



**UNIVERSITÄT PADERBORN**  
*Die Universität der Informationsgesellschaft*

Fakultät für Naturwissenschaften - Department Physik

# Visualisierung ferroelektrischer Domänenstrukturen in Lithiumniobat mittels konfokaler nichtlinearer Mikroskopie

Dem Department Physik der Universität Paderborn zur Erlangung des  
akademischen Grades eines Doktors der Naturwissenschaften (Dr. rer. nat.)  
vorgelegte

Dissertation

*von*

Dipl. Phys. Gerhard Berth

Erstgutachter: Prof. Dr. Artur Zrenner

Zweitgutachter: Prof. Dr. Wolfgang Sohler







# Inhaltsverzeichnis

<b>Inhaltsverzeichnis .....</b>	<b>4</b>
<b>Einleitung .....</b>	<b>6</b>
<b>1 Theoretische Grundlagen.....</b>	<b>10</b>
1.1 Aspekte der nichtlinearen und integrierten Optik.....	10
1.1.1 Nichtlineare Polarisation des Mediums.....	12
1.1.2 Nichtlineare Prozesse .....	14
1.1.3 Nichtlinearer Koeffizient .....	19
1.1.4 Die Phasenanpassung.....	21
1.1.5 Frequenzverdopplung.....	24
1.2 Eigenschaften ferroelektrischer Materialen .....	26
1.2.1 Allgemeine Betrachtung .....	26
1.2.2 Eigenschaften von Lithiumniobat.....	27
1.3 Konfokale Mikroskopie und Spektroskopie .....	31
1.3.1 Mikroskopie und konfokales Prinzip .....	31
1.3.2 Beugungsbegrenztes Auflösungsvermögen .....	33
1.3.3 Beispiele konfokaler Mikroskopieanwendungen.....	39
1.3.4 Aspekte der Spektroskopie.....	41
1.3.5 Raman-Effekt und Raman-Spektroskopie .....	45
<b>2 Nichtlineare Mikroskopie an Domänenstrukturen.....</b>	<b>49</b>
2.1 Experimenteller Aufbau des nichtlinearen CLSM .....	49
2.2 Ferroelektrische Domänenstruktur in Z-Schnitt LN .....	55
2.2.1 SHG-Signatur der PPLN-Oberfläche .....	57
2.2.2 Analyse des PPLN-Volumenkristalls.....	59
2.2.3 SHG-Verhalten im Streifenwellenleiter (Ti:PPLN) .....	61
2.2.4 Zirkulare Polungsstruktur in LN.....	62

2.3 Mikrodomänen in X- u. Y-Schnitt LiNbO <sub>3</sub> .....	65
2.3.1 Planare Polungsstruktur in X- Schnitt PPLN .....	66
2.3.2 Rippenwellenleiter auf X- und Y-Schnitt LN .....	68
<b>3. Bildgebende Ramanspektroskopie an PPLN .....</b>	<b>69</b>
3.1 Experimenteller $\mu$ -Raman Aufbau.....	69
3.2 Visualisierung der ferroelektrischen Domänenstruktur .....	69
<b>4. Zusammenfassung und Ausblick .....</b>	<b>69</b>
<b>Anhang A: Technik zur LSM .....</b>	<b>69</b>
<b>Anhang B: Technik zur <math>\mu</math>-Raman-Spektroskopie.....</b>	<b>69</b>
<b>Anhang C: Moden in Wellenleitern.....</b>	<b>69</b>
<b>Literaturverzeichnis .....</b>	<b>69</b>
<b>Publikationsliste .....</b>	<b>69</b>
<b>Danksagung .....</b>	<b>69</b>

## Einleitung

In Wissenschaft und Technik ist ein deutlicher Trend hin zu Mikro- und Nano-Technologien zu erkennen. Das betrifft nicht nur „typische“ Bereiche der Informatik und Physik, wie beispielsweise die Halbleiterphysik und integrierte Optik, sondern reicht weit in Gebiete der Chemie, Biologie oder modernen Medizin hinein [RH+05]. Um funktionale und effiziente Strukturen in dieser Größenordnung zu realisieren, ist zum einen ein tieferes Verständnis der ablaufenden physikalischen Prozesse und zum anderen eine prozessoptimierte Herstellung notwendig. Beides bedingt eine örtlich hochauflöste Analysemethode, die dann auch spezifisch sensitiv der jeweiligen physikalischen Fragestellung angepasst ist. Im Bereich der optischen Analytik basieren solche Untersuchungsmethoden häufig auf dem konfokalen Prinzip, welches sich aufgrund einer konfokalen Filterung (konfokale Lochblende) durch eine Streulichtunterdrückung und eine zusätzliche Tiefenauflösung auszeichnet. Solche konfokalen Verfahren ermöglichen daher eine dreidimensionale Analyse von Mikro- und Nanostrukturen. Bei der herkömmlichen konfokalen Laser-Rastermikroskopie (CLSM, Confocal Laser Scanning Microscopy) wird das elastisch gestreute Licht mikroskopiert, so dass eine Abbildung und Kontrolle dreidimensionaler Oberflächenstrukturen möglich ist. Je nach physikalischem Effekt kann eine konfokale Mikroskopie bzw. Spektroskopie und somit ortsaufgelöst eine Visualisierung unterschiedlicher Informationen erfolgen. So werden verschiedene, dem zu untersuchendem System charakteristische Eigenschaften über einen physikalischen Effekt analysiert. Beispielsweise können durch die  $\mu$ -Raman-Spektroskopie (inelastische Streuung) Verspannungen oder die örtlich variierende Materialzusammensetzungen in Halbleiterstrukturen untersucht werden [Wol95] [SM+05] [SMN07]. Ein weiteres Beispiel stellt die konfokale Fluoreszenzmikroskopie dar; hier können dann Systeme selektiv auf den Fluophor (auch als Marker) bzw. resultierende Quenchprozesse örtlich aufgelöst betrachtet werden [HB+09].

