendig, dass die Probenoberfläche exakt senkrecht zum Strahl steht. Dies kann vor der Modifikation des Aufbaus mit Hilfe des Lasers sichergestellt werden, indem die Probe so eingestellt wird, dass der Oberflächenreflex in sich selbst zurückgeworfen wird.

Der Strahl der LED wird an Strahlteiler ST 2 in zwei Teilstrahlen aufgespalten. Der abgelenkte Signalstrahl trifft auf die Probenoberfläche, die als Spiegel fungiert, und läuft gerade zurück durch ST 2. Der Referenzstrahl tritt durch den Strahlteiler ST 2 hindurch und wird vom piezoelektrisch verstellbaren Spiegel SP 5 wieder in ST 2 reflektiert, wo er in Richtung Kamera abgelenkt wird und mit dem Signalstrahl interferiert. Eine Verformung der Oberfläche  $\Delta\epsilon(x, y)$  erzeugt nun im Signalstrahl eine Phasendifferenz  $\Delta\Phi_\epsilon(x, y)$ :

$$\Delta\Phi_\epsilon(x, y) = 2 \cdot \frac{2\pi}{\lambda_{\text{LED}}} \Delta\epsilon(x, y) \quad (3.15)$$

Das Licht einer LED wird hier verwendet, da die wesentlich kürzere Kohärenzlänge von circa  $15 \mu\text{m}$  dafür sorgt, dass nur die Vorderseite der Probe zum Interferogramm beiträgt; der von der Rückseite der Probe kommende Reflex ist nicht mehr interferenzfähig. Damit die Interferenzbedingung für die Vorderseite zunächst überhaupt erfüllt wird, muss ein exakter Weglängenabgleich zwischen Signal- und Referenzstrahl stattfinden, indem man Spiegel SP 5 mittels eines darunter montierten Verschiebetischs entsprechend verfährt. Die Messung der Phasenänderung  $\Delta\Phi_\epsilon$  geschieht wie in [Abschnitt 3.5.2](#) beschrieben. Für den Abstand der Interferogramme erhält man in diesem Fall bei  $\lambda_{\text{LED}} = 650 \text{ nm}$  den Phasenwinkel  $\theta_{\text{LED}}(2V) = 82^\circ$ .

Um die Deformation der Rückseite zu bestimmen wird die Probe um  $180^\circ$  gedreht und die Messung wiederholt. Die Drehung der Probe ist bei der Auswertung zu beachten.

Die Phasenänderungen  $\Delta\Phi_{\epsilon,v}(x, y)$  und  $\Delta\Phi_{\epsilon,r}(x, y)$  werden mit [Gleichung 3.15](#) in  $\Delta\epsilon_v(x, y)$  und  $\Delta\epsilon_r(x, y)$  umgerechnet und daraus die Dickenänderung  $\Delta d(x, y)$  bestimmt:

$$\Delta d(x, y) = \Delta\epsilon_v(x, y) + \Delta\epsilon_r(x, y) \quad (3.16)$$

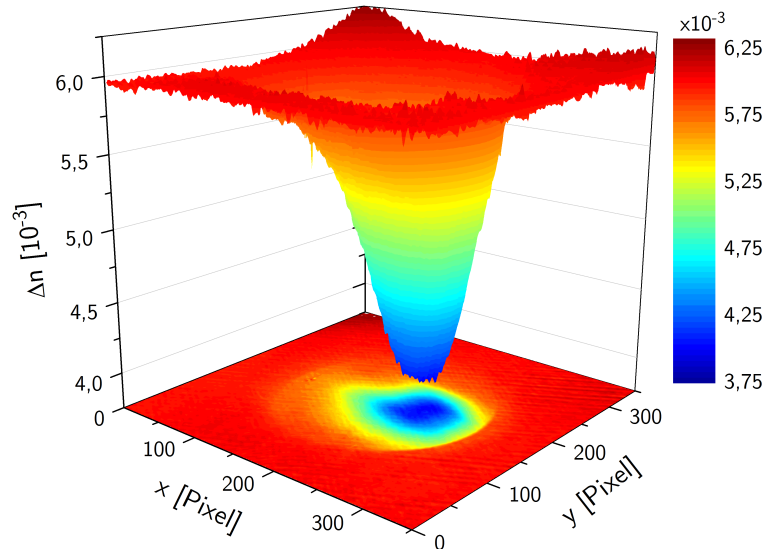
Eine Voraussetzung ist hierbei, dass die beiden Oberflächen ansonsten hinreichend planparallel sind, was für die hier benutzten Proben, hergestellt aus in optischer Qualität polierten Wafern, immer erfüllt ist.

#### 3.5.4 Ermittlung der Brechungsindexänderung

Nach einem kompletten Messzyklus liegen nun vier bzw. sechs (bei Messung beider Polarisationsrichtungen) verstetigte Phasenbilder vor, aus denen wie oben beschrieben mit Hilfe

der Software MATLAB die Gesamtphasenänderung  $\Delta\Phi_{\text{ges}}(x, y)$  und die Dickenänderung  $\Delta d(x, y)$  bestimmt werden können:

- Phasenänderung bei Transmission  $\Delta\Phi_{\text{trans}}$
- Phasenänderung bei Nullmessung  $\Delta\Phi_0$
- }  $\Delta\Phi_{\text{ges}}$
- Phasenänderung durch Reflexion an der Vorderseite  $\Delta\Phi_{\epsilon, v}$
- Phasenänderung durch Reflexion an der Rückseite  $\Delta\Phi_{\epsilon, r}$
- }  $\Delta d$



**Abb. 3.11:** Beispiel für ein ausgewertetes Brechungsindexprofil mit einer deutlich erkennbaren Absenkung desselben um  $\Delta n^{\text{max}} = 2 \times 10^{-3}$  im bestrahlten Bereich. Es wurde derselbe Ausschnitt gewählt wie in [Abb. 3.9](#).

Aus der Gesamtphasenänderung  $\Delta\Phi_{\text{ges}}(x, y)$  und der Dickenänderung  $\Delta d(x, y)$  kann dann nach [Gleichung 3.11](#)  $\Delta n(x, y)$  berechnet werden. Dabei ist zu beachten, dass sich nur relative Größen ermitteln lassen, da  $\Delta\Phi$  gemessen wird und nicht  $\Phi$ . Die Skalierung im erhaltenen Brechungsindexprofil in [Abbildung 3.11](#) bezieht sich demnach zunächst auf eine beliebige Nullebene. Die durch die Bestrahlung hervorgerufene Gesamtbrechungsindexänderung  $\Delta n$  wird als Differenz zwischen dem unbestrahlten und dem bestrahlten Bereich bestimmt. Zu diesem Zweck wird der unbestrahlte Bereich als Nullebene definiert und die maximale Abweichung von dieser Ebene im Bereich des Strahlflecks entspricht dann der maximalen Gesamtbrechungsindexänderung  $\Delta n^{\text{max}}$ . Die mittlere Brechungsindexänderung  $\Delta n^{\text{mean}}$  wird errechnet, indem das arithmetische Mittel von  $\Delta n(x, y)$  aller Pixel innerhalb des Strahlflecks gebildet wird. Als Strahlfleck wird dabei der Bereich innerhalb der Blendenöffnung mit einem messbaren Effekt oberhalb der Fehlergrenze gewertet.

Grundsätzlich hängen diese beiden Metriken immer auch von der Form des Ionenstrahls ab: Ein kleiner, fokussierter Strahl führt zu großen, sehr lokalisierten Maximalwerten  $\Delta n^{\text{max}}$ , während ein breiterer Strahl bei gleicher Ionendosis nur geringere Werte auf einer dafür größeren Fläche erreicht. Der Mittelwert  $\Delta n^{\text{mean}}$  ist für vergleichende Messungen deshalb jedoch etwas besser geeignet, da er die Eigenschaft der Brechungsindexänderung als Summeneffekt im bestrahlten Volumen besser repräsentiert, zeigt aber zwangsläufig auch eine insgesamt geringere Dynamik.

### 3.5.5 Fehlerabschätzung

Für die Genauigkeit der Methode spielen verschiedene Faktoren eine Rolle. Durch ungleichmäßige Ausdehnung des Piezotranslators können Phasenfehler  $\delta\theta$  von bis zu  $20^\circ$  auftreten, deren Einfluss auf die Phasenänderungen  $\Delta\Phi$  aber gering ist und mit etwa  $\pm\frac{\pi}{6}$  angegeben werden kann [And05]. Zusammen mit anderen Fehlerquellen, wie z. B. Ungenauigkeiten in der Probendicke und Drift des Interferometers zwischen den Messungen, beträgt der Fehler für die Ermittlung der Dickenänderung nach Gleichung 3.15 etwa  $\delta\Delta d(x, y) = \pm 100 \text{ nm}$ . Als Fehler für die Brechungsindexänderung nach Gleichung 3.11 folgt für  $500 \mu\text{m}$  dickes  $\text{LiNbO}_3$  oder  $\text{LiTaO}_3$  etwa  $\delta\Delta n = \pm 1,3 \times 10^{-4}$  und für Proben der Dicke  $300 \mu\text{m}$  etwa  $\delta\Delta n = \pm 2 \times 10^{-4}$ .

## 3.6 Tiefenaufgelöste Messungen

Um die Verlässlichkeit der simulierten Werte für die Ioneneindringtiefe (vgl. Abschn. 3.3) experimentell zu ermitteln und die tiefenabhängige Brechungsindexänderung zu messen, werden Proben in „Stäbchen“-Geometrie entlang ihrer  $\vec{z}$ -Achse bestrahlt und senkrecht hierzu entlang ihrer  $\vec{x}$ -Achse (entsprechend der  $yz$ -Ebene) lichtmikroskopisch und interferometrisch ausgewertet (vgl. Abb. 3.12). Die „Stäbchen“ werden zur Bestrahlung mit Wärmeleitpaste und einer Aluminiumblende auf dem Probenhalter fixiert (vgl. Abb. 3.13a).

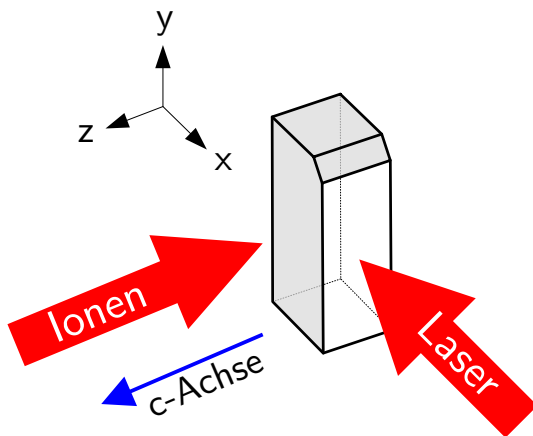
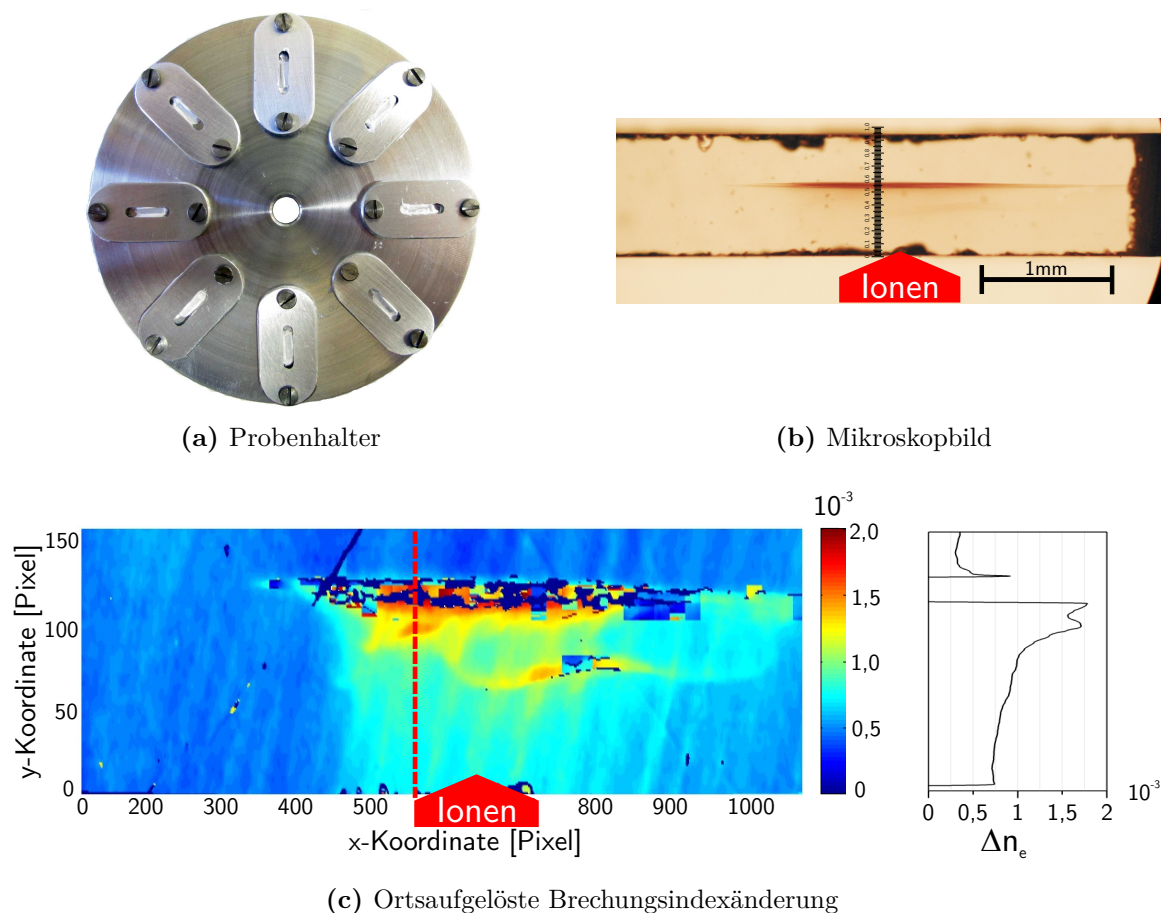


Abb. 3.12: Bei Proben in „Stäbchen“-Geometrie erfolgt die interferometrische Auswertung senkrecht zur Ionenstrahlrichtung.

### 3.6.1 Bestimmung der Ioneneindringtiefe

Nach der Bestrahlung werden die Proben mit einem Lichtmikroskop (ZEISS AxioTech 100HD) bei 50-facher Vergrößerung betrachtet. Ein typisches Bild ist in Abbildung 3.13b dargestellt.



**Abb. 3.13:** (a) Probenhalter mit den montierten Kristall-„Stäbchen“ vor der Bestrahlung. (b) Mikroskopbild mit Okularskala einer bestrahlten Probe. Bis zu einer gewissen Tiefe entlang der Bestrahlungsrichtung ist eine bräunliche Verfärbung sichtbar. (c) Links: Ausgewertete örtlich aufgelöste Brechungsindexänderung  $\Delta n(x, y)$  in „Stäbchen“-Geometrie. In der Nähe des BRAGG-Peaks können die Effekte nicht mehr aufgelöst werden. Rechts: Lateraler Verlauf der Brechungsindexänderung  $\Delta n(d)$  entlang der links rot gestrichelt markierten Schnittlinie, somit aufgetragen gegen die Eindringtiefe ( $y$ -Koordinate).

Bis zu einer bestimmten Kristalltiefe entlang der Bestrahlungsrichtung (die Bestrahlung erfolgte im Bild von unten) wird eine zunehmende bräunliche Verfärbung beobachtet. Die Tiefe der stärksten Verfärbung wird mittels der Okularskala des Mikroskops, sowie durch Abgleich mit dem Mikroskopbild einer Objektskala mithilfe eines Grafikprogramms vermessen. Der Fehler für beide Methoden liegt bei etwa  $20 \mu\text{m}$ .

### 3.6.2 Tiefenabhängiger Verlauf der Brechungsindexänderung

Im Normalfall wird die Messung des orts aufgelösten Brechungsindex entlang der Ionenstrahlrichtung durchgeführt. Man erhält dann die über die Probentiefe integrierte Brechungsindexänderung in Abhängigkeit der Position innerhalb des Strahlflecks (vgl. [Abb. 3.11](#)).

Durch Verwendung der „Stäbchen“-Geometrie ist es möglich die in [Abschnitt 3.5](#) beschriebene Auswertung der Brechungsindexänderungen seitlich zur Ionenpropagation im Kristall durchzuführen (vgl. [Abb. 3.12](#)). Da die Kristalldicke in diesem Fall größer als die Stopptiefe ist, können auch die Auswirkungen des BRAGG-Peaks innerhalb der Probe beobachtet werden. Man erhält dann die über die Probenbreite integrierte Brechungsindexänderung in Abhängigkeit von Probentiefe und -länge.

Aufgrund der geringen Probengröße wird für die interferometrische Auswertung das MACH-ZEHNDER-Interferometer in vergrößernder Geometrie genutzt. Die Dickenänderung senkrecht zur Bestrahlungsrichtung kann dabei vernachlässigt werden, sodass die Verwendung des MICHSELSON-Aufbaus nicht notwendig ist. Durch die „*x*-cut“-Geometrie sind sowohl der ordentliche als auch der außerordentliche Brechungsindex zugänglich.

Die Ergebnisse können wie in [Abbildung 3.13c](#) zweidimensional als orts aufgelöste Brechungsindexänderung auf der *yz*-Ebene dargestellt werden; der Verlauf entlang einer gewählten Linie in *y*-Richtung wird anschließend weiter ausgewertet.

Um den lateralen Verlauf der Brechungsindexänderung in Abhängigkeit von der Eindringtiefe  $\Delta n(d)$  zu erhalten, wird im bestrahlten Bereich eine *x*-Koordinate ausgewählt, an der ein Schnitt erfolgt und die *z*-Koordinate (Brechungsindex) gegen die *y*-Koordinate (Kristalltiefe) aufgetragen wird. Dabei ist zu beachten, dass die Zuordnung von *x*, *y* und *z* hier nicht den kristallographischen Achsen entspricht. Für die tatsächliche Brechungsindexänderung wird dabei der unbestrahlte Bereich als Referenzwert für den Nullpunkt gewählt, die Kristalltiefe in Pixeln wird in Millimeter umgerechnet.

## 3.7 Thermische Behandlungen

Um die Stabilität der erzielten Brechungsindexänderungen in  $\text{LiNbO}_3$  zu untersuchen, werden die Kristalle einer thermischen Behandlung (Tempern) unterzogen. Hierzu werden die Proben in einen auf die gewünschte Temperatur vorgeheizten Rohofen (CARBOLITE CTF12/65/550) unter Normalatmosphäre eingebracht und nach Ablauf der gewünschten Zeit sofort entfernt, sodass sie bei Raumtemperatur zügig abkühlen. Die Proben befinden sich während des Temperns in einer „Tasche“ aus Gold- oder Platinfolie und stehen aufrecht in einem Keramikschildchen. Das in der Nähe der Probe befindliche Thermoelement zeigt Temperaturschwankungen von maximal  $\delta T = \pm 2^\circ\text{C}$ .

Für die im Verlauf dieser Arbeit getemperten Proben werden die Verfahren der isothermen und der isochronen Erholung verwendet. Bei Ersterem wird bei konstanter Temperatur bei jedem weiteren Tempersschritt die Zeit im Ofen erhöht, bei Letzterem wird bei konstanter Temperdauer bei jedem weiteren Tempersschritt die Temperatur im Ofen erhöht. Nach jedem Tempersschritt wird mit dem in [Abschnitt 3.5](#) beschriebenen Verfahren die Brechungsindexänderung bestimmt. Es wird hierbei im Normalfall nur die maximale Brechungsindexänderung  $\Delta n^{\text{max}}$  betrachtet; die mittlere Brechungsindexänderung  $\Delta n^{\text{mean}}$  enthält beim Vergleich desselben Kristalls dieselbe Information mit lediglich geringerer Dynamik.



Sollen verschiedene Proben miteinander verglichen werden können die Messwerte für die Brechungsindexänderung durch den Wert vor Beginn der Temperung geteilt werden, der Startwert wird dadurch mit 100 % identifiziert.

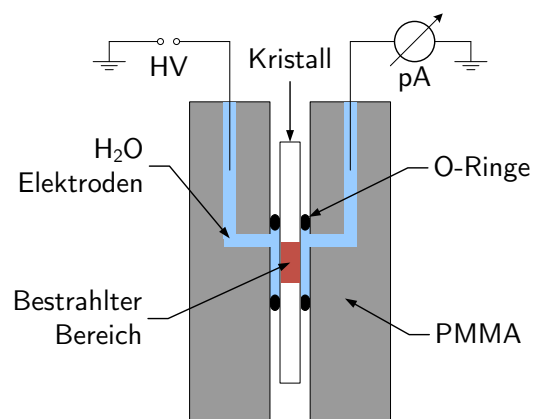
### 3.8 Wiederholte Bestrahlungen

Um die Modellbildung der durch Ionenbestrahlung erzeugten Defekte in  $\text{LiNbO}_3$  weiter zu unterstützen, werden Lithiumniobat-Kristalle bestrahlt und der Brechungsindex vermessen (vgl. [Abschn. 3.5](#)). Anschließend werden die Proben zehn Tage lang bei  $400^\circ\text{C}$  thermisch erholt und erneut bestrahlt. ZAMANI-MEYMIAN zeigte, dass durch thermische Behandlung bei  $400^\circ\text{C}$  die ionenstrahlinduzierte Brechungsindexänderung in  $\text{LiNbO}_3$  bereits nach sieben Tagen vollständig verschwindet [ZM07]. Vor der erneuten Bestrahlung wird dies jeweils durch eine weitere interferometrische Auswertung überprüft.

Der ganze Vorgang wird mehrfach durchgeführt und die jeweils ermittelten Brechungsindexänderungen gegen die akkumulierte Dosis aufgetragen. Hierbei wird durch präzises Einbauen der Kristalle auf einem speziellen Probenteller mit auf die Kristalle angepassten Vertiefungen sichergestellt, dass jeweils dieselbe Fläche des Kristalls dem Ionenstrahl ausgesetzt ist, um denselben Bereich mehrfach zu treffen.

### 3.9 Messungen der ferroelektrischen Eigenschaften

Um das ferroelektrische Verhalten (vgl. [Abschn. 2.1.4](#)) der Proben zu untersuchen, wird mit Hilfe des Aufbaus in [Abbildung 3.14](#) ein elektrisches Feld an den Kristall angelegt.



**Abb. 3.14:** Schematischer Querschnitt des Probenhalters zur Messung der ferroelektrischen Eigenschaften. Der Kristall wird zwischen zwei Silikon-O-Ringen in einen PMMA-Halter geklemmt und über Flüssigelektroden kontaktiert. Es können Spannungen bis zu 20 kV angelegt und der gegen Masse abfließende Strom gemessen werden.

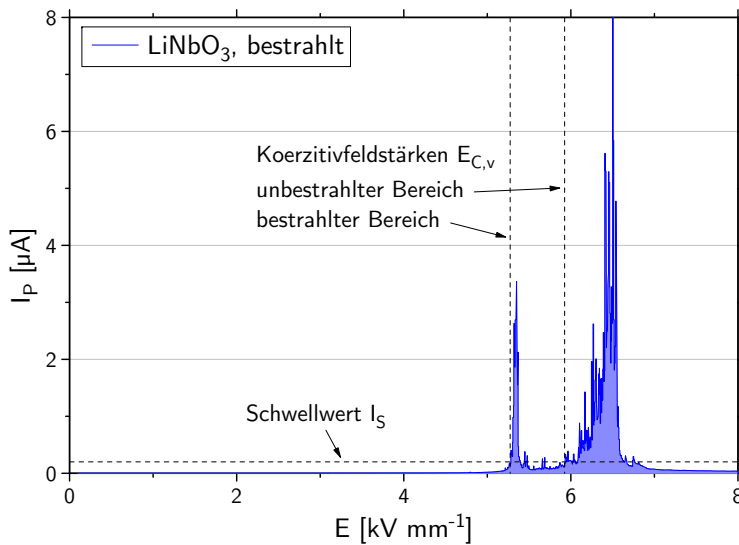
Dabei wird der Kristall zwischen zwei Silikon-O-Ringen in einen Halter aus PMMA<sup>4</sup> geklemmt. Über Bohrungen kann der Zwischenraum zwischen Kristall und Halter innerhalb des O-Rings mit Leitungswasser gefüllt werden und dient so als Flüssigelektrode. Der

<sup>4</sup>Polymethylmethacrylat, auch bekannt als Plexiglas®

Innendurchmesser der O-Ringe beträgt 8 mm, sodass bei Nutzung der 4 mm-Kreisblende der bestrahlte Bereich vollständig innerhalb der kontaktierten Fläche  $A_k = (50 \pm 2) \text{ mm}^2$  liegt. Mit einer Hochspannungsquelle (FUG HCL 140-35000) können auf diese Weise Spannungen bis zu 20 kV überschlagssicher angelegt werden. Mittels eines LabVIEW-Programms kann eine beliebige Abfolge von linearen Spannungsverläufen programmiert werden. Ein Pikoamperemeter (KEITHLEY 617) misst währenddessen den Stromfluss gegen Masse.

### 3.9.1 Koerzitivfeldstärke

Zur Messung der Koerzitivfeldstärke wird die anliegende Spannung und damit die elektrische Feldstärke linear erhöht und so eine Spannungsrampe erzeugt. Die Rampengeschwindigkeit beträgt je nach Messung zwischen  $1 \text{ V s}^{-1}$  und  $5 \text{ V s}^{-1}$ . Eine Domäneninversion kann bei dieser Art der Messung nur bei Proben in „z-cut“-Geometrie erfolgen. Wird die Koerzitivfeldstärke überschritten, ändert der Kristall seine Spontanpolarisierung, was zu einem Umverteilen der Kompensationsladungsträger auf den Oberflächen führt. Dies kann als Polungsstrom gemessen werden.



**Abb. 3.15:** Typische Signatur der Domäneninversion am Beispiel von bestrahltem  $\text{LiNbO}_3$  (aus [Jen08b]). Es wird der gemessene Polungsstrom  $I_P$  gegen die angelegte Feldstärke  $E$  aufgetragen, die Koerzitivfeldstärke in Vorwärtsrichtung  $E_{C,v}$  kann dann bei Überschreitung des Schwellwertes abgelesen werden. Das erste Signal kann dem bestrahlten Bereich zugeordnet werden, das zweite dem unbestrahlten.

Trägt man die gemessene Stromstärke  $I$  gegen die Spannung  $U$  geteilt durch die Kristalldicke  $d$  auf (entsprechend dem elektrischen Feld  $E = U/d$ ) lässt sich direkt die Koerzitivfeldstärke in Vorwärtsrichtung  $E_{C,v}$  ablesen. Dazu wird das elektrische Feld bestimmt, zu dem der Polungsstrom  $I_P$  einen definierten Schwellwert  $I_S$  überschreitet (vgl. Abb. 3.15) [Wen05, Hat07, Jen08b]. Da die Höhe der Polungssignatur von der Rampengeschwindigkeit abhängt, wird bei  $5 \text{ V s}^{-1}$  ein Schwellwert von  $I_S = 200 \text{ nA}$  verwendet, bei  $2 \text{ V s}^{-1}$  entsprechend  $I_S = 80 \text{ nA}$  sowie bei  $1 \text{ V s}^{-1}$   $I_S = 40 \text{ nA}$ . Dennoch verbleibt bei dieser Definition der Koerzitivfeldstärke eine Abhängigkeit von der umgepolten Fläche und der Rampengeschwindigkeit, was bei Vergleichen zu berücksichtigen ist.

Die Messung von  $E_{C,r}$  erfolgt anschließend durch eine analoge Messung mit umgekehrter Polarität der Spannung. Der gesamte Vorgang wird im Allgemeinen mindestens dreimal

wiederholt. Zu beachten ist hierbei, dass in der Regel der allererste Polungsvorgang eines nach der Züchtung noch nie umgepolten Kristalls eine Abweichung zu den nachfolgenden zeigt [Wen05, Jen08b] und deshalb gesondert betrachtet bzw. für vergleichende Messungen nicht herangezogen wird. Die intrinsische Koerzitivfeldstärke  $E_C$  und das interne elektrische Feld  $E_{\text{int}}$  können dann, wie in [Abschnitt 2.1.4](#) beschrieben, aus den Koerzitivfeldstärken in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung errechnet werden.

Bei der Ermittlung des Koerzitivfeldes von Lithiumtantalat aus der Domäneninversion lässt sich aufgrund statistischer Betrachtungen eine Ungenauigkeit von etwa  $\pm 0,1 \text{ kV mm}^{-1}$  feststellen.

### 3.9.2 Leitfähigkeit

Die elektrische Leitfähigkeit kann über die Abhängigkeit des fließenden Stromes von der angelegten Spannung bestimmt werden. Bestimmend für den Stromfluss ist der Gesamtwiderstand  $R$ , gegeben durch den spezifischen Widerstand  $\rho(z)$  entlang der Probentiefe  $d$  und der kontaktierten Fläche  $A_k$ :

$$R = \int_0^d \frac{\rho(z)}{A_k} dz = \frac{\rho \cdot d}{A_k} \quad (3.17)$$

Nach dem OHMSCHEN Gesetz folgt für den Strom  $I$  bei anliegender Spannung  $U$ :

$$I = \frac{U}{R} = U \cdot \frac{A_k}{\rho \cdot d} \quad (3.18)$$

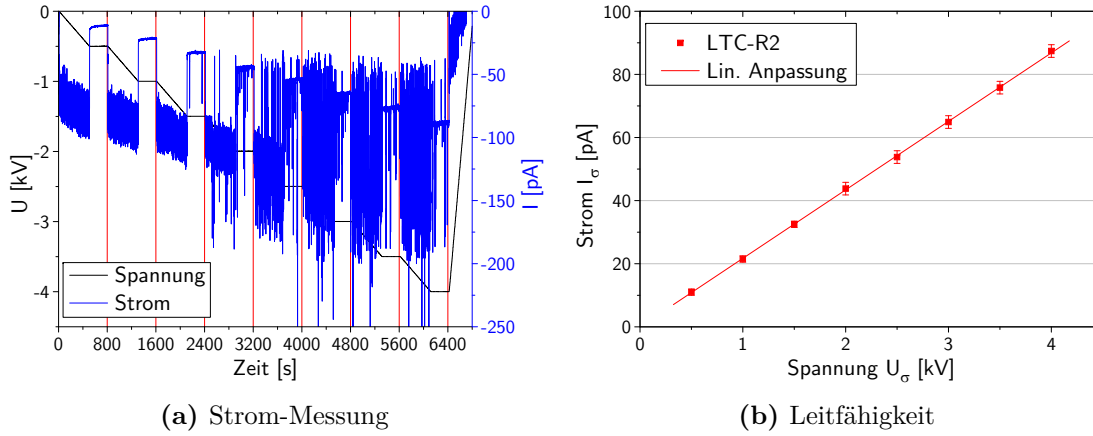
Es folgt für die Leitfähigkeit  $\sigma$ :

$$\sigma = \frac{1}{\rho} = \frac{I}{U} \cdot \frac{d}{A_k} \quad (3.19)$$

Zur Messung der Stromstärke  $I$  bei angelegter Spannung  $U$  kommt ebenfalls der Aufbau aus [Abbildung 3.14](#) zum Einsatz; das elektrische Feld wird nun jedoch domänenstabilisierend, also in Richtung der Spontanpolarisierung, angelegt. Um störende dynamische Prozesse auszugleichen, wird die Spannung linear bis zu einer gewissen Stufe erhöht, dort einige Zeit gehalten und anschließend wieder bis zur nächsten Stufe erhöht. Typische verwendete Werte sind eine Schrittweite von 0,5 kV bis zur Höchstspannung von 4,0 kV, bei einer Rampengeschwindigkeit von  $1 \text{ V s}^{-1}$  und einer Haltezeit von 300 s.

Zu beachten ist hierbei, dass die Messung der Leitfähigkeit verfälscht werden kann, falls zuvor bereits Inversionen der Spontanpolarisierung (Polen) durchgeführt wurden.

[Abbildung 3.16a](#) zeigt in schwarz die angelegte Spannung und in blau den gemessenen Strom für die unbestrahlte LiTaO<sub>3</sub>-Referenzprobe LTC-R2; das Strom-Rauschen oberhalb von 1,5 kV erklärt sich mit einer Reaktion von ferroelektrischen Mikrodomänen auf das steigende elektrische Feld. Für die weitere Auswertung bildet dann jedes Wertepaar aus Strom  $I_\sigma$  und Spannung  $U_\sigma$  zum Ende der jeweiligen Haltezeit (rot markiert) einen Datenpunkt. In [Abbildung 3.16b](#) wird eine lineare Anpassung an die Datenpaare aus Stromstärke  $I_\sigma$  und Spannung  $U_\sigma$  durchgeführt und mit [Gleichung 3.19](#) aus der Steigung,



**Abb. 3.16:** Messung der Leitfähigkeit der unbestrahlten Referenzprobe LTC-R2. (a) Die Spannung wird in Stufen  $U_\sigma$  von je 0,5 kV erhöht und die Stromstärke  $I_\sigma$  zum Ende der jeweiligen Haltezeit (rot markiert) bestimmt. (b)  $I_\sigma$  wird gegen  $U_\sigma$  aufgetragen und aus der Steigung die elektrische Leitfähigkeit  $\sigma$  bestimmt.

der kontaktierten Fläche  $A_k = 50 \text{ mm}^2$  und der Kristalldicke  $d = 0,4 \text{ mm}$  die Leitfähigkeit  $\sigma$  ermittelt.

Im Falle von bestrahlten Kristallen ist zu beachten, dass sich die kontaktierte Fläche aus dem bestrahlten ( $A_b$ ) und dem unbestrahlten ( $A_u = A_k - A_b$ ) Teil zusammensetzt. Der gemessene Strom  $I_\sigma$  ist die Summe der beiden Teilströme  $I_b$  und  $I_u$ :

$$I_\sigma = I_b + I_u = \frac{U_\sigma}{d} \cdot (\sigma_b A_b + \sigma_u A_u) \quad (3.20)$$

Die Leitfähigkeit  $\sigma_b$  des bestrahlten Bereichs lässt sich damit bei Kenntnis der Leitfähigkeit  $\sigma_u$  des unbestrahlten Materials folgendermaßen ermitteln:

$$\sigma_b = \frac{I_\sigma}{U_\sigma} \cdot \frac{d}{A_b} - \sigma_u \frac{A_u}{A_b} \quad (3.21)$$

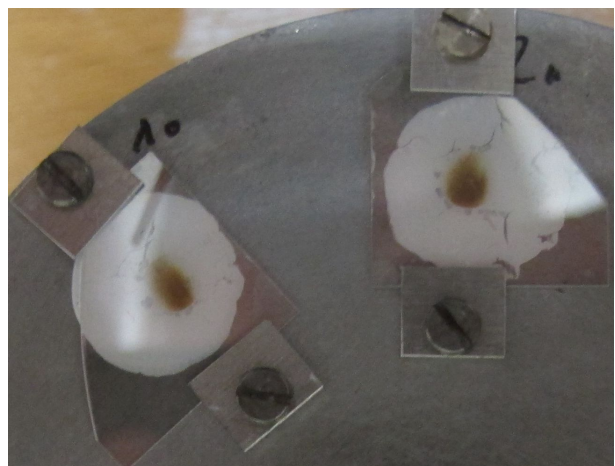
## 4 Experimentelle Resultate

In diesem Kapitel werden die experimentellen Resultate dieser Arbeit vorgestellt. Nach einigen allgemeinen Beobachtungen folgen die Messergebnisse der Gammaskopie an bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ - und  $\text{LiTaO}_3$ -Proben. Danach werden die durch Ionenbestrahlung erzeugten Brechungsindexänderungen gezeigt und deren Abhängigkeit von der Wahl des Projektils sowie ihre thermische Stabilität behandelt. Es folgen Untersuchungen zur Brechungsindexänderung nach wiederholter Bestrahlung und abschließend die Darstellung der Ergebnisse zu ferroelektrischen Eigenschaften.

### 4.1 Verfärbung, Verformung und Zerschneiden

Nach der Bestrahlung von Lithiumniobat und Lithiumtantalat weisen beide Kristalltypen im bestrahlten Bereich eine bräunliche Verfärbung auf. Die Intensität der Verfärbung hängt von der Ionendosis ab und variiert damit zwischen Kristallen mit verschiedener Bestrahlungsdosis. In Bereichen höherer Ionenkonzentration innerhalb des Strahlflecks selbst ist die Verfärbung dunkler, was einen indirekten Rückschluss auf die Form des Ionenstrahls zulässt. Die Verfärbungen verschwinden bei Lagerung an Tageslicht unter Raumtemperatur im Laufe einiger Wochen. Dabei scheint die Verfärbung in  $\text{LiTaO}_3$  etwas stärker und langlebiger zu sein als in vergleichbaren  $\text{LiNbO}_3$ -Proben.

**Abb. 4.1:** Zwei  $\text{LiNbO}_3$ -Proben, noch auf dem Probenhalter, nach der Bestrahlung; es handelt sich um Wafer-Randstücke, daher die nicht rechteckige Probenform. Es ist deutlich die bräunliche Verfärbung zu erkennen, die in ihrer Intensität die Strahlfleckform widerspiegelt. Im Bild ist außerdem die weiße Wärmeleitpaste zur thermischen Kontaktierung zwischen Probe und Teller zu sehen.



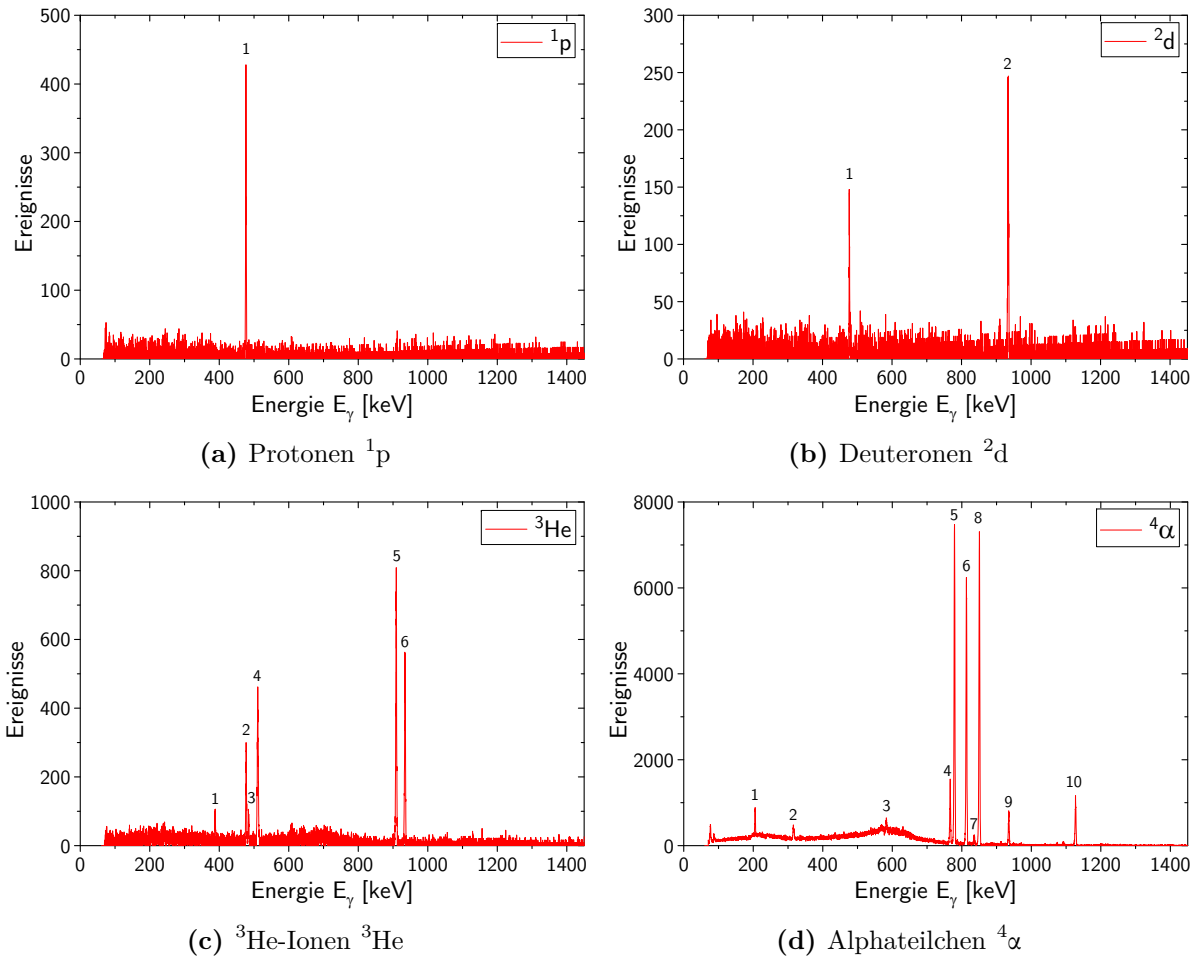
Durch die Bestrahlung verformt sich die Probe: Beide Oberflächen wölben sich in Bestrahlungsrichtung aus und im Bereich des Strahlflecks nimmt zusätzlich auch die Dicke zu. Mittels interferometrischer Messung (vgl. [Abschn. 3.5](#)) kann sowohl die Wölbung als

auch die Dickenänderung ermittelt werden. Während bei den gemessenen  $\text{LiNbO}_3$ -Proben die Wölbung höchstens etwa  $1,2\ \mu\text{m}$  erreicht, liegt diese bei  $\text{LiTaO}_3$  im Schnitt mit bis zu  $4\ \mu\text{m}$  deutlich höher. Die Dickenänderung im Bereich des Strahlflecks beträgt bis zu  $(0,2 \pm 0,1)\ \mu\text{m}$  für  $\text{LiNbO}_3$  bzw.  $(0,6 \pm 0,1)\ \mu\text{m}$  für  $\text{LiTaO}_3$ .

Gelegentlich zerbrechen Proben bei oder kurz nach der Bestrahlung. Besonders häufig tritt dies bei  $\text{LiTaO}_3$ -Proben auf, die hohen Ionendosen ausgesetzt werden. Der oder die Risse laufen dabei stets durch den Strahlfleck. Wird der Ionenstrom während der Bestrahlung auf einem geringeren Wert (unter  $100\ \text{nA}$ ) gehalten, sinkt die Verlustquote spürbar.

## 4.2 Gammaspektroskopie

### 4.2.1 Gammaspektren Lithiumniobat



**Abb. 4.2:** Gammespektren der bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle für die vier verschiedenen Projektile, gemessen sieben Tage nach der Bestrahlung (bereits veröffentlicht [Rae14]). Die Anzahl der Ereignisse ist aufgetragen gegen die gemessene Gammaenergie  $E_\gamma$ . Es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten. Die identifizierten Isotope sind in Tab. 4.1 aufgeführt.

Nach Bestrahlung jeweils zweier LiNbO<sub>3</sub>-Proben mit einer Dosis von jeweils  $1,1 \times 10^{15}$  Protonen, Deuteronen, <sup>3</sup>He-Ionen und Alphateilchen werden die Gammaspektren von LNC-124 bis LNC-131 mit der in [Abschnitt 3.4](#) beschriebenen Methode aufgenommen. Dies erfolgt sieben, zwölf, 15 und etwa 150 Tage nach der Bestrahlung. Frühere Messungen sind nicht möglich, da die nukleare Aktivierung unmittelbar nach der Bestrahlung eine gefahrlose Handhabung mit den genutzten Aufbauten nicht erlaubt.

Für je eine der beiden Proben pro Projektil sind die zugehörigen Gammaspektren nach sieben Tagen in [Abbildung 4.2](#) dargestellt. [Tabelle 4.1](#) listet die anhand der Gammalinien und ihrer Halbwertszeiten identifizierten Isotope auf, die nicht dem Untergrund zuzuordnen sind.

<b><sup>1</sup>p (12,0 MeV) auf LiNbO<sub>3</sub></b>			
Linie	$E_\gamma$ [keV]	Isotop	$T_{1/2}$
1	477,6	<sup>7</sup> Be	53,1 d

<b><sup>2</sup>d (15,8 MeV) auf LiNbO<sub>3</sub></b>			
Linie	$E_\gamma$ [keV]	Isotop	$T_{1/2}$
1	477,6	<sup>7</sup> Be	53,1 d
2	934,5	<sup>92m</sup> Nb	10,2 d

<b><sup>3</sup>He (40,7 MeV) auf LiNbO<sub>3</sub></b>			
Linie	$E_\gamma$ [keV]	Isotop	$T_{1/2}$
1	388,5	<sup>87</sup> Y	79,8 h
2	477,6	<sup>7</sup> Be	53,1 d
3	484,8	<sup>87</sup> Y	79,8 h
4	511,0	e <sup>+</sup>	
5	909,0	<sup>89</sup> Zr	78,4 h
6	934,5	<sup>92m</sup> Nb	10,2 d

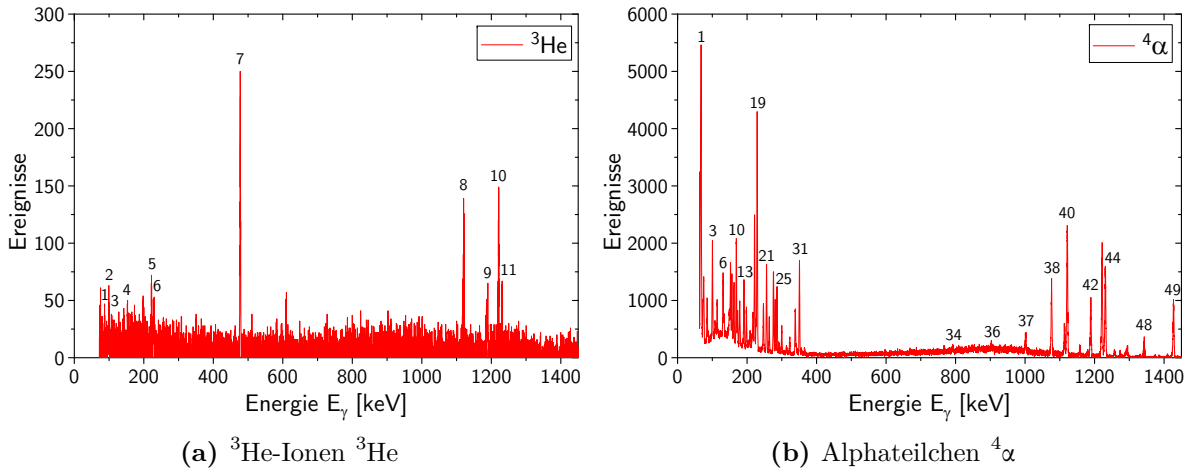
<b><sup>4</sup>α (46,8 MeV) auf LiNbO<sub>3</sub></b>			
Linie	$E_\gamma$ [keV]	Isotop	$T_{1/2}$
1	204,1	<sup>95m</sup> Tc	61,0 d
2a <sup>†</sup>	314,3	<sup>96</sup> Tc	4,28 d
2b <sup>†</sup>	316,3	<sup>96</sup> Tc	4,28 d
3	582,1	<sup>95m</sup> Tc	61,0 d
4	765,8	<sup>95</sup> Tc	20,0 h
5	778,2	<sup>96</sup> Tc	4,28 d
6	812,6	<sup>96</sup> Tc	4,28 d
7	835,1	<sup>95m</sup> Tc	61,0 d
8	849,9	<sup>96</sup> Tc	4,28 d
9	934,5	<sup>92m</sup> Nb	10,2 d
10	1126,9	<sup>96</sup> Tc	4,28 d

**Tab. 4.1:** Liste der identifizierten Isotope aus den vier in [Abb. 4.2](#) gezeigten Gammaspektren zusammen mit ihren Literaturwerten für Halbwertszeiten  $T_{1/2}$  und Gammaenergien  $E_\gamma$  [[Chu99](#)].

<sup>†</sup>Nicht trennbare Überlagerung mehrerer Linien

Im Gammaspektrum der mit Protonen bestrahlten LiNbO<sub>3</sub>-Probe lässt sich nur eine einzige Linie erkennen, die von <sup>7</sup>Be mit einer Halbwertszeit von  $T_{1/2} = 53,1$  d stammt. Bei Bestrahlung mit Deuteronen kommt das Isotop <sup>92m</sup>Nb ( $T_{1/2} = 10,2$  d) hinzu. Für <sup>3</sup>He-Ionen erscheinen neben <sup>7</sup>Be und <sup>92m</sup>Nb auch <sup>87</sup>Y und <sup>89</sup>Zr ( $T_{1/2} \approx 80$  h), sowie Annihilationsstrahlung eines Positronenemitters. Bei Verwendung von Alphateilchen erscheinen die meisten Linien und es wird auch die höchste Gesamtaktivierung gemessen (Näheres dazu in [Abschn. 4.2.3](#)). Etwa 88 % aller Ereignisse stammen aus mehreren Linien des Isotops <sup>96</sup>Tc mit einer Halbwertszeit von  $T_{1/2} = 4,28$  d, des Weiteren sind auch <sup>95</sup>Tc ( $T_{1/2} = 20,0$  h), <sup>95m</sup>Tc ( $T_{1/2} = 61,0$  d) sowie ebenfalls <sup>92m</sup>Nb nachweisbar.

## 4.2.2 Gammaskpektren Lithiumtantalat



**Abb. 4.3:** Gammaskpektren der bestrahlten Lithiumtantalat-Kristalle für (a)  ${}^3\text{He}$ -Ionen, gemessen elf Tage nach der Bestrahlung und (b) Alphaeilchen, gemessen zehn Tage nach der Bestrahlung. Die Anzahl der Ereignisse ist aufgetragen gegen die gemessene Gammaenergie. Es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten. Die identifizierten Isotope sind in Tab. 4.2 und Tab. 4.3 aufgeführt.

Nach Bestrahlung jeweils zweier  $\text{LiTaO}_3$ -Proben mit einer Dosis von jeweils  $1,1 \times 10^{15}$   ${}^3\text{He}$  und  ${}^4\alpha$ -Ionen werden die Gammaskpektren von LTC-1 bis LTC-4 aufgenommen (vgl. Abschn. 3.4). Dies erfolgt bei  ${}^3\text{He}$  elf Tage nach der Bestrahlung, bei  ${}^4\alpha$  sind es zehn. Auch hier verhindert die nukleare Aktivierung der Proben und Anlagenteile einen früheren Ausbau aus dem Strahlplatz. Im Anschluss werden über einen Zeitraum von bis zu 150 Tagen wiederholte Messungen durchgeführt. Die mit  ${}^3\text{He}$  bestrahlten Proben haben eine Dicke von nur 400  $\mu\text{m}$ , damit sie bei der maximalen Ionenenergie von 42 MeV vollständig durchstrahlt werden (vgl. Abb. A.3d).

${}^3\text{He}$ (42,0 MeV) auf $\text{LiTaO}_3$			
Linie	$E_\gamma$ [keV]	Isotop	$T_{1/2}$
1	84,7	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d
2	100,1	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d
3	113,7	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d
4	152,4	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d
5	222,1	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d
6	229,3	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d
7	477,6	${}^7\text{Be}$	53,1 d
8	1121,3	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d
9	1189,1	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d
10	1221,4	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d
11	1231,0	${}^{182}\text{Ta}$	114,4 d

**Tab. 4.2:** Liste der identifizierten Isotope aus dem in Abb. 4.3a gezeigten Gammaskpektrum zusammen mit ihren Literaturwerten für Halbwertszeiten  $T_{1/2}$  und Gammaenergien  $E_\gamma$  [Chu99].

Abbildung 4.3 zeigt für beide Projektile die zugehörigen Gammaskpektren je einer der beiden Proben nach zehn bzw. elf Tagen. Die Tabellen 4.2 und 4.3 listen die anhand



der Gammalinien und ihrer Halbwertszeiten identifizierten Isotope auf, die nicht dem Untergrund zuzuordnen sind.

Im Gammaspektrum der mit  $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten  $\text{LiTaO}_3$ -Probe findet sich analog zu  $\text{LiNbO}_3$  zunächst  $^7\text{Be}$ , welches sich für etwa ein Drittel der Ereignisse verantwortlich zeigt. Zusätzlich kann hingegen auch  $^{182}\text{Ta}$  mit zehn sichtbaren Gammalinien und einer Halbwertszeit von  $T_{1/2} = 114,4\text{ d}$  nachgewiesen werden. Das Spektrum der mit  $^4\alpha$  bestrahlten Probe zeigt dagegen fast fünfzig Gammalinien, die alle zu Rhenium-Isotopen gehören. Mit über 95 % der Ereignisse trägt am meisten  $^{182}\text{Re}$  mit einer Halbwertszeit von  $T_{1/2} = 64,0\text{ h}$  bei, gefolgt von  $^{183}\text{Re}$  ( $T_{1/2} = 70,0\text{ d}$ ) und  $^{184}\text{Re}$  ( $T_{1/2} = 38,0\text{ d}$ ). Vom mit  $T_{1/2} = 19,9\text{ h}$  relativ kurzlebigen  $^{181}\text{Re}$  kann nur noch die stärkste Linie nachgewiesen werden.

$^4\alpha$ (53,2 MeV) auf $\text{LiTaO}_3$							
Linie	$E_\gamma$ [keV]	Isotop	$T_{1/2}$	Linie	$E_\gamma$ [keV]	Isotop	$T_{1/2}$
1	67,7	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	23	276,3	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
2a <sup>†</sup>	84,7	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	24	281,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
2b <sup>†</sup>	84,7	$^{183}\text{Re}$	70,0 d	25	286,6	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
3a <sup>†</sup>	99,1	$^{183}\text{Re}$	70,0 d	26	291,7	$^{183}\text{Re}$	70,0 d
3b <sup>†</sup>	100,1	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	27	299,9	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
4a <sup>†</sup>	107,2	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	28	314,0	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
4b <sup>†</sup>	107,9	$^{183}\text{Re}$	70,0 d	29	323,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
4c <sup>†</sup>	109,7	$^{183}\text{Re}$	70,0 d	30	339,1	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
5	113,7	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	31	351,1	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
6	130,8	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	32	357,1	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
7	152,3	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	33	365,6	$^{181}\text{Re}$	19,9 h
8	156,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	34	792,1	$^{184}\text{Re}$	38,0 d
9	162,3	$^{183}\text{Re}$	70,0 d	35	894,8	$^{184}\text{Re}$	38,0 d
10	169,1	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	36	903,3	$^{184}\text{Re}$	38,0 d
11	172,9	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	37	1001,7	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
12	178,5	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	38	1076,3	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
13	191,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	39	1113,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
14	198,3	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	40	1121,3	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
15	208,8	$^{183}\text{Re}$	70,0 d	41	1157,3	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
16	217,6	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	42	1189,0	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
17	221,6	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	43	1221,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
18	222,1	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	44	1231,0	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
19	229,3	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	45	1257,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
20a <sup>†</sup>	246,1	$^{183}\text{Re}$	70,0 d	46	1273,7	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
20b <sup>†</sup>	247,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	47	1294,1	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
21	256,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	48	1342,7	$^{182}\text{Re}$	64,0 h
22	264,1	$^{182}\text{Re}$	64,0 h	49	1427,4	$^{182}\text{Re}$	64,0 h

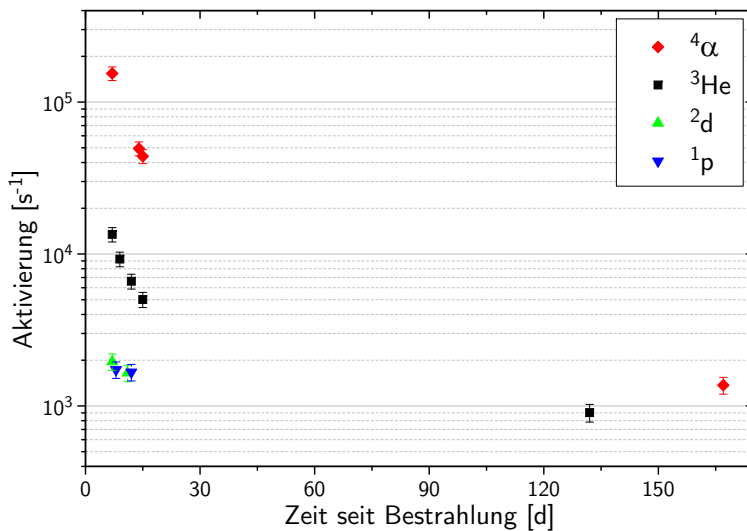
**Tab. 4.3:** Liste der identifizierten Isotope aus dem in [Abb. 4.3b](#) gezeigten Gammaspektrum zusammen mit ihren Literaturwerten für Halbwertszeiten  $T_{1/2}$  und Gammaenergien  $E_\gamma$  [[Chu99](#)].

<sup>†</sup>Jeweils nicht trennbare Überlagerung mehrerer Linien

### 4.2.3 Totale Aktivierung

Für jede Messung wird aus den Ereignissen der jeweiligen Gammalinien (Tab. 4.1, Tab. 4.2 und Tab. 4.3) die totale Aktivierung gebildet (vgl. Abschn. 3.4.1) und gegen die vergangene Zeit zwischen Bestrahlung und Messung aufgetragen.

#### Lithiumniobat



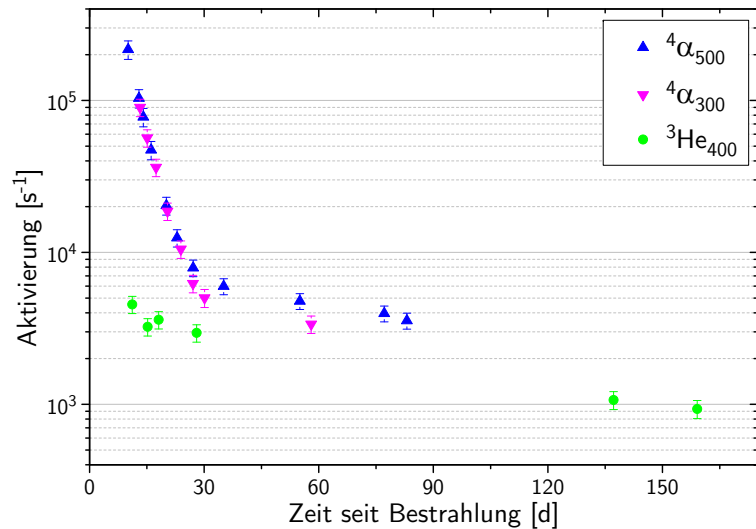
**Abb. 4.4:** Totale nukleare Aktivierungen der mit einer Dosis von jeweils  $1,1 \times 10^{15}$  Ionen verschiedener Projektile bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ -Proben aufgetragen gegen die seit der Bestrahlung verstrichene Zeit (bereits veröffentlicht [Rae14]).

Abbildung 4.4 zeigt die totalen Aktivierungen der  $\text{LiNbO}_3$ -Proben nach Bestrahlung mit je einem der vier Projektile. Eine Woche nach der Bestrahlung beläuft sich die totale Aktivierung für Protonen und Deuteronen auf etwa  $2000 \text{ s}^{-1}$ , mit etwa  $13500 \text{ s}^{-1}$  liegt die Aktivierung für  ${}^3\text{He}$ -Ionen fast eine Größenordnung höher. Die totale Aktivierung bei Bestrahlung mit Alphateilchen ist eine weitere Größenordnung größer und liegt eine Woche nach Bestrahlung bei etwa  $155000 \text{ s}^{-1}$ . Nach fünf Monaten hat die Aktivierung für  ${}^4\alpha$ -bestrahlte Kristalle stark abgenommen und zeigt Zählraten wie  ${}^2\text{d}$ -bestrahlte Kristalle nach einer Woche. Der Verlauf bei  ${}^3\text{He}$  ist qualitativ ähnlich zu  ${}^4\alpha$ , beide zeigen zu Beginn eine deutliche Abnahme der nuklearen Aktivierung, deren Verlauf aber für große Zeiten flacher zu werden scheint.

#### Lithiumtantalat

Abbildung 4.5 zeigt die totalen Aktivierungen der  $\text{LiTaO}_3$ -Proben nach Bestrahlung mit  ${}^4\alpha$  bzw.  ${}^3\text{He}$ -Ionen. Zusätzlich zu den bereits in Abschnitt 4.2.2 behandelten Proben wird hier auch noch die Probe LTC-33 hinzugezogen. Sie wurde ebenfalls mit  $54,0 \text{ MeV}$  Alphateilchen bestrahlt, ist aber nur  $300 \mu\text{m}$  dick und erhielt mit  $20 \times 10^{15}$  Ionen eine viel höhere Dosis. Da auch für Lithiumtantalat ein linearer Bezug zwischen Aktivierung und Dosis besteht (siehe Abschn. 4.2.4) kann die ermittelte totale Aktivierung jedoch auf die geringere Dosis der übrigen Kristalle normiert werden.

**Abb. 4.5:** Totale nukleare Aktivierungen der mit  $^4\alpha$  und  $^3\text{He}$  bestrahlten  $\text{LiTaO}_3$ -Proben aufgetragen gegen die seit der Bestrahlung verstrichene Zeit. Die 500  $\mu\text{m}$  und 400  $\mu\text{m}$  dicken Proben wurden mit einer Dosis von jeweils  $1,1 \times 10^{15}$  Ionen bestrahlt, die Aktivierung der 300  $\mu\text{m}$  dicken Probe wurde auf diese Dosis re-normiert.



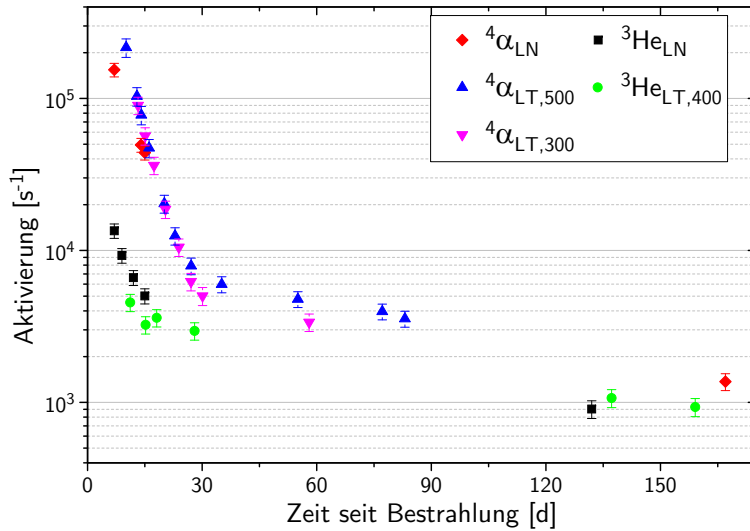
Zum Zeitpunkt der ersten Messung nach elf Tagen beträgt die nukleare Aktivierung für  $^3\text{He}$ -Ionen in  $\text{LiTaO}_3$  etwa  $4500 \text{ s}^{-1}$ , die mit  $^4\alpha$ -Projektilen bestrahlten Proben erreichen mit etwa  $220\,000 \text{ s}^{-1}$  eine Aktivierung eineinhalb Größenordnungen höher. Dieser Unterschied relativiert sich im Laufe der Zeit durch einen zu Beginn stärkeren Abfall der Aktivierung bei den mit Alphateilchen bestrahlten Proben. Nach 30 Tagen ist die Aktivierung letzterer nur noch etwa doppelt so hoch, wie bei  $^3\text{He}$ . Der weitere Verlauf zeigt eine ähnliche Zeitkonstante bei beiden Projektilen, es dauert allerdings fast 90 d bis die Aktivierung der  $^4\alpha$ -Proben unter die Aktivierung der  $^3\text{He}$ -Proben zu Beginn der Messung fällt.

Beim Vergleich der verschieden dicken, aber mit Alphateilchen gleicher Energie bestrahlten, Proben untereinander, fällt auf, dass die Aktivierung für die 300  $\mu\text{m}$  und die 500  $\mu\text{m}$  dicken Proben zunächst identisch ist, ab etwa 30 Tagen jedoch der dünnere Kristall eine gegenüber dem dickeren leicht geringere Aktivierung zeigt.

### Vergleich Lithiumniobat und Lithiumtantalat

Abbildung 4.6 stellt die Aktivierungen beider Targetmaterialien für die bei beiden verwendeten Projektilen  $^4\alpha$  und  $^3\text{He}$  gegenüber. Im direkten Vergleich zeigt sich, dass die nuklearen Aktivierungen der mit Alphateilchen bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ -Proben in derselben Größenordnung wie ihre  $\text{LiTaO}_3$ -Pendents liegt.

Dies gilt ebenso für die mit  $^3\text{He}$  bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ -Proben, die jedoch zumindest zu Beginn eine etwas höhere Aktivierung zeigen als die entsprechenden  $\text{LiTaO}_3$ -Proben.



**Abb. 4.6:** Vergleich der totalen nuklearen Aktivierungen der mit  $^4\alpha$  und  $^3\text{He}$  bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$  und  $\text{LiTaO}_3$ -Proben aufgetragen gegen die seit der Bestrahlung verstrichene Zeit.

#### 4.2.4 Dosisabhängigkeit der Anfangsaktivität in Lithiumtantalat nach Bestrahlung mit Alphateilchen

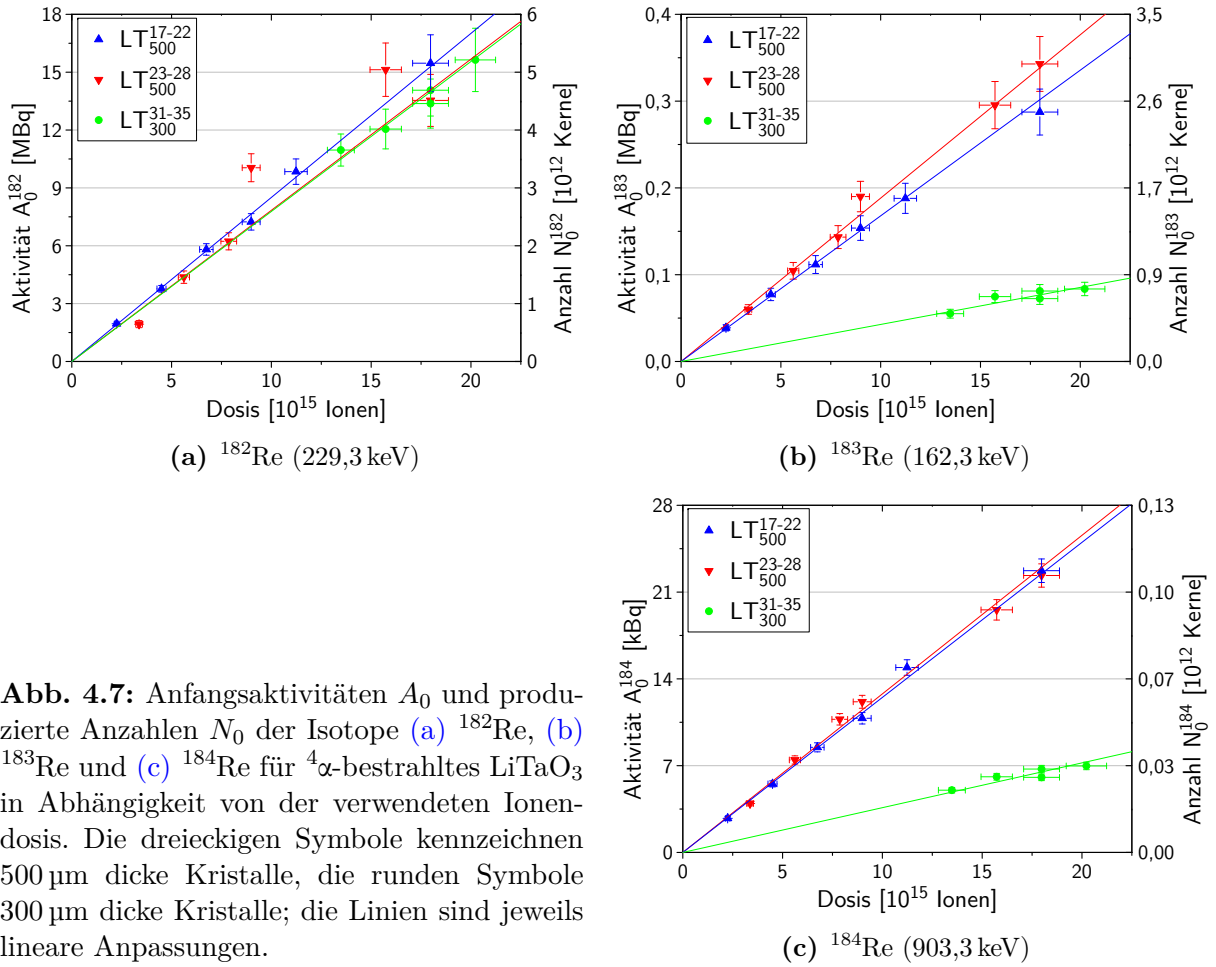
Um für die Bestrahlung mit Alphateilchen die Abhängigkeit der Anfangsaktivitäten der erzeugten Isotope von der eingesetzten Ionendosis zu ermitteln, werden die Proben LTC-17 bis LTC-22, LTC-23 bis LTC-28 und LTC-31 bis LTC-35 mit unterschiedlichen Ionendosen im Bereich von  $(2,3 - 20) \times 10^{15}$  Ionen bestrahlt. Die Proben LTC-31 bis LTC-35 haben dabei nur eine Dicke von 300  $\mu\text{m}$ , werden aber mit derselben Energie bestrahlt wie die übrigen 500  $\mu\text{m}$  dicken Proben. Anschließend wird von allen Proben ein Gammastrahlenspektrum aufgenommen und für alle in [Tabelle 4.3](#) gelisteten Isotope des Rheniums (mit Ausnahme des kurzlebigen  $^{181}\text{Re}$ ) die Anfangsaktivität  $A_0$  bestimmt (vgl. [Abschn. 3.4.2](#)). [Tabelle 4.4](#) führt die für die Berechnung verwendeten Gammalinien mit ihren relativen Intensitäten  $I_\gamma$  auf.

Isotop	$E_\gamma$ [keV]	$I_\gamma$ [%]	Referenz
$^{182}\text{Re}$	229,3	$25,8 \pm 0,7$	[Sin10]
$^{183}\text{Re}$	162,3	$25,1 \pm 2,2$	[Bag16]
$^{184}\text{Re}$	903,3	$38,1 \pm 1,1$	[Bag10]

**Tab. 4.4:** Die zur Berechnung der Anfangsaktivität  $A_0$  der Rhenium-Isotope benutzten Gammalinien mit ihren relativen Intensitäten  $I_\gamma$ .

[Abbildungen 4.7a-c](#) zeigen auf der linken Achse die Anfangsaktivitäten  $A_0$  und auf der rechten Achse die zugehörigen erzeugten Anzahlen  $N_0$  (vgl. [Abschn. 3.4.2](#)) der Isotope  $^{182}\text{Re}$ ,  $^{183}\text{Re}$  und  $^{184}\text{Re}$  jeweils aufgetragen gegen die verwendete Ionendosis. Hierbei bezeichnen dreieckige Symbole Proben mit 500  $\mu\text{m}$  und runde Symbole Proben mit 300  $\mu\text{m}$  Dicke. Es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten.

Die Anfangsaktivität von  $^{182}\text{Re}$ , hier bezeichnet mit  $A_0^{182}$ , ist mit bis zu 16 MBq ein Vielfaches größer als  $A_0^{183}$  mit bis zu 340 kBq und  $A_0^{184}$  mit bis zu 22,5 kBq. Die zugehörige Menge der erzeugten Nuklide (vgl. [Gl. 3.4](#)) beträgt  $N_0^{182} \approx 5,3 \times 10^{12}$  Kerne,  $N_0^{183} \approx 3 \times 10^{12}$  Kerne und  $N_0^{184} \approx 0,1 \times 10^{12}$  Kerne.



**Abb. 4.7:** Anfangsaktivitäten  $A_0$  und produzierte Anzahlen  $N_0$  der Isotope (a)  $^{182}\text{Re}$ , (b)  $^{183}\text{Re}$  und (c)  $^{184}\text{Re}$  für  $^4\alpha$ -bestrahltes  $\text{LiTaO}_3$  in Abhängigkeit von der verwendeten Ionendosis. Die dreieckigen Symbole kennzeichnen 500  $\mu\text{m}$  dicke Kristalle, die runden Symbole 300  $\mu\text{m}$  dicke Kristalle; die Linien sind jeweils lineare Anpassungen.

Im Falle von  $^{182}\text{Re}$  zeigt [Abbildung 4.7a](#) im Rahmen des Fehlers bei allen Proben für  $A_0^{182}$  (bzw.  $N_0^{182}$ ) dieselbe lineare Abhängigkeit von der Ionendosis. In [Abbildung 4.7b](#) lassen sich für  $^{183}\text{Re}$  hingegen Unterschiede zwischen den Proben feststellen. Pro Strahlzeit ist der Verlauf von  $A_0^{183}$  jeweils linear und die beiden Strahlzeiten mit jeweils gleich dicken 500  $\mu\text{m}$ -Kristallen liegen im Rahmen des Fehlers noch dicht beieinander. Die Steigung bei den nur 300  $\mu\text{m}$  dicken Proben fällt hingegen deutlich flacher aus, die Aktivität ist bei gleicher Ionendosis deutlich geringer. Auch  $^{184}\text{Re}$  zeigt in [Abbildung 4.7c](#) ebenfalls eine deutlich geringere Steigung der Abhängigkeit von  $A_0^{184}$  von der Ionendosis für die dünneren Proben. Die dickeren Proben hingegen zeigen innerhalb des Fehlers für beide Strahlzeiten dasselbe lineare Verhalten.

[Tabelle 4.5](#) zeigt die Effizienzen  $\eta$  für die Produktion der Isotope  $^{182}\text{Re}$ ,  $^{183}\text{Re}$  und  $^{184}\text{Re}$  (vgl. [Gl. 3.5](#)), gleichbedeutend mit den Steigungen der linearen Anpassungen an die Daten aus [Abbildungen 4.7a-c](#). Der Wert  $\Gamma_{500/300}$  bezeichnet dabei das Verhältnis der gemittelten Effizienz bei einer Kristalldicke von 500  $\mu\text{m}$  zur Effizienz bei einer Kristalldicke von 300  $\mu\text{m}$ . Für  $^{183}\text{Re}$  und  $^{184}\text{Re}$  weicht  $\Gamma_{500/300}$  deutlich von 1 ab; in den dünneren Proben werden in diesem Fall weniger Nuklide erzeugt.

Proben LTC	Dicke [ $\mu\text{m}$ ]	$\eta^{182}$ [ $10^{-6}$ Kerne/Ion]	$\eta^{183}$ [ $10^{-6}$ Kerne/Ion]	$\eta^{184}$ [ $10^{-6}$ Kerne/Ion]
17-22	500	$283 \pm 4$	$146 \pm 2$	$5,92 \pm 0,08$
23-27	500	$261 \pm 24$	$164 \pm 4$	$6,06 \pm 0,15$
31-35	300	$259 \pm 4$	$37 \pm 1$	$1,71 \pm 0,05$
$\Gamma_{500/300}$		$1,1 \pm 0,1$	$4,2 \pm 0,2$	$3,5 \pm 0,1$

**Tab. 4.5:** Effizienzen  $\eta$  für die Produktion der Isotope  $^{182}\text{Re}$ ,  $^{183}\text{Re}$  und  $^{184}\text{Re}$ , gleichbedeutend mit den Steigungen der linearen Anpassungen aus [Abb. 4.7a-c](#).  $\Gamma_{500/300}$  bezeichnet dabei das Verhältnis der Effizienzen für die verschieden dicken Kristalle.

### 4.3 Tiefenaufgelöste Messungen in Lithiumniobat

Um die simulierten Eindringtiefen der Projektile zu verifizieren und den lateralen Brechungsindexverlauf  $\Delta n(d)$  über der Eindringtiefe der Ionen zu ermitteln, werden  $\text{LiNbO}_3$ -Proben in „Stäbchen“-Geometrie (vgl. [Abb. 3.2c](#)) mit Protonen, Deuteronen,  $^3\text{He}$ -Ionen und Alphateilchen bestrahlt. An vier aufeinanderfolgenden Tagen werden nacheinander je ein Kristall parallel und ein Kristall antiparallel zu seiner kristallographischen  $\vec{c}$ -Achse mit den verschiedenen Projektile und einer Ionendosis von jeweils  $0,56 \times 10^{15}$  Ionen bestrahlt.

#### 4.3.1 Eindringtiefe der Projektile

Die experimentelle Bestimmung der erreichten Eindringtiefe der Projektile geschieht wie in [Abschnitt 3.6.1](#) beschrieben. [Tabelle 4.6](#) zeigt die Ergebnisse und zum Vergleich die mit SRIM-2008 [[Zie08](#)] simulierten Reichweiten (vgl. [Abb. A.1b](#), [A.1d](#), [A.2b](#) und [A.2f](#)).

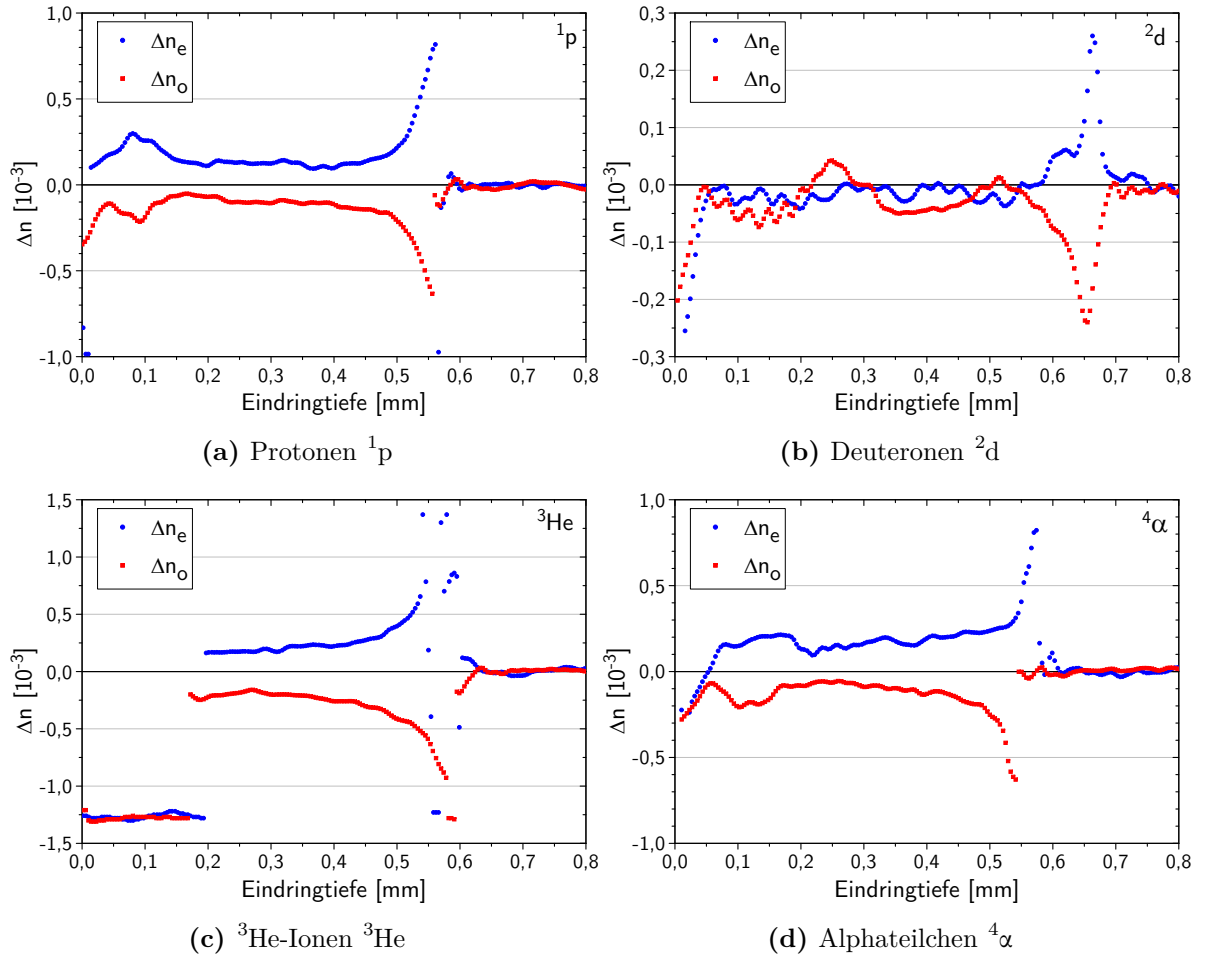
Kristall	Projektile	Energie [MeV]	Eindringtiefe [ $\mu\text{m}$ ]		
			Augen	Grafikprogramm	simuliert
ST-1	$^3\text{He}$	42,0	$560 \pm 20$	$560 \pm 20$	560
ST-2	$^3\text{He}$	42,0	$570 \pm 20$	$575 \pm 20$	560
ST-3	$^4\alpha$	47,0	$540 \pm 20$	$550 \pm 20$	551
ST-4	$^4\alpha$	47,0	$560 \pm 20$	$565 \pm 20$	551
ST-5	$^1\text{p}$	11,7	$550 \pm 20$	$575 \pm 20$	551
ST-6	$^1\text{p}$	11,7	$560 \pm 20$	$565 \pm 20$	551
ST-7	$^2\text{d}$	17,2	$650 \pm 20$	$660 \pm 20$	647
ST-8	$^2\text{d}$	17,2	$640 \pm 20$	$655 \pm 20$	647

**Tab. 4.6:** Bestimmung der Eindringtiefe verschiedener Projektile: Nach der Bestrahlung werden die Proben mit einem Lichtmikroskop untersucht. Die Eindringtiefe wird mithilfe der Okularskala und eines Grafikprogramms bestimmt und mit den von SRIM-2008 [[Zie08](#)] simulierten Werten verglichen.

### 4.3.2 Tiefenabhängige Brechungsindexänderung

Die Auswertung des lateralen Verlaufs der Brechungsindexänderung  $\Delta n(d)$  erfolgt mit dem in [Abschnitt 3.6.1](#) beschriebenen Verfahren. In den ortsaufgelösten Brechungsindexprofilen (vgl. [Abb. 3.13c](#)) ist zu erkennen, dass im bestrahlten Bereich die Brechungsindexänderung entlang der Ionentrajektorie bis hin zum BRAGG-Peak zunimmt. Im Bereich der Stoptiefe werden die Effekte teilweise so groß, dass der Verstetigungsalgorithmus von FRAN NT [[Jud02](#)] sie nicht mehr auflösen kann. Hinter der Stoptiefe zeigt sich der Brechungsindex gegenüber dem Material außerhalb des bestrahlten Bereichs unverändert.

[Abbildungen 4.8a-d](#) zeigen die Ergebnisse für den lateralen Verlauf der ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindexänderungen nach Bestrahlung mit Protonen, Deuteronen,  $^3\text{He}$ -Ionen bzw. Alphateilchen.



**Abb. 4.8:** Lateraler Verlauf der ordentlichen ( $\Delta n_o$ ) und außerordentlichen ( $\Delta n_e$ ) Brechungsindexänderung nach der Bestrahlung mit vier verschiedenen Projektilen aufgetragen gegen die Eindringtiefe.  $\Delta n_o$  nimmt ab, während  $\Delta n_e$  zunimmt; im Bereich der Stoptiefe ist für beide ein klares Maximum zu erkennen. Bei  $^3\text{He}$  und  $^4\alpha$  bestehen Phasensprünge im Bereich des Extremwertes, sodass es dort zu einem Informationsverlust kommt.