Im Bereich der integrierten Optik spielen nichtlinear-optische Effekte eine zentrale Rolle! Hier kann dann bei entsprechender Anregung die nichtlineare Antwort des Systems (z.B. die zweite Harmonische) durch eine nichtlinear konfokale Mikroskopie örtlich aufgelöst detektiert werden. Das enorme technologische und wirtschaftliche Potential der integrierten Optik zeigt sich in seinem breiten Anwendungsspektrum, welches von der Informationstechnologie (Datenverarbeitung, Übertragungstechnik) über die optische Sensorik (Umweltanalyse, Medizin) bis hin zur Photonik reicht. Ein typisches Beispiel für die kommerzielle Ausnutzung solcher nichtlinearer Phänomene in integriert optischen Bauelementen ist die Frequenzkonversion (z.B. Frequenzverdoppelung, Differenzfrequenzerzeugung, Optische Parametrische Oszillation).

Ein häufig genutztes Basismaterial für solche Bauelemente stellt das Ferroelektrikum Lithiumniobat ( $\text{LiNbO}_3$ , LN) dar, welches sich durch seine vielschichtigen Eigenschaften auszeichnet. Diese sind vor allem piezoelektrischer, elektrooptischer u. optisch nichtlinearer Natur. Lithiumniobat ist doppelbrechend. Seine vergleichsweise großen nichtlinearen Koeffizienten und der ausgedehnte Transparenzbereich (ca.  $0,35 \mu\text{m} - 5 \mu\text{m}$ ) prädestinieren Lithiumniobat gerade für die Frequenzkonversion. Hier stellt die Phasenanpassung einen entscheidenden Parameter dar, welcher die Größe des konstruktiven Wechselwirkungsbereichs der beteiligten optischen Felder bestimmt. Hinsichtlich einer effektiven Frequenzkonversion muss die Dispersion des Kristalls für die wechselwirkenden Frequenzen ausgeglichen werden. Bei nichtlinearen Bauelementen auf der Basis optischer Wellenleiter wird das Prinzip der „Quasi-Phasenanpassung“ (QPM, Quasi-Phase Matching) angewandt, welches sich die Mikrodomäneninversion zunutze macht [Fej94]. An den Domänengrenzen auftretende Phasensprünge kompensieren im Mittel die unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten der beteiligten Lichtwellen. Der Einsatzbereich solcher periodischer Strukturen, wie beispielsweise in periodisch gepoltem Lithiumniobat (PPLN), hängt wesentlich von Schärfe, Homogenität, Tiefenausdehnung und Periode der Domänenstruktur ab. Die nichtlineare konfokale Laser-Raster-Mikroskopie ermöglicht eine Abbildung dieser ferroelektrischen Domänenstruktur, wobei die lokale Effizienz des frequenzverdoppelten Signals (SHG, Second Harmonic Generation) durch örtliche Variation des Laserfokus erfasst wird [SM01][RF01][CKI01]. Die nichtlineare CLSM stellt hier eine hochaufgelöste und zudem kontaminationsarme 3D-Analysemethode dar.

Originäres Ziel dieser Arbeit ist die Charakterisierung und Abbildung der übertragenen ferroelektrischen Domänenstruktur in Lithiumniobat (LN). Hierfür sollte ein konfokales Laser-Rastermikroskop bezüglich einer nichtlinearen Analyse auf einer sub- $\mu\text{m}$  Längenskala entwickelt und realisiert werden, was sowohl den optischen Aufbau selbst als auch die entsprechende Regelungs- und Steuertechnik beinhaltet. Die nichtlineare konfokale Mikroskopie soll im Wesentlichen an periodisch gepolten  $\text{LiNbO}_3$ -Strukturen (PPLN) erfolgen und deren Tomographie bei der Klärung zugrunde liegender Kontrastmechanismen helfen. Ferner soll ausgelotet werden, ob und inwieweit sich die  $\mu$ -Raman-Spektroskopie als bildgebendes Verfahren zur Kontrolle der übertragenen Domänenstruktur eignet.

Die Arbeit strukturiert sich im Weiteren wie folgt:

- Im ersten Kapitel werden zunächst einige Grundlagen und Aspekte der nichtlinearen Optik betrachtet. So finden sich hier unter anderem Abhandlungen über die nichtlineare Polarisation und die Frequenz-Konversion. Es schließt ein kurzer Abriss über die Eigenschaften ferroelektrischer Materialien an, wobei im speziellen Lithiumniobat näher betrachtet wird. Anschließend werden die für diese Dissertation wesentlichen Aspekte der konfokalen Mikroskopie und Spektroskopie diskutiert. So wird hier beispielsweise das konfokale Prinzip erklärt und exemplarisch auf Ergebnisse verschiedener konfokaler Anwendungen eingegangen. Schließlich werden der Raman-Effekt selbst und einige Grundlagen zur Raman-Spektroskopie erörtert.
- Die Ergebnisse bezüglich der nichtlinearen konfokalen Mikroskopie werden im zweiten Kapitel vorgestellt. Anfangs werden hier das experimentelle Setup beschrieben und die Systemparameter dargelegt. Anschließend werden die Resultate aus der nichtlinearen Analyse an gepolten LN-Strukturen präsentiert und diskutiert, wobei hier eine Unterteilung bezüglich Orientierung und Struktur erfolgt. Dies reicht von Z-Schnitt PPLN über LN mit zirkularer Polungsstruktur bis hin zu Planar- bzw. Rippenstrukturen in X- u. Y-Schnitt PPLN.
- Das dritte Kapitel widmet sich der konfokalen Raman-Spektroskopie an PPLN-Strukturen. Nach einer kurzen Vorstellung der experimentellen Gegebenheiten folgt die Präsentation der Messergebnisse anhand derer die Eignung dieser Methode als weiteres Analyseverfahren für die Inspektion von PPLN-Strukturen aufgezeigt wird.
- Im abschließenden vierten Kapitel werden die Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst, was einen Ausblick für künftige Entwicklungen beinhaltet.



# 1 Theoretische Grundlagen

In diesem Kapitel werden im ersten Teil wesentlichen Aspekte der nichtlinearen Optik diskutiert, was im engen Bezug zur integrierten Optik geschieht. Ausgehend von der nichtlinearen Polarisation von Materie werden wichtige nichtlineare Prozesse vorgestellt und die Möglichkeiten zur Phasenanpassung für eine effiziente nichtlineare Wechselwirkung diskutiert. Es schließt eine kurze Betrachtung der Eigenschaften von ferroelektrischen Materialien an. Der zweite Teil dieses Kapitels widmet sich der konfokalen Mikroskopie und Spektroskopie. Es wird hier das konfokale Prinzip erläutert und auf die spezifischen Eigenschaften der beiden Analysemethoden eingegangen. Das Kapitel endet mit einer kurzen Einführung in die Raman-Spektroskopie.

## 1.1 Aspekte der nichtlinearen und integrierten Optik

Die nichtlineare Optik beschäftigt sich mit der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie, wobei die optischen Eigenschaften von Materie unter dem Einfluss intensiver Strahlung verändert werden. Bereits Ende des 19. Jahrhunderts fand man Wege, das Ausbreitungsverhalten von Licht in Materie zu beeinflussen. Beispielsweise beschreibt der Pockels-Effekt (1893) die lineare und der Kerr-Effekt (1875) die quadratische Abhängigkeit der Brechzahl von einem äußeren elektrischen Feld. Die Beeinflussung der Brechzahlverhältnisse durch Verzerrungs- und Spannungswellen, also der akustooptische Effekt wurde 1922 von Brillouin vorhergesagt [BM+90]. Vor allem interessiert hier die gezielte Beeinflussung der optischen Eigenschaften nichtlinearer Medien unter dem Einfluss von Licht. Solche nichtlinearen Effekte bedingen sehr intensive Strahlung, so dass erst durch die Entwicklung des Lasers deren Erforschung möglich wurde. Um die Wechselwirkung von Licht und Materie quantitativ beschreiben zu können bedient man sich der induzierten nichtlinearen Polarisation.

Betrachte man die Polarisation  $\vec{P}$  (Summe aller atomaren Dipolmomente pro Volumeneinheit) in der linearen Optik, so ist die induzierte Polarisation in Materie proportional zum elektrischen Feld  $\vec{E}$  einer optischen Welle [HL99]:

$$\vec{P} = \epsilon_0 \chi \vec{E} \quad (1.00)$$

Dieses Verhalten gilt für Felder mit niedriger Intensität. 1961 wurde erstmals die Erzeugung nichtlinearer Effekte der Polarisation aus optischen Feldern beobachtet. Die Erzeugung der zweiten Harmonischen (SHG, Second Harmonic Generation) und später des Frequenz-

mischens bzw. der optischen Summen- und Differenz-Frequenz führte zu einer Überarbeitung der Gleichung für die induzierte Polarisation (1.00) und schließlich zu ihrer Darstellung als Potenzreihe.

Grundlegend für die Beschreibung der Lichtausbreitung elektromagnetischer Wellen sind die Maxwellgleichungen. Wird von einem Material ohne freie (keine Ladungsdichten,  $\vec{\rho} = 0$ ) oder bewegte Ladungsträger (keine Stromdichte,  $\vec{j} = 0$ ,) ausgegangen, ergeben sich die Maxwellgleichungen wie folgt:

$$\nabla \times \vec{H}(\vec{r}, t) = \frac{\partial \vec{D}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (1.01a)$$

$$\nabla \times \vec{E}(\vec{r}, t) = -\frac{\partial \vec{B}(\vec{r}, t)}{\partial t} \quad (1.01b)$$

$$\nabla \cdot \vec{D}(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.01c)$$

$$\nabla \cdot \vec{B}(\vec{r}, t) = 0 \quad (1.01d)$$

Hier sind  $\vec{H}$  und  $\vec{E}$  die magnetische bzw. elektrische Feldstärke.  $\vec{D}$  steht für die dielektrische Verschiebung und  $\vec{B}$  für die magnetische Flussdichte. Wie in der Physik üblich ist der Operator  $\nabla$  definiert als  $\nabla = (\partial / \partial x, \partial / \partial y, \partial / \partial z)$ . Das Verhalten des Mediums unter Einfluss eines elektromagnetischen Feldes wird durch die Materialgleichungen beschrieben:

$$\vec{B} = \mu_0 \tilde{\mu}_r \cdot \vec{H} \quad (1.02a)$$

$$\vec{D} = \epsilon_0 \tilde{\epsilon}_r \cdot \vec{E} \quad (1.02b)$$

$\mu_0$  und  $\epsilon_0$  bezeichnen die magnetische bzw. elektrische Feldkonstante.  $\tilde{\mu}_r$  und  $\tilde{\epsilon}_r$  stellen die relative magnetische bzw. dielektrische Permeabilität dar.