Es ist festzuhalten, dass der ordentliche Brechungsindex abnimmt, während der außerordentliche Brechungsindex zunimmt. Mit Ausnahme von  $^2\text{d}$  ist bei allen Projektilen ein Effekt über die ganze Eindringtiefe zu erkennen, der zur Stopptiefe hin zunimmt; bei Deuteronen hingegen fällt die Brechungsindexänderung im lediglich durchstrahlten Bereich relativ gering aus. Im Bereich der Stopptiefe zeigen alle Projektile dann ein klares Maximum. Bei  $^3\text{He}$  und  $^4\alpha$  führen die durch das große Signal im Bereich des BRAGG-Peaks auftretenden Phasensprünge (vgl. [Abb. 3.13c](#)) dort zu einem Informationsverlust.

Der Bereich in [Abbildung 4.8c](#) bis etwa 0,2 mm Eindringtiefe beinhaltet keine validen Daten, da an dieser Stelle die Kristalloberfläche beschädigt war, sodass keine Interferenz und damit auch kein Messsignal entstehen konnte. Auch bei den weiteren Proben sind Effekte durch einen beschädigten Kristallrand bei sehr kleinen Eindringtiefen ( $< 0,05$  mm) nicht auszuschließen.

## 4.4 Brechungsindexänderungen in Lithiumniobat

Die folgenden interferometrischen Messungen werden mit der standardmäßigen Probengeometrie (vgl. [Abb. 3.2a/b](#)) durchgeführt, sodass die Brechungsindexänderung als Integral über die Probentiefe orts aufgelöst in Abhängigkeit der Position innerhalb des Strahlflecks vorliegt (vgl. [Abb. 3.11](#)).

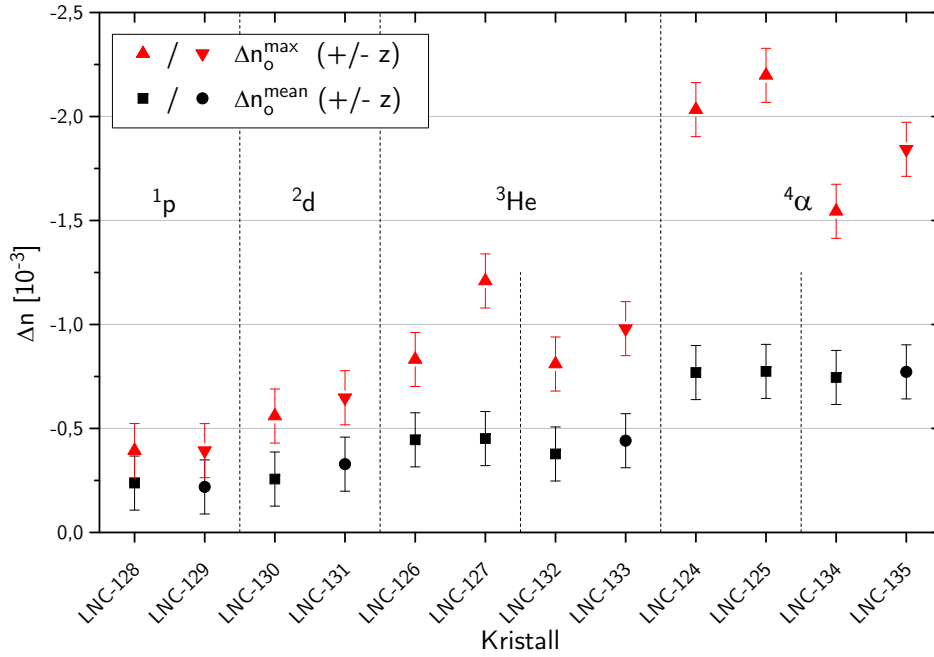
Es werden die Abhängigkeit der ionenstrahlinduzierten Modifikation des Brechungsindex in  $\text{LiNbO}_3$  von der Wahl des Projektils sowie deren thermische Stabilität nach Bestrahlung mit Protonen untersucht. Darüber hinaus wird eine bereits laufende Langzeitmessung nach Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen fortgesetzt und durch wiederholte Bestrahlung mit Alphateilchen versucht festzustellen, ob eine Abhängigkeit von der Vorgeschichte der Kristallschädigung besteht. Aus Gründen der Darstellung wird in den meisten Graphen eine invertierte  $\Delta n$ -Achse verwendet.

### 4.4.1 Vergleich der Projektile

Um den Einfluss der Projektilart auf die Brechungsindexänderungen in Lithiumniobat zu vergleichen, werden die mit einer jeweiligen Ionendosis von  $1,1 \times 10^{15}$   $^1\text{p}$ -,  $^2\text{d}$ -,  $^3\text{He}$ - bzw.  $^4\alpha$ -Ionen bestrahlten Kristalle LNC-124 bis LNC-135 interferometrisch ausgewertet (vgl. [Abschn. 3.5](#)). Es handelt sich bei allen Proben um „z-cuts“, zugänglich ist somit nur der ordentliche Brechungsindex.

[Abbildung 4.9](#) zeigt die durch die Bestrahlung erzeugten mittleren ( $\Delta n_o^{\text{mean}}$ ) und maximalen ( $\Delta n_o^{\text{max}}$ ) Änderungen des ordentlichen Brechungsindex. Verschiedene Symbole für  $+z$  und  $-z$  markieren die bestrahlte Kristallseite und damit eine Bestrahlung entgegen bzw. entlang der kristallographischen  $\vec{c}$ -Achse. Es ist deutlich zu erkennen, dass die maximale Brechungsindexänderung mit steigender Projekttilmasse und damit auch steigender Energie zunimmt. Die Werte liegen zwischen  $\Delta n_o^{\text{max}} = (-0,39 \pm 0,13) \times 10^{-3}$  für  $^1\text{p}$  und bis zu  $\Delta n_o^{\text{max}} = (-2,20 \pm 0,13) \times 10^{-3}$  für  $^4\alpha$ . Dieses Verhalten gilt auch für





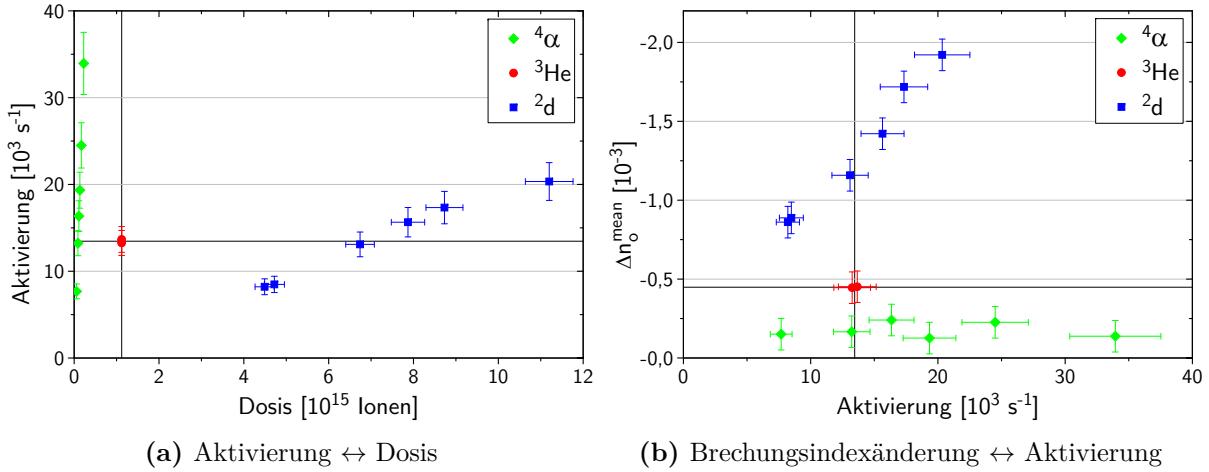
**Abb. 4.9:** Brechungsindexänderung in  $\text{LiNbO}_3$  nach Bestrahlung mit verschiedenen Projektilen bei jeweils gleicher Ionendosis von  $1,1 \times 10^{15}$  Ionen. Die erreichte mittlere ( $\Delta n_o^{\text{mean}}$ ) und maximale ( $\Delta n_o^{\max}$ ) Brechungsindexänderung ist für die verschiedenen Kristalle dargestellt. Die Trennlinien deuten verschiedene Strahlzeiten mit jeweils vergleichbarem Strahlprofil an. Verschiedene Symbole für  $+z$  und  $-z$  markieren die bestrahlte Kristallseite und damit eine Bestrahlung entgegen bzw. entlang der kristallographischen  $\vec{c}$ -Achse.

die mittlere Brechungsindexänderung, wobei im Rahmen der Fehler zumindest für Protonen und Deuteronen nur eine Tendenz zu erkennen ist. Hier reichen die Werte von  $\Delta n^{\text{mean}} = (-0,22 \pm 0,13) \times 10^{-3}$  bis  $\Delta n^{\text{mean}} = (-0,77 \pm 0,13) \times 10^{-3}$ . Die Schwankung zwischen den zwei bzw. vier Kristallen mit gleichen Projektilen liegt bei  $\Delta n^{\text{mean}}$  deutlich innerhalb der Fehlergrenzen, bei  $\Delta n^{\max}$  zeigen die  $^3\text{He}$ - und  $^4\alpha$ -Proben teilweise Abweichungen außerhalb der Fehlergrenzen.

#### 4.4.2 Brechungsindexänderung gegen nukleare Aktivierung

Es soll ermittelt werden, wie groß die durch Bestrahlung mit Deuteronen oder Alphateilchen erreichte Brechungsindexänderung im Vergleich zu den etablierten  $^3\text{He}$ -Ionen ausfällt, wenn die Proben nach der Bestrahlung eine vergleichbare nukleare Aktivierung besitzen. Für die Vorhersage der Aktivierung wird das Wissen genutzt, dass die nukleare Aktivierung von Lithiumniobat bei gleichbleibender Energie und Projektil linear von der Ionendosis abhängt [Jen10].

Es werden die Proben LNC-141 bis LNC-146 mit Alphateilchen und die Proben LNC-147 bis LNC-152 mit Deuteronen bestrahlt, wobei die Ionendosen so gewählt sind, dass die zu erwartende Aktivierung in einem Bereich unter- und oberhalb der Referenzproben liegt. Als Referenz dienen die mit  $1,1 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ -Proben LNC-126 und LNC-127. Anschließend werden nukleare Aktivierung und Brechungsindex vermessen; aufgrund der Probengeometrie ist jeweils nur der ordentliche Brechungsindex zugänglich.



**Abb. 4.10:** (a) Gemessene nukleare Aktivierung gegen verwendete Ionendosis und (b) mittlere Brechungsindexänderung  $\Delta n_o^{\text{mean}}$  gegen nukleare Aktivierung bei Bestrahlung mit  $^4\alpha$  und  $^2\text{d}$  (bereits veröffentlicht [Rae14]). In rot eingezeichnet sind die als Referenz dienenden Proben, bestrahlt mit  $^3\text{He}$ -Ionen; beide Grafiken zeigen dieselben Messdaten.

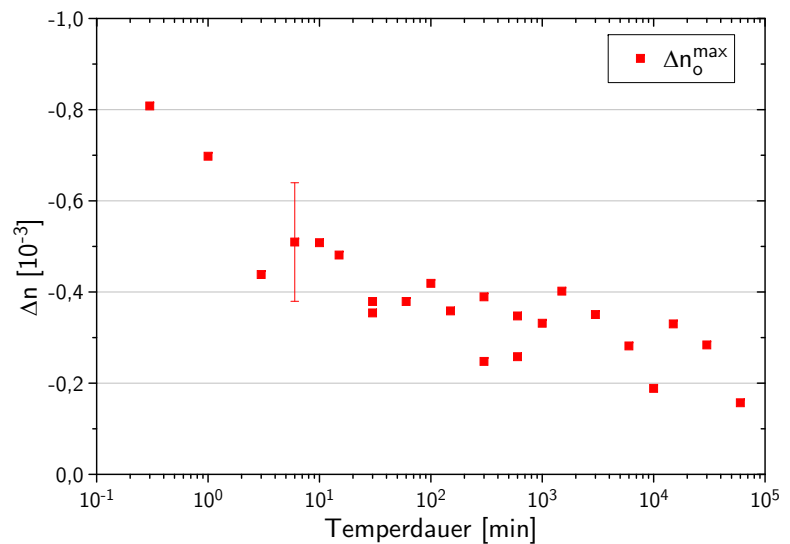
Abbildung 4.10a zeigt für beide Projektillarten eine lineare Abhängigkeit der tatsächlich erzielten nuklearen Aktivierung von der genutzten Ionendosis. Eine Bestrahlung mit Alphateilchen erreicht bereits mit weniger als einem Zehntel der Ionendosis eine vergleichbare Aktivierung wie die Referenzproben. Im Falle von Deuteronen muss mehr als die sechsfache Ionendosis der Referenzproben verwendet werden, bis die Aktivierung über den Vergleichswert derselben ansteigt. Selbst beim Zehnfachen der Referenzdosis beträgt die nukleare Aktivierung der  $^2\text{d}$ -Proben weniger als das Doppelte der  $^3\text{He}$ -Proben.

Die durch die Bestrahlung erreichte mittlere Brechungsindexänderung  $\Delta n_o^{\text{mean}}$  ist in Abbildung 4.10b gegen die gemessene Aktivierung aufgetragen. Die Brechungsindexänderung der mit  $^2\text{d}$  bestrahlten Proben nimmt mit steigender Aktivierung stetig zu und übersteigt die Werte der mit  $^3\text{He}$  bestrahlten Referenzproben deutlich, selbst bei Proben mit geringerer Aktivierung, der Wertebereich beträgt  $\Delta n_o^{\text{mean}} = (0,86 - 1,92) \times 10^{-3}$ . Mit den, für die hier gewünschte niedrige Anfangsaktivierung nötigen, geringen  $^4\alpha$ -Ionendosen (vgl. Abb. 4.10a) lassen sich hingegen nur sehr geringe Brechungsindexänderungen erzeugen. Die Änderungen liegen mit  $\Delta n_o^{\text{mean}} = (0,12 - 0,24) \times 10^{-3}$  alle deutlich unterhalb der Referenz.

### 4.4.3 Thermische Stabilität nach Bestrahlung mit Protonen

Zur Untersuchung der thermischen Stabilität der durch eine Bestrahlung mit Protonen erzeugten Brechungsindexänderungen werden die Proben LNC-153 bis LNC-156 mit einer Dosis von jeweils  $4,5 \times 10^{15}$  Protonen bestrahlt. Jeweils einer der Kristalle wird wie in [Abschnitt 3.7](#) beschrieben isotherm bzw. isochron getempert. Die übrigen Kristalle verbleiben bei Raumtemperatur und werden in [Abschnitt 4.4.4](#) betrachtet. Es handelt sich um „z-cuts“, sodass nur der ordentliche Brechungsindex messbar ist. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird der konstante Fehler der Brechungsindexmessung nur beispielhaft dargestellt.

#### Isotherme Erholung bei 200 °C

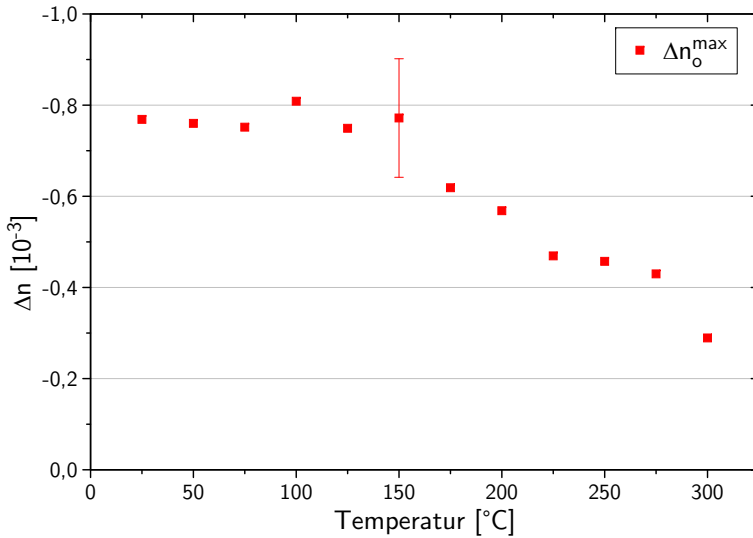


**Abb. 4.11:** Isotherme Erholung der mit einer Dosis von  $4,5 \times 10^{15}$  Protonen bestrahlten Probe LNC-153 bei 200 °C. Gezeigt ist die ordentliche maximale Brechungsindexänderung  $\Delta n_o^{\max}$  nach jedem Tempersschritt gegen die aufsummierte Temperdauer.

[Abbildung 4.11](#) zeigt den Verlauf der maximalen Änderung des ordentlichen Brechungsindex  $\Delta n_o^{\max}$  während der isothermen Erholung des Kristalls LNC-153 bei 200 °C. Die Werte nehmen mit zunehmender Temperdauer ab; im Rahmen der Fehlergrenzen sind Schwankungen zu erkennen, der Trend beschreibt allerdings eine stetige Abnahme. Nach 30 Minuten zeigt die Probe nur noch etwa 50 % der ursprünglichen Brechungsindexänderung, nach 60 000 Minuten sind es weniger als 20 %.

#### Isochrone Erholung in 15 min Schritten

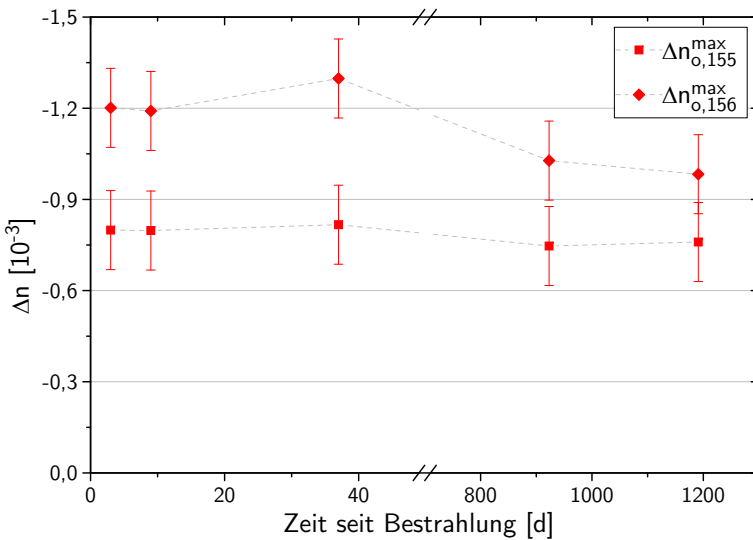
[Abbildung 4.12](#) zeigt den Verlauf der maximalen Änderung des ordentlichen Brechungsindex  $\Delta n_o^{\max}$  während der isochronen Erholung des Kristalls LNC-154 in 15 min Schritten. Während der ersten Tempersritte zeigt sich zunächst keine Veränderung der Brechungsindexmodifikation, erst ab 175 °C ist eine klare Abnahme zu erkennen. Bis 300 °C erfolgt



**Abb. 4.12:** Isochrone Erholung der mit einer Dosis von  $4,5 \times 10^{15}$  Protonen bestrahlten Probe LNC-154 in 15 min Schritten. Gezeigt ist die ordentliche maximale Brechungsindexänderung  $\Delta n_o^{\max}$  nach jedem Temperschnitt gegen die Temperatur.

eine mäßige, aber stetige Abnahme auf unter 40% des Ausgangswertes. Eine Weiterführung der Messung wurde durch Zerstörung der Probe beim folgenden Temperschnitt verhindert.

#### 4.4.4 Langzeitstabilität nach Bestrahlung mit Protonen



**Abb. 4.13:** Lagerung bei Raumtemperatur der mit einer Dosis von  $4,5 \times 10^{15}$  Protonen bestrahlten Proben LNC-155 und LNC-156. Gezeigt ist die ordentliche maximale Brechungsindexänderung  $\Delta n_o^{\max}$  gegen die verstrichene Zeit seit der Bestrahlung. Es ist die Unterbrechung der Zeitachse zu beachten. Die Verbindungslinien dienen der Identifikation der Datenreihen.

Abbildung 4.13 zeigt den Verlauf der maximalen Änderung des ordentlichen Brechungsindex  $\Delta n_o^{\max}$  während der Lagerung der Kristalle LNC-155 und LNC-156 bei Raumtemperatur und geringem Tageslichteinfluss. Im Diagramm ist die Unterbrechung der Zeitachse zu beachten. Trotz Bestrahlung mit gleicher Ionendosis von  $4,5 \times 10^{15}$  Protonen zeigt LNC-156 zu Beginn mit etwa  $\Delta n_{o,156}^{\max} = (-1,2 \pm 0,1) \times 10^{-3}$  eine größere Brechungsindexänderung als LNC-155 mit etwa  $\Delta n_{o,155}^{\max} = (-0,8 \pm 0,1) \times 10^{-3}$ . Während LNC-155

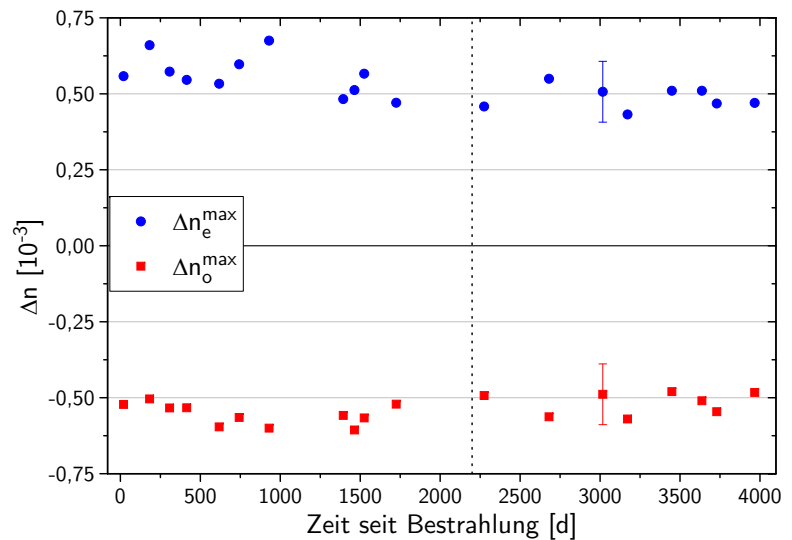
im Rahmen des Fehlers auch nach über drei Jahren keine Veränderung der bestrahlungsinduzierten Modifikation zeigt, nimmt die Brechungsindexänderung bei LNC-156 in dieser Zeit leicht ab, bewegt sich aber noch innerhalb der Fehlergrenzen.

#### 4.4.5 Langzeitstabilität nach Bestrahlung mit $^3\text{He}$ -Ionen

Zur Untersuchung der Stabilität bestrahlungsinduzierter Brechungsindexänderungen in Lithiumniobat über lange Zeiträume wurde von ZAMANI-MEYMIAN die  $\text{LiNbO}_3$ -Probe LNHEP32 am Hochstromplatz (siehe Abb. 3.3, H) mit einem Strahlstrom von ca. 500 nA  $^3\text{He}$ -Ionen für 4 Minuten bestrahlt [ZM07]. Anschließend wurde die Probe bei Raumtemperatur und Tageslicht gelagert und wiederholt interferometrisch vermessen [ZM10, Jen10]. Im Rahmen dieser Arbeit wird diese Messreihe weiter fortgeführt.

Abbildung 4.14 zeigt den Verlauf der außerordentlichen ( $\Delta n_e^{\max}$ ) und ordentlichen ( $\Delta n_o^{\max}$ ) maximalen Brechungsindexänderung gegen die seit der Bestrahlung verstrichene Zeit. Die Messwerte hinter der gestrichelten Linie wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit hinzugefügt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird der konstante Fehler der Brechungsindexmessung nur beispielhaft dargestellt.

Es zeigt sich, dass im Rahmen des Fehlers über einen Zeitraum von elf Jahren keine Abnahme der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderung in  $\text{LiNbO}_3$  zu erkennen ist.



**Abb. 4.14:** Zeitliche Entwicklung der Brechungsindexänderung in der Probe LNHEP32. Aufgetragen ist die außerordentliche  $\Delta n_e^{\max}$  und ordentliche  $\Delta n_o^{\max}$  maximale Brechungsindexänderung gegen die seit der Bestrahlung verstrichene Zeit. Die Messwerte ab 2200 d (gestrichelte Linie) wurden im Rahmen der vorliegenden Arbeit erhoben.

#### 4.4.6 Brechungsindexänderungen nach wiederholter Bestrahlung

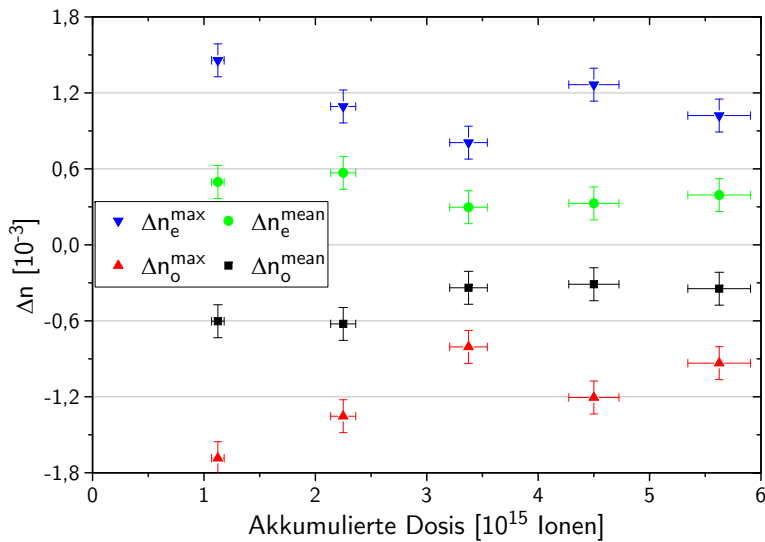
Durch wiederholte Bestrahlung von Lithiumniobat-Kristallen wird untersucht, ob sich eine Abhängigkeit der erreichbaren Brechungsindexänderungen von der Vorgeschichte der Kristallschädigung feststellen lässt.

Insgesamt werden die vierzehn  $\text{LiNbO}_3$ -Proben LNC-157 bis LNC-164 und LNC-166 bis LNC-171 in sieben verschiedenen Strahlzeiten (bezeichnet mit a bis g) mehrfach mit Alphateilchen bestrahlt (vgl. Abschn. 3.8).

Die Kristalle LNC-157 bis LNC-159 werden nach zwei Wiederholungen wegen starker Oberflächendefekte aus diesem Prozess aussortiert; die Kristalle LNC-166 bis LNC-168 werden bereits nach einmaliger Bestrahlung ausgesondert. Defekte an der Kristalloberfläche können die Verstetigung der Phasenbilder mit FRAN NT [Jud02] (vgl. Abschn. 3.5) erschweren und zu Informationsverlust im betroffenen Bereich führen.

Tabelle A.2 listet die acht erfolgreich vier- bzw. fünfmal bestrahlten Proben gruppiert nach der Anzahl der Wiederholungen auf und führt die verwendeten einzelnen sowie über die Wiederholungen akkumulierten Ionendosen auf.

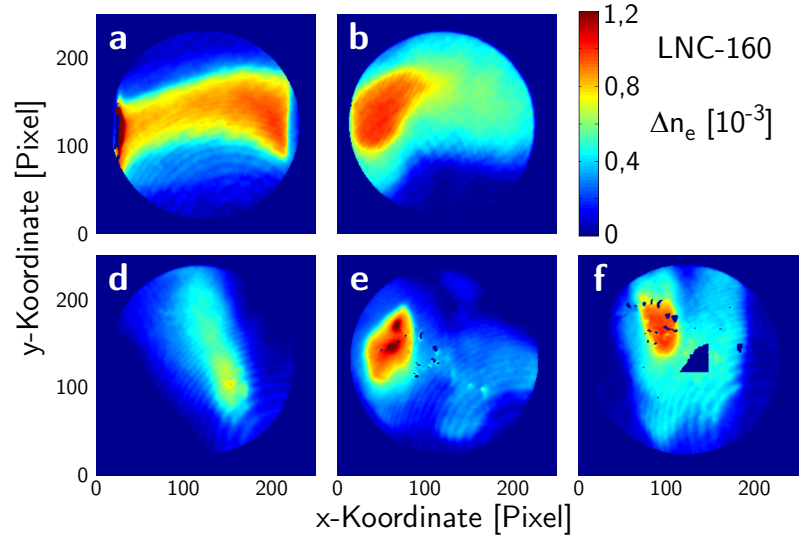
Abbildung 4.15 zeigt die maximalen ( $\Delta n_{o,e}^{\max}$ ) und mittleren ( $\Delta n_{o,e}^{\text{mean}}$ ) Brechungsindexänderungen beispielhaft anhand der Probe LTC-160. Diese Probe wird in fünf verschiedenen Strahlzeiten (a, b, d, e, f) in identischer Orientierung mit einer Dosis von jeweils  $1,1 \times 10^{15}$  Alphateilchen bestrahlt.



**Abb. 4.15:** Maximale ( $\Delta n_{o,e}^{\max}$ ) und mittlere ( $\Delta n_{o,e}^{\text{mean}}$ ) Brechungsindexänderungen der wiederholt in identischer Orientierung bestrahlten Probe LNC-160 aufgetragen gegen die in fünf Strahlzeiten (a, b, d, e, f) akkumulierte Ionendosis von jeweils  $1,1 \times 10^{15}$  Alphateilchen pro Strahlzeit.

Während in den ersten drei Strahlzeiten der Betrag der maximalen Brechungsindexänderung  $|\Delta n_{o,e}^{\max}|$  stetig abnimmt, steigt er in der vierten Strahlzeit wieder an, um dann erneut wieder abzunehmen. Der Betrag der mittleren Brechungsindexänderung  $|\Delta n_{o,e}^{\text{mean}}|$  zeigt im Rahmen des Fehlers lediglich einmal eine Abnahme zwischen der zweiten und dritten Strahlzeit.

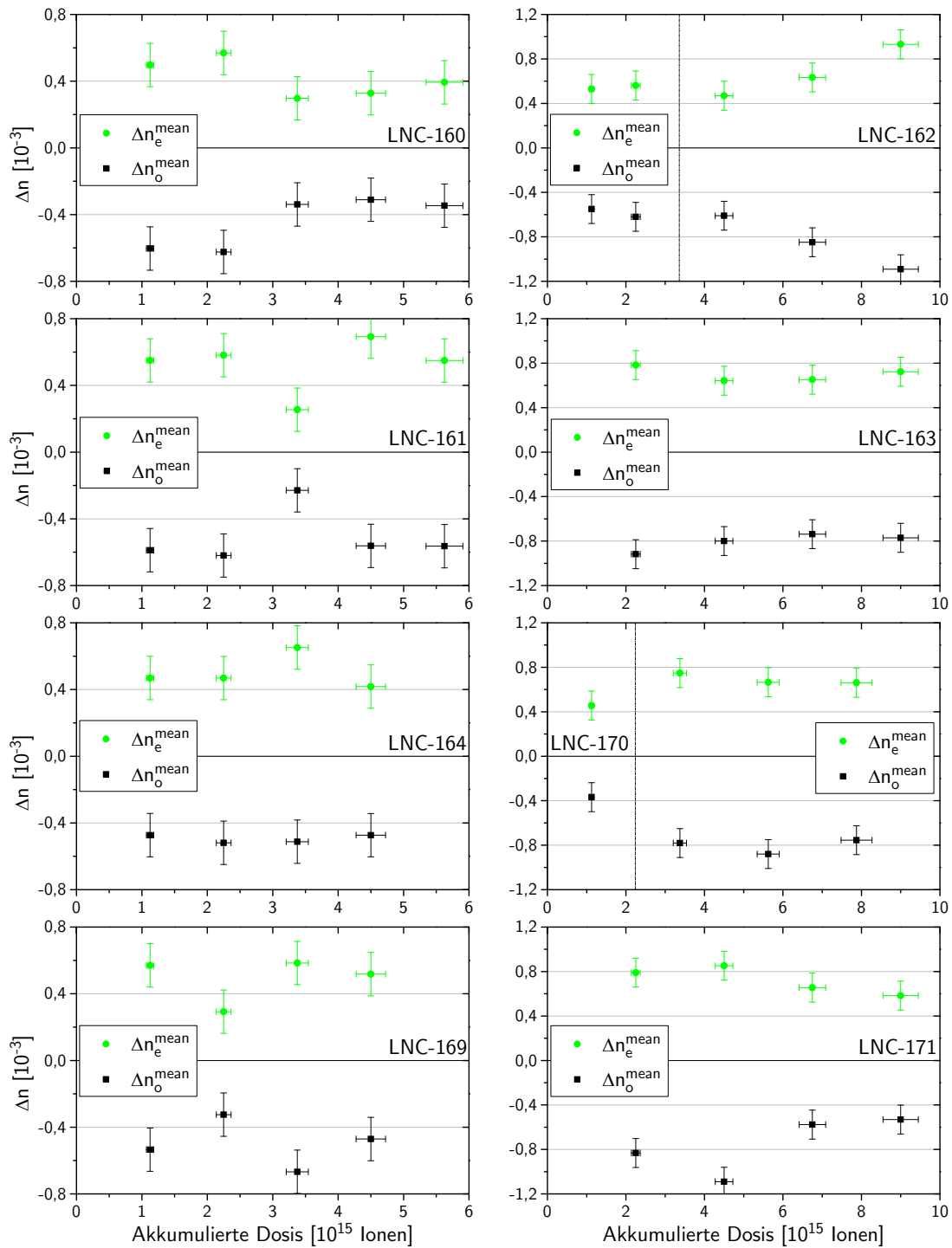
**Abb. 4.16:** Örtlich aufgelöste außerordentliche Brechungsindexänderung  $\Delta n_e(x, y)$  der in fünf Strahlzeiten (a, b, d, e, f) wiederholt bestrahlten Probe LNC-160. Es ist nur der bestrahlte Bereich dargestellt. Bei den Strahlzeiten e und f werden zunehmend die Auswirkungen der Oberflächendefekte auf die Auswertung sichtbar.



In [Abbildung 4.16](#) ist die örtlich aufgelöste außerordentliche Brechungsindexänderung  $\Delta n_e(x, y)$  des Kristalls LNC-160 für jede Wiederholung dargestellt. Lage und Intensität der Modifikation erlauben, gemeinsam mit der Betrachtung des Strahlflecks über den Leuchtschirm zu Beginn der Bestrahlung, Rückschlüsse auf die Form des eingestellten Ionenstrahlflecks. Strahlzeit a zeigt einen defokussierten Strahl, der in der Breite die ganze Kreisblende ausfüllt und dessen zwei Maxima am Rand der Begrenzung durch die im vorderen Verlauf der Strahlführung (vgl. [Abb. 3.3](#)) verwendete Schlitzblende liegen. Auch der Strahlfleck in Strahlzeit b erstreckt sich über einen Großteil der Kreisblende, bildet aber ein breites Maximum innerhalb derselben. Die im zeitlichen Verlauf der Probe LNC-160 dritte Strahlzeit Nummer d erzeugt eine flache, längliche Modifikation, während die Strahlzeiten e und f einen stark fokussierten Strahlfleck mit hohem Maximalwert an ähnlicher Position erkennen lassen. Zusätzlich fallen bei diesen Strahlzeiten zunehmend die Auswirkungen von Oberflächendefekten auf.

Wegen der großen Abhängigkeit der maximalen Brechungsindexänderung  $\Delta n^{\max}$  von der Form des Strahlprofils, wird für den Vergleich aller Kristalle die mittlere Brechungsindexänderung  $\Delta n_e^{\text{mean}}$  herangezogen. [Abbildung 4.17](#) zeigt  $\Delta n_{o,e}^{\text{mean}}$  für alle acht wiederholt bestrahlten Kristalle; die Messwerte für die maximale Brechungsindexänderung  $\Delta n_{o,e}^{\max}$  finden sich der Vollständigkeit halber im Anhang ([Abb. A.4](#)).

Bei der gemeinsamen Betrachtung aller Proben kann keine Tendenz festgestellt werden. In Einzelfällen zeigen sich zwar Veränderungen der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderung außerhalb der Fehlergrenzen, jedoch kann in der Summe der Ergebnisse nach bis zu fünf Wiederholungen und einer akkumulierten Dosis von bis zu  $9,0 \times 10^{15}$  Ionen weder eine Abnahme noch eine Zunahme der Effekte beobachtet werden.



**Abb. 4.17:** Mittlere Brechungsindexänderungen  $\Delta n_{o,e}^{\text{mean}}$  für acht wiederholt bestrahlte LiNbO<sub>3</sub>-Proben aufgetragen gegen die in vier bzw. fünf Strahlzeiten akkumulierte Ionendosis. Für die Proben LNC-162 und LNC-170 wurde die Ionendosis ab der gestrichelten Hilfslinie verdoppelt. Es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten.



## 4.5 Brechungsindexänderungen in Lithiumtantalat

In diesem Abschnitt wird für die Bestrahlung von Lithiumtantalat ebenfalls die Abhängigkeit der durch Bestrahlung erzeugten Brechungsindexänderung von der Wahl des Projektils bestimmt. Für die Bestrahlung mit Alphateilchen werden des Weiteren die Abhängigkeit von der Ionendosis und die genaue Form der Brechungsindexprofile betrachtet und anschließend die thermische Stabilität und das Langzeitverhalten der Brechungsindexänderung nach Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen untersucht. Aus Gründen der Darstellung wird in den meisten Graphen eine invertierte  $\Delta n$ -Achse verwendet.

### 4.5.1 Allgemeine Beobachtungen

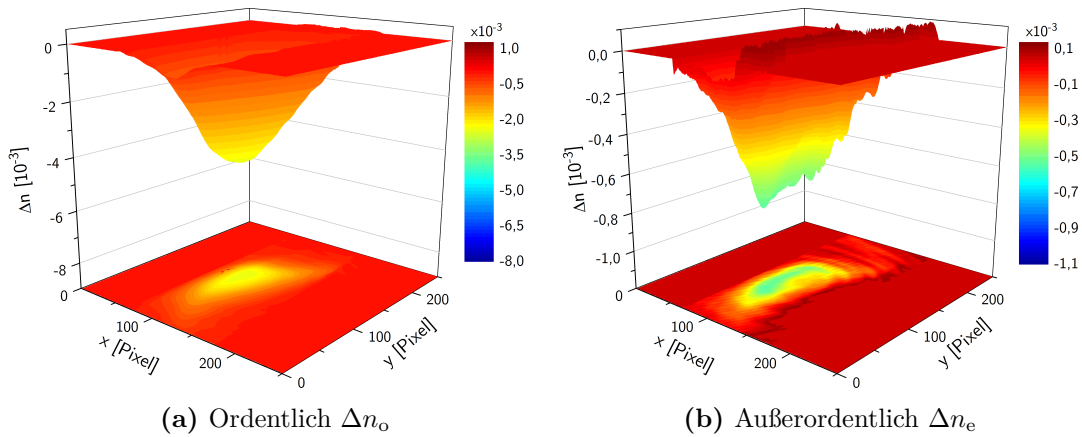
Auch in Lithiumtantalat erzeugen schnelle leichte Ionen große Brechungsindexänderungen. Der ordentliche Brechungsindex  $n_o$  erfährt wie bei Lithiumniobat eine Absenkung. Bei einer Ionendosis von  $20 \times 10^{15}$  Alphateilchen werden Werte von bis zu  $\Delta n_o^{\max} = (-16,2 \pm 0,2) \times 10^{-3}$  erreicht. Der außerordentliche Brechungsindex  $n_e$  nimmt im Gegensatz zu  $\text{LiNbO}_3$  ebenfalls ab, die Änderung des außerordentlichen Brechungsindex ist dabei aber um ein Vielfaches geringer. Eine Ionendosis von  $20 \times 10^{15}$  Alphateilchen erzeugt eine Absenkung von etwa  $\Delta n_e^{\max} = (-3,8 \pm 0,2) \times 10^{-3}$ .

### 4.5.2 Brechungsindexprofile

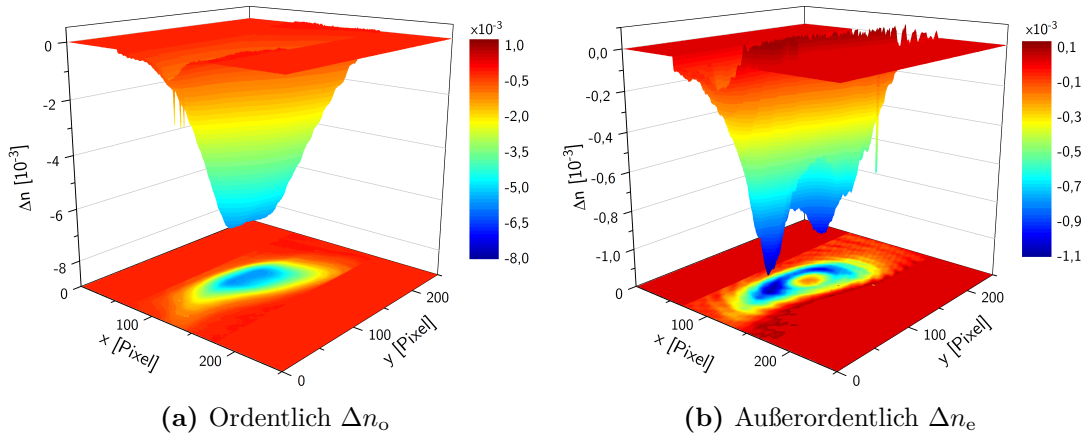
Eine genauere Betrachtung der erzeugten außerordentlichen Brechungsindexprofile vor allem bei hohen Ionendosen bringt ein gegenüber dem ordentlichen Brechungsindex auch qualitativ abweichendes Verhalten zum Vorschein:

[Abbildung 4.18a](#) zeigt die örtlich aufgelöste ordentliche und [Abbildung 4.18b](#) die außerordentliche Brechungsindexänderung der mit einer Dosis von  $3,4 \times 10^{15}$  Alphateilchen bestrahlten  $\text{LiTaO}_3$ -Probe LTC-25. Es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten. Abgesehen von der unterschiedlichen Stärke der Absenkung ( $\Delta n_o^{\max} = (-4,5 \pm 0,1) \times 10^{-3}$  und  $\Delta n_e^{\max} = (-0,8 \pm 0,1) \times 10^{-3}$ ) zeigen die erreichten Brechungsindexprofile weitgehend den gleichen Verlauf. Bei genauerer Betrachtung fällt auf, dass der Verlauf von  $\Delta n_o$  GAUSS-förmig ist und damit qualitativ dem Intensitätsprofil der Bestrahlung folgt, während  $\Delta n_e$  im Strahlfleckzentrum eine geringere Absenkung zeigt als in den angrenzenden Bereichen. Der Strahlschwerpunkt und das Maximum  $\Delta n_e^{\max}$  fallen nicht zusammen.

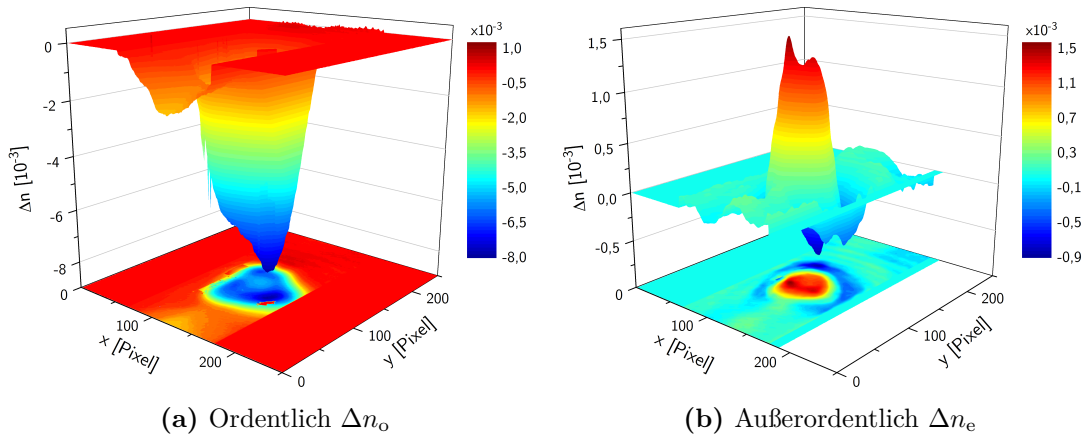
Dieser Effekt lässt sich in [Abbildung 4.19](#) noch deutlicher erkennen. Die dort dargestellte Probe LTC-26 wurde mit einer Dosis von  $5,6 \times 10^{15}$  Alphateilchen bestrahlt. Die ordentliche Brechungsindexänderung ([Abb. 4.19a](#)) zeigt dieselbe Strahlfleckform wie bei LTC-25, lediglich mit einer stärkeren maximalen Absenkung von  $\Delta n_o^{\max} = (-6,9 \pm 0,1) \times 10^{-3}$ . In der außerordentlichen Brechungsindexänderung ([Abb. 4.19b](#)) ist jedoch im Strahlfleckzentrum eine klare Erhebung gegenüber der umgebenden Absenkung von  $\Delta n_e^{\max} = (-1,1 \pm 0,1) \times 10^{-3}$  zu erkennen. Die Änderung des außerordentlichen Brechungsindex im Zentrum des Profils beträgt deshalb nur etwa  $\Delta n_e^{\text{cent}} = (-0,2 \pm 0,1) \times 10^{-3}$ .



**Abb. 4.18:** Brechungsindexänderung der Probe LTC-25 ( $3,4 \times 10^{15}$  Alphateilchen), es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten. Erreicht werden  $\Delta n_o^{\max} = -4,5 \times 10^{-3}$  und  $\Delta n_e^{\max} = -0,8 \times 10^{-3}$ .

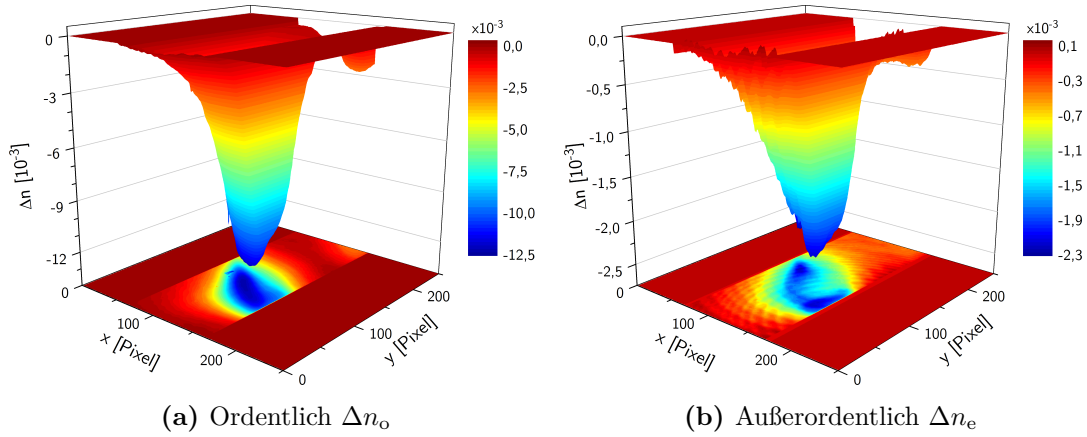


**Abb. 4.19:** Brechungsindexänderung der Probe LTC-26 ( $5,6 \times 10^{15}$  Alphateilchen), es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten. Erreicht werden  $\Delta n_o^{\max} = -6,9 \times 10^{-3}$ ,  $\Delta n_e^{\max} = -1,1 \times 10^{-3}$  und  $\Delta n_e^{\text{cent}} = -0,2 \times 10^{-3}$ .



**Abb. 4.20:** Brechungsindexänderung der Probe LTC-24 ( $15,7 \times 10^{15}$  Alphateilchen), es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten. Erreicht werden  $\Delta n_o^{\max} = -8,0 \times 10^{-3}$ ,  $\Delta n_o^{\text{cent}} = -5,5 \times 10^{-3}$ ,  $\Delta n_e^{\max} = -1,1 \times 10^{-3}$  und  $\Delta n_e^{\text{cent}} = +1,5 \times 10^{-3}$ .

Die mit einer noch höheren Dosis von  $15,7 \times 10^{15}$  Alphateilchen bestrahlte Probe LTC-24 (dargestellt in [Abb. 4.20](#)) zeigt den beobachteten Effekt sehr ausgeprägt: Die maximal erreichte Absenkung für den ordentlichen Brechungsindex liegt bei  $\Delta n_o^{\max} = (-8,0 \pm 0,1) \times 10^{-3}$  und zeigt in der Mitte des Strahlflecks nun ebenfalls ein scheinbar abgeschwächtes Maximum von  $\Delta n_o^{\text{cent}} = (-5,5 \pm 0,1) \times 10^{-3}$ . Im Strahlfleckzentrum des außerordentlichen Brechungsindex ergibt sich hier sogar eine Anhebung um  $\Delta n_e^{\text{cent}} = (+1,5 \pm 0,1) \times 10^{-3}$ . Diese positive Änderung bleibt umgeben von einer ringförmigen Absenkung mit bis zu  $\Delta n_e^{\max} = (-1,1 \pm 0,1) \times 10^{-3}$ .



**Abb. 4.21:** Brechungsindexänderung der Probe LTC-32 ( $15,7 \times 10^{15}$  Alphateilchen), es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten. Erreicht werden  $\Delta n_o^{\max} = -12,5 \times 10^{-3}$  und  $\Delta n_e^{\max} = -2,3 \times 10^{-3}$ .

Im Gegensatz dazu zeigt die mit ebenfalls  $15,7 \times 10^{15}$  Alphateilchen bestrahlte Probe LTC-32 in [Abbildung 4.21](#) keine Auffälligkeiten im ordentlichen Brechungsindex und es wird ein Wert von  $\Delta n_o^{\max} = (-12,5 \pm 0,1) \times 10^{-3}$  erreicht. Der außerordentliche Brechungsindex mit einer maximalen Absenkung von  $\Delta n_e^{\max} = (-2,3 \pm 0,1) \times 10^{-3}$  erfährt in der Mitte des Strahlflecks lediglich eine moderate Abschwächung, sodass keine klar messbare Abweichung im Zentrum definiert werden kann.

Alle mit Alphateilchen bestrahlten  $\text{LiTaO}_3$ -Proben in „*x*-cut“-Geometrie zeigen das beschriebene Verhalten in unterschiedlich großer Ausprägung, jedoch mit keiner eindeutigen Tendenz.

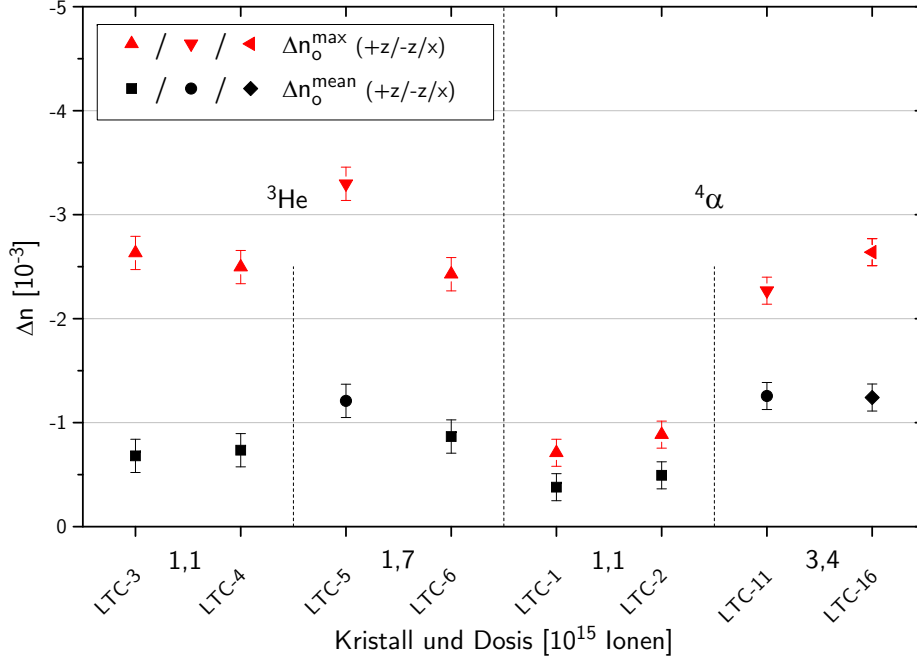
Die mit einer Dosis von maximal  $1,7 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten Proben sowie alle „*z*-cuts“ (maximal  $3,4 \times 10^{15}$  Alphateilchen) zeigen keine derartigen Auffälligkeiten.

### 4.5.3 Vergleich der Projektile

Analog zu [Abschnitt 4.4.1](#) sollen die Brechungsindexänderungen in Lithiumtantalat bei Nutzung von  $^3\text{He}$  und  $^4\alpha$  als Projektil verglichen werden. Hierbei ist auch die Größe der erreichten Effekte im Vergleich zu Lithiumniobat interessant. Hierzu werden die Kristalle LTC-1 bis LTC-4 mit einer jeweiligen Ionendosis von  $1,1 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ - bzw.  $^4\alpha$ -Ionen bestrahlt und interferometrisch ausgewertet (vgl. [Abschn. 3.5](#)). Zusätzlich werden für den

Vergleich auch die LiTaO<sub>3</sub>-Proben LTC-5 und LTC-6 (Ionendosis  $1,7 \times 10^{15}$  <sup>3</sup>He-Ionen), sowie LTC-11 und LTC-16 (Ionendosis  $3,4 \times 10^{15}$  Alphateilchen) herangezogen.

Es handelt sich bis auf LTC-16 ausschließlich um „z-cuts“, zugänglich ist somit nur der ordentliche Brechungsindex.



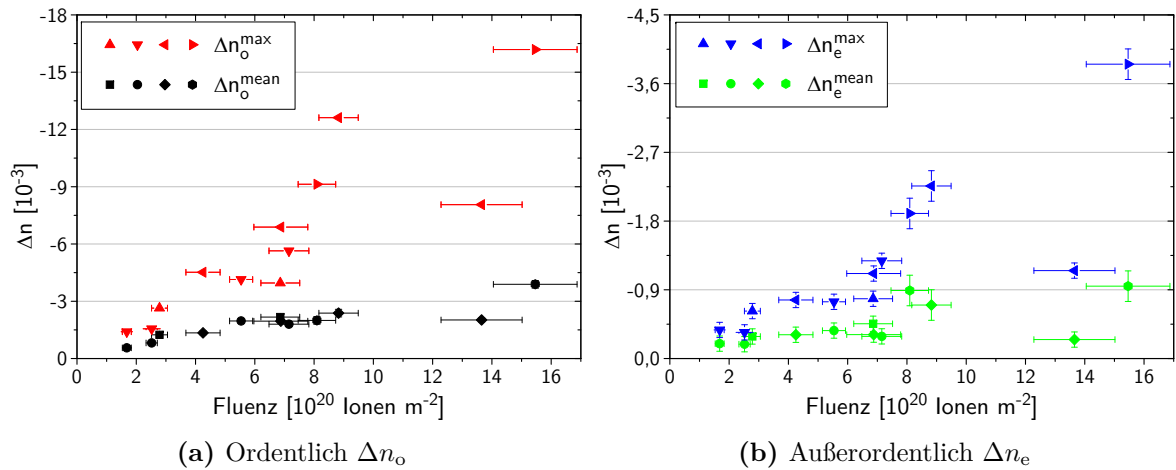
**Abb. 4.22:** Brechungsindexänderung in LiTaO<sub>3</sub> nach Bestrahlung mit verschiedenen Projektilen und Ionendosen. Die erreichte mittlere ( $\Delta n^{\text{mean}}$ ) und maximale ( $\Delta n^{\max}$ ) Brechungsindexänderung ist für die verschiedenen Kristalle dargestellt. Ebenfalls angegeben sind die Projektilart und die verwendete Ionendosis. Die Trennlinien deuten verschiedene Strahlzeiten mit jeweils vergleichbarem Strahlprofil an.

Abbildung 4.22 zeigt die erreichten mittleren ( $\Delta n^{\text{mean}}$ ) und maximalen ( $\Delta n^{\max}$ ) Brechungsindexänderungen. Verschiedene Symbole für +z und -z bzw. x markieren die bestrahlte Kristallseite. Vergleicht man zunächst die vier Proben LTC-1 bis LTC-4 mit identischer Ionendosis ist festzustellen, dass die mit Alphateilchen erreichte Brechungsindexänderung ( $\Delta n^{\max} \approx (-0,8 \pm 0,1) \times 10^{-3}$ ) deutlich geringer ausfällt als bei Bestrahlung mit <sup>3</sup>He-Ionen ( $\Delta n^{\max} \approx (-2,6 \pm 0,2) \times 10^{-3}$ ). Von den mit einer höheren Dosis <sup>3</sup>He-Ionen bestrahlten Proben zeigt nur LTC-5 auch eine erhöhte Brechungsindexänderung, während LTC-6 ähnliche Werte erreicht wie die übrigen <sup>3</sup>He-Proben. LTC-11 und LTC-16 zeigen bei Bestrahlung mit <sup>4</sup>α und einer Dosis von  $3,4 \times 10^{15}$  Alphateilchen eine deutlich größere Brechungsindexänderung als bei Bestrahlung mit  $1,1 \times 10^{15}$  Alphateilchen. Jedoch liegt  $\Delta n^{\max}$  auf der Höhe der deutlich geringer bestrahlten <sup>3</sup>He-Proben,  $\Delta n^{\text{mean}}$  liegt leicht höher.

#### 4.5.4 Dosisabhängigkeit

Das in [Abschnitt 4.5.2](#) beschriebene komplexe Verhalten der Brechungsindexänderung, das insbesondere den außerordentlichen Brechungsindex betrifft, macht eine vollständige Untersuchung der Dosisabhängigkeit für  $\Delta n$  mit den vorhandenen Metriken  $\Delta n^{\max}$  und  $\Delta n^{\text{mean}}$  unmöglich. Im Folgenden wird das komplexe Verhalten zunächst außer Acht gelassen und nur die durch Bestrahlung mit Alphateilchen erreichte Absenkung von  $n_o$  bzw.  $n_e$  betrachtet.

In [Abbildung 4.23a](#) ist die maximale ( $\Delta n_o^{\max}$ ) bzw. mittlere ( $\Delta n_o^{\text{mean}}$ ) Absenkung des ordentlichen Brechungsindex gegen die Fluenz (Ionendosis normiert auf die bestrahlte Fläche) aufgetragen. Verschiedene Symbole kennzeichnen verschiedene Strahlzeiten mit jeweils vergleichbarem Strahlprofil. Mit steigender Fluenz nehmen beide Werte zu, der Anstieg von  $\Delta n_o^{\max}$  verläuft dabei steiler als von  $\Delta n_o^{\text{mean}}$ . Die Probe LTC-24 bei einer Fluenz von  $13,6 \times 10^{20}$  Ionen  $\text{m}^{-2}$  zeigt eine deutlich geringere Absenkung, als der sonstige Verlauf nahelegt. [Abbildung 4.23b](#) zeigt für den außerordentlichen Brechungsindex einen qualitativ ähnlichen Verlauf mit geringeren Zahlenwerten. Auch hier weicht der Wert von LTC-24 deutlich nach unten ab.

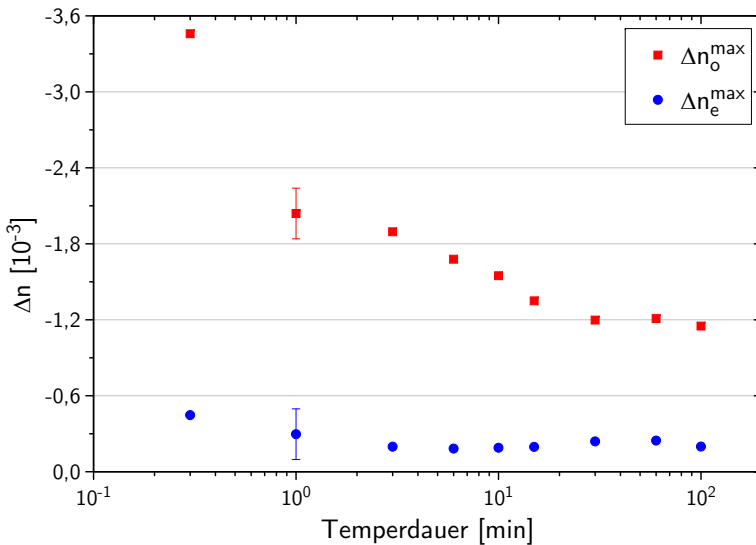


**Abb. 4.23:** Abhängigkeit der maximalen ( $\Delta n_{o,e}^{\max}$ ) bzw. mittleren ( $\Delta n_{o,e}^{\text{mean}}$ ) Absenkung beider Brechungsindices von der auf die bestrahlte Fläche normierten Ionendosis (Fluenz) in  $\text{LiTaO}_3$ . Verschiedene Symbole kennzeichnen verschiedene Strahlzeiten mit jeweils vergleichbarem Strahlprofil, es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten.

#### 4.5.5 Thermische Stabilität nach Bestrahlung mit $^3\text{He}$ -Ionen

Die mit einer Dosis von jeweils  $1,7 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten  $\text{LiTaO}_3$ -Proben LTC-9 und LTC-10 werden jeweils einer isothermen Erholung bei  $400^\circ\text{C}$  bzw.  $200^\circ\text{C}$  unterzogen (vgl. [Abschn. 3.7](#)). Die ebenso bestrahlte Probe LTC-8 erfährt eine isochrone Erholung in 15 min Schritten, Probe LTC-7 verbleibt unterdessen bei Raumtemperatur und wird in [Abschnitt 4.5.6](#) betrachtet. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird der konstante Fehler der Brechungsindexmessung nur beispielhaft dargestellt.

### Isotherme Erholung bei 400 °C



**Abb. 4.24:** Isotherme Erholung der mit einer Dosis von  $1,7 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten Probe LTC-9 bei 400 °C. Gezeigt ist die ordentliche ( $\Delta n_o^{\max}$ ) bzw. außerordentliche ( $\Delta n_e^{\max}$ ) maximale Brechungsindexänderung nach jedem Tempersschritt gegen die aufsummierte Temperaturdauer.

Abbildung 4.24 zeigt den Verlauf der maximalen Änderung des ordentlichen ( $\Delta n_o^{\max}$ ) bzw. außerordentlichen ( $\Delta n_e^{\max}$ ) Brechungsindex der Probe LTC-9 während isothermer Erholung bei 400 °C.

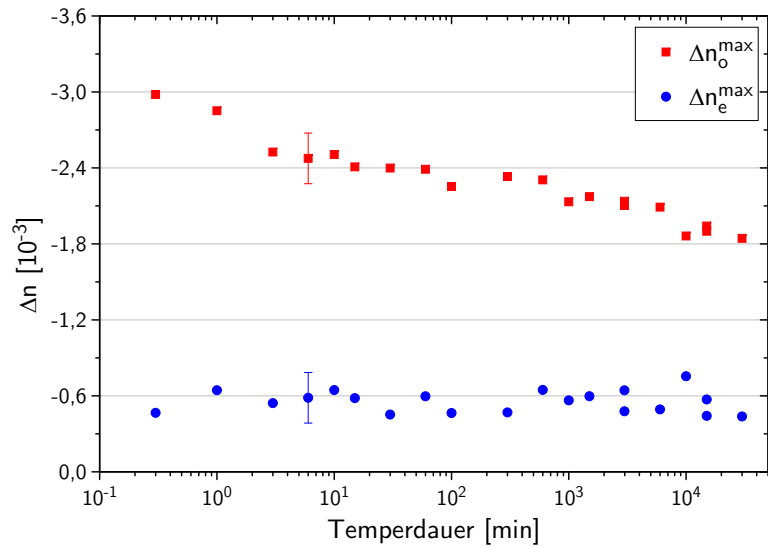
Die ordentliche und die außerordentliche Brechungsindexänderung sind beide negativ, wobei die ordentliche zu Beginn mehr als siebenfach stärker ausfällt. Durch die geringe außerordentliche Brechungsindexänderung ist diese im Rahmen des Fehlers schwer zu bewerten. Mit dem ersten Tempersschritt nehmen beide Änderungen bereits stark ab, die Maximalwerte  $\Delta n_{o,e}^{\max}$  fallen auf ca. 60 % ihrer Ausgangswerte. Die weiteren Tempersschritte sorgen bei  $\Delta n_o^{\max}$  für eine flachere, aber stetige Abnahme; bei  $\Delta n_e^{\max}$  kann der weitere Verlauf aufgrund der geringen Dynamik nicht bewertet werden. Ab Minute 15 scheint  $\Delta n_o^{\max}$  sich zunächst nicht weiter zu verändern, eine Messung über Minute 100 hinaus scheiterte leider an der Zerstörung der Probe durch thermische Spannungen. Zum Ende der isothermen Erholung bei 400 °C weist die Probe nur noch etwa 30 % ihres anfänglichen  $\Delta n_o^{\max}$  auf.

### Isotherme Erholung bei 200 °C

Abbildung 4.25 zeigt den Verlauf der maximalen Änderung des ordentlichen ( $\Delta n_o^{\max}$ ) bzw. außerordentlichen ( $\Delta n_e^{\max}$ ) Brechungsindex der Probe LTC-10 während isothermer Erholung bei 200 °C.

Auch hier fällt die ordentliche Brechungsindexänderung zu Beginn etwa sechs mal so stark aus, wie die außerordentliche. Im zeitlichen Verlauf nimmt  $\Delta n_o^{\max}$  stetig ab, ab Minute 15 scheint sich wie bei der Temperung mit 400 °C bei ca. 80 % des Ausgangswertes für kurze Zeit ein Plateau auszubilden. Erst nach 600 Minuten setzt sich der Abnahmetrend klar fort. Insgesamt ist der Verlauf deutlich flacher als bei 400 °C, nach 30 000 Minuten beträgt

**Abb. 4.25:** Isotherme Erholung der mit einer Dosis von  $1,7 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten Probe LTC-10 bei  $200^\circ\text{C}$ . Gezeigt ist die ordentliche ( $\Delta n_o^{\max}$ ) bzw. außerordentliche ( $\Delta n_e^{\max}$ ) maximale Brechungsindexänderung nach jedem Temperschnitt gegen die aufsummierte Temperdauer.



$\Delta n_o^{\max}$  immer noch etwa 60% des ursprünglichen Wertes. Für  $\Delta n_e^{\max}$  lässt sich schwierig eine eindeutige Aussage treffen, im Rahmen des Fehlers hat es jedoch den Anschein, dass die Änderung des außerordentlichen Brechungsindex  $\Delta n_e$  keine Reaktion auf thermische Behandlung mit  $200^\circ\text{C}$  zeigt.

#### Isochrone Erholung in 15 min Schritten

**Abb. 4.26:** Isochrone Erholung der mit einer Dosis von  $1,7 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten Probe LTC-8 in 15 min Schritten. Gezeigt ist die ordentliche ( $\Delta n_o^{\max}$ ) bzw. außerordentliche ( $\Delta n_e^{\max}$ ) maximale Brechungsindexänderung nach jedem Temperschnitt gegen die Temperatur.

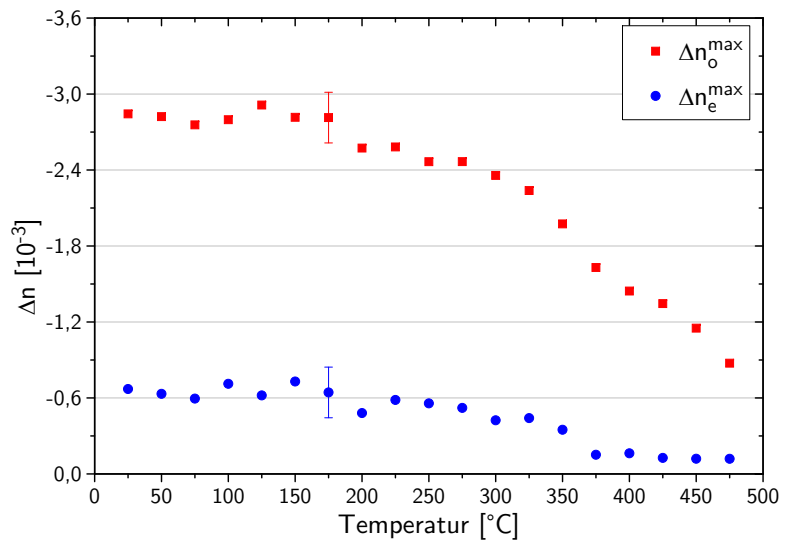


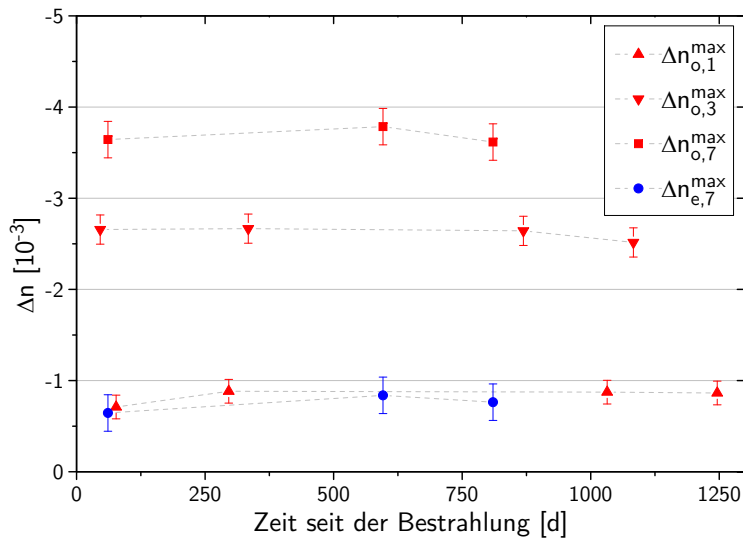
Abbildung 4.26 zeigt den Verlauf der maximalen Änderung des ordentlichen ( $\Delta n_o^{\max}$ ) bzw. außerordentlichen ( $\Delta n_e^{\max}$ ) Brechungsindex der Probe LTC-8 während isochroner Erholung in 15 min Schritten.

Wie bei den vorangegangenen Proben sind ordentliche und außerordentliche Brechungsindexänderung negativ, die ordentliche zu Beginn jedoch nur etwa viermal so groß wie ihr

außerordentliches Gegenstück. Zu Beginn der isochronen Erholung ist bei Temperaturen unter 200 °C im Rahmen des Fehlers zunächst keine Änderung zu erkennen. Oberhalb von 200 °C nimmt  $\Delta n_o^{\max}$  deutlich ab, bei etwa 300 °C beschleunigt sich dieser Trend, die Steigung der Abnahme erhöht sich hier deutlich. Bei Ende der isochronen Erholung durch Zerstörung der Probe oberhalb von 475 °C verbleiben nur noch 30 % des anfänglichen  $\Delta n_o^{\max}$ . Für die außerordentliche Brechungsindexänderung  $\Delta n_e$  sind detaillierte Aussagen aufgrund des geringen Zahlenwertes schwierig zu treffen. Eine Abnahme ist ab etwa 350 °C zu erahnen und  $\Delta n_e^{\max}$  liegt ab 425 °C innerhalb der Genauigkeit praktisch auf Null.

#### 4.5.6 Langzeitstabilität nach Bestrahlung mit $^3\text{He}$ -Ionen

Zur Untersuchung der Langzeitstabilität der Brechungsindexänderung in Lithiumtantalat werden drei verschiedene  $\text{LiTaO}_3$ -Proben wiederholt gemessen und ausgewertet. Die Probe LTC-1 wurde mit einer Dosis von  $1,1 \times 10^{15}$  Alphateilchen bestrahlt, die Proben LTC-3 und LTC-7 mit  $1,1 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen bzw.  $1,7 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen. Aufgrund der Kristallgeometrie ist nur bei LTC-7 der außerordentliche Brechungsindex zugänglich. Die Proben werden bei Raumtemperatur und wenig Tageslichteinfluss gelagert.



**Abb. 4.27:** Zeitliche Entwicklung der Brechungsindexänderung der Proben LTC-1, LTC-3 und LTC-7. Aufgetragen ist die außerordentliche ( $\Delta n_e^{\max}$ , nur bei LTC-7) und ordentliche ( $\Delta n_o^{\max}$ ) maximale Brechungsindexänderung gegen die seit der Bestrahlung verstrichene Zeit. Die Verbindungslinien dienen der Identifikation der Datenreihen.

Abbildung 4.27 zeigt den Verlauf der außerordentlichen ( $\Delta n_e^{\max}$ , nur bei LTC-7) und ordentlichen ( $\Delta n_o^{\max}$ ) maximalen Brechungsindexänderungen über der seit der Bestrahlung verstrichenen Zeit. Es ist über zwei (LTC-7), drei (LTC-3) bzw. dreieinhalb Jahre (LTC-1) nach der Bestrahlung im Rahmen der Messfehler keine Veränderung der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderungen in  $\text{LiTaO}_3$  zu beobachten.

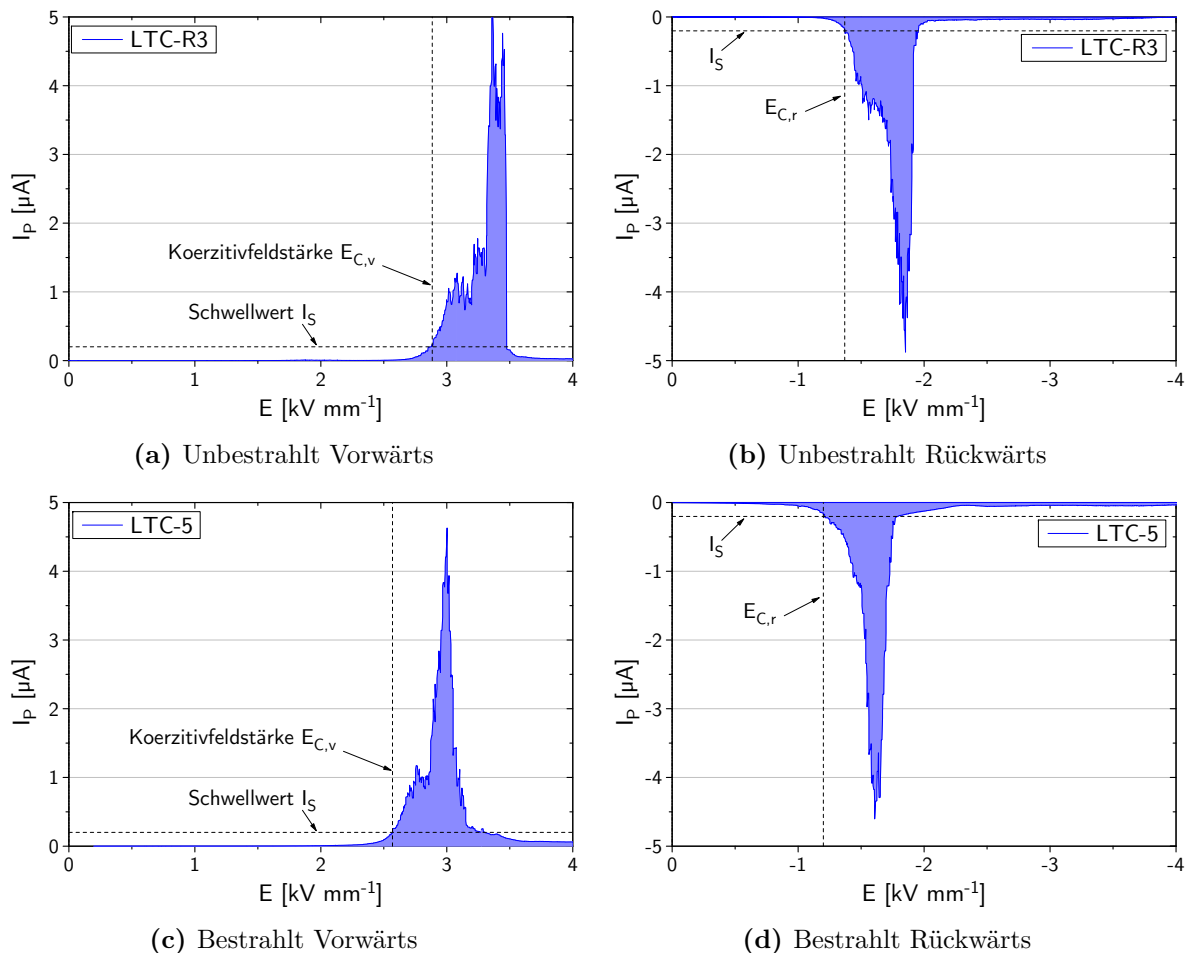


## 4.6 Änderungen der ferroelektrischen Eigenschaften in Lithiumtantalat

Es folgen Untersuchungen zum Einfluss der Ionenbestrahlung auf das Polungsverhalten und die Leitfähigkeit von Lithiumtantalat. Aufgrund der für die Messungen benötigten Kristallgeometrie (vgl. Abb. 3.14) handelt es sich ausschließlich um „z-cuts“.

### 4.6.1 Polungsverhalten

Zur Messung der Koerzitivfeldstärke werden Inversionen der Spontanpolarisierung in Lithiumtantalat mit Magnesiumdotierung durchgeführt (vgl. Abschn. 3.9.1). Abbildung 4.28 zeigt beispielhaft die Polungssignaturen für beide Richtungen in unbestrahltem und bestrahltem Material im Vergleich.



**Abb. 4.28:** Inversion der Spontanpolarisierung bei einer Rampengeschwindigkeit von  $5 \text{ V s}^{-1}$  in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung für (a)/(b) unbestrahltes LT, sowie (c)/(d) nach Bestrahlung mit einer Dosis von  $1,7 \times 10^{15} \text{ } ^3\text{He}$ -Ionen. Aufgetragen ist der Polungstrom  $I_P$  gegen die angelegte Feldstärke  $E$ .

Beim unbestrahlten Referenzkristall LTC-R3 liegt die abgelesene Koerzitivfeldstärke  $E_{C,v}$  in Vorwärtsrichtung (Abb. 4.28a) deutlich über der Koerzitivfeldstärke  $E_{C,r}$  in Rückwärtsrichtung (Abb. 4.28b). Die Form des Polungssignals ist jedoch ähnlich: In beiden Fällen ist der Peak nicht symmetrisch, sondern zeigt in der steigenden Flanke eine Ausbuchtung. Diese Eigenart zeigen jedoch nicht alle Proben.

Auch bei der mit einer Dosis von  $1,7 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten Probe LTC-5 (Abb. 4.28c/d) gilt  $E_{C,v} > E_{C,r}$ , jedoch sind beide Koerzitivfeldstärken jeweils kleiner, als im unbestrahlten Material. Die Form des Polungssignals hat sich gegenüber der unbestrahlten Probe aber kaum verändert, auch bei dieser Probe ist eine asymmetrische Peakform festzustellen.

Kristall	Projektile	Dosis [ $10^{15}$ Ionen]	Rampe [ $\text{V s}^{-1}$ ]	$E_{C,v}$ [ $\text{kV mm}^{-1}$ ]	$E_{C,r}$ [ $\text{kV mm}^{-1}$ ]
LTC-R3	-	-	5	$2,9 \pm 0,1$	$1,4 \pm 0,1$
LTC-R*	-	-	5	$2,7 \pm 0,1$	$1,3 \pm 0,1$
LTC-5	$^3\text{He}$	1,7	5	$2,6 \pm 0,1$	$1,3 \pm 0,1$
LTC-6	$^3\text{He}$	1,7	5	$2,7 \pm 0,1$	$1,2 \pm 0,1$
LTC-R3	-	-	2	$2,7 \pm 0,1$	$1,3 \pm 0,1$
LTC-R2*	-	-	2	$2,6 \pm 0,1$	$1,1 \pm 0,1$
LTC-29	$^4\alpha$	2,8	2	$2,4 \pm 0,1$	$1,1 \pm 0,1$
LTC-30	$^4\alpha$	0,56	2	$2,6 \pm 0,1$	$1,3 \pm 0,1$
LTC-R3	-	-	1	$2,7 \pm 0,1$	$1,2 \pm 0,1$
LTC-R*	-	-	1	$2,6 \pm 0,1$	$1,1 \pm 0,1$
LTC-5	$^3\text{He}$	1,7	1	$2,3 \pm 0,1$	$1,0 \pm 0,1$
LTC-6	$^3\text{He}$	1,7	1	$2,5 \pm 0,1$	$1,1 \pm 0,1$
LTC-11	$^4\alpha$	3,4	1	$2,3 \pm 0,1$	$1,0 \pm 0,1$

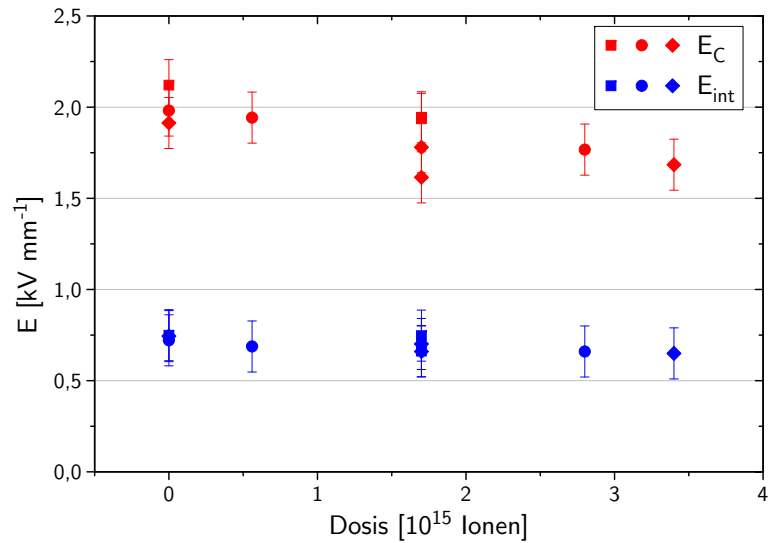
**Tab. 4.7:** Koerzitivfeldstärke in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung  $E_{C,v}$  bzw.  $E_{C,r}$  in unbestrahltem  $\text{LiTaO}_3:\text{Mg}$  und nach Bestrahlung mit verschiedenen hohen Ionendosen. Die Messungen erfolgten bei verschiedenen Spannungsrampen.

\*zuvor erfolgte Leitfähigkeitsmessung

In Tabelle 4.7 sind die bei den untersuchten Proben unter Nutzung verschiedener Spannungsrampen ermittelten Koerzitivfeldstärken in Vorwärts- und Rückwärtsrichtung  $E_{C,v}$  bzw.  $E_{C,r}$  aufgelistet. Zunächst ist ein Einfluss der verwendeten Spannungsrampe auf die Messung der Domäneninversion festzustellen: Bei flacherer Spannungsrampe wird eine geringere Koerzitivfeldstärke bestimmt. Des Weiteren führt eine zuvor vorgenommene Leitfähigkeitsmessung (markiert mit \*) ebenfalls zu einer leicht reduzierten Koerzitivfeldstärke gegenüber Proben ohne diese.

Bei Betrachtung der bestrahlten Proben zeigt sich gegenüber den unbestrahlten Referenzen jeweils eine Reduktion beider Koerzitivfeldstärken um etwa (5 – 15) %.