Mit den Gleichungen 1.01b (beidseitige Bildung der Rotation) und 1.01c ergibt sich unter der Voraussetzung einer schwachen Ortsabhängigkeit von  $\tilde{\epsilon}_r$  die Wellengleichung einer sich in Materie ausbreitenden elektromagnetischen Strahlung:

$$\nabla^2 \vec{E} = \mu_0 \epsilon_0 \tilde{\epsilon}_r \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \quad (1.03a)$$

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial x^2} = \frac{\tilde{\epsilon}_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \quad (1.03b)$$

Hier bezeichnet  $c = 1/(\epsilon_0 \mu_0)^{1/2}$  die Lichtgeschwindigkeit, wodurch Gleichung 1.03a sich zu Gleichung 1.03b umformen lässt. Hier wurde eine Ausbreitung der Welle in x-Richtung betrachtet. Die Lösung der linearen Differentialgleichung ergibt ebene Wellen:

$$\vec{E}(x,t) = \vec{E}_0 \cos(\omega t - kx) = \frac{1}{2} \vec{E}_0 e^{i(\omega t - kx)} + c.c. \quad (1.04)$$

### 1.1.1 Nichtlineare Polarisation des Mediums

In der linearen Optik wird angenommen, dass der Brechungsindex  $n = \epsilon^{1/2}$  in einem Dielektrikum und somit auch die elektrische Suszeptibilität  $\chi$  ausschließlich von der Frequenz  $\omega$  abhängt und nicht von der Amplitude des elektrischen Feldes. Die im Medium erzeugte Polarisation  $\vec{P}$  ist dann proportional zum angelegten elektrischen Feld  $\vec{E}$ . Es gilt dann:

$$\vec{P}(\omega) = \epsilon_0 \tilde{\chi}(\omega) \vec{E}(\omega) \quad (1.05)$$

Der Tensor der Suszeptibilität  $\tilde{\chi} = (\tilde{\epsilon} - 1)$  stellt eine Matrix mit komplexen Koeffizienten dar und ordnet jedem  $\vec{E}$  eindeutig ein  $\vec{P}$  zu. Die dielektrische Verschiebung  $\vec{D}$  im Dielektrikum ergibt sich mit (1.05) zu:

$$\begin{aligned} \vec{D}(\omega) &= \epsilon_0 \cdot \vec{E}(\omega) + \vec{P}(\omega) \\ &= \epsilon_0 \cdot \vec{E}(\omega) + \epsilon_0 \tilde{\chi}(\omega) \vec{E}(\omega) \\ &= \epsilon_0 \cdot (1 + \tilde{\chi}(\omega)) \cdot \vec{E}(\omega) = \epsilon_0 \tilde{\epsilon}(\omega) \cdot \vec{E}(\omega) \end{aligned} \quad (1.06)$$

Der erste Summand beschreibt das Verhalten im Vakuum, dem der Einfluss der Materie (zweiter Summand) überlagert ist. Es ändert sich hier also nicht die Frequenz des Lichtes beim Durchgang durch Materie. Für kleinere Feldstärken können nichtlineare Effekte vernachlässigt werden, so dass dann ein linearer Zusammenhang zwischen elektrischem Feld und der in einem Medium induzierten Polarisation vorliegt.

Bei hohen Lichtintensitäten hängt die elektrische Suszeptibilität von der Stärke des elektrischen Feldes ab. Die elektrische Suszeptibilität lässt sich in eine Taylorreihe nach den Potenzen des elektrischen Feldes entwickeln:

$$\tilde{\chi} = \tilde{\chi}^{(1)} + \tilde{\chi}^{(2)} \vec{E} + \tilde{\chi}^{(3)} \vec{E} \cdot \vec{E} + \dots \quad (1.07)$$

$\tilde{\chi}^{(1)}$ ,  $\tilde{\chi}^{(2)}$ ,  $\tilde{\chi}^{(3)}$  sind die Suszeptibilitäten erster, zweiter und dritter Ordnung und somit tensorielle Materialkoeffizienten. Die Suszeptibilität erster Ordnung beschreibt alle linear optischen Effekte (für LiNbO<sub>3</sub> ist es ein 3×3 Tensor mit nicht verschwindenden Elementen auf den Hauptdiagonalen). Die Größe der nichtlinearen Suszeptibilität hängt von der Art und Symmetrie des Mediums ab. Sie gibt Auskunft über die Verformung der Elektronenhülle durch die einfallende Lichtwelle.