Wie in Abschnitt 2.1.4 beschrieben, lässt sich aus  $E_{C,v}$  und  $E_{C,r}$  die intrinsische Koerzitivfeldstärke  $E_C$  und das interne elektrische Feld  $E_{\text{int}}$  definieren. Abbildung 4.29 zeigt



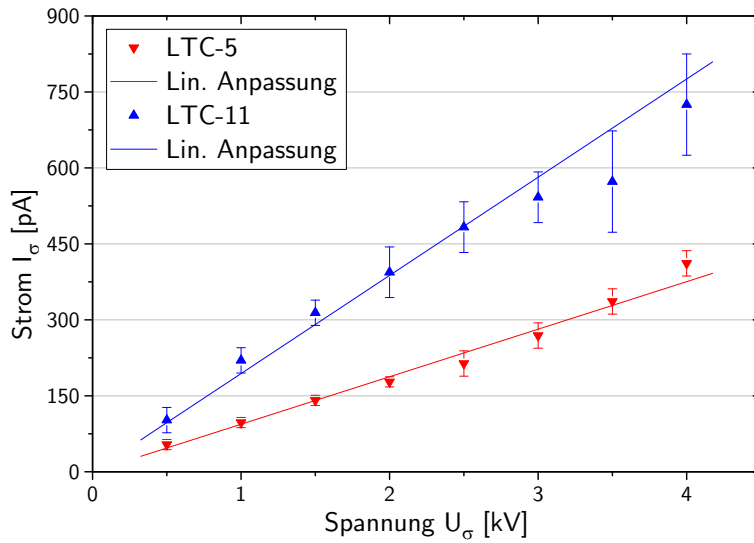
**Abb. 4.29:** Koerzitivfeldstärke  $E_C$  und internes elektrisches Feld  $E_{\text{int}}$  in unbestrahltem  $\text{LiTaO}_3:\text{Mg}$  und nach Bestrahlung mit verschiedenen hohen Ionendosen. Die Messungen erfolgten bei Spannungsrampen von  $5 \text{ V s}^{-1}$  (Rechteck),  $2 \text{ V s}^{-1}$  (Kreis) und  $1 \text{ V s}^{-1}$  (Raute).

die errechneten Werte für  $E_C$  und  $E_{\text{int}}$  aufgetragen gegen die Bestrahlungsdosis. Während sich  $E_{\text{int}}$  im Rahmen des Fehlers nicht verändert, zeigt  $E_C$  zwar eine Tendenz zu geringeren Koerzitivfeldstärken bei höheren Ionendosen, die jedoch ebenfalls noch innerhalb der Fehlergrenzen liegt. Wegen der relativ großen Unsicherheit und der Unterschiede in der Dynamik, bedingt durch verschiedene Spannungsrampen (dargestellt durch die verschiedenen Symbole), lässt sich diese Aussage nur mit Vorsicht treffen.

## 4.6.2 Leitfähigkeit

Für die mit  $1,7 \times 10^{15}$   $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlte  $\text{LiTaO}_3$ -Probe LTC-5 wird bei normaler Raumbeleuchtung 54 Tage nach der Bestrahlung die Leitfähigkeit bestimmt (vgl. [Abschn. 3.9.2](#)). Eine analoge Messung wird auch für die mit  $3,4 \times 10^{15}$  Alphateilchen bestrahlte  $\text{LiTaO}_3$ -Probe LTC-11 durchgeführt, hier sind seit der Bestrahlung 27 Tage vergangen.

In [Abbildung 4.30](#) ist zu erkennen, dass der gemessene Strom  $I_\sigma$  in Abhängigkeit von der angelegten Spannung  $U_\sigma$  bei beiden Proben einem steigenden linearen Verlauf folgt, die elektrische Leitfähigkeit also ein OHMSCHES Verhalten aufweist. Die Steigungen können aufgrund unterschiedlicher Kristalldicke und verschieden großen bestrahlten Bereichen nicht direkt miteinander verglichen werden.



**Abb. 4.30:** Leitfähigkeit der beiden mit verschiedenen Projektilen und verschiedener Ionendosis bestrahlten Proben LTC-5 und LTC-11. Aufgetragen ist der gemessene Strom  $I_\sigma$  gegen die angelegte Spannung  $U_\sigma$ .

Aus den linearen Anpassungen in [Abbildung 4.30](#) kann mit [Gleichung 3.21](#) die Leitfähigkeit  $\sigma_b$  des bestrahlten Bereichs berechnet werden. Hierzu werden die in [Tabelle 4.8](#) aufgeführten Werte für Kristalldicke  $d$  und bestrahlte Fläche  $A_b$  verwendet. Die zur Korrektur benötigte Leitfähigkeit von unbestrahltem  $\text{LiTaO}_3$  mit einer Magnesiumdotierung von 7 mol% wird mit dem beschriebenen Verfahren aus [Abbildung 3.16a](#) bestimmt und liegt bei  $\sigma_u = (0,174 \pm 0,007) \text{ pA V}^{-1} \text{ m}^{-1}$ .

Kristall	Projektil	Dosis [ $10^{15}$ Ionen]	$d$ [ $\mu\text{m}$ ]	$A_b$ [ $\text{mm}^2$ ]	$\sigma_b$ [ $\text{pA V}^{-1} \text{ m}^{-1}$ ]
LTC-5	$^3\text{He}$	1,7	400	$6,0 \pm 0,5$	$5,0 \pm 0,6$
LTC-11	$^4\alpha$	3,4	500	$12,0 \pm 0,5$	$7,5 \pm 0,4$

**Tab. 4.8:** Übersicht über die beiden mit verschiedenen Projektilen und Ionendosen bestrahlten Proben LTC-5 und LTC-11. Die Leitfähigkeit  $\sigma_b$  des bestrahlten Bereichs errechnet sich unter Nutzung der Kristalldicke  $d$  und der bestrahlten Fläche  $A_b$  aus der linearen Anpassung in [Abb. 4.30](#).

In [Tabelle 4.8](#) zeigt sich für beide Kristalle eine gegenüber dem unbestrahlten Material stark erhöhte Leitfähigkeit im bestrahlten Bereich, die Probe LTC-11 weist dabei eine um 50 % größere Leitfähigkeit auf, als die Probe LTC-5. Bezogen auf die bestrahlte Fläche ist die verwendete relative Ionendosis (Fluenz) bei beiden Kristallen identisch.

# 5 Diskussion

In diesem Kapitel werden die in [Kapitel 4](#) vorgestellten Resultate detailliert diskutiert. Die Abhandlung der Effekte führt schließlich zur Vorstellung eines erweiterten Modells zur Beschreibung der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderung in Lithiumniobat und Lithiumtantalat.

## 5.1 Verfärbung und Verformung

Die nach einer Bestrahlung von Lithiumniobat mit schnellen leichten Ionen zu beobachtende bräunliche Verfärbung hat ihre Ursache in elektronischen Farbzentren, die durch bestrahlungsinduzierte COULOMB-Wechselwirkung erzeugt werden [[Jen10](#)]. Dies gilt ebenso für das in dieser Arbeit bestrahlte Lithiumtantalat. Da Farbzentren als elektronische Defekte mit relativ kleinen Aktivierungsenergien sogar durch Beleuchtung ausgeheilt werden können, verschwinden die Verfärbungen bei Raumtemperatur nach einiger Zeit. Die scheinbar größere Intensität und Langlebigkeit der Verfärbungen in  $\text{LiTaO}_3$ -Kristallen wurde nicht quantitativ untersucht, sodass daraus keine belastbare Schlussfolgerung gezogen werden kann.

Die Verformung und die Dickenänderung des Kristalls lässt sich auf eine Volumenzunahme des bestrahlten Bereichs zurückführen [[And05](#)], die ihre Ursache in der Erzeugung von Leerstellen durch die Bestrahlung hat. Die Durchbiegung legt dabei nahe, dass die Volumenänderung nicht nur entlang der Strahlrichtung erfolgt, sondern sich der bestrahlte Bereich auch senkrecht dazu, also seitlich, ausdehnt. Diese Ausdehnung führt dann zu Spannungen innerhalb des Kristalls.

Stärker bestrahlte Proben erfahren auch eine größere Dicken bzw. Volumenzunahme. Aus diesem Grund wurden für die in dieser Arbeit im Vergleich zu  $\text{LiNbO}_3$ -Proben mit größeren Ionendosen bestrahlten  $\text{LiTaO}_3$ -Proben auch größere Dickenänderungen beobachtet.

## 5.2 Gammaspektroskopie

Die Bestrahlung von Lithiumniobat und Lithiumtantalat mit schnellen leichten Ionen erzeugt durch inelastische Kernreaktionen radioaktive Isotope im Targetmaterial. Für eine technologische Anwendung ist neben der Aktivität auch die Halbwertszeit der produzierten Radionuklide interessant; kurze Halbwertszeiten erfordern nur eine kurze Lagerung, bis ein gefahrloser Umgang mit den Proben möglich ist.

### 5.2.1 Erzeugte Isotope

Alle in Lithiumniobat erzeugten Isotope (siehe Tab. 4.1) haben eine Halbwertszeit von höchstens zwei Monaten, sodass sie aus technischer Sicht als kurzlebig gelten. Ein ähnliches Bild liefert die Bestrahlung von Lithiumtantalat mit  $^3\text{He}$ -Ionen und Alphateilchen (siehe Tab. 4.2 und Tab. 4.3). Hier zeigt sich bei Wahl des ersteren Projektils jedoch die Entstehung von  $^{182}\text{Ta}$ , welches mit  $T_{1/2} = 114,4\text{ d}$  zwar relativ langlebig ist, allerdings absolut betrachtet eine relativ geringe Aktivierung aufweist.

Mit Ausnahme von  $^7\text{Be}$  stammen alle entstehenden Isotope aus Reaktionen mit Niob bzw. Tantal.  $^7\text{Be}$  entsteht im Falle von Protonen über  $^7\text{Li}(p,n)^7\text{Be}$  [LBa91] bzw. bei Deuteronen über  $^7\text{Li}(d,2n)^7\text{Be}$  [LBf95] aus dem Lithium. Für  $^3\text{He}$  lautet die wahrscheinlichste Reaktion  $^7\text{Li}(^3\text{He},^3\text{H})^7\text{Be}$  [Pyl78, LBf95]; es entsteht also zusätzlich Tritium im Inneren der Probe. Ebenfalls möglich wäre  $^6\text{Li}(^3\text{He},d)^7\text{Be}$  [LBf95], durch den sehr geringen Anteil an  $^6\text{Li}$  ist dies aber unwahrscheinlich. Bei einer Bestrahlung mit Alphateilchen entsteht kein  $^7\text{Be}$ .

Das Isotop  $^{92m}\text{Nb}$  entsteht wahrscheinlich nach inelastischer Streuung des jeweiligen Projektils über zusätzliche Abgabe eines weiteren Neutrons, also z. B. über  $^{93}\text{Nb}(^3\text{He},\alpha)^{92m}\text{Nb}$  oder  $^{93}\text{Nb}(\alpha,\alpha n)^{92m}\text{Nb}$  [Ern82]. Auch Protonen könnten auf diese Weise  $^{92m}\text{Nb}$  erzeugen, die in dieser Arbeit verwendete Strahlenergie ist dafür jedoch zu niedrig [LBa91].

Die im Gammaspektrum von  $^3\text{He}$ -bestrahltem Lithiumniobat beobachteten Isotope  $^{87}\text{Y}$  und  $^{89}\text{Zr}$  entstehen durch Abgabe von Alphateilchen, Deuteronen und Neutronen aus dem angeregten Mutterkern  $^{96}\text{Tc}^*$ . Wahrscheinlich ist  $^{89}\text{Zr}$  auch der gesuchte Positronenemitter, da die gemessenen Annihilationsereignisse etwa mit derselben Halbwertszeit abnehmen. Vermutlich entstehen auch eine Reihe weiterer Isotope dieser Elemente, können hier aber aufgrund der kurzen Halbwertszeiten nicht nachgewiesen werden. Bei Bestrahlung mit Alphateilchen würden diese Isotope erst ab einer Strahlenergie von etwa 100 MeV erzeugt [Ern82, LBh96].

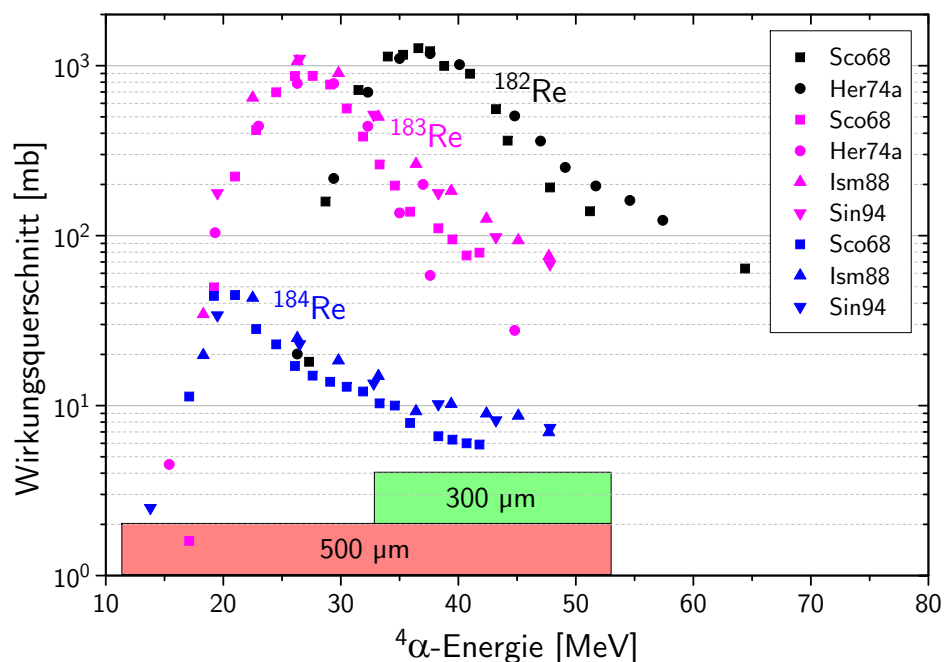
Das im  $\text{LiTaO}_3$  nach  $^3\text{He}$ -Bestrahlung nachgewiesene  $^{182}\text{Ta}$  kann auf direktem Wege nicht erzeugt werden, es entsteht wahrscheinlich durch Neutroneneinfang aus dem stabilen Tantal über die Reaktion  $^{181}\text{Ta}(n,\gamma)^{182}\text{Ta}$  [Mur55]. Die dafür notwendigen langsamen Neutronen stammen womöglich aus dem Tritium der  $^7\text{Be}$ -Reaktion. Tritium streift aus Energiegründen bei der Propagation durch das Kristallgitter nacheinander seine Neutronen ab. Dass  $^{182}\text{Ta}$  bei Bestrahlung mit Alphateilchen nicht nachgewiesen werden kann, stützt diese These, da dort kein  $^7\text{Be}$  und damit auch kein Tritium entsteht. Die Gammalinien von  $^{182}\text{Ta}$  und dem bei  $^4\alpha$ -Bestrahlung entstehenden  $^{182}\text{Re}$  überlagern sich jedoch, sodass die Entstehung von  $^{182}\text{Ta}$  nicht völlig ausgeschlossen werden kann, aufgrund der fehlenden langlebigen Komponente in den gemessenen Halbwertszeiten aber unwahrscheinlich ist.

Bei Bestrahlung mit Alphateilchen entstehen in Lithiumniobat Technetium-Isotope über die Reaktion  $^{93}\text{Nb}(\alpha,xn)^{(97-x)}\text{Tc}$  mit  $x = 1, 2, 3, \dots$  [Bra79, Ern82, LBh96]. Durch die erst nach einigen Tagen mögliche Messung können die leichteren Isotope jenseits von  $^{95}\text{Tc}$  mit Halbwertszeiten weit unter 20 h nicht mehr nachgewiesen werden. Analog hierzu finden sich bei Bestrahlung von Lithiumtantalat mit Alphateilchen entsprechende Isotope des Rheniums aus  $^{181}\text{Ta}(\alpha,xn)^{(185-x)}\text{Re}$  mit  $x = 1, 2, 3, \dots$  [Her74a, LBh96]. Auch hier

sind die Isotope leichter als  $^{181}\text{Re}$  zu kurzlebig, um sie nachweisen zu können. Isotope des Technetiums bzw. Rheniums entstehen auch bei Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen [Bis80, Sco68, Her74b], jedoch sind die Wirkungsquerschnitte für die Entstehung der langlebigen Isotope bei den in dieser Arbeit verwendeten Strahlenergien zu gering [LBf95] und die kurzlebigen Isotope sind wiederum nicht mehr nachzuweisen.

### 5.2.2 Dosisabhängigkeit der erzeugten Aktivität

Für die Bestrahlung von Lithiumtantalat mit Alphateilchen wird jeweils eine lineare Abhängigkeit der Anfangsaktivität  $A_0$  und damit auch der produzierten Anzahl  $N_0$  der Isotope  $^{182}\text{Re}$ ,  $^{183}\text{Re}$  und  $^{184}\text{Re}$  von der eingesetzten Ionendosis ermittelt (vgl. Abb. 4.7). Die für die Erzeugung der drei Isotope unterschiedlichen Effizienzen  $\eta$  (vgl. Tab. 4.5) sind durch die relativen Höhen der jeweiligen maximalen Wirkungsquerschnitte zu erklären. Die energieabhängigen Wirkungsquerschnitte für die Produktion von  $^{182}\text{Re}$ ,  $^{183}\text{Re}$  und  $^{184}\text{Re}$  bei Beschuss von  $^{181}\text{Ta}$  mit Alphateilchen sind in Abbildung 5.1 dargestellt. Während die Verhältnisse der Effizienzen in den dickeren Proben zu den Höhen der Wirkungsquerschnitte passen, hängt  $\eta$  für  $^{183}\text{Re}$  und  $^{184}\text{Re}$  anscheinend auch von der Kristalldicke ab. Wie in Tabelle 4.5 am Verhältnis  $\Gamma_{500/300}$  zu sehen ist, fallen  $\eta^{183}$  und  $\eta^{184}$  in den dünneren Proben deutlich geringer aus.



**Abb. 5.1:** Wirkungsquerschnitte für die Produktion der Isotope  $^{182}\text{Re}$ ,  $^{183}\text{Re}$  und  $^{184}\text{Re}$  aus  $^{181}\text{Ta}$  aufgetragen gegen die Energie der Alphateilchen (nach [LBh96], Daten aus [Sco68, Her74a, Ism88, Sin94]). Ein grüner bzw. roter Balken markiert den mit SRIM-2008 [Zie08] simulierten Energiebereich der in der Probe anzutreffenden Alphateilchen bei Bestrahlung von 300  $\mu\text{m}$  bzw. 500  $\mu\text{m}$  dicken  $\text{LiTaO}_3$ -Proben mit einer ursprünglichen Energie von 53 MeV.

Dies liegt an der Energieabhängigkeit der Wirkungsquerschnitte und dem Energiebereich der Projektile innerhalb der Proben: Die verschieden dicken Kristalle wurden mit derselben Ionenenergie von etwas über 53 MeV bestrahlt und die Projektile verlieren bei der Durchdringung des Kristalls zunehmend Energie, sodass sie den Kristall mit einer niedrigeren Restenergie wieder verlassen. Laut den Simulationen des Energieverlustes mit SRIM-2008 [Zie08] liegt diese Austrittsenergie für die dünneren Proben bei immer noch etwa 33 MeV, aus den dickeren Proben treten die Alphateilchen mit nur noch etwa 11 MeV aus. Der Energiebereich der demnach im Kristall anzutreffenden Alphateilchen ist in [Abbildung 5.1](#) durch die farbigen Balken dargestellt. Die niedrigeren Energien der Maxima für  $^{183}\text{Re}$  und  $^{184}\text{Re}$  werden in den dünnen Proben deshalb gar nicht erreicht, sodass diese Isotope auch nur wenig erzeugt werden. Die Energie in den dicken Proben deckt hingegen fast den gesamten Bereich aller drei Isotope ab. Das im Vergleich zu  $^{184}\text{Re}$  deutlich stärkere Maximum für  $^{183}\text{Re}$  sorgt dann für die im Verhältnis nochmals stärkere Produktion des Letzteren. Da das Maximum für die Produktion von  $^{182}\text{Re}$  auch bei den dünneren Proben fast vollständig erfasst wird, zeigt sich hier keine Abhängigkeit von der Probendicke (vgl. [Abb. 4.7a](#)).

Da  $^{183}\text{Re}$  mit  $T_{1/2} = 70,0\text{ d}$  eine vergleichsweise lange Halbwertszeit besitzt, sollte durch Optimierung bei der Wahl der Energie bzw. Probendicke darauf geachtet werden, das Maximum für die Produktion von  $^{183}\text{Re}$  bestmöglich zu meiden.

## 5.3 Wahl des Projektils

Um das für die Bestrahlungen am besten geeignete Projektil auswählen zu können, muss die unerwünschte nukleare Aktivierung gegen die erzeugten Brechungsindexänderungen abgewägt werden. Anschließend fließen noch weitere Faktoren mit in die Bewertung ein.

### 5.3.1 Totale Aktivierung

Die nuklearen Aktivierungen der beiden Targetmaterialien Lithiumniobat und Lithiumtantalat (vgl. [Abb. 4.6](#)) zeigen bei Bestrahlung mit Alphateilchen eine vergleichbare Größe. Etwa eine Größenordnung darunter liegt die Aktivierung durch  $^3\text{He}$ -Ionen, die für kurze Zeiträume nach der Bestrahlung bei  $\text{LiNbO}_3$  noch etwas geringer ausfällt als für  $\text{LiTaO}_3$ . Eine weitere Größenordnung niedriger findet sich die Aktivierung von  $\text{LiNbO}_3$  nach Bestrahlung mit Deuteronen oder Protonen (vgl. [Abb. 4.4](#)). Wenn eine möglichst geringe nukleare Aktivierung gewünscht ist, sind demnach leichtere Projektile zu bevorzugen.

In allen Fällen nimmt die totale Aktivierung schnell genug ab, sodass ein gefahrloser Umgang mit den bestrahlten Kristallen nach einer Lagerfrist von einigen Tagen bis wenigen Wochen möglich ist.

Bei Bestrahlung von Lithiumtantalat mit Alphateilchen wird im zeitlichen Verlauf der Aktivierung der zu Beginn recht schnell abnehmende Anteil des kurzlebigen  $^{182}\text{Re}$  ( $T_{1/2} = 64,0\text{ h}$ ) deutlich. Der flachere Verlauf jenseits von 30 d wird vom langlebigeren  $^{183}\text{Re}$  ( $T_{1/2} =$



70,0 d) dominiert. Ein ähnliches Verhalten zeigen auch die mit Alphateilchen und  ${}^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ -Proben. Auch hier teilen sich die nachweisbaren Isotope in einen kurzlebigeren ( $T_{1/2} < 5$  d) und einen langlebigeren ( $T_{1/2} > 53$  d) Anteil.

Die für Zeiten größer 30 d leicht unterschiedliche Aktivierung der verschieden dicken, mit Alphateilchen bestrahlten  $\text{LiTaO}_3$ -Proben hat ihre Ursache, wie in [Abschnitt 5.2.2](#) erläutert, in den energieabhängigen Wirkungsquerschnitten der Isotopenproduktion.

### 5.3.2 Erzeugte Brechungsindexänderungen

Die durch Bestrahlung in Lithiumniobat erzeugten Brechungsindexänderungen (vgl. [Abb. 4.9](#)) zeigen größere Effekte, je schwerer das gewählte Projektil ist. Abweichungen der Werte für  $\Delta n_o^{\text{max}}$  zwischen den Proben bei Bestrahlung mit demselben Projektil sind durch Variation in der Strahlform zu erklären. Eine Abhängigkeit von der Bestrahlungsrichtung, also entlang oder entgegen der  $\vec{c}$ -Achse, wie JENTJENS et al. sie mit gezielten und sehr präzisen Messungen nachweisen konnten [[Jen11](#)], kann innerhalb der Fehler hier weder festgestellt noch ausgeschlossen werden.

Bei Bestrahlung von Lithiumtantalat mit  ${}^3\text{He}$ -Ionen und Alphateilchen (vgl. [Abb. 4.22](#)) zeigt sich kein so deutliches Bild. Die Werte legen nahe, dass die mit  ${}^3\text{He}$  erreichten Effekte bei gleicher Dosis größer als bei  ${}^4\alpha$  sind bzw. bei geringerer Dosis vergleichbare Effekte erreicht werden können. Bei der Bewertung der präsentierten Ergebnisse ist jedoch die Strahlform zu beachten: Alle mit  ${}^4\alpha$  bestrahlten Proben zeigten bei der Auswertung einen eher großen, flachen Strahlfleck, während die  ${}^3\text{He}$ -Proben mit einem relativ stark fokussierten Strahl bestrahlt wurden. Die größeren Brechungsindexänderungen im Falle der Nutzung von  ${}^3\text{He}$ -Ionen, könnten also auch damit erklärt werden. Zu einer abschließenden Bewertung des Sachverhaltes bedarf es weiterer präziserer Messungen.

Auch beim Vergleich der erreichten Effekte zwischen  $\text{LiNbO}_3$  und  $\text{LiTaO}_3$  lässt sich lediglich eine vergleichbare Größe der ordentlichen Brechungsindexänderung für beide Targetmaterialien bei Nutzung ähnlicher Ionendosen bestätigen.

### 5.3.3 Brechungsindexänderung gegen nukleare Aktivierung

Während [Abbildung 4.4](#) die nukleare Aktivierung und [Abbildung 4.9](#) die erreichte Brechungsindexänderung bei Bestrahlung von Lithiumniobat mit derselben Ionendosis verschiedener Projektile darstellen, zeigt [Abbildung 4.10b](#) die erreichte Brechungsindexänderung für Bestrahlung mit Deuteronen und Alphateilchen, wenn eine zur Bestrahlung mit  ${}^3\text{He}$ -Ionen vergleichbare Aktivierung gewünscht ist. Unter der Prämisse einer geringen nuklearen Aktivierung eignen sich Alphateilchen schlecht um ionenstrahlinduzierte Brechungsindexänderungen in  $\text{LiNbO}_3$  zu erzeugen. Hingegen erzeugt die Bestrahlung mit Deuteronen deutlich mehr Brechungsindexänderung pro Aktivierung, sogar im Vergleich zur Bestrahlung mit  ${}^3\text{He}$ -Ionen.

Ein ebenfalls zu berücksichtigender Aspekt ist jedoch die benötigte Ionendosis, die sich auf die Dauer der Bestrahlung auswirkt: Bei Verwendung von Deuteronen sind hohe Ionendosen nötig, um die dargestellten Werte für die Brechungsindexänderung zu erreichen (vgl. auch [Abb. 4.10a](#)). Dies verlängert die Bestrahlungsdauer, da der Ionenstrom nicht beliebig gesteigert werden kann. Er ist einerseits durch die technischen Möglichkeiten von Ionenquelle und Zyklotron limitiert, auf der anderen Seite durch die nötige Abführung der erzeugten Wärme innerhalb der Probe. Für lange andauernde Bestrahlungen fallen zudem die Schwankungen der Parameter wie Strahlform, -position oder -stromstärke zunehmend stärker ins Gewicht, sodass die Reproduzierbarkeit der Ergebnisse leidet.

### 5.3.4 Abschließende Bewertung

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass durch die Wahl des Projektils zur Erzeugung ionenstrahlinduzierter Brechungsindexänderungen in Lithiumniobat und Lithiumtantalat je nach Anwendung der Fokus auf verschiedene Ziele gelegt werden kann.

Durch Bestrahlung mit Alphateilchen lassen sich mit relativ geringen Ionendosen und kurzen Bestrahlungsdauern hohe Brechungsindexänderungen erzeugen. Die ebenfalls hohe nukleare Aktivierung behindert aber eine schnelle Handhabung der bestrahlten Proben.

Deuteronen erreichen größere Brechungsindexänderungen nur mit einer relativ hohen Ionendosis und damit längeren Bestrahlungsdauer, dafür fällt die nukleare Aktivierung gering aus.

$^3\text{He}$ -Ionen sind ein guter Kompromiss: Mit relativ geringen Ionendosen und einer mäßigen nuklearen Aktivierung sind vergleichsweise hohe Brechungsindexänderungen erreichbar. Gegen eine Verwendung von  $^3\text{He}$  als Projektil sprechen die in den vergangenen Jahren durch Verknappung enorm angestiegenen Beschaffungskosten. Je nach Einsatzzweck sind sowohl Alphateilchen als auch Deuteronen geeignete Alternativen.

Die Bestrahlung mit Protonen erreicht gegenüber Deuteronen geringfügig niedrigere Brechungsindexänderungen bei einer ähnlichen nuklearen Aktivierung und erscheint daher weniger sinnvoll.

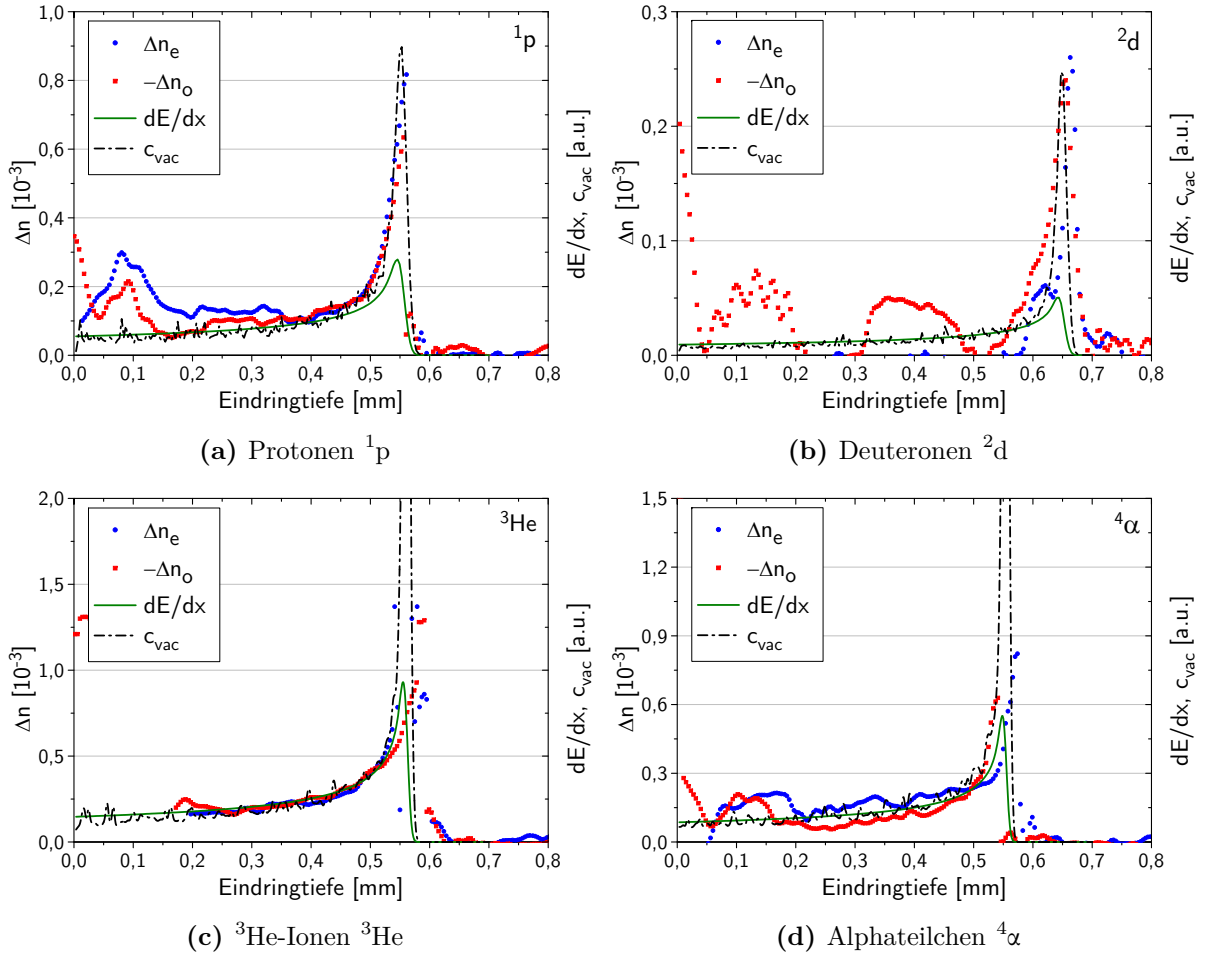
## 5.4 Eindringtiefe der Projektile und tiefenabhängige Brechungsindexänderung

ZAMANI-MEYMIAN führte ebenfalls tiefenabhängige Messungen der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderung für  $^3\text{He}$ -Ionen durch [[ZM07](#)]; die vorliegende Arbeit behandelt zusätzlich auch die Bestrahlung mit Protonen, Deuteronen und Alphateilchen.

Die mit SRIM-2008 [[Zie08](#)] errechneten Reichweiten der Projektile  $^1\text{p}$ ,  $^2\text{d}$ ,  $^3\text{He}$  und  $^4\alpha$  in Lithiumniobat stimmen sehr gut mit den experimentell ermittelten Eindringtiefen überein, wie [Tabelle 4.6](#) zeigt. Leichte Abweichungen können durch Unsicherheiten in der

Bestimmung der tatsächlichen Stopptiefe oder die während der Simulation gemachten Näherungen begründet werden.

Für die Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen zeigten PEITHMANN et al. eine Korrelation von Leerstellendichte  $c_{\text{vac}}$  und bestrahlungsinduzierter Brechungsindexänderung in Lithiumniobat [Pei06a]. Um diese These auch für die weiteren verwendeten Projektile zu überprüfen, werden die lateralen Verläufe der Brechungsindexänderungen (vgl. Abb. 4.8a-d) nun mit den von SRIM-2008 [Zie08] simulierten Verläufen des Energieverlustes  $\frac{dE}{dx}$  und der Leerstellendichte  $c_{\text{vac}}$  (vgl. Abb. A.1a, A.1c, A.2a und A.2e) verglichen. In Abbildung 5.2 wird dazu die Änderung des außerordentlichen Brechungsindex gemeinsam mit der invertierten Änderung des ordentlichen aufgetragen. Anschließend werden die simulierten  $\frac{dE}{dx}$ - bzw.  $c_{\text{vac}}$ -Kurven durch lineare Skalierung in der Höhe bestmöglich an den Verlauf des Brechungsindexes angepasst, insbesondere für Eindringtiefen vor der Stopptiefe.



**Abb. 5.2:** Vergleich zwischen dem lateralen Verlauf der außerordentlichen ( $\Delta n_e$ , blau) sowie der invertierten ordentlichen ( $\Delta n_o$ , rot) Brechungsindexänderung und dem mit SRIM-2008 [Zie08] simulierten Energieverlust ( $\frac{dE}{dx}$ , grün) sowie der Leerstellenkonzentration ( $c_{\text{vac}}$ , schwarz).

Für die mit Protonen und Deuteronen bestrahlten Kristalle passt der simulierte Verlauf der gebildeten Leerstellen  $c_{\text{vac}}$  sehr gut zum Verlauf der Brechungsindexänderung, insbe-

sondere im Bereich des BRAGG-Peaks. Die  $\frac{dE}{dx}$ -Funktion ist im Bereich der Stopptiefe viel zu niedrig.

Im Falle des mit  $^3\text{He}$  bestrahlten Kristalls liegt es ebenfalls näher, den Verlauf mit  $c_{\text{vac}}$  und nicht mit  $\frac{dE}{dx}$  zu erklären, weil der Informationsverlust durch Phasensprünge im Bereich des BRAGG-Peaks dort zu niedrigeren gemessenen Werten für die Brechungsindexänderung führt. Die Ergebnisse von PEITHMANN et al. [Pei06a] werden weder klar bestätigt noch widerlegt.

Ein ähnliches Bild zeigt sich bei der Bestrahlung mit Alphateilchen: Auch hier lässt sich aufgrund des Informationsverlustes darauf schließen, dass der Verlauf der Brechungsindexänderung durch die Kurve der Leerstellendichte  $c_{\text{vac}}$  am ehesten repräsentiert wird.

CHANDLER et al. fanden bei der Bestrahlung von  $\text{LiNbO}_3$  mit 2 MeV Helium-Ionen im durchstrahlten Bereich, wie hier beobachtet, eine Abnahme des  $n_o$  und eine Zunahme des  $n_e$  um betragsmäßig etwa denselben Wert. Auf Höhe der Stopptiefe (im dortigen Falle etwa  $4\ \mu\text{m}$ ) nehmen jedoch beide Brechungsindices stark ab, was auf die Amorphisierung dieser Schicht zurückgeführt wird ( $\Delta n_{o,e}^{\text{amorph}} < \Delta n_{o,e}^{\text{bulk}}$ ) [Cha86].

Im Gegensatz dazu zeigen [Abbildungen 4.8a-d](#) im Vorzeichen verschiedene, aber ansonsten gleichförmige Verläufe der beiden Brechungsindexänderungen, insbesondere eine klare Zunahme des außerordentlichen Brechungsindex beim Erreichen der Stopptiefe. Die Schwelle zur flächigen Amorphisierung wird im Falle hochenergetischer Ionen durch eine größere laterale Ausdehnung des BRAGG-Peaks nicht erreicht, sodass der Verlauf der Brechungsindexänderungen auch hier der Leerstellendichte  $c_{\text{vac}}$  folgt.

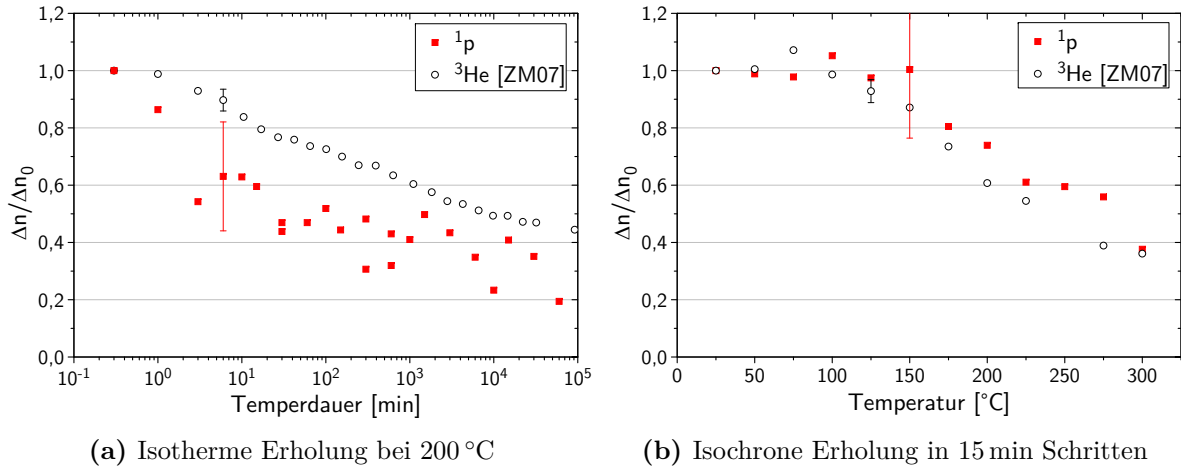
Dies bestärkt die Annahme, dass es sich bei den Ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderungen durch Bestrahlung mit schnellen leichten Ionen um einen Prozess handelt, in dem Verlagerungsprozesse von Atomen, wie z. B. die Bildung von Leerstellen, Fehlstellenclustern oder „latent tracks“ (vgl. [Abschn. 2.3.3](#)), eine zentrale Rolle spielen.

## 5.5 Stabilität der Brechungsindexänderungen

Insbesondere im Hinblick auf eine Anwendung der mittels Bestrahlung erzeugten Brechungsindexänderungen ist deren (Langzeit-)Stabilität von Interesse. Darüber hinaus können thermische Untersuchungen weitere Anhaltspunkte für die Ursache der Modifikationen liefern. In der Vergangenheit wurde bereits die thermische Stabilität der Brechungsindexänderungen in  $^3\text{He}$ -bestrahltem Lithiumniobat ohne [ZM07] und mit Magnesiumdotierung [Rae10] untersucht.

Die vorliegende Arbeit ergänzt Untersuchungen zur Stabilität in  $\text{LiNbO}_3:\text{Mg}$  bei Bestrahlung mit Protonen sowie in  $\text{LiTaO}_3$  bei Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen. Zum direkten Vergleich der thermischen Stabilitäten verschieden großer Brechungsindexänderungen werden die Messresultate im Folgenden als relative Werte, normiert auf die Brechungsindexänderung zu Beginn der Messung, dargestellt. Aus Gründen der Übersichtlichkeit wird der konstante Fehler der normierten Brechungsindexänderung nur beispielhaft dargestellt.

### 5.5.1 Lithiumniobat bei Bestrahlung mit Protonen



**Abb. 5.3:** (a) Isotherme Erholung bei 200 °C und (b) isochrone Erholung in 15 min Schritten der mit Protonen bestrahlten LiNbO<sub>3</sub>:Mg-Proben (gefüllte Symbole) im Vergleich zu den von ZAMANI-MEYMIAN durchgeführten Messungen an <sup>3</sup>He-bestrahltem LiNbO<sub>3</sub> (offene Symbole) [ZM07]. Die Brechungsindexänderungen sind jeweils auf den Startwert normiert.

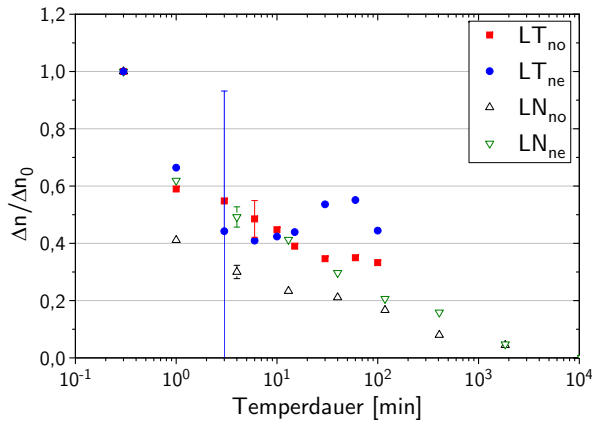
Abbildung 5.3a zeigt die Daten der isothermen Erholung der mit Protonen bestrahlten LiNbO<sub>3</sub>:Mg-Probe LNC-153 (vgl. Abb. 4.11) als relative Werte (gefüllte Symbole) im Vergleich zu den Ergebnissen von ZAMANI-MEYMIAN für die isotherme Erholung von LiNbO<sub>3</sub> nach Bestrahlung mit <sup>3</sup>He-Ionen (offene Symbole) [ZM07]. In den ersten drei Minuten zeigt sich eine starke Abnahme der Brechungsindexänderung in den mit Protonen bestrahlten Proben, die in den mit <sup>3</sup>He-Ionen bestrahlten Kristallen nicht beobachtet wurde. Die Steigung des weiteren Verlaufs ist für beide Projektile aber sehr ähnlich.

Die in Abbildung 5.3b dargestellten relativen Verläufe bei isochroner Erholung (vgl. Abb. 4.12) zeigen im Rahmen des Fehlers eine identische Abnahme der durch Protonenbestrahlung erzeugten Brechungsindexänderung (gefüllte Symbole) im Vergleich zu <sup>3</sup>He-bestrahlten LiNbO<sub>3</sub>-Kristallen (offene Symbole) [ZM07].

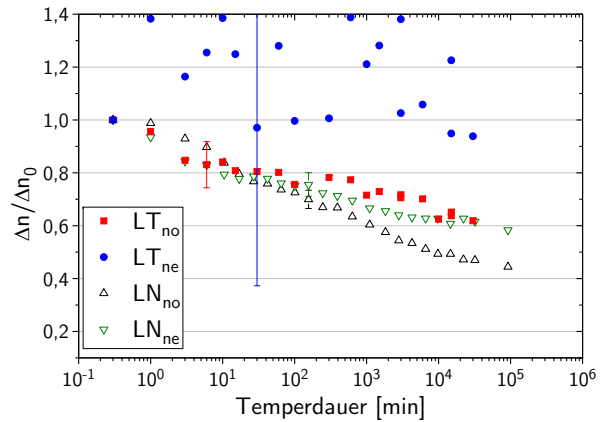
Gerade der qualitativ wie quantitativ gleiche Verlauf der isochronen Erholung legt nahe, dass bei beiden Projektilarten derselbe Mechanismus zu den beobachteten Brechungsindexänderungen führt. Dies unterstützt die These eines indirekten Prozesses z. B. durch Bildung von Leerstellen oder durch vom Projektil getroffene Targetatome verursachte „latent tracks“ (vgl. Abschn. 2.3.3).

Die Abweichung zu Beginn der isothermen Erholung liegt möglicherweise an der anderen Bauart des in dieser Arbeit verwendeten Ofens oder der Messung der Referenztemperatur an anderer Stelle. Ein Einfluss der Magnesiumdotierung als Ursache ist unwahrscheinlich: Eine isotherme Erholung von LiNbO<sub>3</sub>:Mg nach <sup>3</sup>He-Bestrahlung bei 200 °C zeigte keine starke Abnahme der Brechungsindexänderung direkt zu Beginn [Rae10]. Es kann nicht abschließend geklärt werden, ob die Verwendung von Protonen Unterschiede in der thermischen Stabilität bewirkt.

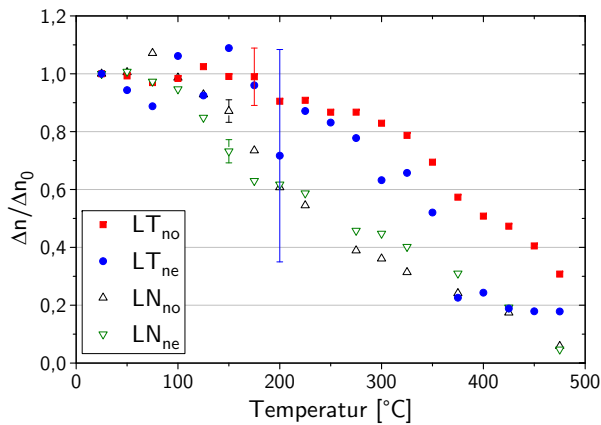
### 5.5.2 Lithiumtantalat bei Bestrahlung mit $^3\text{He}$ -Ionen



(a) Isotherme Erholung bei 400 °C



(b) Isotherme Erholung bei 200 °C



(c) Isochrone Erholung in 15 min Schritten

**Abb. 5.4:** (a) Isotherme Erholung bei 400 °C, (b) isotherme Erholung bei 200 °C sowie (c) isochrone Erholung in 15 min Schritten der mit  $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten  $\text{LiTaO}_3$ -Proben (gefüllte Symbole) im Vergleich zu den von ZAMANI-MEYMIAN durchgeführten Messungen an  $^3\text{He}$ -bestrahltem  $\text{LiNbO}_3$  (offene Symbole) [ZM07]. Die Brechungsindexänderungen sind jeweils auf den Startwert normiert.

Abbildungen 5.4a-c zeigen die relativen Verläufe der thermischen Erholungen für  $^3\text{He}$ -bestrahlte  $\text{LiTaO}_3$ -Proben (vgl. Abschnitt 4.5.5) (gefüllte Symbole) im Vergleich zu den von ZAMANI-MEYMIAN für  $^3\text{He}$ -bestrahltes  $\text{LiNbO}_3$  ermittelten Werten (offene Symbole) [ZM07].

Aufgrund der geringen erreichten außerordentlichen Brechungsindexänderung in Lithiumtantalat haben die Fehler des Verhältnisses eine enorme Größe, sodass die Werte für die außerordentliche Brechungsindexänderung eine geringe Aussagekraft besitzen.

Im Falle der isothermen Erholung bei 400 °C (vgl. Abb. 5.4a) zeigt sich in den Daten von ZAMANI-MEYMIAN für Lithiumniobat [ZM07] eine zunächst stärkere Abnahme der ordentlichen Brechungsindexänderung gegenüber der außerordentlichen. Zu beachten ist hierbei, dass der absolute Wert der ordentlichen Brechungsindexänderung zu Beginn betragsmäßig etwa 30 % über der außerordentlichen lag. Im Vergleich dazu folgen die Verläufe beider Brechungsindexänderungen in  $\text{LiTaO}_3$  eher der außerordentlichen Brechungsindexänderung in  $\text{LiNbO}_3$ : Beide verhalten sich thermisch ähnlich stabil und scheinen etwas stabiler zu sein als die ordentliche Brechungsindexänderung in Lithiumniobat.

Bei der isothermen Erholung bei 200 °C (vgl. [Abb. 5.4b](#)) ist die außerordentliche Brechungsindexänderung in Lithiumniobat langfristig etwas stabiler als die ordentliche [[ZM07](#)]. Der Verlauf der ordentlichen Brechungsindexänderung in Lithiumtantalat folgt hier wiederum recht gut der außerordentlichen Brechungsindexänderung in  $\text{LiNbO}_3$ . Die außerordentliche Brechungsindexänderung in  $\text{LiTaO}_3$  zeigt bei 200 °C praktisch keine Änderung. Das unterschiedliche thermische Verhalten von ordentlicher und außerordentlicher Brechungsindexänderung ist zu verstehen, wenn man von mehreren an der Brechungsindexänderung beteiligten Prozessen ausgeht (vgl. [Abschn. 2.4](#)). Haben diese jeweils leicht andere Temperaturabhängigkeiten, weil z. B. verschiedene Leerstellentypen involviert sind, können sich die Gesamtsummen verschieden verhalten (siehe auch [Abschn. 5.8](#)).

Die isochrone Erholung (vgl. [Abb. 5.4c](#)) offenbart eine um etwa 100 °C höhere Stabilität der Brechungsindexänderungen in  $\text{LiTaO}_3$  im Vergleich zu  $\text{LiNbO}_3$ . Der im Falle isochroner Erholungen charakteristische Stufenverlauf stellt sich auch qualitativ etwas anders dar. Die Ursache hierfür liegt wahrscheinlich an der schnelleren Diffusion von Niob gegenüber Tantal [[Bir93](#)], wodurch die thermische Ausheilung in Lithiumniobat bereits bei geringeren Temperaturen stattfinden kann.

### 5.5.3 Langzeitverhalten

Die Ergebnisse in [Abschnitt 4.4.5](#) zeigen eine beeindruckende Stabilität der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderungen in Lithiumniobat über einen Zeitraum von etlichen Jahren. Auch bei Verwendung von Protonen anstatt  $^3\text{He}$ -Ionen deutet sich eine lange Haltbarkeit der erzeugten Brechungsindexänderungen bei Raumtemperatur an (vgl. [Abb. 4.13](#)).

Nach ersten Erkenntnissen aus [Abschnitt 4.5.6](#) lässt sich auch für die in Lithiumtantalat durch Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ - und  $^4\alpha$ -Ionen erzeugten Brechungsindexänderungen eine enorme Langzeitstabilität bei Raumtemperatur erkennen.

Die hohe Beständigkeit der Brechungsindexänderungen deutet erneut auf eine ionische Defektstruktur als Ursache für den Effekt hin, da elektronische Defekte bei Raumtemperatur nach einiger Zeit degenerieren würden. In jedem Fall macht die sehr gute Langzeitstabilität der Brechungsindexmodifikation die Materialien für technische Bauteile interessant.

## 5.6 Wiederholte Bestrahlungen von Lithiumniobat

Die Bewertung der Ergebnisse wiederholt mit Alphateilchen bestrahlter  $\text{LiNbO}_3$ -Kristalle (vgl. [Abschn. 4.4.6](#)) wird leider durch technische Unzulänglichkeiten des Verfahrens erschwert: Eine große Anzahl zerstörter Proben sowie die zeitintensive Prozedur des wiederholten Bestrahls, Messens und Ausheilens führen zu einer nur relativ geringen Anzahl verwertbarer Messdaten. Darüber hinaus leidet die Vergleichbarkeit innerhalb verschiedener Strahlzeiten unter dem grundsätzlichen Problem der verschieden geformten Strahlflecken. Die große Abhängigkeit der erreichten maximalen Brechungsindexänderung  $\Delta n^{\max}$  von der Fokussierung und Größe des Ionenstrahls wird in [Abbildung A.4](#) für alle Proben sehr deutlich. Auch die Verwendung der weniger hiervon beeinflussten Metrik der mittleren Brechungsindexänderung  $\Delta n^{\text{mean}}$  kann nur bedingt Abhilfe schaffen.

Auf Grundlage der Vermutung, dass die Brechungsindexänderungen zumindest mittelbar auf die Erzeugung von „latent tracks“ in Lithiumniobat zurückzuführen sein könnten, wäre eine „Abnutzung“ des Materials zu erwarten: Die erzeugten Amorphisierungskanäle sollten durch Tempern bei  $400\text{ °C}$  nicht entfernt werden können, es verschwindet demnach lediglich die Auswirkung dieser auf den Brechungsindex. In Frage käme z. B. der Abbau der Verspannungen des Kristallgitters an den Grenzflächen der verschiedenen Kristallphasen innerhalb und außerhalb der „latent tracks“ [[Riv11](#)]. Wenn die mittleren Abstände der vorhandenen und neuen „latent tracks“ geringer sind als der effektive Radius der Verspannung, könnte demnach eine Abnutzung auftreten, da der Aufbau neuer Gitterverspannungen gehemmt wäre.

Es kann im Rahmen der durch die Strahlform bedingten Schwankungen bisher keine Verringerung der durch Ionenbestrahlung zu erreichenden Brechungsindexänderung nach wiederholter Bestrahlung nachgewiesen werden. Möglicherweise wird mit den verwendeten Ionendosen und der relativ geringen Wiederholungszahl noch keine ausreichende Dichte an verbleibenden Kristallschäden erreicht.

ZAMANI-MEYMIAN et al. fanden bei Untersuchungen mit TEM<sup>1</sup> nach einmaliger Bestrahlung mit etwa  $1,3 \times 10^{20}$  Ionen  $\text{m}^{-2}$  einen mittleren Abstand von etwa 7 nm zwischen den etwa (3 – 5) nm großen „latent tracks“ im untersuchten Volumen [[ZM09](#)]. Bezogen auf die in der vorliegenden Arbeit mehrfach durchgeführten Bestrahlungen mit jeweils bis zu  $4 \times 10^{20}$  Ionen  $\text{m}^{-2}$  sollte die erzeugte Dichte an „latent tracks“ ausreichen, um eine gegenseitige Beeinflussung und damit einen geringeren möglichen Effekt bei der Brechungsindexänderung zu erreichen. Dies gilt jedoch nur, wenn die Kristallschädigung auch bei den Wiederholungen wieder an derselben Kristallstelle erfolgt, was wie in [Abbildung 4.16](#) zu sehen, nicht zufriedenstellend sichergestellt werden konnte.

---

<sup>1</sup>Transmissions-Elektronen-Mikroskopie



## 5.7 Verhalten der Brechungsindexänderung in Lithiumtantalat

Das in Lithiumtantalat beobachtete Verhalten der ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindexänderung sowie deren Abhängigkeit von der Ionendosis wird mit den von Lithiumniobat bekannten Resultaten verglichen.

### 5.7.1 Vorzeichen der Brechungsindexänderung

Die durch Bestrahlung von  $\text{LiTaO}_3$  mit Alphateilchen erzeugten Brechungsindexänderungen verhalten sich qualitativ anders als von  $\text{LiNbO}_3$  bekannt. Bei Lithiumniobat steht die Absenkung des ordentlichen Brechungsindex einer betragsmäßig teilweise geringfügig abweichenden, aber vom Verlauf her identischen, Erhöhung des außerordentlichen Brechungsindex gegenüber (vgl. [Abschn. 4.3.2](#) und [\[ZM07\]](#)). Dies resultiert in einer Verringerung der Doppelbrechung  $\delta n(\text{LN})$ .

Im Falle von Lithiumtantalat zeigen vor allem bei niedrigen Ionendosen beide Brechungsindices eine negative Änderung, also eine Abnahme. Die Modifikation des außerordentlichen Brechungsindex fällt dabei betragsmäßig bis zu siebenmal geringer aus; die Doppelbrechung  $\delta n(\text{LT})$  nimmt in diesem Fall zu.

Im folgenden [Abschnitt 5.8](#) wird gezeigt werden, dass sich dieses unterschiedliche Verhalten mit der gemeinsamen Auswirkung mehrerer konkurrierender Prozesse erklären lässt. Auch die bei höheren Ionendosen auftretende Abweichung, die stellenweise sogar dazu führen kann, dass der außerordentliche Brechungsindex zunimmt, lässt sich auf diese Weise verstehen. In der Literatur wurden auch bei der Implantation von 2 MeV Helium-Ionen in  $\text{LiTaO}_3$  bereits widersprüchliche Vorzeichen bei der Änderung des außerordentlichen Brechungsindex berichtet [[Cha86](#), [Gla88](#)].

### 5.7.2 Dosisabhängigkeit

Sowohl für den ordentlichen (vgl. [Abb. 4.23a](#)) wie auch den außerordentlichen (vgl. [Abb. 4.23b](#)) Brechungsindex kann nicht eindeutig beantwortet werden, ob die Dosisabhängigkeit der Brechungsindexänderung in Lithiumtantalat für große Ionendosen ein sub- oder ein superlineares Verhalten zeigt. Bei niedrigeren Fluenzen entspricht der Verlauf aber weitgehend dem linearen Verhalten in Lithiumniobat [[ZM07](#)] und bestärkt damit die Annahme, dass der zugrunde liegende Prozess, trotz verschiedener Vorzeichen und Größenordnungen der Brechungsindexänderungen, zwischen  $\text{LiNbO}_3$  und  $\text{LiTaO}_3$  ähnlich sein sollte.

## 5.8 Modell für die bestrahlungsinduzierten Brechungsindexänderungen

Um die nach Bestrahlung mit schnellen leichten Ionen in Lithiumniobat und Lithiumtantalat verbleibenden Brechungsindexänderungen zu erklären, müssen mehrere Prozesse betrachtet werden, die sich auf den Brechungsindex auswirken können (vgl. [Abschn. 2.4](#)). Im Folgenden werden zunächst die einzelnen Prozesse betrachtet und anschließend in [Abschnitt 5.8.5](#) die Einzeländerungen zur Gesamtänderung des Brechungsindexes zusammengesetzt; dort stellt [Abbildung 5.5](#) die verschiedenen Einflüsse grafisch gegenüber.

### 5.8.1 Volumenänderung

Die makroskopisch beobachtbare Volumenzunahme  $\Delta V/V > 0$  im bestrahlten Bereich führt nach [Gleichung 2.8](#) zu einer Abnahme sowohl des ordentlichen, als auch des außerordentlichen Brechungsindex. In [Tabelle 5.1](#) sind die mit Werten für  $n_{o,e}$  aus [[Wei85](#), [Yam12](#)] errechneten Proportionalitätsfaktoren  $K_{o,e}$  (vgl. [Gl. 2.9](#)) für Lithiumniobat und Lithiumtantalat aufgeführt.

Material	$n_o$	$n_e$	$K_o$	$K_e$
LiNbO <sub>3</sub>	2,2866	2,2028	2,228	1,997
LiTaO <sub>3</sub>	2,1772	2,1835	1,930	1,946

**Tab. 5.1:** Werte für den Brechungsindex  $n_{o,e}$  in LiNbO<sub>3</sub> und LiTaO<sub>3</sub> aus [[Wei85](#), [Yam12](#)] und nach [Gl. 2.9](#) errechnete Faktoren  $K_{o,e}$ .

Die Volumenänderung lässt sich aus einfachen geometrischen Überlegungen abschätzen: Die Ausdehnung in Strahlrichtung entspricht der Dickenzunahme im Strahlfleck. Die seitliche Ausdehnung lässt sich aus der Wölbung ermitteln, wenn man als Form näherungsweise einen sphärischen Spiegel zu Grunde legt [[And05](#)].

Für eine 500  $\mu\text{m}$  dicke Probe mit einem Strahlfleck von 12  $\text{mm}^2$  und einer Dickenänderung von 0,2  $\mu\text{m}$  bei einer Wölbung von 1,2  $\mu\text{m}$  wird die Volumenzunahme praktisch nur von der Ausdehnung in Strahlrichtung bestimmt  $\Delta V/V = \Delta d/d = 4 \times 10^{-4}$ , die seitliche Ausdehnung ist vernachlässigbar klein ( $< 10^{-6}$ ).

Die Brechungsindexänderung durch die Volumenausdehnung beträgt damit im Beispiel nach [Gleichung 2.8](#) für beide Lichtpolarisationen etwa  $\Delta n_{o,e}^V \approx -8 \times 10^{-4}$  und kann somit weder das unterschiedliche Vorzeichen der Änderungen bei Lithiumniobat noch die unterschiedliche Größe der Abnahme bei Lithiumtantalat erklären.

### 5.8.2 Änderung der Polarisierbarkeiten

Da eine Bestrahlung ohne Implantation keinen Einfluss auf die Zusammensetzung des Targets haben sollte und auch die Polarisierbarkeiten der einzelnen Konstituenten nicht beeinflussen kann, bleibt als Ursache für eine mögliche Änderung der Gesamtpolarisierbarkeit  $\alpha'_k$  nach [Gleichung 2.5](#) nur eine Veränderung im Anisotropie-Korrekturterm  $b_{ik}$ .

Im Falle von  $\text{LiNbO}_3$  zeigte sich, dass die Polarisierbarkeiten von Lithium und Niob als isotrop angenommen werden können [Yat01, Cha03], während die Polarisierbarkeit der Sauerstoff-Ionen durch die verzerrte Kristallstruktur einen anisotropen Anteil besitzt [Haf86, Cha03]: Die induzierten Dipolmomente des Sauerstoffs wirken sich nach WEIS und GAYLORD depolarisierend auf ihre nächsten Nachbarn aus, falls das elektrische Feld der einfallenden Lichtwelle parallel zur  $\vec{c}$ -Achse liegt ( $\alpha_e$ ) und polarisierend, falls senkrecht dazu ( $\alpha_o$ ) [Wei85].

Daraus würde  $\delta\alpha = (\alpha_e - \alpha_o) < 0$  folgen, was CHAIB et al. in einer Modellrechnung bestätigen konnten [Cha03, Cha04]. Hingegen errechnete YATSENKO mit einem weniger genauen Modell exakt den umgekehrten Fall, also eine größere elektronische Polarisierbarkeit des Sauerstoffs für außerordentlich polarisiertes Licht [Yat00]. Da im Rahmen der vorliegenden Arbeit die Richtigkeit dieser Ergebnisse nicht bewertet werden kann, wird im Folgenden  $\delta\alpha < 0$  angenommen.

Bei den durch die Ionenbestrahlung entstehenden Leerstellen handelt es sich nach SRIM-2008 [Zie08] vor allem um Sauerstoffplätze und es ist demnach anzunehmen, dass insbesondere die kristalline Ordnung der Sauerstoff-Oktaeder gestört wird [And05]. Unter dieser Annahme sollte, auf den gesamten Kristall bezogen, auch die Anisotropie  $\delta\alpha$  abnehmen und dabei zu  $\Delta\alpha_o < 0$  und  $\Delta\alpha_e > 0$  führen. Im Extremfall würde jedoch maximal die vorhandene Anisotropie komplett abgebaut werden, was bei einer angenommenen gleichmäßigen Auswirkung auf beide Lichtpolarisationen  $\Delta\alpha_o = -\frac{1}{2}|\delta\alpha|$  und  $\Delta\alpha_e = +\frac{1}{2}|\delta\alpha|$  entspräche.

Aus Gleichung 2.10 folgt dann mit Definition eines Parameters  $p$ , der die Stärke der Anisotropieabnahme durch die Bestrahlung beschreibt ( $0 \leq p \leq 1$ ):

$$\begin{aligned}\Delta n_o^\alpha &= K_o \cdot \frac{\Delta\alpha_o}{\alpha_o} = -\frac{K_o}{2} \cdot \frac{|\delta\alpha|}{\alpha_o} \cdot p \\ \Delta n_e^\alpha &= K_e \cdot \frac{\Delta\alpha_e}{\alpha_e} = +\frac{K_e}{2} \cdot \frac{|\delta\alpha|}{\alpha_e} \cdot p\end{aligned}\tag{5.1}$$

Aus den Modellrechnungen von CHAIB et. al. ergibt sich für  $\text{LiNbO}_3$  etwa  $|\delta\alpha|/\alpha_o = 6,85 \times 10^{-2}$  und  $|\delta\alpha|/\alpha_e = 7,35 \times 10^{-2}$  [Cha03] und mit  $K_{o,e}$  (vgl. Tab. 5.1) folgt demnach:

$$\begin{aligned}\Delta n_o^\alpha(\text{LN}) &\approx -7,6 \times 10^{-2} \cdot p \\ \Delta n_e^\alpha(\text{LN}) &\approx +7,3 \times 10^{-2} \cdot p\end{aligned}\tag{5.2}$$

JIANG et al. schätzen demgegenüber direkt  $\Delta\alpha_{o,e}/\alpha_{o,e}$  aufgrund makroskopischer Annahmen ab [Jia07] und es folgen ähnliche Größen:

$$\begin{aligned}\Delta n_o^\alpha(\text{LN}) &\approx -4,6 \times 10^{-2} \cdot p \\ \Delta n_e^\alpha(\text{LN}) &\approx +7,8 \times 10^{-2} \cdot p\end{aligned}\tag{5.3}$$

Der gegensätzliche Einfluss der veränderten Polarisierbarkeiten auf den ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindex legen eine Beteiligung am beobachteten Verhalten der

ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderung in Lithiumniobat nahe. Die Größe des Parameters  $p$  kann aus den in dieser Arbeit vorliegenden Daten nicht direkt abgeleitet werden. Um in der Größenordnung der beobachteten Brechungsindexänderungen zu liegen, wäre eine Abnahme der Anisotropie der Sauerstoffpolarisierbarkeit von etwa einem Prozent ( $p \approx 10^{-2}$ ) notwendig.

Ob die obigen Betrachtungen für Lithiumniobat sich auch auf Lithiumtantalat übertragen lassen, geht aus der vorhandenen Literatur nicht hervor. Ausgehend vom Unterschied in der Doppelbrechung könnte der Effekt in  $\text{LiTaO}_3$  jedoch um etwa einen Faktor zehn kleiner ausfallen.

### 5.8.3 Änderung der ferroelektrischen Spontanpolarisierung

Ein Prozess der  $n_o$  und  $n_e$  ebenfalls unterschiedlich stark beeinflusst, ist die Brechungsindexänderung durch Änderung der Spontanpolarisierung (vgl. Gl. 2.15). Die zugehörigen Faktoren  $G_{o,e}$  (vgl. Gl. 2.16) hängen einerseits vom Wert der Spontanpolarisierung  $P_s$  und andererseits von den Komponenten  $g'_{13}$  und  $g'_{33}$  des quadratisch-elektro-optischen Tensors im unpolarisierten Kristall ab. DIDOMENICO et. al. liefern eine Rechenvorschrift, um diese aus den Werten  $g_{11}$ ,  $g_{12}$  und  $g_{44}$  des polarisierten Kristalls zu errechnen, welche wiederum aus den messbaren linearen elektro-optischen Koeffizienten bestimmt werden können [Wem68, DiD69].

Material	$P_s$ [ $\text{C m}^{-2}$ ]	$g'_{13}$ [ $\text{m}^4 \text{C}^{-2}$ ]	$g'_{33}$ [ $\text{m}^4 \text{C}^{-2}$ ]	$G_o$	$G_e$
$\text{LiNbO}_3$	0,71	0,026	0,090	0,158	0,484
$\text{LiTaO}_3$	0,50	0,021	0,091	0,055	0,236

**Tab. 5.2:** Werte für die Spontanpolarisierung  $P_s$  in  $\text{LiNbO}_3$  und  $\text{LiTaO}_3$  aus [Wem68] und die nach [DiD69] errechneten quadratisch-elektro-optischen Koeffizienten  $g'_{13}$  und  $g'_{33}$  sowie die zugehörigen Faktoren  $G_{o,e}$  (vgl. Gl. 2.16).

In Tabelle 5.2 ist zu erkennen, dass durch den unterschiedlichen Wert von  $P_s$  die  $G$ -Faktoren für  $\text{LiNbO}_3$  und  $\text{LiTaO}_3$  sehr verschieden ausfallen, während die Tensorkomponenten  $g'_{13}$  und  $g'_{33}$  sich zwar zwischen den Materialien kaum unterscheiden, aber innerhalb des selben Materials wiederum zu einem Unterschied der  $G$ -Faktoren für die beiden Lichtpolarisationen führen. Die großen Unterschiede legen nahe, dass es sich hierbei um den Schlüsselprozess für das unterschiedliche Verhalten der beiden Brechungsindices in Lithiumniobat und Lithiumtantalat handeln könnte.

Durch die bei der Bestrahlung mit schnellen leichten Ionen im Material entstehenden Fehlstellen, sollte wie bereits ausgeführt die kristalline Ordnung abnehmen. So könnte die Spontanpolarisierung im bestrahlten Bereich reduziert werden, indem insbesondere die Lithiumionen umgeordnet werden. Ein ähnlicher Prozess läuft auch beim Phasenübergang von Lithiumniobat und Lithiumtantalat in die paraelektrische Phase ab: Entgegen der früheren Annahme,  $\text{LiNbO}_3/\text{LiTaO}_3$  wären Versetzungs-Ferroelektrika, die Lithiumionen

lägen also in der paraelektrischen Phase innerhalb der Sauerstoffebenen [Wei85], handelt es sich nach BIRNIE beim Phasenübergang eher um einen Order-Disorder-Prozess, während dem sich die Lithiumionen gleichmäßig auf die asymmetrischen Positionen für beide Richtungen der Polarisierung verteilen, sodass die Gesamtpolarisierung verschwindet [Bir91].

Nach Gleichung 2.15 und den  $G$ -Faktoren aus Tabelle 5.2 führt eine Abnahme der Spontanpolarisierung je nach Lichtpolarisation und Material zu verschiedenen großen Zunahmen des Brechungsindex. Auch hier kann die Größenordnung der Veränderung  $\Delta P_s/P_s$  im Rahmen dieser Arbeit nicht bestimmt werden. Für die beobachteten Größenordnungen der Brechungsindexänderung müsste die Abnahme der Spontanpolarisierung etwa in der Größenordnung einiger Promille ( $\Delta P_s/P_s \approx (3 - 3,5) \times 10^{-3}$ ) liegen.

#### 5.8.4 Verzerrung oder Verspannung des Kristallgitters

Auch die Gitterverzerrung beeinflusst den ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindex in Lithiumniobat und Lithiumtantalat unterschiedlich. Tabelle 5.3 führt für beide Kristalle die relevanten Komponenten des elasto-optischen Tensors auf (vgl. Gl. 2.23). Hierbei enthalten die mit „eff.“ gekennzeichneten Werte [Dix67] Anteile zweiter Ordnung durch den piezoelektrischen und elektro-optischen Effekt, die mit „pur“ gekennzeichneten Werte [Ava76a, Ava76b] sind ohne diesen Sekundäreffekt angegeben [Mar73, Ava76a]. Die Vorzeichen sind in beiden Fällen aus den Messungen von AVAKYANTS et al. abgeleitet.

Material		$p_{11}$	$p_{33}$	$p_{12}$	$p_{13}$	$p_{31}, p_{32}$	Referenz
LiNbO <sub>3</sub>	eff.	-0,036	-0,088	0,072	0,092	0,178	[Dix67]
	pur	-0,026	0,071	0,090	0,133	0,179	[Ava76a]
LiTaO <sub>3</sub>	eff.	-0,0804	-0,150	0,0804	0,094	0,086	[Dix67]
	pur	-0,081	-0,044	0,081	0,093	0,089	[Ava76b]

**Tab. 5.3:** Effektive (beinhalten Sekundäreffekt) und pure Werte für die Komponenten des elasto-optischen Tensors  $p_{mn}$  von LiNbO<sub>3</sub> und LiTaO<sub>3</sub>.

Die Verzerrung des Kristallgitters lässt sich aus der beobachteten Dickenänderung und der Durchbiegung der Probe abschätzen. Das Beispiel aus Abschnitt 5.8.1 ergibt für eine Probe in „ $x$ -cut“-Geometrie Verzerrungen von  $\Delta\epsilon_x/\epsilon_x = 4 \times 10^{-4}$  und  $\Delta\epsilon_y/\epsilon_y = \Delta\epsilon_z/\epsilon_z \approx 1 \times 10^{-6}$ .

Da sowohl der primäre als auch der sekundäre elasto-optische Effekt zur beobachteten Brechungsindexänderung beitragen, setzt man die Effektivwerte aus Tabelle 5.3 in Gleichung 2.23 ein. Unter Annahme der obigen Verzerrungen ergeben sich für Lithiumniobat in „ $x$ -cut“-Geometrie folgende Brechungsindexänderungen  $\Delta n_{o,e}^\epsilon$ :

$$\begin{aligned} \Delta n_o^\epsilon(\text{LN}) &= +0,9 \times 10^{-4} \\ \Delta n_e^\epsilon(\text{LN}) &= -3,8 \times 10^{-4} \end{aligned} \quad (5.4)$$

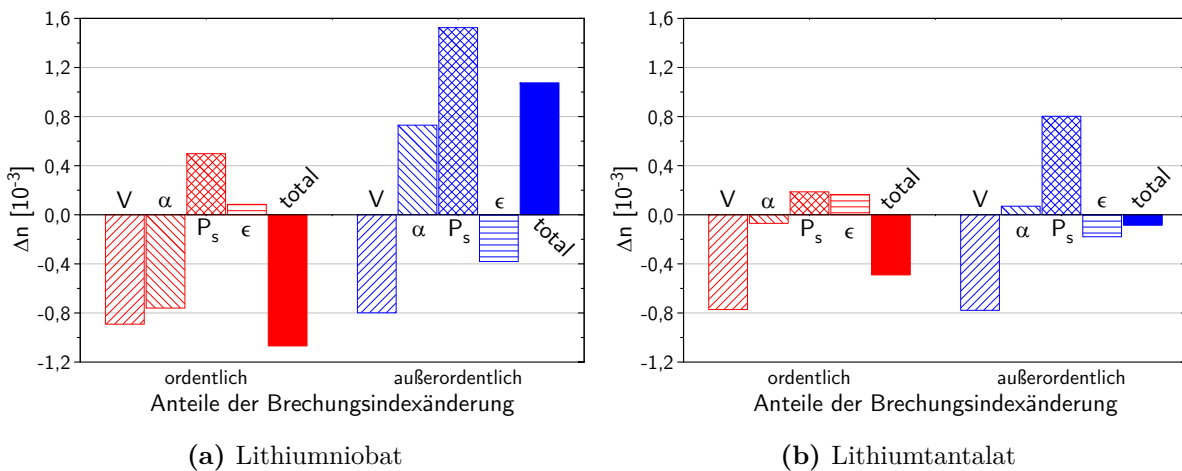
Analog ergibt sich für Lithiumtantalat in „*x*-cut“-Geometrie:

$$\begin{aligned} \Delta n_o^e(\text{LT}) &= +1,7 \times 10^{-4} \\ \Delta n_e^e(\text{LT}) &= -1,8 \times 10^{-4} \end{aligned} \tag{5.5}$$

ANDREAS fand den elektro-optischen Effekt in  $\text{LiNbO}_3$  durch eine Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen stark unterdrückt und führte dies auf die erhöhte Leitfähigkeit zurück [And05]. In diesem Fall würde der Sekundäreffekt verschwinden und man müsste die puren Werte für  $p_{mn}$  annehmen. Für Proben in „*x*-cut“-Geometrie resultiert dies aber nur in marginalen Unterschieden für  $\Delta n_{o,e}^e$ .

### 5.8.5 Gesamtbetrachtung

Wie in den vorangegangenen Abschnitten dargestellt, sind die nach Bestrahlung mit schnellen leichten Ionen in Lithiumniobat und Lithiumtantalat beobachteten Brechungsindexänderungen die Folge mehrerer, teils konkurrierender, Prozesse. Ähnliche Ansätze wurden bereits bei der Erklärung der durch Implantation von Ionen [Atu00, Kos07] oder Protonen-Austausch [Zil93, Aah95] hergestellten Wellenleitern in  $\text{LiNbO}_3$  und  $\text{LiTaO}_3$  verfolgt. So konnten JIANG et al. z. B. unverstandene Messresultate von RAMS et al. bei geringen Ionendosen plausibel erklären [Jia07, Ram00].



**Abb. 5.5:** Anteile an der ordentlichen (rot schraffiert) und außerordentlichen (blau schraffiert) Brechungsindexänderung in (a) Lithiumniobat und (b) Lithiumtantalat durch Änderung von Volumen  $V$ , Polarisierbarkeiten  $\alpha$ , ferroelektrischer Spontanpolarisierung  $P_s$  und Verzerrung  $\epsilon$ , sowie daraus resultierende totale Gesamtänderung der Brechungsindices (rot und blau).

Abbildung 5.5 stellt die Einflüsse der in der vorliegenden Arbeit vorgestellten Effekte auf den Brechungsindex in Lithiumniobat und Lithiumtantalat grafisch dar: Jeweils für den ordentlichen (rot) und den außerordentlichen (blau) Brechungsindex sind die Anteile an der Brechungsindexänderung durch Änderung des Volumens  $V$ , der Polarisierbarkeiten  $\alpha$ , der ferroelektrischen Spontanpolarisierung  $P_s$  und der Verzerrung  $\epsilon$  gemeinsam mit

der daraus resultierenden totalen Gesamtänderung aufgetragen. Dabei liegen die in den obigen Abschnitten verwendeten beispielhaften Werte und Annahmen zu Grunde.

Zu erkennen sind die unterschiedlich großen Teiländerungen, die in der Summe bei Lithiumniobat (Abb. 5.5a) zu einer Abnahme des ordentlichen Brechungsindex und einer betragsmäßig gleichgroßen Zunahme des außerordentlichen Brechungsindex führen. Bei Lithiumtantalat (Abb. 5.5b) ergibt sich unter Annahme derselben Werte eine Abnahme sowohl des ordentlichen als auch des außerordentlichen Brechungsindex, letztere um etwa einen Faktor sechs geringer.

Alle beteiligten Prozesse haben ihre Ursache in der Produktion von Fehlstellen im Kristallgitter und sollten demnach auch eine sehr ähnliche Abhängigkeit von der Ionendosis besitzen. In erster Näherung könnte eine lineare Abhängigkeit der betrachteten Größen von der Fehlstellendichte und damit in einem gewissen Bereich auch von der Ionendosis angenommen werden. Dies würde erklären, warum auch die als Summe mehrerer Beiträge beobachtete Brechungsindexänderung, zumindest in Lithiumniobat, über einen großen Dosisbereich keine Abweichung ihres Verhaltens aufweist. Das in Lithiumtantalat beobachtete komplexe Verhalten, vor allem im außerordentlichen Brechungsindex, wäre dann mit einem unterschiedlichen Sättigungsverhalten der einzelnen Prozesse erklärbar, wodurch sich die jeweilige Gesamtsumme der Brechungsindexänderung nichtlinear ändert. Am Wahrscheinlichsten könnte mit steigender Dosis die Volumenzunahme stagnieren, während insbesondere der Abbau der Spontanpolarisierung weiter voranschreitet.

Außer Acht gelassen wurde bei der bisherigen Betrachtung eine Änderung in der Kristallzusammensetzung: Die Li/Nb-Stöchiometrie hat sowohl in Lithiumniobat als auch in Lithiumtantalat Einfluss auf den Brechungsindex. In beiden Fällen nimmt der außerordentliche Brechungsindex mit sinkendem Lithium-Anteil zu, der ordentliche Brechungsindex bleibt unbeeinflusst. Dies wäre auch eine mögliche Erklärung für das nichtlineare Verhalten der außerordentlichen Brechungsindexänderung in Lithiumtantalat: So könnte z. B. durch lokal hohe Temperaturen während der Bestrahlung Lithium aus der Mitte des Strahlflecks in die Randbereiche diffundieren. Das gleichartige Verhalten der ordentlichen Brechungsindexänderung bei hohen Ionendosen wäre damit jedoch nicht zu erklären.

Während das vorgeschlagene Modell das unterschiedliche Verhalten der ordentlichen und außerordentlichen Brechungsindexänderungen für beide Kristalltypen qualitativ wie quantitativ zu erklären vermag, ist die Frage der Skalierung der Effekte noch offen: Für große Brechungsindexänderungen ist die tatsächlich gemessene Dickenänderung deutlich geringer als für die Volumenänderung im Modell benötigt würde. Eine mögliche Erklärung wäre eine neben der makroskopischen Volumenzunahme  $\Delta V/V$  zusätzliche Dichteabnahme im durchstrahlten Bereich, was eine weitere Zunahme des molaren Volumens  $V_M$  verursachen würde. Daneben wären auch eine Fehleinschätzung des Einflusses der veränderten Polarisierbarkeiten oder ein weiterer bisher nicht berücksichtigter Effekt möglich.

## 5.9 Ferroelektrische Eigenschaften

Abschließend werden die ersten Messungen der ferroelektrischen Eigenschaften nach der Bestrahlung von Lithiumtantalat mit schnellen leichten Ionen kurz diskutiert und dem in Lithiumniobat beobachteten Verhalten [Hat07, Jen08b, Jen10] gegenübergestellt.

### 5.9.1 Polungsverhalten

Nach der Bestrahlung von  $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$  stellten HATTERMANN und auch JENTJENS eine Absenkung der Koerzitivfeldstärke im bestrahlten Bereich von etwa (10 – 15) % fest, sodass zwei getrennte Polungssignale sichtbar werden [Hat07, Jen08b]. Im Falle von  $\text{LiTaO}_3\text{:Mg}$  wird nach der Bestrahlung eine gegenüber dem unbestrahlten Material geringfügig reduzierte Koerzitivfeldstärke beobachtet, die Form der Polungssignatur ist jedoch nicht verändert. Insbesondere ist kein zweites Signal mit geringerer Koerzitivfeldstärke erkennbar, welches dem bestrahlten Bereich zugeordnet werden könnte.

Zu beachten ist jedoch die gegenüber Lithiumniobat insgesamt viel geringere Koerzitivfeldstärke. Diese führt dazu, dass eine Absenkung derselben im bestrahlten Bereich zu gering ausfallen könnte, um sie wahrzunehmen. Da es sich beim Polungsvorgang um einen dynamischen Prozess handelt, wäre es auch möglich, dass das Umpolen des bestrahlten Bereichs gleichzeitig ein etwas zu frühes Umpolen des unbestrahlten Bereichs auslöst. Dies würde dann die leichte Absenkung der gesamten Koerzitivfeldstärke erklären. Im Gegensatz zu den Anhaltspunkten in den hier vorliegenden Messungen für Lithiumtantalat beobachtete JENTJENS für bestrahltes Lithiumniobat keine Dosisabhängigkeit der abgesenkten Koerzitivfeldstärke im bestrahlten Bereich [Jen10].

### 5.9.2 Leitfähigkeit

JENTJENS fand bei der Bestrahlung von Lithiumniobat mit schnellen leichten Ionen eine erhöhte elektrische Leitfähigkeit im bestrahlten Bereich [Jen10]. Die Ergebnisse aus Abschnitt 4.6.2 bestätigen auch für die Bestrahlung von Lithiumtantalat einen um mehr als eine Größenordnung erhöhten Wert. Der Unterschied in der Leitfähigkeit der mit gleicher relativen Ionendosis pro Fläche bestrahlten Proben LTC-5 und LTC-11 könnte mit der etwa doppelt so langen Zeit seit der Bestrahlung erklärt werden: Als Effekt mit wahrscheinlich elektronischer Ursache degeneriert die erhöhte Leitfähigkeit bei Raumtemperatur im Zeitraum einiger Wochen [Jen10].

Die bestrahlungsinduzierte Zunahme der Leitfähigkeit bei  $\text{LiTaO}_3\text{:Mg}$  fällt auf den ersten Blick deutlich geringer aus als bei  $\text{LiNbO}_3\text{:Mg}$  [Jen10]. Für eine genauere quantitative Aussage fehlen weitere Untersuchungen.



## 6 Ausblick

Die Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit liefern vielversprechende Ergebnisse, werfen aber auch neue Fragen auf und hinterlassen einige Punkte, an die zukünftige Arbeiten anknüpfen könnten.

Die ionenstrahlinduzierte Brechungsindexänderung in  $\text{LiNbO}_3$  zeigt eine Abhängigkeit der Stärke des Effektes von der Projektilart. Für  $\text{LiTaO}_3$  ermöglichen die bisherigen Ergebnisse keine eindeutigen Aussagen, hier wären weitere Untersuchungen mit besserer Kontrolle der Strahlparameter wünschenswert. Ebenso sollte die Abhängigkeit von der Energie des Projektils untersucht werden.

Das komplexe Verhalten, insbesondere des außerordentlichen Brechungsindex, bei der Bestrahlung von Lithiumtantalat sollte genauer untersucht werden. Hierzu ist eine deutlich bessere Kontrolle und Reproduzierbarkeit des Strahlprofils notwendig, um eine Aussage über die ortsabhängige Ionendosis treffen zu können. Ebenso sollte die Temperatur der Proben z. B. durch ein He-Gas-System kontrolliert werden, um Effekte durch eine erhöhte Temperatur im Bereich des Strahlflecks als Ursache ausschließen zu können.