Die Polarisation  $\vec{P}$  ergibt sich nun wie folgt (Beiträge des magnetischen Felds zu Polarisation sollen hier und später keine Berücksichtigung finden):

$$\begin{aligned}\vec{P} &= \epsilon_0 (\tilde{\chi}^{(1)} \vec{E} + \tilde{\chi}^{(2)} \vec{E} \cdot \vec{E} + \tilde{\chi}^{(3)} \vec{E} \cdot \vec{E} \cdot \vec{E} + \dots) \\ \vec{P} &= \vec{P}_{lin} + \vec{P}_{nl}\end{aligned}\quad (1.08)$$

Der erste Term beschreibt das lineare und die weiteren Terme das nichtlineare Verhalten der Polarisation. Der Tensor zweiter Stufe ( $\tilde{\chi}^{(1)}$ ) weist aus Symmetriegründen nur drei voneinander unabhängige Komponenten auf [WG85]. Die komplexen Tensorelemente enthalten im Realteil den Brechungsindex und im Imaginärteil die Absorption als anisotrope Materialparameter.

Die lineare Differentialgleichung aus Gleichung 1.03b wird nun durch die nichtlineare Polarisation um eine Störung erweitert, es gilt dann die Wellengleichung:

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial x^2} = \frac{\tilde{\epsilon}_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 P_{NL}}{\partial t^2} \quad (1.09)$$

Betrachtet wird jetzt eine Welle, die eine Addition von zwei ebenen Wellen darstellt:

$$\vec{E} = \vec{E}_1 \cos(\omega_1 t + k_1 x) + \vec{E}_2 \cos(\omega_2 t + k_2 x) \quad (1.10)$$

Durch Anwendung des Additionstheorems  $\cos^2 b = 1/2 \cdot (1 + \cos 2b)$  ergibt sich:

$$P^{(2)} = \epsilon_0 \tilde{\chi}^{(2)} \left[ \left( \vec{E}_1^2 + \vec{E}_2^2 \right) + \vec{E}_1^2 \cos(2\omega_1 t) + \vec{E}_2^2 \cos(2\omega_2 t) + 2\vec{E}_1 \vec{E}_2 \cos[(\omega_1 + \omega_2)t] + 2\vec{E}_1 \vec{E}_2 \cos[(\omega_1 - \omega_2)t] \right] \quad (1.11)$$

Die hier auftretenden Terme können verschiedenen Prozessen zugeordnet werden. Die Gleichung enthält einen konstanten und frequenzunabhängigen Term (optische Gleichrichtung), weiterhin Anteile mit  $2\omega_1$  und  $2\omega_2$  (SHG), welche Amplituden aufweisen, die proportional zum Quadrat der Feldstärke der beteiligten Wellen sind. Es sind ebenfalls Terme enthalten, die auf der Summen-, bzw. Differenzfrequenz oszillieren (SFG, DFG). Für die Intensität der abgestrahlten Oberwellen gilt:

$$\begin{aligned} I(2\omega) &\propto I^2(\omega), \\ I(\omega_1 \pm \omega_2) &\propto I(\omega_1) \cdot I(\omega_2) \end{aligned} \quad (1.12)$$

### 1.1.2 Nichtlineare Prozesse

#### Nichtlineare Effekte 2. Ordnung:

- Frequenzverdopplung:

Unter ausschließlicher Betrachtung des Terms 2. Ordnung gilt für eine monochromatische Welle im verlustfreien nichtlinearen Medium:

$$\vec{P} = \epsilon_0 \left[ \tilde{\chi}^{(1)} \vec{E}_0 \cos(\omega t) + (\tilde{\chi}^{(2)} \vec{E}_0 \cos(\omega t)) \vec{E}_0 \cos(\omega t) \right] \quad (1.13)$$

Es genügt nun für die Erzeugung der ersten Oberwelle ( $\omega_{\text{Oberwelle}} = 2\omega_{\text{Fundamentale}}$ ) die Betrachtung von  $\tilde{\chi}^{(2)}$ , somit vereinfacht sich die Wellengleichung aus (1.09) zu:

$$\frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial x^2} = \frac{\tilde{\epsilon}_r}{c^2} \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \frac{\epsilon_0}{c^2} \frac{\partial^2 \tilde{\chi}^{(2)} \vec{E}^2}{\partial t^2} \quad (1.14)$$

Es resultiert durch den  $\vec{E}^2$ -Term nun eine, mit einer zusätzlichen neuen Frequenz oszillierende, induzierte Polarisation. Für diese Polarisation gilt:

$$\vec{P}_2(x, t) = \tilde{\chi}^{(2)} \vec{E}_0 \cdot e^{i(2\omega t - kx)} + c.c. \quad (1.15)$$

Es entsteht eine neue Feldkomponente mit der doppelten Frequenz ( $2\omega$ ). Es liegt also Frequenzverdoppelung vor, da die schwingenden Dipole Licht doppelter Frequenz aussenden. Man spricht daher auch von der Erzeugung der zweiten Harmonischen, welche in Kristallen mit Inversionssymmetrie nicht möglich ist. Die SHG kann im Photonenbild als die Kombination zweier Photonen mit der Frequenz  $\omega$  zu einem Photon der Frequenz  $2\omega$  beschrieben werden (Drei-Wellen-Mischen).