Soll die Untersuchung der nach wiederholtem Bestrahlen und Tempern erzeugten Brechungsindexänderungen fortgesetzt werden, ist ein neues Konzept mit einer geringeren Abhängigkeit von Position und Form des Strahlflecks notwendig. Denkbar wäre beispielsweise eine durch horizontale (und ggf. auch vertikale) Bewegung des Ionenstrahls („Wobbeln“) homogene Vorschädigung des Kristalls mit einer hohen Ionendosis und anschließendem Tempern. Eine erneute Strahlzeit mit derartig vorgeschädigten und unbestrahlten Kristallen würde eine direkte Vergleichbarkeit ermöglichen. Ebenfalls möglich wäre ein durch „Wobbeln“ erzeugter horizontaler Streifen mit starker homogener Schädigung, anschließendes Tempern und ein erneutes Bestrahlen des um  $90^\circ$  gedrehten Kristalls mit einem weiteren horizontalen Streifen. Auf diese Weise entsteht am Kreuzungspunkt eine Überlagerung der beiden Schädigungen, die mit der erstmaligen Bestrahlung im restlichen Streifen verglichen werden könnte.

Die Untersuchung einer bestrahlten und anschließend getemperten  $\text{LiNbO}_3$ -Probe mit Transmissions-Elektronen-Mikroskopie (TEM) könnte Aufschluss darüber geben, ob nach der thermischen Ausheilung und dem Verschwinden der Brechungsindexänderung tatsächlich noch „latent tracks“ im Kristall verbleiben.

Des Weiteren sollte das vorgestellte Modell für die ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderungen, auf Basis weiterer experimenteller Erkenntnisse, weiter ausgebaut werden. Insbesondere wäre eine genauere Messung der Dickenänderung und damit eine bessere

Abschätzung der dreidimensionalen Volumenänderung sowie eine experimentelle Bestimmung der Abnahme in der Spontanpolarisierung wünschenswert, um das Modell besser validieren zu können. Die molekularen Polarisierbarkeiten in  $\text{LiNbO}_3$  und  $\text{LiTaO}_3$  erwiesen sich durch die komplexe Kristallstruktur und die daraus entstehende Anisotropie als unübersichtlich und die Literatur diesbezüglich als widersprüchlich. Um den Einfluss der Bestrahlung auf diese korrekt zu berücksichtigen, wäre Unterstützung durch theoretische Arbeiten notwendig. Dasselbe gilt für die im Inneren des Kristalls entstehenden Verzerrungen und Verspannungen.

Zuletzt sollten, analog zu den detaillierten Untersuchungen der ferroelektrischen Eigenschaften an ionenbestrahltem Lithiumniobat von JENTJENS [Jen10], die in dieser Arbeit begonnenen Messungen an  $\text{LiTaO}_3$  fortgeführt und erweitert werden. Dabei wäre auch eine genauere Messmethode für die Koerzitivfeldstärke bzw. eine genauere Kontrollierbarkeit der statistischen Effekte wünschenswert, die die Abweichungen zwischen verschiedenen Messungen und Proben begründen.

## 7 Zusammenfassung

Die Festkörperoptik spielt eine wichtige Rolle in der heutigen Technologie und ist insbesondere aus der digitalen Kommunikation nicht mehr wegzudenken. Benötigt werden eine Vielzahl aktiver und passiver Bauelemente, die Licht führen, verstärken, schalten und verarbeiten können. Die künstlich hergestellten Kristalle Lithiumniobat ( $\text{LiNbO}_3$ ) und das eng verwandte Lithiumtantalat ( $\text{LiTaO}_3$ ) sind bewährte Ausgangsmaterialien zur Herstellung derartiger Elemente. Hierfür ist es oft notwendig, den Brechungsindex des Substrats gezielt beeinflussen zu können, was neben anderer Methoden auch durch Bestrahlung der Materialien mit schnellen leichten Ionen möglich ist.

Im Rahmen dieser Arbeit werden Lithiumniobat- und Lithiumtantalat-Kristalle mit Alphateilchen,  $^3\text{He}$ -Ionen, Deuteronen und Protonen bei Projektilenergien von bis zu 14 MeV/Nukleon bestrahlt. Energie und Kristalldicke sind dabei so gewählt, dass die Projektile die gesamte Probe durchdringen und nicht implantiert werden. Gegenstand sind somit die Effekte, die die Ionen auf ihrem Weg durch das Material erzeugen.

Die für die unerwünschte, durch die Bestrahlung entstehende, nukleare Aktivierung der Kristalle verantwortlichen Isotope sind fast ausschließlich auf inelastische Kernreaktionen mit Niob bzw. Tantal zurückzuführen. Alle produzierten Isotope sind relativ kurzlebig und insgesamt nimmt die Aktivierung schnell genug ab, um nach einer Lagerfrist von einigen Tagen bis wenigen Wochen den gefahrlosen Umgang mit den bestrahlten Proben zu ermöglichen. Bei Bestrahlung mit Alphateilchen liegen die Aktivierungen von Lithiumniobat und Lithiumtantalat dabei in derselben Größenordnung. Jeweils etwa eine Größenordnung darunter befinden sich die mit  $^3\text{He}$ -Ionen bestrahlten  $\text{LiNbO}_3$ - und  $\text{LiTaO}_3$ -Proben. Die etwa gleich großen Aktivierungen der mit Protonen und Deuteronen bestrahlten Lithiumniobat-Kristalle liegen eine weitere Größenordnung niedriger.

Die in Lithiumniobat durch die Bestrahlung mit den verschiedenen Projektilen erzeugten Brechungsindexänderungen ( $\Delta n$ ) werden interferometrisch bestimmt und können durch geeignete Wahl der Probengeometrie auch in Abhängigkeit von der Ioneneindringtiefe gemessen werden: Der ordentliche Brechungsindex nimmt ab ( $\Delta n_o < 0$ ), der außerordentliche nimmt gleichermaßen zu ( $\Delta n_e > 0$ ), sodass die in  $\text{LiNbO}_3$  negative Doppelbrechung  $\delta n = n_e - n_o$  betragsmäßig kleiner wird. Über die gesamte Strecke, die die Ionen im Kristall zurücklegen, nimmt der Betrag der Brechungsindexänderung zu und erreicht in der Stoptiefe der Ionen ein starkes Maximum. Letzteres liegt bei den sonstigen in dieser Arbeit durchgeführten Bestrahlungen immer außerhalb der Probe. Der Verlauf der Brechungsindexänderung entspricht dabei für alle Projektile eher dem Verlauf der im Kristall

erzeugten Fehlstellen  $c_{\text{vac}}$  als dem elektronischen Energieverlust des Projektils  $\frac{dE}{dx}$ . Die ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderungen sind damit wahrscheinlich die Folge von atomaren Verlagerungen wie z. B. Leerstellen, Fehlstellenclustern oder „latent tracks“.

In Lithiumniobat verursacht eine Bestrahlung mit Alphateilchen die größten Brechungsindexänderungen, gefolgt von  $^3\text{He}$ -Ionen und Deuteronen; die geringste Brechungsindexänderung wird bei der Verwendung von Protonen erreicht. Die thermische Stabilität der in  $\text{LiNbO}_3$ -Proben mit Protonen erzeugten Brechungsindexänderungen ist dabei nur leicht geringer als von der Bestrahlung mit  $^3\text{He}$ -Ionen bekannt. Bei Letzterer besteht vor allem eine enorme Langzeitstabilität bei Raumtemperatur: Auch nach über elf Jahren ist noch keine Abnahme der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderung zu beobachten.

In Lithiumtantalat erzeugen sowohl Alphateilchen als auch  $^3\text{He}$ -Ionen Brechungsindexänderungen ähnlicher Größe. Im Gegensatz zu  $\text{LiNbO}_3$  senken sich in  $\text{LiTaO}_3$  durch die Bestrahlung sowohl der ordentliche als auch der außerordentliche Brechungsindex ab. Die ordentliche Brechungsindexänderung fällt dabei um ein Vielfaches stärker aus als die außerordentliche; die in  $\text{LiTaO}_3$  positive Doppelbrechung  $\delta n = n_e - n_o$  nimmt damit zu. Die Änderungen erreichen Werte von bis zu  $\Delta n_o^{\text{max}} = (-16,2 \pm 0,2) \times 10^{-3}$  für den ordentlichen und  $\Delta n_e^{\text{max}} = (-3,8 \pm 0,2) \times 10^{-3}$  für den außerordentlichen Brechungsindex und zeigen eine geringfügig größere thermische Stabilität als in  $\text{LiNbO}_3$ . Erste Messungen zur Langzeitstabilität bei Raumtemperatur zeigen nach über drei Jahren keine Abnahme der erzeugten Brechungsindexänderungen in  $\text{LiTaO}_3$ .

Insbesondere bei hohen Ionendosen zeigt sich in Lithiumtantalat, vor allem im außerordentlichen Brechungsindex, ein nichtlineares Verhalten der ionenstrahlinduzierten Brechungsindexänderung: Im Zentrum des bestrahlten Bereichs fällt die Abnahme des außerordentlichen Brechungsindex oft geringer aus, als im umgebenden Strahlfleck oder zeigt gelegentlich sogar insgesamt eine Zunahme.

Eine Erklärung für das unterschiedliche Verhalten der Brechungsindexänderungen nach Bestrahlung von  $\text{LiNbO}_3$  und  $\text{LiTaO}_3$  liefert folgendes Modell: Die durch Effekte wie Volumenzunahme, Änderung der molaren Polarisierbarkeiten und Abnahme der Spontanpolarisierung hervorgerufenen Brechungsindexänderungen heben sich teilweise gegenseitig auf, sodass die Änderung von ordentlichem und außerordentlichem Brechungsindex in  $\text{LiNbO}_3$  nur zufällig betragsmäßig gleich ausfällt. In  $\text{LiTaO}_3$  genügt der kompensierende Anteil im Normalfall nicht, um eine positive Änderung des außerordentlichen Brechungsindex hervorzurufen. Die bei hohen Ionendosen beobachtete Nichtlinearität könnte ihre Ursache demnach in verschiedenem Sättigungsverhalten der beteiligten Prozesse haben.

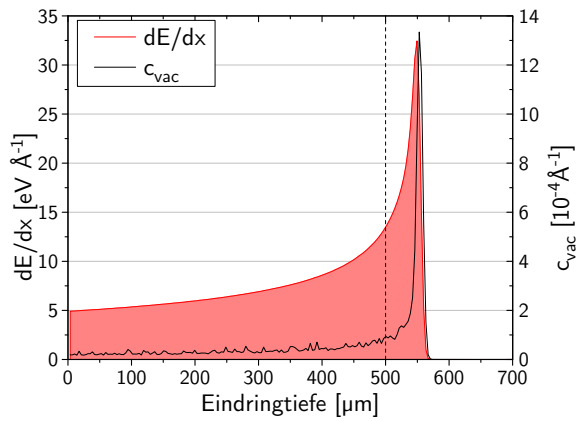
Neben der Änderung des Brechungsindex erhöht eine Bestrahlung mit schnellen leichten Ionen in Lithiumtantalat auch die elektrische Leitfähigkeit des Materials und senkt die Koerzitivfeldstärke leicht ab.

Die Bestrahlung mit schnellen leichten Ionen stellt nach wie vor eine vielversprechende Option zur Modifikation wichtiger Materialparameter in optischen Kristallen dar und erweitert das Feld der Möglichkeiten zur Maßanfertigung optischer Komponenten auf Basis von Lithiumniobat oder Lithiumtantalat.

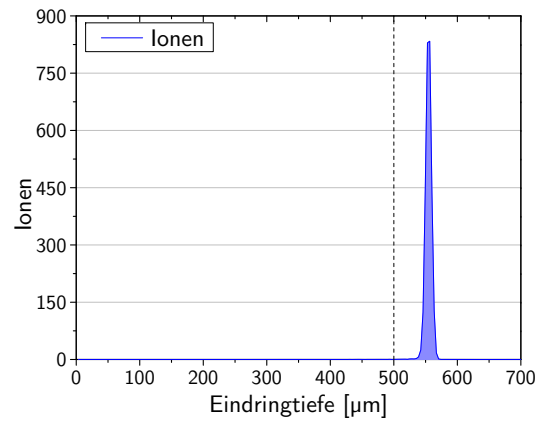
# A Anhang

## A.1 SRIM-Simulationen

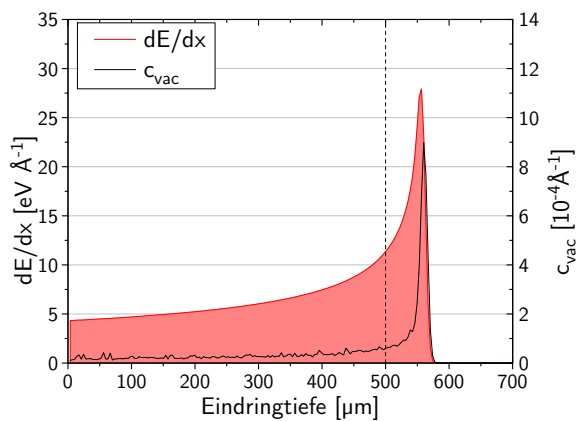
### A.1.1 Bestrahlung von Lithiumniobat



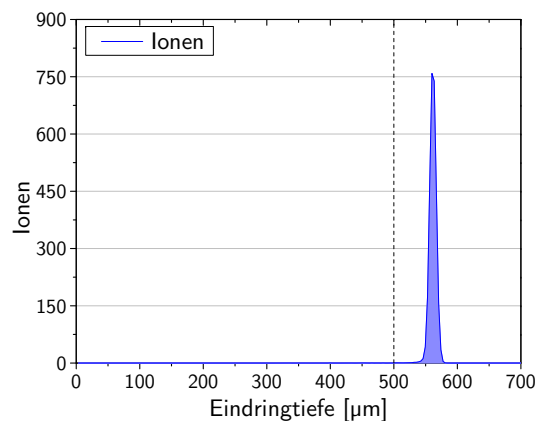
(a) 47 MeV Alphateilchen



(b) 47 MeV Alphateilchen

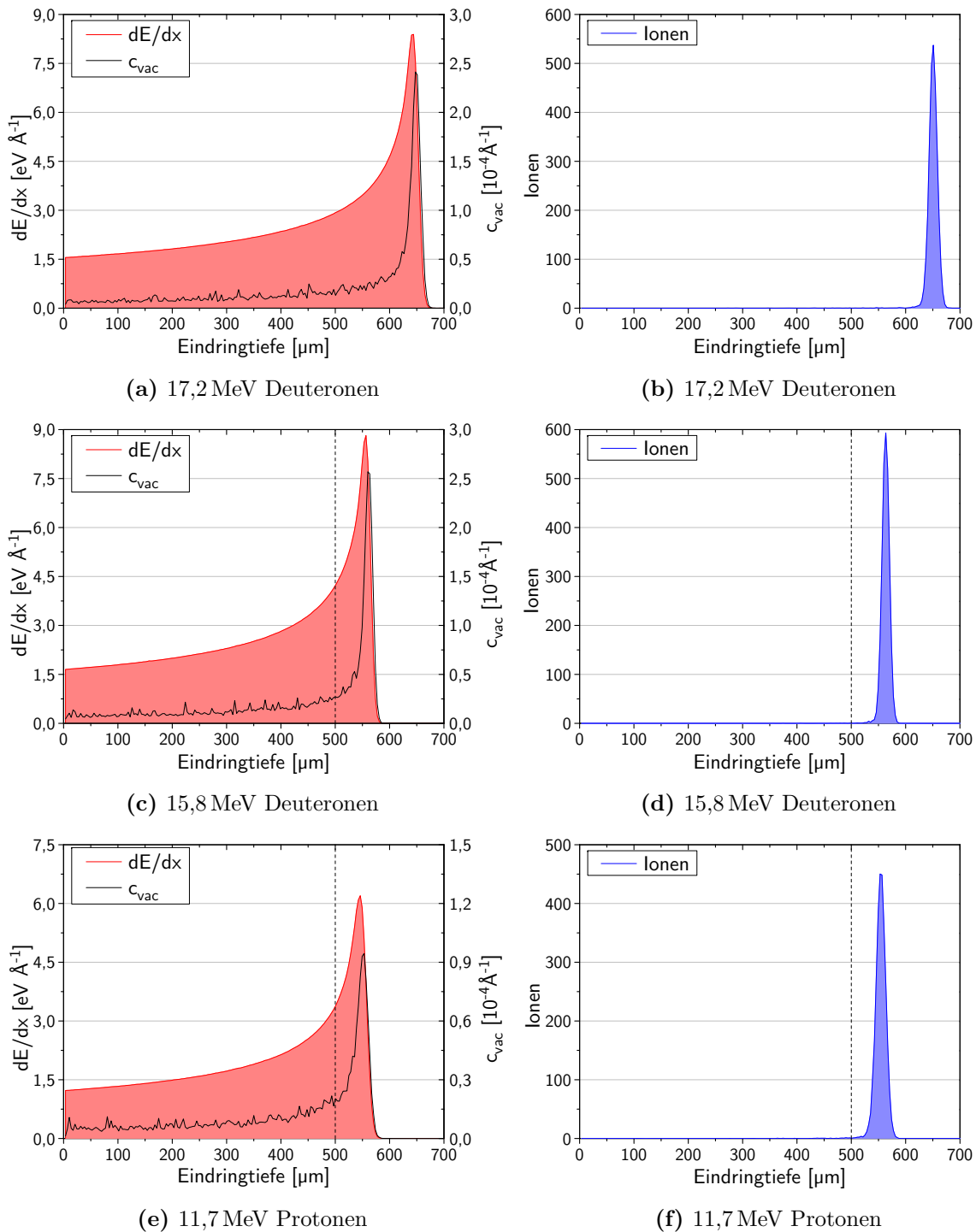


(c) 42 MeV  $^3\text{He}$  Ionen



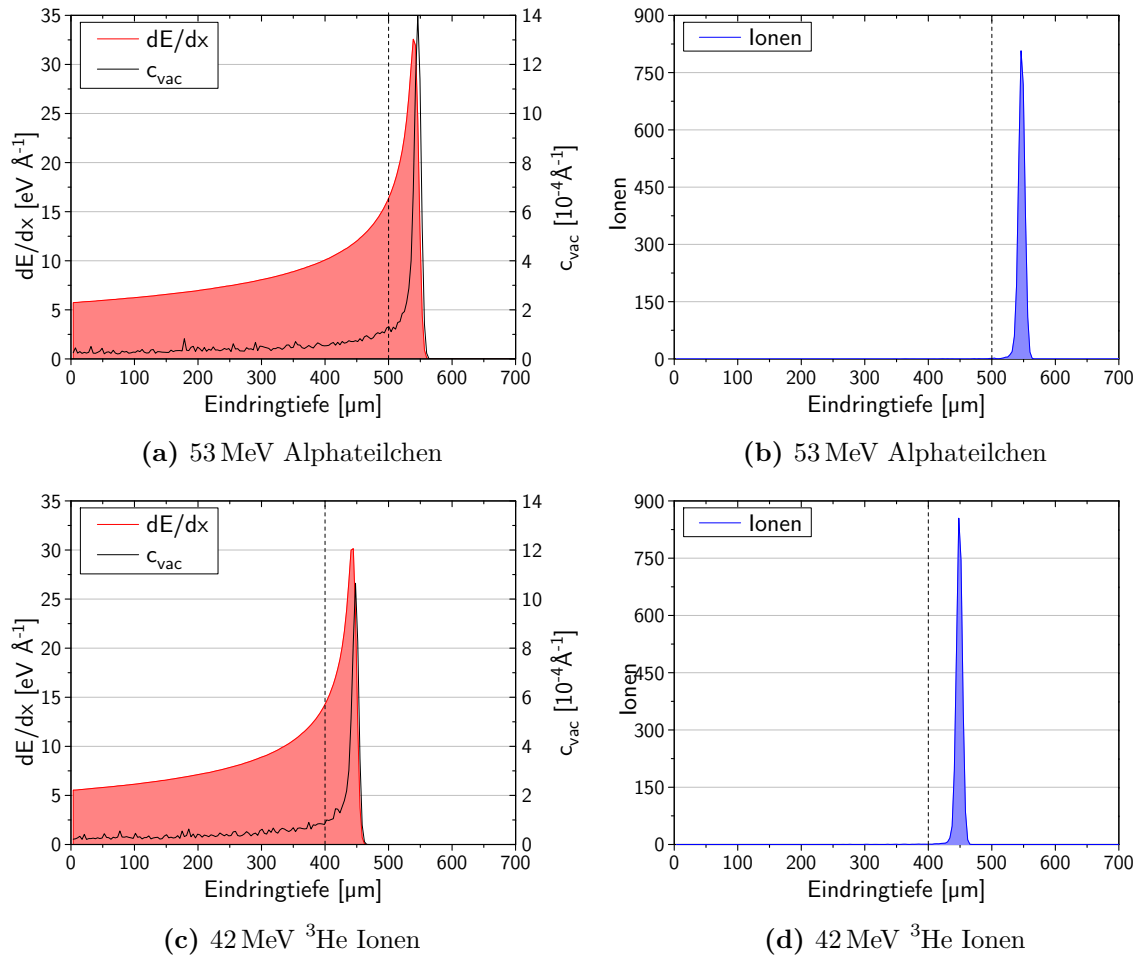
(d) 42 MeV  $^3\text{He}$  Ionen

**Abb. A.1:** Mit SRIM-2008 [Zie08] simulierter Energieverlust  $\frac{dE}{dx}$ , Leerstellenbildung  $c_{vac}$  und Eindringtiefe in Lithiumniobat für  $^4\alpha$ - und  $^3\text{He}$ -Ionen der verwendeten Energien. Die gestrichelte Linie kennzeichnet die jeweils üblicherweise verwendete Probendicke.



**Abb. A.2:** Mit SRIM-2008 [Zie08] simulierter Energieverlust  $\frac{dE}{dx}$ , Leerstellenbildung  $c_{\text{vac}}$  und Eindringtiefe in Lithiumniobat für  $^2\text{d}$ - und  $^1\text{p}$ -Ionen der verwendeten Energien. Die gestrichelte Linie kennzeichnet die jeweils üblicherweise verwendete Probendicke.

## A.1.2 Bestrahlung von Lithiumtantalat



**Abb. A.3:** Mit SRIM-2008 [Zie08] simulierter Energieverlust  $\frac{dE}{dx}$ , Leerstellenbildung  $c_{\text{vac}}$  und Eindringtiefe in Lithiumtantalat für  $^4\alpha$ - und  $^3\text{He}$ -Ionen der verwendeten Energien. Die gestrichelte Linie kennzeichnet die jeweils üblicherweise verwendete Probendicke.

## A.2 Übersicht über die Proben

### A.2.1 LiNbO<sub>3</sub>-Proben

Kristall	Projektil	Energie [MeV]	Dosis $D_Q$ [nAh]	Dosis $D_N$ [10 <sup>15</sup> Ionen]	Kristalldicke [μm]	bestrahlte Seite
LNC-124	<sup>4</sup> α	46,1	100	1,1	500	+z
LNC-125	<sup>4</sup> α	46,1	100	1,1	500	+z
LNC-126	<sup>3</sup> He	42,0	100	1,1	500	+z
LNC-127	<sup>3</sup> He	42,0	100	1,1	500	+z
LNC-128	<sup>1</sup> p	12,0	50	1,1	500	+z
LNC-129	<sup>1</sup> p	12,0	50	1,1	500	-z
LNC-130	<sup>2</sup> d	15,8	50	1,1	500	+z
LNC-131	<sup>2</sup> d	15,8	50	1,1	500	-z
LNC-132	<sup>3</sup> He	40,7	100	1,1	500	+z
LNC-133	<sup>3</sup> He	40,7	100	1,1	500	-z
LNC-134	<sup>4</sup> α	46,8	100	1,1	500	+z
LNC-135	<sup>4</sup> α	46,8	100	1,1	500	-z
LNC-136	<sup>4</sup> α	50,2	100	1,1	500	+z
LNC-137	<sup>4</sup> α	50,2	100	1,1	500	+z
LNC-138	<sup>4</sup> α	50,2	100	1,1	500	+z
LNC-139	<sup>4</sup> α	50,2	100	1,1	500	+z
LNC-140	<sup>4</sup> α	50,2	100	1,1	500	+z
LNC-141	<sup>4</sup> α	46,5	20	0,22	500	-z
LNC-142	<sup>4</sup> α	46,5	15	0,17	500	-z
LNC-143	<sup>4</sup> α	46,5	12	0,13	500	-z
LNC-144	<sup>4</sup> α	46,5	10	0,11	500	-z
LNC-145	<sup>4</sup> α	46,5	8	0,09	500	-z
LNC-146	<sup>4</sup> α	46,5	5	0,06	500	-z
LNC-147	<sup>2</sup> d	15,6	2000	44,9	500	-z
LNC-148	<sup>2</sup> d	15,6	300	6,7	500	-z
LNC-149	<sup>2</sup> d	15,6	500	11,2	500	-z
LNC-150	<sup>2</sup> d	15,6	350	7,9	500	-z
LNC-151	<sup>2</sup> d	15,6	210	4,7	500	-z
LNC-152	<sup>2</sup> d	15,6	388	8,7	500	-z
LNC-153	<sup>1</sup> p	12,0	200	4,5	500	-z
LNC-154	<sup>1</sup> p	12,0	200	4,5	500	-z
LNC-155	<sup>1</sup> p	12,0	200	4,5	500	-z
LNC-156	<sup>1</sup> p	12,0	200	4,5	500	-z

**Tab. A.1:** Übersicht über die Standard-LiNbO<sub>3</sub>-Proben, gruppiert nach Strahlzeit.



A.2.2 LiNbO<sub>3</sub>-Proben für wiederholte Bestrahlungen

Wiederholung	Kristall	Energie [MeV]	Strahlzeit	Dosis $D_Q$ [nAh]	Dosis $D_N$ [ $10^{15}$ Ionen]	Akk. Dosis $D_N^*$ [ $10^{15}$ Ionen]
1	LNC-160	47,3	a	100	1,1	1,1
	LNC-161	47,3	a	100	1,1	1,1
	LNC-162	47,3	a	100	1,1	1,1
	LNC-163	47,0	b	200	2,2	2,2
	LNC-164	47,0	b	100	1,1	1,1
	LNC-169	47,0	c	100	1,1	1,1
	LNC-170	47,0	c	100	1,1	1,1
	LNC-171	47,0	c	200	2,2	2,2
2	LNC-160	47,0	b	100	1,1	2,2
	LNC-161	47,0	b	100	1,1	2,2
	LNC-162	47,0	b	100	1,1	2,2
	LNC-163	53,3	d	200	2,2	4,5
	LNC-164	53,3	d	100	1,1	2,2
	LNC-169	53,3	d	100	1,1	2,2
	LNC-170	53,3	d	200 <sup>‡</sup>	2,2 <sup>‡</sup>	3,4
	LNC-171	53,3	d	200	2,2	4,5
3	LNC-160	53,3	d	100	1,1	3,4
	LNC-161	53,3	d	100	1,1	3,4
	LNC-162	53,3	d	200 <sup>‡</sup>	2,2 <sup>‡</sup>	4,5
	LNC-163	47,3	e	200	2,2	6,7
	LNC-164	47,3	e	100	1,1	3,4
	LNC-169	47,3	e	100	1,1	3,4
	LNC-170	47,3	e	200	2,2	5,6
	LNC-171	47,3	e	200	2,2	6,7
4	LNC-160	47,3	e	100	1,1	4,5
	LNC-161	47,3	e	100	1,1	4,5
	LNC-162	47,3	e	200	2,2	6,7
	LNC-163	46,8	f	200	2,2	9,0
	LNC-164	47,0	g	100	1,1	4,5
	LNC-169	47,0	g	100	1,1	4,5
	LNC-170	47,0	g	200	2,2	7,9
	LNC-171	47,0	g	200	2,2	9,0
5	LNC-160	46,8	f	100	1,1	5,6
	LNC-161	46,8	f	100	1,1	5,6
	LNC-162	46,8	f	200	2,2	9,0

**Tab. A.2:** Übersicht über alle vier bzw. fünf Mal wiederholt mit Alphateilchen bestrahlten LiNbO<sub>3</sub>-Proben und die verwendeten einzelnen sowie akkumulierten Ionendosen, gruppiert nach der Anzahl der Wiederholungen. Die Buchstaben a bis g kennzeichnen die sieben Strahlzeiten mit jeweils vergleichbaren Bedingungen. Alle Kristalle sind „x-cuts“ und 500  $\mu\text{m}$  dick.

<sup>‡</sup>Ionendosis wurde gegenüber der vorherigen Bestrahlung verdoppelt

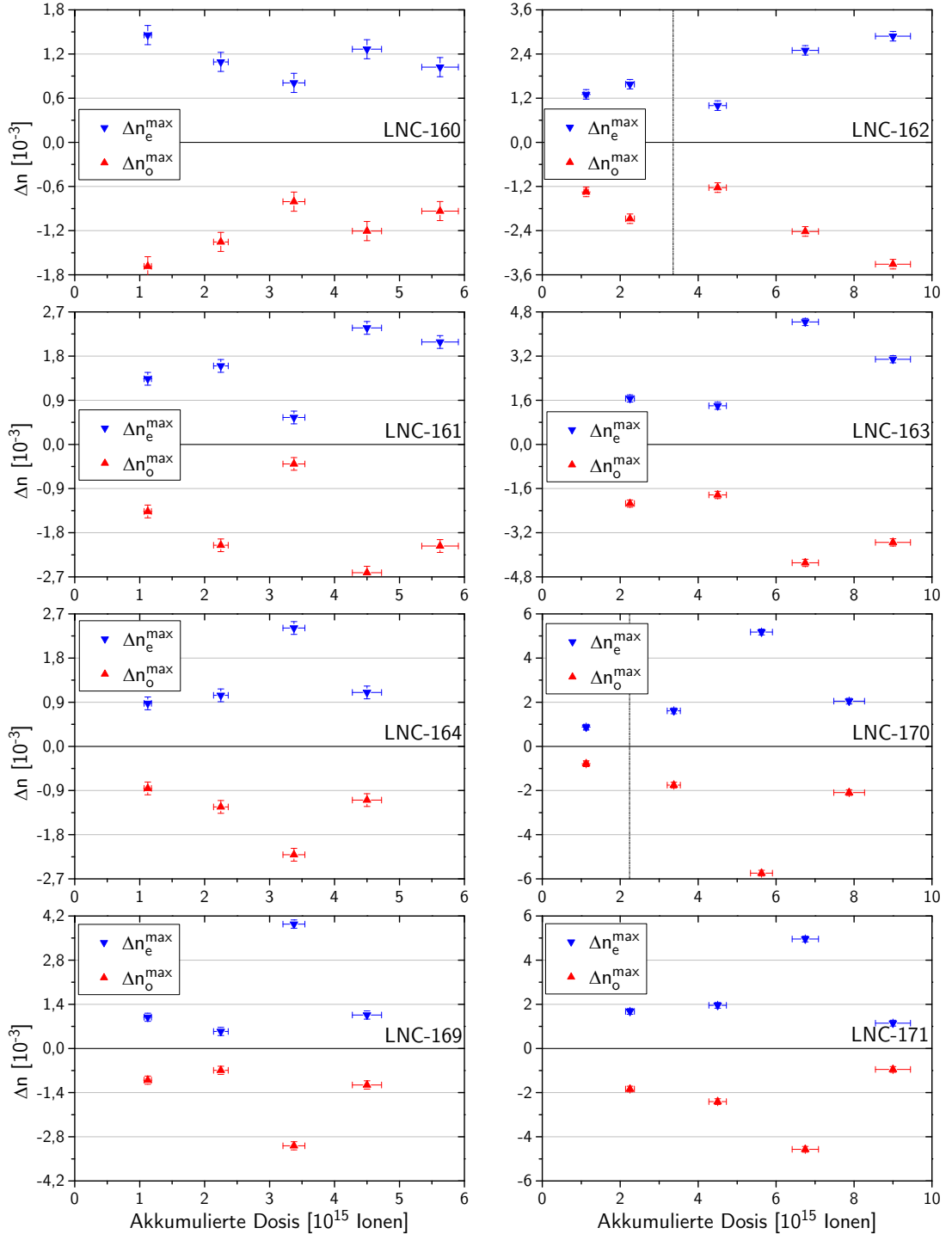
A.2.3 LiTaO<sub>3</sub>-Proben

Kristall	Projektile	Energie [MeV]	Dosis $D_Q$ [nAh]	Dosis $D_N$ [10 <sup>15</sup> Ionen]	Kristalldicke [μm]	bestrahlte Seite
LTC-1	<sup>4</sup> α	53,2	100	1,1	500	-z
LTC-2	<sup>4</sup> α	53,2	100	1,1	500	-z
LTC-3	<sup>3</sup> He	42,0	100	1,1	400	-z
LTC-4	<sup>3</sup> He	42,0	100	1,1	400	-z
LTC-5	<sup>3</sup> He	41,4	150	1,7	400	-z
LTC-6	<sup>3</sup> He	41,4	150	1,7	400	+z
LTC-7	<sup>3</sup> He	41,4	150	1,7	300	+x
LTC-8	<sup>3</sup> He	41,4	150	1,7	300	+x
LTC-9	<sup>3</sup> He	41,4	150	1,7	300	+x
LTC-10	<sup>3</sup> He	41,4	150	1,7	300	+x
LTC-11	<sup>4</sup> α	53,3	300	3,4	500	-z
LTC-12 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	53,3	300	3,4	500	+z
LTC-13	<sup>4</sup> α	53,3	750	8,5	500	+x
LTC-14 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	53,3	600	6,7	500	+x
LTC-15 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	53,3	450	5,0	500	+x
LTC-16	<sup>4</sup> α	53,3	300	3,4	500	+x
LTC-17	<sup>4</sup> α	54,0	200	2,3	500	+x
LTC-18 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	54,0	800	9,0	500	+x
LTC-19 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	54,0	1600	18,0	500	+x
LTC-20	<sup>4</sup> α	54,0	400	4,5	500	+x
LTC-21 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	54,0	600	6,7	500	+x
LTC-22	<sup>4</sup> α	54,0	1000	11,2	500	+x
LTC-23	<sup>4</sup> α	53,4	800	9,0	500	+x
LTC-24	<sup>4</sup> α	53,4	1400	15,7	500	+x
LTC-25	<sup>4</sup> α	53,4	300	3,4	500	+x
LTC-26	<sup>4</sup> α	53,4	500	5,6	500	+x
LTC-27 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	53,4	700	7,9	500	+x
LTC-28 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	53,4	1600	18,0	500	+x
LTC-29	<sup>4</sup> α	53,4	250	2,8	500	-z
LTC-30	<sup>4</sup> α	53,4	50	0,56	500	-z
LTC-31 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	53,4	1600	18,0	300	+x
LTC-32	<sup>4</sup> α	53,4	1400	15,7	300	+x
LTC-33	<sup>4</sup> α	54,0	1800	20,2	300	+x
LTC-34 <sup>§</sup>	<sup>4</sup> α	54,0	1600	18,0	300	+x
LTC-35	<sup>4</sup> α	54,0	1200	13,5	300	+x

**Tab. A.3:** Übersicht über die LiTaO<sub>3</sub>-Proben, gruppiert nach Strahlzeit

<sup>§</sup>Probe zerstört bzw. nicht interferometrisch auswertbar

## A.3 Maximale Brechungsindexänderung nach wiederholter Bestrahlung



**Abb. A.4:** Maximale Brechungsindexänderungen  $\Delta n_{o,e}^{\max}$  für acht wiederholt bestrahlte LiNbO<sub>3</sub>-Proben aufgetragen gegen die in vier bzw. fünf Strahlzeiten akkumulierte Ionendosis. Für die Proben LNC-162 und LNC-170 wurde die Ionendosis ab der gestrichelten Hilfslinie verdoppelt. Es sind die verschiedenen Skalierungen zu beachten.



# Literaturverzeichnis

- [Aah95] H. ÅHLFELDT, J. WEBJÖRN, P. A. THOMAS und S. J. TEAT: *Structural and optical properties of annealed proton-exchanged waveguides in z-cut LiTaO<sub>3</sub>*. J. Appl. Phys., [77\(9\):4467–4476](#), 1995. [Ref. auf S. [86](#)]
- [Abd09] F. ABDI, M. AILLERIE, P. BOURSON und M. D. FONTANA: *Defect structure in Mg-doped LiNbO<sub>3</sub>: Revisited study*. J. Appl. Phys., [106:033519](#), 2009. [Ref. auf S. [5](#)]
- [Abr66] S. C. ABRAHAMS, J. M. REDDY und J. L. BERNSTEIN: *Ferroelectric lithium niobate. 3. Single crystal X-ray diffraction study at 24°C*. J. Phys. Chem. Solids, [27\(6-7\):997–1012](#), 1966. [Ref. auf S. [3](#)]
- [Abr67] S. C. ABRAHAMS und J. L. BERNSTEIN: *Ferroelectric lithium tantalate—1. Single crystal X-ray diffraction study at 24°C*. J. Phys. Chem. Solids, [28\(9\):1685–1692](#), 1967. [Ref. auf S. [7](#)]
- [Abr73] S. C. ABRAHAMS, E. BUEHLER, W. C. HAMILTON und S. J. LAPLACA: *Ferroelectric lithium tantalate—III. Temperature dependence of the structure in the ferroelectric phase and the para-electric structure at 940°K*. J. Phys. Chem. Solids, [34\(3\):521–532](#), 1973. [Ref. auf S. [12](#)]
- [And04] B. ANDREAS, K. PEITHMANN, K. BUSE und K. MAIER: *Modification of the refractive index of lithium niobate crystals by transmission of high-energy <sup>4</sup>He<sup>2+</sup> and D<sup>+</sup> particles*. Appl. Phys. Lett., [84\(19\):3813–3815](#), 2004. [Ref. auf S. [1](#)]
- [And05] B. ANDREAS: *Modifikation des Brechungsindex von Dielektrika mit Hilfe ionisierender Strahlung*. Dissertation, Universität Bonn, 2005. [Ref. auf S. [9](#), [24](#), [25](#), [27](#), [30](#), [69](#), [82](#), [83](#) und [86](#)]
- [Ari06] L. ARIZMENDI und F. J. LÓPEZ-BARBERÁ: *Lifetime of thermally fixed holograms in LiNbO<sub>3</sub> crystals doped with Mg and Fe*. Appl. Phys. B, [86\(1\):105–109](#), 2006. [Ref. auf S. [6](#)]
- [Arm62] J. A. ARMSTRONG, N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING und P. S. PERSHAN: *Interactions between light waves in a nonlinear dielectric*. Phys. Rev., [127\(6\):1918–1939](#), 1962. [Ref. auf S. [1](#)]
- [Ash66] A. ASHKIN, G. D. BOYD, J. M. DZIEDZIC, R. G. SMITH, A. A. BALLMAN, J. J. LEVINSTEIN und K. NASSAU: *Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>*. Appl. Phys. Lett., [9\(1\):72–74](#), 1966. [Ref. auf S. [6](#)]

- [Atu00] V. V. ATUCHIN: *Causes of refractive indices changes in He-implanted LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub> waveguides.* Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, [168\(4\):498–502](#), 2000. [Ref. auf S. [86](#)]
- [Ava76a] L. P. AVAKYANTS, D. F. KISELEV und N. N. SHCHITOV: *Photoelasticity of LiNbO<sub>3</sub>.* Sov. Phys. Solid State, [18\(6\):899–901](#), 1976. [Ref. auf S. [85](#)]
- [Ava76b] L. P. AVAKYANTS, D. F. KISELEV und N. N. SHCHITOV: *Photoelastic constants of LiTaO<sub>3</sub>.* Sov. Phys. Solid State, [18\(7\):1242–1243](#), 1976. [Ref. auf S. [85](#)]
- [Bae04] C. BÄUMER: *Herstellung und Charakterisierung nominell reiner und dotierter LiTaO<sub>3</sub>-Kristalle von der kongruent schmelzenden bis zur stöchiometrischen Zusammensetzung.* Dissertation, Universität Osnabrück, 2004. [Ref. auf S. [8](#)]
- [Bag10] C. M. BAGLIN: *Nuclear Data Sheets for A = 184.* Nucl. Data Sheets, [111:275–523](#), 2010. [Ref. auf S. [44](#)]
- [Bag16] C. M. BAGLIN: *Nuclear Data Sheets for A = 183.* Nucl. Data Sheets, [134:149–430](#), 2016. [Ref. auf S. [44](#)]
- [Bal67] A. A. BALLMAN, H. J. LEVINSTEIN, C. D. CAPIO und H. BROWN: *Curie temperature and birefringence variation in ferroelectric lithium metatantalate as a function of melt stoichiometry.* J. Am. Ceram. Soc., [50\(12\):657–659](#), 1967. [Ref. auf S. [7](#)]
- [Bat99] R. G. BATCHKO, V. Y. SHUR, M. M. FEJER und R. L. BYER: *Backswitch poling in lithium niobate for high-fidelity domain patterning and efficient blue light generation.* Appl. Phys. Lett., [75\(12\):1673–1675](#), 1999. [Ref. auf S. [1](#)]
- [Bec98] C. BECKER, A. GREINER, T. OESSELKE, A. PAPE, W. SOHLER und H. SUCHTE: *Integrated optical Ti:Er:LiNbO<sub>3</sub> distributed Bragg reflector laser with a fixed photorefractive grating.* Opt. Lett., [23\(15\):1194–1196](#), 1998. [Ref. auf S. [1](#)]
- [Ber68] J. G. BERGMAN, A. ASHKIN, A. A. BALLMAN, J. M. DZIEDZIC, H. J. LEVINSTEIN und R. G. SMITH: *Curie temperature, birefringence, and phase-matching temperature variations in LiNbO<sub>3</sub> as a function of melt stoichiometry.* Appl. Phys. Lett., [12\(3\):92–94](#), 1968. [Ref. auf S. [5](#)]
- [Bet30] H. BETHE: *Zur Theorie des Durchgangs schneller Korpuskularstrahlen durch Materie.* Ann. Phys., [397\(3\):325–400](#), 1930. [Ref. auf S. [9](#)]
- [Bir91] D. P. BIRNIE, III: *Model for the ferroelectric transition in nonstoichiometric lithium niobate and lithium tantalate.* J. Am. Ceram. Soc., [74\(5\):988–993](#), 1991. [Ref. auf S. [85](#)]
- [Bir93] D. P. BIRNIE, III: *Analysis of diffusion in lithium niobate.* J. of Mat. Sci., [28\(2\):302–315](#), 1993. [Ref. auf S. [79](#)]
- [Bis80] H. H. BISSEM, R. GEORGI, W. SCOBEL, J. ERNST, M. KABA, J. RAMA RAO und H. STROHE: *Entrance and exit channel phenomena in d- and <sup>3</sup>He-induced preequilibrium decay.* Phys. Rev. C, [22:1468–1484](#), 1980. [Ref. auf S. [71](#)]

- [Blo33a] F. BLOCH: *Bremsvermögen von Atomen mit mehreren Elektronen*. Z. Physik, [81\(5\):363–376](#), 1933. [Ref. auf S. 9]
- [Blo33b] F. BLOCH: *Zur Bremsung rasch bewegter Teilchen beim Durchgang durch Materie*. Ann. Phys., [408\(3\):285–320](#), 1933. [Ref. auf S. 9]
- [Boe73] C. J. F. BÖTTCHER: *Dielectrics in static fields*, Band 1 der Reihe *Theory of Electric Polarization*. Elsevier (Amsterdam, London, New York), 2. Auflage, 1973. [Ref. auf S. 11]
- [Bra79] C. L. BRANQUINHO, S. M. A. HOFFMANN, G. W. A. NEWTON, V. J. ROBINSON, H.-Y. WANG, I. S. GRANT und J. A. B. GOODALL: *Excitation functions and isomer ratios in the reactions  $^{93}\text{Nb}(\alpha, xn)$  ( $x = 1-4$ )*. J. inorg. nucl. Chem., [41\(5\):617–623](#), 1979. [Ref. auf S. 70]
- [Bre98] S. BREER, H. VOGT, I. NEE und K. BUSE: *Low crosstalk WDM by Bragg diffraction from thermally fixed reflection holograms in lithium niobate crystals*. Electron. Lett., [34\(25\):2419–2421](#), 1998. [Ref. auf S. 1]
- [Bri02] E. M. BRINGA und R. E. JOHNSON: *Coulomb explosion and thermal spikes*. Phys. Rev. Lett., [88:165501](#), 2002. [Ref. auf S. 10]
- [Bry84] D. A. BRYAN, R. GERSON und H. E. TOMASCHKE: *Increased optical damage resistance in lithium niobate*. Appl. Phys. Lett., [44\(9\):847–849](#), 1984. [Ref. auf S. 6]
- [Bye70] R. L. BYER, J. F. YOUNG und R. S. FEIGELSON: *Growth of high-quality  $\text{LiNbO}_3$  crystals from the congruent melt*. J. Appl. Phys., [41\(6\):2320–2325](#), 1970. [Ref. auf S. 4]
- [Cam82] C. K. CAMPBELL, Y. YE und J. J. SFERRAZZA PAPA: *Wide-band linear phase SAW filter design using slanted transducer fingers*. IEEE Trans. Sonics Ultrason., [29\(4\):224–228](#), 1982. [Ref. auf S. 1]
- [Can96] B. CANUT, S. M. M. RAMOS, R. BRENIER, P. THEVENARD, J. L. LOUBET und M. TOULEMONDE: *Surface modifications of  $\text{LiNbO}_3$  single crystals induced by swift heavy ions*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, [107\(1-4\):194–198](#), 1996. [Ref. auf S. 10]
- [Can98] B. CANUT und S. M. M. RAMOS: *The concept of effective electronic stopping power for modelling the damage cross-section in refractory oxides irradiated by GeV ions or MeV clusters*. Radiat. Eff. Defects Solids, [145\(1-2\):1–27](#), 1998. [Ref. auf S. 9 und 10]
- [Cha86] P. J. CHANDLER, E. GLAVAS, F. LAMA, S. E. LAX und P. D. TOWNSEND: *Refractive index profiles of ion implanted optical waveguides*. Radiat. Eff., [98\(1-4\):211–226](#), 1986. [Ref. auf S. 9, 76 und 81]
- [Cha89] P. J. CHANDLER, L. ZHANG, J. M. CABRERA und P. D. TOWNSEND: *“Missing modes” in ion-implanted  $\text{LiNbO}_3$  waveguides*. Appl. Phys. Lett., [54\(14\):1287–1289](#), 1989. [Ref. auf S. 10]

- [Cha03] H. CHAIB, T. OTTO und L. M. ENG: *Electrical and optical properties of  $\text{LiNbO}_3$  single crystals at room temperature*. Phys. Rev. B, **67**:174109, 2003. [Ref. auf S. 83]
- [Cha04] H. CHAIB, T. OTTO und L. M. ENG: *Modeling the electrical and optical properties of  $\text{BaTiO}_3$  and  $\text{LiNbO}_3$  single crystals at room temperature*. Ferroelectrics, **304**(1):93–98, 2004. [Ref. auf S. 83]
- [Che68] F. S. CHEN, J. T. LAMACCHIA und D. B. FRASER: *Holographic storage in lithium niobate*. Appl. Phys. Lett., **13**(7):223–225, 1968. [Ref. auf S. 1]
- [Chu99] S. Y. F. CHU, L. P. EKSTRÖM und R. B. FIRESTONE: *WWW Table of Radioactive Isotopes*. Datenbank Version 2.0 1999-02-28 unter <http://nucleardata.nuclear.lu.se/toi/>, 1999. [Ref. auf S. 23, 39, 40 und 41]
- [Del77] T. A. DELLIN, D. A. TICHENOR und E. H. BARSIS: *Volume, index-of-refraction, and stress changes in electron-irradiated vitreous silica*. J. Appl. Phys., **48**(3):1131–1138, 1977. [Ref. auf S. 12]
- [Den67] R. T. DENTON, F. S. CHEN und A. A. BALLMAN: *Lithium tantalate light modulators*. Journal of Applied Physics, **38**(4):1611–1617, 1967. [Ref. auf S. 1]
- [Der71] J.-P. DEROYON und P. THERY: *Contribution a l'étude de l'effet photoélastique dans les cristaux fortement piézoélectriques. Calcul des constantes photoélastiques de quelques cristaux piézoélectriques*. J. Phys., **32**(7):579–582, 1971. [Ref. auf S. 14]
- [Des79] G. L. DESTEFANIS, J. P. GAILLIARD, E. L. LIGEON, S. VALETTE, B. W. FARMERY, P. D. TOWNSEND und A. PEREZ: *The formation of waveguides and modulators in  $\text{LiNbO}_3$  by ion implantation*. J. Appl. Phys., **50**(12):7898–7905, 1979. [Ref. auf S. 1]
- [DiD69] M. DIDOMENICO, JR. und S. H. WEMPLE: *Oxygen-octahedra ferroelectrics. I. Theory of electro-optical and nonlinear optical effects*. J. Appl. Phys., **40**(2):720–734, 1969. [Ref. auf S. 12, 13 und 84]
- [Dix67] R. W. DIXON: *Photoelastic properties of selected materials and their relevance for applications to acoustic light modulators and scanners*. J. Appl. Phys., **38**(13):5149–5153, 1967. [Ref. auf S. 85]
- [dM82] M. DE MICHELI, J. BOTINEAU, P. SIBILLOT, D. B. OSTROWSKY und M. PAPUCHON: *Fabrication and characterization of titanium indiffused proton exchanged (TIPE) waveguides in lithium niobate*. Opt. Commun., **42**(2):101–103, 1982. [Ref. auf S. 1]
- [Don91] H. J. DONNERBERG, S. M. TOMLINSON und C. R. A. CATLOW: *Defects in  $\text{LiNbO}_3$ —II. Computer Simulation*. J. Phys. Chem. Solids, **52**(1):201–210, 1991. [Ref. auf S. 5]



- [Ern82] J. ERNST, R. IBOWSKI, H. KLAMPFL, H. MACHNER, T. MAYER-KUCKUK und R. SCHANZ: *Investigation of  $\alpha$ -induced reactions on niobium and tantalum*. Z. Physik A, **308(4):301–313**, 1982. [Ref. auf S. 70]
- [Fej92] M. M. FEJER, G. A. MAGEL, D. H. JUNDT und R. L. BYER: *Quasi-phase-matched second harmonic generation: Tuning and tolerances*. IEEE J. Quant. Electron., **28(11):2631–2654**, 1992. [Ref. auf S. 1]
- [Fle65] R. L. FLEISCHER, P. B. PRICE und R. M. WALKER: *Ion explosion spike mechanism for formation of charged-particle tracks in solids*. J. Appl. Phys., **36(11):3645–3652**, 1965. [Ref. auf S. 10]
- [Gla74] A. M. GLASS, D. VON DER LINDE und T. J. NEGRAN: *High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in  $\text{LiNbO}_3$* . Appl. Phys. Lett., **25(4):233–235**, 1974. [Ref. auf S. 1]
- [Gla88] E. GLAVAS, L. ZHANG, P. J. CHANDLER und P. D. TOWNSEND: *Thermal stability of ion implanted  $\text{LiTaO}_3$  and  $\text{LiNbO}_3$  optical waveguides*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, **32(1-4):45–50**, 1988. [Ref. auf S. 9, 10 und 81]
- [GN06] A. GARCÍA-NAVARRO, A. MÉNDEZ, J. OLIVARES, G. GARCÍA, F. AGULLÓ-LÓPEZ, M. ZAYAT, D. LEVY und L. VAZQUEZ: *Morphology of ion tracks and nanopores in  $\text{LiNbO}_3$  produced by swift-ion-beam irradiation*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, **249(1-2):172–176**, 2006. [Ref. auf S. 9 und 10]
- [GN07] A. GARCÍA-NAVARRO, F. AGULLÓ-LÓPEZ, M. BIANCONI, J. OLIVARES und G. GARCÍA: *Kinetics of ion-beam damage in lithium niobate*. J. Appl. Phys., **101:083506**, 2007. [Ref. auf S. 9 und 10]
- [Gop96] V. GOPALAN und M. C. GUPTA: *Observation of internal field in  $\text{LiTaO}_3$  single crystals: Its origin and time-temperature dependence*. Appl. Phys. Lett., **68(7):888–890**, 1996. [Ref. auf S. 8]
- [Gop97] V. GOPALAN und M. C. GUPTA: *Origin and characteristics of internal fields in  $\text{LiNbO}_3$  crystals*. Ferroelectrics, **198(1):49–59**, 1997. [Ref. auf S. 6 und 7]
- [Gop07] V. GOPALAN, V. DIEROLF und D. A. SCRYMGEOUR: *Defect-domain wall interactions in trigonal ferroelectrics*. Annu. Rev. Mater. Res., **37:449–489**, 2007. [Ref. auf S. 4 und 6]
- [Gra91] B. C. GRABMAIER, W. WERSING und W. KOESTLER: *Properties of undoped and MgO-doped  $\text{LiNbO}_3$ ; correlation to the defect structure*. J. Cryst. Growth, **110(3):339–347**, 1991. [Ref. auf S. 5]
- [Haa14] M. HAAKS: *M\_Spec 2*. Programm und Informationen unter [http://agmaier.hiskp.uni-bonn.de/mspec\\_2.html](http://agmaier.hiskp.uni-bonn.de/mspec_2.html), 2014. [Ref. auf S. 22]
- [Haf86] L. HAFID und F. M. MICHEL-CALENDINI: *Electronic structure of  $\text{LiNbO}_3$ : Densities of states, optical anisotropy and spontaneous polarisation calculated from the  $X\alpha$  molecular orbital method*. J. Phys. C: Solid State Phys., **19(16):2907**, 1986. [Ref. auf S. 83]

- [Hat07] H. HATTERMANN: *Modifikation der Materialeigenschaften von Lithiumniobat durch Teilchenbestrahlung*. Diplomarbeit, Universität Bonn, 2007. [Ref. auf S. 9, 34 und 88]
- [Her74a] F. HERMES, E. W. JASPER, H. E. KURZ und T. MAYER-KUCKUK: *Analysis of (particle, xn) reactions on tantalum and gold: (I).  $^{181}\text{Ta}(\alpha, xn)$  excitation functions up to 104 MeV and equilibrium statistical model analysis*. Nucl. Phys. A, **228(1):165–174**, 1974. [Ref. auf S. 70 und 71]
- [Her74b] F. HERMES, E. W. JASPER, H. E. KURZ, T. MAYER-KUCKUK, P. F. A. GOUDSMIT und H. ARNOLD: *Analysis of (particle, xn) reactions on tantalum and gold: (II).  $^{181}\text{Ta}$ ,  $^{197}\text{Au}({}^3\text{He}, xn)$  excitation functions and equilibrium statistical model analysis*. Nucl. Phys. A, **228(1):175–179**, 1974. [Ref. auf S. 71]
- [Hin08] F. HINTERBERGER: *Physik der Teilchenbeschleuniger und Ionenoptik*. Springer (Berlin, Heidelberg, New York), 2. Auflage, 2008. [Ref. auf S. 20]
- [Hod88] E. R. HODGSON und F. AGULLÓ-LÓPEZ: *Displacement damage in  $\text{LiNbO}_3$* . Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, **32(1-4):42–44**, 1988. [Ref. auf S. 10]
- [Ish94] S. ISHIHARA, M. TACHIKI und T. EGAMI: *Covalency contributions to the electronic polarizability in dielectric compounds*. Phys. Rev. B, **49(23):16123–16128**, 1994. [Ref. auf S. 11]
- [Ish08] H. ISHIZUKI und T. TAIRA: *Mg-doped congruent  $\text{LiTaO}_3$  crystal for large-aperture quasi-phase matching device*. Opt. Express, **16(21):16963–16970**, 2008. [Ref. auf S. 8]
- [Ism88] M. ISMAIL und A. S. DIVATIA: *Measurement and analysis of alpha-induced reactions on Ta, Ag and Co*. Pramana, **30(3):193–210**, 1988. [Ref. auf S. 71]
- [Iyi92] N. IYI, K. KITAMURA, F. IZUMI, J. K. YAMAMOTO, T. HAYASHI, H. ASANO und S. KIMURA: *Comparative study of defect structures in lithium niobate with different compositions*. J. Solid State Chem., **101(2):340–352**, 1992. [Ref. auf S. 4]
- [Jac82] J. L. JACKEL, C. E. RICE und J. J. VESELKA: *Proton exchange for high-index waveguides in  $\text{LiNbO}_3$* . Appl. Phys. Lett., **41(7):607–608**, 1982. [Ref. auf S. 1]
- [Jen08a] L. JENTJENS, H. HATTERMANN, K. PEITHMANN, M. HAAKS, K. MAIER und M. KÖSTERS: *Domain reversal properties and refractive index changes of magnesium doped lithium niobate upon ion exposure*. J. Appl. Phys., **103:034104**, 2008. [Ref. auf S. 1, 2 und 7]
- [Jen08b] L. JENTJENS: *Brechungsindex und Polungsverhalten in Lithiumniobat nach  ${}^3\text{He}$ -Bestrahlung*. Diplomarbeit, Universität Bonn, 2008. [Ref. auf S. 9, 34, 35 und 88]
- [Jen09] L. JENTJENS, K. PEITHMANN, K. MAIER, H. STEIGERWALD und T. JUNGK: *Radiation-damage-assisted ferroelectric domain structuring in magnesium-doped lithium niobate*. Appl. Phys. B, **95(3):441–445**, 2009. [Ref. auf S. 2]

- [Jen10] L. JENTJENS: *Bestrahlungsinduzierte Modifikation der Materialparameter in magnesiumdotiertem Lithiumniobat*. Dissertation, Universität Bonn, 2010. [Ref. auf S. 2, 4, 7, 9, 49, 53, 69, 88 und 90]
- [Jen11] L. JENTJENS, N. L. RAETH, K. PEITHMANN und K. MAIER: *Electrical conductivity and asymmetric material changes upon irradiation of Mg-doped lithium niobate crystals with low-mass, high-energy ions*. J. Appl. Phys., **109**:124104, 2011. [Ref. auf S. 2 und 73]
- [Jia07] Y. JIANG, K.-M. WANG, X.-L. WANG, F. CHEN, C.-L. JIA, L. WANG und Y. JIAO: *Model of refractive-index changes in lithium niobate waveguides fabricated by ion implantation*. Phys. Rev. B, **75**:195101, 2007. [Ref. auf S. 83 und 86]
- [Jud94] T. R. JUDGE und P. J. BRYANSTON-CROSS: *A review of phase unwrapping techniques in fringe analysis*. Opt. Lasers Eng., **21**(4):199–239, 1994. [Ref. auf S. 27]
- [Jud02] T. R. JUDGE und P. J. BRYANSTON-CROSS: *Automatic fringe analysis (FRAN)*. Programm und Informationen unter <http://www.eng.warwick.ac.uk/oel/previous/fran.htm>, 2002. [Ref. auf S. 26, 27, 47 und 54]
- [Kie09] J. KIESSLING, R. SOWADE, I. BREUNIG, K. BUSE und V. DIEROLF: *Cascaded optical parametric oscillations generating tunable terahertz waves in periodically poled lithium niobate crystals*. Opt. Express, **17**(1):87–91, 2009. [Ref. auf S. 6]
- [Kim01a] I. G. KIM, S. TAKEKAWA, Y. FURUKAWA, M. LEE und K. KITAMURA: *Growth of  $Li_xTa_{1-x}O_3$  single crystals and their optical properties*. J. Cryst. Growth, **229**(1-4):243–247, 2001. [Ref. auf S. 7]
- [Kim01b] S. KIM, V. GOPALAN, K. KITAMURA und Y. FURUKAWA: *Domain reversal and nonstoichiometry in lithium tantalate*. J. Appl. Phys., **90**(6):2949–2963, 2001. [Ref. auf S. 4, 5, 6 und 7]
- [Kit92] K. KITAMURA, J. K. YAMAMOTO, N. IYI, S. KIRNURA und T. HAYASHI: *Stoichiometric  $LiNbO_3$  single crystal growth by double crucible Czochralski method using automatic powder supply system*. J. Cryst. Growth, **116**(3-4):327–332, 1992. [Ref. auf S. 5]
- [Kit98] K. KITAMURA, Y. FURUKAWA, K. NIWA, V. GOPALAN und T. MITCHELL: *Crystal growth and low coercive field  $180^\circ$  domain switching characteristics of stoichiometric  $LiTaO_3$* . Appl. Phys. Lett., **73**(21):3073–3075, 1998. [Ref. auf S. 7]
- [Kos04] S. M. KOSTRITSKII und P. MORETTI: *Micro-Raman study of defect structure and phonon spectrum of He-implanted  $LiNbO_3$  waveguides*. phys. stat. sol. (c), **1**(11):3126–3129, 2004. [Ref. auf S. 10]
- [Kos07] S. M. KOSTRITSKII und P. MORETTI: *Specific behavior of refractive indices in low-dose  $He^+$ -implanted  $LiNbO_3$  waveguides*. J. Appl. Phys., **101**:094109, 2007. [Ref. auf S. 10 und 86]

- [LB99] H. SCHOPPER (Herausgeber): *Production of Radionuclides at Intermediate Energies*, Band I/13 der Reihe *Landolt-Börnstein, New Series*. Springer (Berlin, Heidelberg, New York), 1991-1999. [Ref. auf S. 9 und 108]
- [LBa91] A. S. ILJINOV, V. G. SEMENOV, M. P. SEMENOVA, N. M. SOBOLEVSKY und L. V. UDOVENKO: *Interactions of Protons with Targets from He to Br*. Band A der Reihe SCHOPPER, H. [LB99], 1991. [Ref. auf S. 70]
- [LBf95] V. G. SEMENOV, M. P. SEMENOVA und N. M. SOBOLEVSKY: *Interactions of Deuterons, Tritons and  $^3\text{He}$ -nuclei with Nuclei*. Band F der Reihe SCHOPPER, H. [LB99], 1995. [Ref. auf S. 70 und 71]
- [LBh96] V. G. SEMENOV, M. P. SEMENOVA und N. M. SOBOLEVSKY: *Interactions of  $\alpha$ -Particles with Targets from Sr to Cf*. Band H der Reihe SCHOPPER, H. [LB99], 1996. [Ref. auf S. 70 und 71]
- [Ler68] P. LERNER, C. LEGRAS und J. P. DUMAS: *Stoichiométrie des monocristaux de métaniobate de lithium*. *J. Cryst. Growth*, **3-4**:231–235, 1968. [Ref. auf S. 4]
- [Lor80a] H. A. LORENTZ: *Ueber die Beziehung zwischen der Fortpflanzungsgeschwindigkeit des Lichtes und der Körperdichte*. *Ann. Phys.*, **245(4)**:641–665, 1880. [Ref. auf S. 11]
- [Lor80b] L. LORENZ: *Ueber die Refraktionsconstante*. *Ann. Phys.*, **247(9)**:70–103, 1880. [Ref. auf S. 11]
- [Mar73] L. MARCULESCU und G. HAURET: *Étude de l'effet Brillouin à température ordinaire dans le niobate de lithium*. *C. R. Acad. Sci. B*, **276**:555–558, 1973. [Ref. auf S. 85]
- [Mat92] P. J. MATTHEWS, A. R. MICKELSON und S. W. NOVAK: *Properties of proton exchange waveguides in lithium tantalate*. *J. Appl. Phys.*, **72(7)**:2562–2574, 1992. [Ref. auf S. 1]
- [Max65] J. C. MAXWELL: *A Dynamical Theory of the Electromagnetic Field*. *Phil. Trans. R. Soc. Lond.*, **155**:459–512, 1865. [Ref. auf S. 1]
- [Mil66] R. C. MILLER und A. SAVAGE: *Temperature dependence of the optical properties of ferroelectric  $\text{LiNbO}_3$  and  $\text{LiTaO}_3$* . *Appl. Phys. Lett.*, **9(4)**:169–171, 1966. [Ref. auf S. 12]
- [Miy71] S. MIYAZAWA und H. IWASAKI: *Congruent melting composition of lithium metatantalate*. *J. Cryst. Growth*, **10(3)**:276–278, 1971. [Ref. auf S. 7]
- [Mok93] F. H. MOK: *Angle-multiplexed storage of 5000 holograms in lithium niobate*. *Opt. Lett.*, **18(11)**:915–917, 1993. [Ref. auf S. 1 und 6]
- [Mur55] J. J. MURRAY, F. BOEHM, P. MARMIER und J. W. M. DUMOND: *Decays of  $\text{Ta}^{182}$  and  $\text{Ta}^{183}$* . *Phys. Rev.*, **97(4)**:1007–1016, 1955. [Ref. auf S. 70]

- [Nas66] K. NASSAU, H. J. LEVINSTEIN und G. M. LOIACONO: *Ferroelectric lithium niobate. 2. Preparation of single domain crystals*. J. Phys. Chem. Solids, **27(6-7):989–996**, 1966. [Ref. auf S. 3]
- [Nel72] D. F. NELSON, P. D. LAZAY und M. LAX: *Brillouin scattering in anisotropic media: Calcite*. Phys. Rev. B, **6(8):3109–3120**, 1972. [Ref. auf S. 14]
- [Nye79] J. F. NYE: *Physical Properties of Crystals. Their Representation by Tensors and Matrices*. Oxford University Press (Oxford), 1979. Ursprünglich erschienen 1957. [Ref. auf S. 13 und 14]
- [Par02] K. R. PARAMESWARAN, R. K. ROUTE, J. R. KURZ, R. V. ROUSSEV, M. M. FEJER und M. FUJIMURA: *Highly efficient second-harmonic generation in buried waveguides formed by annealed and reverse proton exchange in periodically poled lithium niobate*. Opt. Lett., **27(3):179–181**, 2002. [Ref. auf S. 1]
- [Pei06a] K. PEITHMANN, M.-R. ZAMANI-MEYMIAN, M. HAAKS, K. MAIER, B. ANDREAS und I. BREUNIG: *Refractive index changes in lithium niobate crystals by high-energy particle radiation*. J. Opt. Soc. Am. B, **23(10):2107–2112**, 2006. [Ref. auf S. 1, 75 und 76]
- [Pei06b] K. PEITHMANN, M.-R. ZAMANI-MEYMIAN, M. HAAKS, K. MAIER, B. ANDREAS, K. BUSE und H. MODROW: *Fabrication of embedded waveguides in lithium-niobate crystals by radiation damage*. Appl. Phys. B, **82(3):419–422**, 2006. [Ref. auf S. 1]
- [Pei11] K. PEITHMANN, P.-D. EVERSHEIM, J. GOETZE, M. HAAKS, H. HATTERMANN, S. HAUBRICH, F. HINTERBERGER, L. JENTJENS, W. MADER, N. L. RAETH, H. SCHMID, M.-R. ZAMANI-MEYMIAN und K. MAIER: *Structuring of material parameters in lithium niobate crystals with low-mass, high-energy ion radiation*. Appl. Phys. B, **105(1):113–127**, 2011. [Ref. auf S. 1]
- [Pyl78] R. V. PYLE, L. RUBY und J. W. STERBENTZ: *Measurement of the  ${}^6\text{Li}({}^3\text{He},d){}^7\text{Be}$  and  ${}^7\text{Li}({}^3\text{He},t){}^7\text{Be}$  cross sections*. Trans. Am. Nucl. Soc., **30:623–625**, 1978. [Ref. auf S. 70]
- [Rae10] N. L. RÄTH: *Strukturierter Brechungsindex durch Ionenbestrahlung*. Diplomarbeit, Universität Bonn, 2010. [Ref. auf S. 9, 76 und 77]
- [Rae14] N. L. RAETH, J. GOETZE, K. PEITHMANN und K. MAIER: *Refractive index changes and nuclear activation upon irradiation of lithium niobate crystals with different low-mass, high-energy ions*. Appl. Phys. A, **117(3):1041–1044**, 2014. [Ref. auf S. 38, 42 und 50]
- [Ram78] V. RAMASWAMY, M. D. DIVINO und R. D. STANDLEY: *Balanced bridge modulator switch using Ti-diffused  $\text{LiNbO}_3$  strip waveguides*. Appl. Phys. Lett., **32(10):644–646**, 1978. [Ref. auf S. 1]
- [Ram94] N. RAMESH und R. ETHIRAJ: *Electronic polarizabilities of ions in lithium niobate crystal*. J. Mater. Sci. Lett., **13(10):757–758**, 1994. [Ref. auf S. 11]

- [Ram00] J. RAMS, J. OLIVARES, P. J. CHANDLER und P. D. TOWNSEND: *Mode gaps in the refractive index properties of low-dose ion-implanted LiNbO<sub>3</sub> waveguides*. J. Appl. Phys., **87(7):3199–3202**, 2000. [Ref. auf S. 86]
- [Riv11] A. RIVERA, G. GARCÍA, J. OLIVARES, M. L. CRESPILO und F. AGULLÓ-LÓPEZ: *Elastic (stress-strain) halo associated with ion-induced nano-tracks in lithium niobate: Role of crystal anisotropy*. J. Phys. D: Appl. Phys., **44:475301**, 2011. [Ref. auf S. 10 und 80]
- [Sch91] O. F. SCHIRMER, O. THIEMANN und M. WÖHLECKE: *Defects in LiNbO<sub>3</sub>—I. Experimental Aspects*. J. Phys. Chem. Solids, **52(1):185–200**, 1991. [Ref. auf S. 4 und 5]
- [Sch93] U. SCHLARB und K. BETZLER: *Refractive indices of lithium niobate as a function of wavelength and composition*. J. Appl. Phys., **73(7):3472–3476**, 1993. [Ref. auf S. 5]
- [Sco68] N. E. SCOTT, J. W. COBBLE und P. J. DALY: *A comparison of reactions induced by medium-energy <sup>3</sup>He and <sup>4</sup>He ions in heavy target nuclei*. Nucl. Phys. A, **119(1):131–145**, 1968. [Ref. auf S. 71]
- [Scr05] D. A. SCRYMGEOUR, V. GOPALAN, A. ITAGI, A. SAXENA und P. J. SWART: *Phenomenological theory of a single domain wall in uniaxial trigonal ferroelectrics: Lithium niobate and lithium tantalate*. Phys. Rev. B, **71:184110**, 2005. [Ref. auf S. 4, 6 und 8]
- [Sha93] R. D. SHANNON: *Dielectric polarizabilities of ions in oxides and fluorides*. J. Appl. Phys., **73(1):348–366**, 1993. [Ref. auf S. 11]
- [Sig77] A. SIGRIST und R. BALZER: *Untersuchungen zur Bildung von Tracks in Kristallen*. Helv. Phys. Acta, **50(1):49–64**, 1977. [Ref. auf S. 10]
- [Sin94] N. L. SINGH, S. MUKHERJEE und D. R. S. SOMAYAJULU: *Non-equilibrium analysis of ( $\alpha, xn$ ) reactions on heavy nuclei*. Il Nuovo Cimento A, **107(9):1635–1645**, 1994. [Ref. auf S. 71]
- [Sin10] B. SINGH und J. C. ROEDIGER: *Nuclear Data Sheets for A=182*. Nucl. Data Sheets, **111(8):2081–2330**, 2010. [Ref. auf S. 44]
- [Sug78] K. SUGII, M. FUKUMA und H. IWASAKI: *A study on titanium diffusion into LiNbO<sub>3</sub> waveguides by electron probe analysis and X-ray diffraction methods*. J. Mater. Sci., **13(3):523–533**, 1978. [Ref. auf S. 13]
- [Sze95] G. SZENES: *General features of latent track formation in magnetic insulators irradiated with swift heavy ions*. Phys. Rev. B, **51(13):8026–8029**, 1995. [Ref. auf S. 10]
- [Tou94] M. TOULEMONDE, S. BOUFFARD und F. STUDER: *Swift heavy ions in insulating and conducting oxides: Tracks and physical properties*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, **91(1-4):108–123**, 1994. [Ref. auf S. 10]

- [Ubi00] S. B. UBIZSKII, A. O. MATKOVSKII, N. A. MIRONOVA-ULMANE, V. SKVORTSOVA, A. SUCHOCKI, Y. A. ZHYDACHEVSKII und P. POTERA: *Radiation displacement defect formation in some complex oxide crystals*. Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, **166-167**:40–46, 2000. [Ref. auf S. 9]
- [Vol96] T. VOLK, M. WÖHLECKE, N. RUBININA, A. REICHERT und N. RAZUMOVSKI: *Optical-damage-resistant impurities (Mg, Zn, In, Sc) in lithium niobate*. Ferroelectrics, **183(1)**:291–300, 1996. [Ref. auf S. 6]
- [Wei74] D. T. Y. WEI, W. W. LEE und L. R. BLOOM: *Large refractive index change induced by ion implantation in lithium niobate*. Appl. Phys. Lett., **25(6)**:329–331, 1974. [Ref. auf S. 1]
- [Wei85] R. S. WEIS und T. K. GAYLORD: *Lithium niobate: summary of physical properties and crystal structure*. Appl. Phys. A, **37(4)**:191–203, 1985. [Ref. auf S. 3, 4, 5, 13, 82, 83 und 85]
- [Wem68] S. H. WEMPLE, M. DIDOMENICO, JR. und I. CAMLIBEL: *Relationship between linear and quadratic electro-optic coefficients in  $\text{LiNbO}_3$ ,  $\text{LiTaO}_3$ , and other oxygen-octahedra ferroelectrics based on direct measurement of spontaneous polarization*. Appl. Phys. Lett., **12(6)**:209–211, 1968. [Ref. auf S. 12 und 84]
- [Wen05] M. C. WENGLER: *Lichtinduzierte Inversion ferroelektrischer Domänen in Lithiumniobat-Kristallen*. Dissertation, Universität Bonn, 2005. [Ref. auf S. 34 und 35]
- [Yam12] YAMAJU CERAMICS CO. LTD.: *Private Mitteilung*, 2012. [Ref. auf S. 8 und 82]
- [Yao04] J. H. YAO, Y. H. CHEN, B. X. YAN, H. L. DENG, Y. F. KONG, S. L. CHEN, J. J. XU und G. Y. ZHANG: *Characteristics of domain inversion in magnesium-oxide-doped lithium niobate*. Physica B, **352(1-4)**:294–298, 2004. [Ref. auf S. 6 und 7]
- [Yat00] A. V. YATSENKO: *Calculation of electronic ion polarizability and parameters of interionic repulsion in  $\text{LiNbO}_3$  crystals*. Phys. Solid State, **42(9)**:1722–1726, 2000. [Ref. auf S. 83]
- [Yat01] A. V. YATSENKO: *Calculation of the electronic polarizability of an  $\text{O}^{2-}$  ion in stoichiometric  $\text{LiNbO}_3$* . Physica B, **305(3-4)**:287–292, 2001. [Ref. auf S. 11 und 83]
- [Zha91a] L. ZHANG, P. J. CHANDLER und P. D. TOWNSEND: *Extra “strange” modes in ion implanted lithium niobate waveguides*. J. Appl. Phys., **70(3)**:1185–1189, 1991. [Ref. auf S. 10]
- [Zha91b] L. ZHANG, P. J. CHANDLER und P. D. TOWNSEND: *Optical analysis of damage profiles in ion implanted  $\text{LiNbO}_3$* . Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B, **59-60**:1147–1152, 1991. [Ref. auf S. 10]
- [Zie84] J. F. ZIEGLER: *Ion Implantation Science and Technology*, Kapitel The Stopping and Range of Ions in Solids, Seiten 51–108. Academic Press (Orlando), 1984. [Ref. auf S. 9 und 21]

- [Zie85] J. F. ZIEGLER, J. P. BIRSACK und U. LITTMARK: *The Stopping and Range of Ions in Solids*. Pergamon Press (New York), 1985. [Ref. auf S. 9 und 21]
- [Zie08] J. F. ZIEGLER, M. D. ZIEGLER und J. P. BIRSACK: *The Stopping and Range of Ions in Matter (SRIM-2008)*. Programm und Informationen unter <http://www.srim.org>, 2008. [Ref. auf S. 21, 22, 46, 71, 72, 74, 75, 83, 93, 94 und 95]
- [Zil93] C. ZILING, L. POKROVSKII, N. TERPUGOV, I. SAVATINOVA, M. KUNEVA, S. TONCHEV, M. N. ARMENISE und V. M. N. PASSARO: *Optical and structural properties of annealed PE:LiNbO<sub>3</sub> waveguides formed with pyrophosphoric and benzoic acids*. J. Appl. Phys., **73(7):3125–3132**, 1993. [Ref. auf S. 86]
- [ZM07] M.-R. ZAMANI-MEYMIAN: *Brechungsindexänderungen in Lithiumniobat-Kristallen durch Strahlenschäden*. Dissertation, Universität Bonn, 2007. [Ref. auf S. 9, 10, 33, 53, 74, 76, 77, 78, 79 und 81]
- [ZM09] M.-R. ZAMANI-MEYMIAN, K. PEITHMANN, K. MAIER, H. SCHMID und W. MADER: *Direct visualization of damage cascades in lithium niobate crystals caused by high-energy ions*. J. Phys. Condens. Matter, **21:075402**, 2009. [Ref. auf S. 10 und 80]
- [ZM10] M.-R. ZAMANI-MEYMIAN, L. JENTJENS, N. L. RAETH, K. PEITHMANN und K. MAIER: *Thermal and long-term stability of fast-ion-irradiation-induced refractive index changes in lithium niobate crystals*. Appl. Phys. A, **98(4):909–912**, 2010. [Ref. auf S. 1 und 53]
- [Zyk06] *Das Bonner Isochron-Zyklotron*. <http://www.zyklotron.hiskp.uni-bonn.de/zyklo/index.html>, 2006. [Ref. auf S. 17 und 18]



# Liste eigener Veröffentlichungen

- M.-R. ZAMANI-MEYMIAN, L. JENTJENS, N. L. RAETH, K. PEITHMANN und K. MAIER: *Thermal and long-term stability of fast-ion-irradiation-induced refractive index changes in lithium niobate crystals*. Appl. Phys. A, [98\(4\):909–912](#), 2010.
- L. JENTJENS, N. L. RAETH, K. PEITHMANN und K. MAIER: *Electrical conductivity and asymmetric material changes upon irradiation of Mg-doped lithium niobate crystals with low-mass, high-energy ions*. J. Appl. Phys., [109:124104](#), 2011.
- K. PEITHMANN, P.-D. EVERSHEIM, J. GOETZE, M. HAAKS, H. HATTERMANN, S. HAUBRICH, F. HINTERBERGER, L. JENTJENS, W. MADER, N. L. RAETH, H. SCHMID, M.-R. ZAMANI-MEYMIAN und K. MAIER: *Structuring of material parameters in lithium niobate crystals with low-mass, high-energy ion radiation*. Appl. Phys. B, [105\(1\):113–127](#), 2011.
- N. L. RAETH, J. GOETZE, K. PEITHMANN und K. MAIER: *Refractive index changes and nuclear activation upon irradiation of lithium niobate crystals with different low-mass, high-energy ions*. Appl. Phys. A, [117\(3\):1041–1044](#), 2014.



# Danksagung

Vielen Menschen möchte ich gerne für ihre vielfältige Unterstützung bei der Anfertigung dieser Arbeit danken.

An erster Stelle steht ein riesiges Dankeschön an meinen Betreuer Prof. Dr. Karl Maier, der mich in seine Arbeitsgruppe aufgenommen hat und mir nach meiner Diplomarbeit die Möglichkeit zur Promotion gab. Mit seiner netten Art und seinem schier unerschöpflichen Wissen hatte er zu jedem Problem die passende Lösung parat. Danke auch an seine überaus herzliche Frau; beide haben durch ihre häufige Gastfreundschaft und Einladungen zu Beisammensein mit leckerem Essen das Arbeitsgruppenleben enorm bereichert.

Ich danke Priv.-Doz. Dr. Elisabeth Soergel sehr herzlich für die Übernahme des Zweitgutachtens. Bei Prof. Dr. Carsten Urbach und Prof. Dr. Johannes Beck bedanke ich mich sehr dafür, dass sie meine Promotionskommission komplettieren.

Besonderer Dank geht an Dr. Konrad Peithmann für seine Unterstützung und Betreuung während meiner Arbeit. Mit seiner Erfahrung und Fachkompetenz leistete er einen großen Beitrag zu den Messungen und Auswertungen. Ihm sei auch für das wertvolle Feedback beim Korrekturlesen dieser Arbeit und die stets unkomplizierte Art bei verwaltungstechnischen Anliegen und Beschaffungen gedankt.

Johannes Goetze und Pascal Neumeister lieferten während ihrer Master- und Diplomarbeiten in unserem kleinen Projekt wesentliche Beiträge für die gemeinsamen Messungen, Auswertungen und Ergebnisse. Für ihre produktive und angenehme Mitarbeit danke ich beiden aufs Herzlichste. Ein Dankeschön geht auch an meine „Vorgängerin“ Dr. Lena Jentjens, die mich während meiner Diplomarbeit in das Forschungsthema eingeführt hat.

Ich bedanke mich sehr bei Dr. Matz Haaks für die freundliche Bereitstellung und spezielle Anpassung seines Programms M\_Spec 2. Meinem Labor- und Flurnachbarn Marius Arenz gebührt großer Dank für das Betreiben des von mir verwendeten Gammadetektors und viele Stunden physikalischer und nicht-physikalischer Konversation.

Dr. Deniz Ulucay danke ich für seine Hilfe bei diversen Projekten in der Studentenwerkstatt und viele Gespräche über Physik, Technik und die berufliche Zukunft. Ihm und Sylvia Napiletzki bin ich auch für das sorgfältige und kritische Korrekturlesen dieser Arbeit und das Finden der kleineren und größeren Fehler sehr verbunden.

An Sebastian Theilenberg geht Dank für Diskussionen über die Wichtigkeit der korrekten Farbskala und Hilfe bei physikalischen Überlegungen oder L<sup>A</sup>T<sub>E</sub>X-Problematiken. Ihm und Henning Dickten danke ich auch für die nette Gesellschaft in der heißen Schreibphase.

Auch bei Anna-Lisa Kofahl, Judith Wild und Jakob Bindl bedanke ich mich für die langjährige gemeinsame Zeit und viel Spaß und Freude beim Arbeiten und Nicht-Arbeiten.

Ebenso sei allen weiteren aktuellen und ehemaligen Mitgliedern der Gruppe Maier sowie unseren Flurnachbarn der Gruppe Vianden für die tolle Atmosphäre auch bei vielen außer-universitären Anlässen gedankt. Ich werde gerne an diese Zeit zurückdenken.

Danke an Dr. Michael Steffens und Dr. Christoph Wendel für die angenehme Zusammenarbeit und manchmal nötige Rückendeckung bei der Ausübung meiner Lehrverpflichtung.

Für die problemlose Durchführung der teils tagelangen Strahlzeiten sowie die Wartungen und Reparaturen der Maschine danke ich Stefan Birkenbach, Stephan Dernbach, Achim Henny, Bert Kann, Siegbert Lehmann und Oliver Rast aus dem Bonner Zyklotron-Team aufs Herzlichste. Ohne ihren Einsatz wären die Messungen der vorliegenden Arbeit nicht möglich gewesen. Ein großer Dank geht auch an die Mitarbeiter des Oberflächenlabors sowie der Elektronik- und Feinmechanikwerkstätten für die immer ausgezeichnet und schnell durchgeführten Arbeiten.

Ich bedanke mich bei den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern in der Verwaltung und Technik des Instituts sowie bei den Fachkräften der Fachbereichs- und Zentralbibliotheken für das Bereitstellen der Infrastruktur, ohne die Forschungsarbeit nicht möglich wäre.

Zu guter Letzt danke ich meinen Eltern, die mich während meines Lebens immer unterstützt und motiviert haben. Meiner Frau Anja bin ich unendlich dankbar dafür, dass sie in jeder Phase meines Studiums immer verständnisvoll für mich da war, auch wenn sie zu oft auf mich verzichten musste.