- Gleichrichtung

Die Anwendung des Additionstheorems  $\cos \alpha \cdot \cos \beta = 1/2[\cos(\alpha - \beta) + \cos(\alpha + \beta)]$  auf die Gleichung 1.13 und eine entsprechende Umformung liefert für die Polarisation:

$$\begin{aligned}\vec{P} &= \varepsilon_0 \tilde{\chi}^{(1)} \vec{E}_0 \cos(\omega t) + \frac{\varepsilon_0}{2} (\tilde{\chi}^{(2)} \vec{E}_0) \vec{E}_0 + \frac{\varepsilon_0}{2} (\tilde{\chi}^{(2)} \vec{E}_0) \vec{E}_0 \cos(2\omega t) \\ &= \vec{P}_1 + \vec{P}_0 + \vec{P}_2\end{aligned}\quad (1.16)$$

Die Polarisation enthält also neben dem linearen Term  $P_1 = \varepsilon_0 \tilde{\chi}^{(1)} \vec{E}_0 \cos(\omega t)$ , welcher mit der Frequenz  $\omega$  der einfallenden Welle schwingt, und dem zuvor besprochenen Term  $P_2$  (SHG) noch einen konstanten Term  $P_0$  der von der Frequenz unabhängig ist. Man spricht hier von optischer Gleichrichtung:

$$\vec{P}_0 = \frac{\varepsilon_0}{2} (\tilde{\chi}^{(2)} \vec{E}_0) \vec{E}_0 \quad (1.17)$$

Dieser Term trägt nicht zur Bildung einer neuen Welle bei, sondern führt zur Ausbildung eines statischen elektrischen Feldes innerhalb des Kristalls.

- *Frequenzmischung:*

Bei der Einkopplung zweier Felder ( $\vec{E}_1, \vec{E}_2$ ) in den nichtlinearen Kristall treten neben den entsprechenden Oberwellen ( $2\omega_1, 2\omega_2$ ) auch die Summen- und Differenzterme ( $\omega_1 \pm \omega_2$ ) auf. Setzt man nun die Summe der beiden Felder  $\vec{E} = \vec{E}_{01} \cos(\omega_1 t) + \vec{E}_{02} \cos(\omega_2 t)$  in den Term zweiter Ordnung (vgl. 1.08) ein, so folgt nach Anwendung der ersten binomischen Formel ( $[a+b]^2=[a^2+b^2+2ab]$ ):

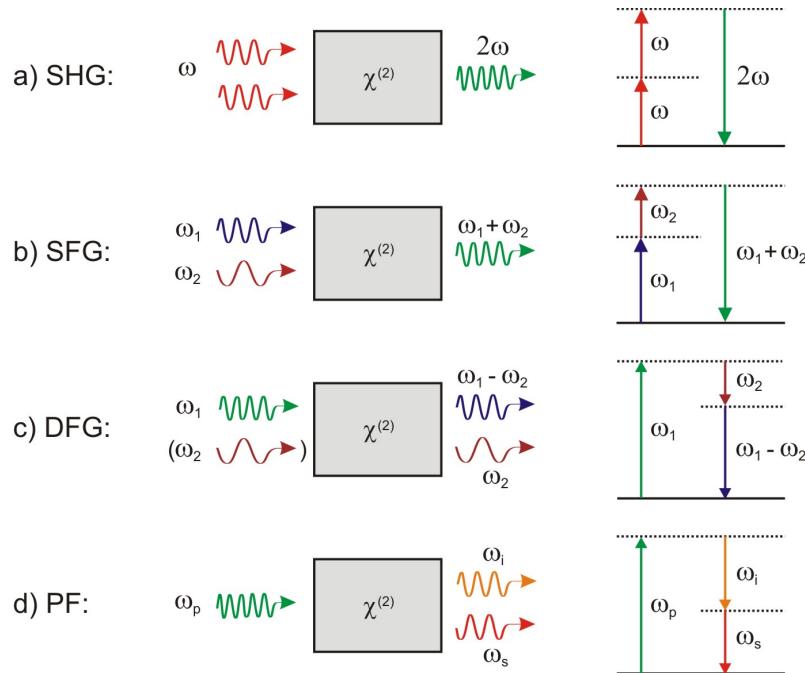
$$\vec{P} = \varepsilon_0 \tilde{\chi}^{(2)} \left( \vec{E}_{01}^2 \cos^2(\omega_1 t) + \vec{E}_{02}^2 \cos^2(\omega_2 t) + 2\vec{E}_{01} \vec{E}_{02} \cos(\omega_1 t) \cos(\omega_2 t) \right) \quad (1.18)$$

Durch Anwendung des Additionstheorems erhält man:

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \tilde{\chi}^{(2)} \left( \vec{E}_{01}^2 \cos^2(\omega_1 t) + \vec{E}_{02}^2 \cos^2(\omega_2 t) + 2\vec{E}_{01} \vec{E}_{02} \cos(\omega_1 t) \cos(\omega_2 t) \right) \quad (1.19)$$

Es ergeben sich Beiträge der Summen- und Differenzfrequenz. Die Erzeugung der Summenfrequenz (SFG) ist der SHG ähnlich, jedoch interagieren hier zwei Wellen unterschiedlicher Frequenz. Diesen Sachverhalt findet man auch in nachfolgender Abbildung 1-01 skizziert, wobei die schematische Darstellung auch zur Erläuterung anderer nichtlinearer Effekte 2. Ordnung dient.

Bei der SFG werden zwei Photonen niedriger Energie ( $\omega_1, \omega_2$ ) vernichtet, was unter Bildung eines Photons höherer Energie erfolgt ( $\omega = \omega_1 + \omega_2$ ).



*Abb. 1-01: Schematische Darstellungen zur Erläuterung von Frequenzverdopplung (SHG), Summenfrequenz-Erzeugung (SFG), Differenzfrequenz-Erzeugung (DFG) und parametrische Fluoreszenz (PF).*

Bei der Erzeugung der Differenzfrequenz (DFG) werden zwei Wellen eingestrahlt ( $\omega_1, \omega_2$ ), wobei  $\omega_1 > \omega_2$ . Es wird das Photon höherer Energie ( $\omega_1$ ) unter Erzeugung zweier Photonen kleinerer Energie ( $\omega_2, \omega_3$ ) vernichtet, wobei eines die Frequenz des eingestrahlten Photons mit kleinerer Energie ( $\omega_2$ ) aufweist. Es gilt also  $\omega_3 = \omega_1 - \omega_2$ . Neben der Erzeugung einer neuen Frequenzkomponente ( $\omega_3$ ) kommt es also zu einer Verstärkung des eingestrahlten niederfrequenten Feldes. Man erklärt sich dies dadurch, dass durch die niederfrequente Komponente ( $\omega_2$ ) ein stimulierter Zerfallsprozess vom angeregten Niveau ( $\omega_1$ ) ausgelöst wird, der dann in der Emission der beiden Photonen ( $\omega_2, \omega_3$ ) endet.

#### - Parametrischer Prozess:

Der optisch parametrische Prozess kann als Umkehrung der Frequenzmischung angesehen werden. Er wurde erstmals von S. E. Harris beobachtet [HOB67]. Ein Pump-Photon zerfällt hier in zwei Photonen (Signal- und Idler-Photon), wobei  $\omega_p = \omega_s + \omega_i$  gilt. Der Zerfall findet hier ohne Anlegen eines äußeren Feldes spontan unter dem Einfluss des Vakuumfeldes statt. Durch die Wahl der Phasenanpassung lässt sich die Frequenz von Signal- und Idler-Photon variieren.

### Nichtlineare Effekte 3. Ordnung:

In Kristallen mit Inversionszentrum muss der nichtlineare kubische Term berücksichtigt werden, welcher hier den niedrigsten nicht verschwindenden darstellt. Dieser nichtlineare Term 3-ter Ordnung führt zu einem intensitätsabhängigen Brechungsindex  $n$ , der für kleine Änderungen wie folgt dargestellt werden kann:

$$n = n_0 + \gamma |E|^2 \quad (1.20)$$

Die Dipole des Dielektrikums werden durch das elektrische Feld teilweise ausgerichtet, was sich direkt auf die Wechselwirkung mit der einfallenden Strahlung auswirkt, so dass hier der Brechungsindex modifiziert wird. Im Falle der nichtlinearen Wechselwirkung wird die Dipolausrichtung durch das intensive Lichtfeld selbst hervorgerufen.

#### - *Selbstfokussierung:*

Durchläuft ein Laserpuls ein Dielektrikum, wird aufgrund der Nichtlinearitäten der Brechungsindex  $n(r)$  im Bereich des Pulszentrums (höchste Intensität) größer. Im Bereich der Pulslängen (kleinere Intensitäten) ändert sich der Brechungsindex kaum. Es kommt zu einer Phasenkrümmung, da im Zentrum die optische Weglänge vergrößert ist. Somit wirkt das Medium wie eine Linse. Die Fokussierung führt dann zu einer weiteren Intensitätssteigerung im Zentrum und somit zur Erhöhung des Brechungsindex.

#### - *Selbstphasenmodulation:*

Im nichtlinearen Medium führen kurze Lichtpulse mit hohen Intensitätsspitzen zu einem zeitlich modulierten Brechungsindex, was dann eine Rückkopplung auf die Phase der Welle zur Folge hat. Die Nichtlinearität des Brechungsindex  $n$  geht dann über die Wellenzahl  $k=2\pi n/\lambda$  in die Phase der Lichtpulse ein.

Der Feldverlauf eines Pulses im Medium sei  $E(x,t)=E_0(t)\cos[-\phi(x,t)]$  und die Phase  $\phi(x,t)=kx-\omega t-\omega_0 t+2\pi n_0 x/\lambda_0+2\pi\gamma I(t)x/\lambda_0$ . Die Frequenz des Lichtpulses wird dann zeitabhängig. Für die Momentanfrequenz  $\omega(t)$  ergibt sich:

$$\omega(t) = -\frac{\partial \phi(x,t)}{\partial t} = \omega_0 - \frac{2\pi\gamma x}{\lambda_0} \cdot \frac{\partial I(t)}{\partial t} \quad (1.21)$$

Die Intensität steigt von Null auf ein Maximum an und fällt dann wieder auf Null zurück, somit erfolgt eine Frequenzverschiebung zu Beginn des Pulses hin zu kleineren Werten

(Rotverschiebung,  $\partial I(t)/\partial t > 0$ ) und am Pulsende hin zu größeren Werten (Blauverschiebung,  $\partial I(t)/\partial t < 0$ ). Der Puls wird durch die Selbstphasenmodulation spektral verbreitert.

- *Vierwellenmischung:*

Zwei in verschiedene Richtung laufende kohärente Wellen stellen innerhalb eines nichtlinearen Mediums ein Phasengitter dar, welches eine dritte Welle (nicht notwendigerweise kohärent zu den beiden anderen) in eine vierte Welle abbeugen kann. Diesen Effekt bezeichnet man dann als Vierwellenmischen. Zur Erklärung der physikalischen Zusammenhänge wird die nichtlineare Suszeptibilität dritter Ordnung herangezogen. In diesem Fall folgt für die Polarisation:

$$P(\vec{E}) = \tilde{\chi}^{(1)}\vec{E} + \tilde{\chi}^{(1)}\vec{E}^2 + \tilde{\chi}^{(3)}\vec{E}^3 \quad (1.22)$$

Wird ein kleines Feld  $\vec{e}$  hinzugefügt (in e werden hier nur Terme bis zur ersten Ordnung berücksichtigt) ergibt sich die Polarisation zu:

$$\vec{P} + \delta\vec{P} = \tilde{\chi}^{(1)}(\vec{E} + \vec{e}) + \tilde{\chi}^{(2)}(\vec{E}^2 + 2\vec{E}\vec{e}) + \tilde{\chi}^{(3)}(\vec{E}^3 + 3\vec{E}^2\vec{e}) \quad (1.23)$$

$$\delta\vec{P} = e \left( \tilde{\chi}^{(1)} + 2\tilde{\chi}^{(2)}\vec{E} + 3\tilde{\chi}^{(3)}\vec{E}^2 \right) \quad (1.24)$$

Für den Fall, dass e kohärent zu E ist, erhält man das Verhältnis  $\delta P/e$  durch die Mittelung des Klammerterms (Gl. 1.23):

$$\delta P/e = \left( \tilde{\chi}^{(1)} + \frac{3}{2}\vec{E}_0^2\tilde{\chi}^{(3)} \right) \quad (1.25)$$

Hier war der Mittelwert von  $E = E_0 \cos(\omega t)$  gleich Null und der von  $E^2 = \cos^2(\omega t)$  gleich  $E_0^2/2$ . Für den vom Feld gesehenen Brechungsindex ergibt sich mit  $n = \sqrt{\epsilon} = \sqrt{1+x}$ :

$$\begin{aligned} n_d &= \left( 1 + \frac{\delta P}{\epsilon_0 e} \right)^{1/2} \\ &= \left[ 1 + \left( \tilde{\chi}^{(1)} + \frac{3}{2}\tilde{\chi}^{(3)}\vec{E}_0^2 \right) / \epsilon_0 \right]^{1/2} \end{aligned} \quad (1.26)$$

Dieser Brechungsindex hängt von  $E_0$  ab. Bei der Überlagerung zweier kohärenter Wellen bildet sich die charakteristische stehende Wellenstruktur mit Knoten und Bäuchen des elektrischen Feldes aus. Entsprechend Gl. 1.26 ist der Brechungsindex für Knoten und

Bäuche unterschiedlich. Die Welle e sieht die stehende Wellenstruktur als dem Kristall aufgeprägtes Phasengitter und wird an diesem gebeugt.

### 1.1.3 Nichtlinearer Koeffizient

Im Folgenden dieser Arbeit werden nur noch nichtlineare Prozesse zweiter Ordnung betrachtet, so dass gilt:

$$\vec{P}_{\text{nl}} = \epsilon_0 \tilde{\chi}^{(2)} \vec{E} \cdot \vec{E} \quad (1.27)$$

Liegen die eingestrahlten Wellen unterhalb der Resonanzfrequenz, dann ist  $\tilde{\chi}^{(2)}$  unabhängig von der Lichtfrequenz. In diesem Fall bleibt  $\tilde{\chi}^{(2)}$  invariant gegen eine Vertauschung der beiden letzten Indizes. In der Praxis wird ein vereinfachter nichtlinearer Tensor  $\tilde{d}^{(2)}$  definiert (27 Elemente) [DGN97]:

$$d_{ijk} := \frac{1}{2} \epsilon_0 \chi_{ijk}^{(2)} \quad (1.28)$$

Die nichtlineare Polarisation lässt sich dann wie folgt darstellen:

$$\vec{P}_i = 2d_{ijk} E_j E_k \quad (1.29)$$

Der Tensor ist symmetrisch gegen Vertauschung der letzten beiden Indizes, so dass sich aufgrund der Kleinman-Symmetrie der verwendete Tensor auf 18 unabhängige Elemente reduziert und als (3x6)-Matrix darstellen lässt. Für den Tensor  $d_{ijk}$  ist eine Flächendarstellung in der Form  $d_{il}$  gebräuchlich, wobei  $i=1$  synonym zu X,  $i=2$  zu Y und  $i=3$  zu Z verwendet wird. Entsprechend der Voigt-Notation werden dann j und k zu l zusammengefasst:

$$\begin{aligned} j,k: & XX \ YY \ ZZ \ YZ = ZY \ XZ = ZX \ XY = YX \\ j,k: & 11 \ 22 \ 33 \ 23 = 32 \ 13 = 31 \ 12 = 21 \\ l = & 1 \ 2 \ 3 \ 4 \ 5 \ 6 \end{aligned} \quad (1.30)$$

Für kartesische Koordinaten können die Bezeichnungen 1, 2, 3 synonym zu X, Y, Z verwendet werden. Formal soll im Weiteren  $l$  durch  $j$  ersetzt werden. Mit der Kleinman-Regel zur Kristallsymmetrie ergibt sich nun für Lithiumniobat (Punktgruppe 3m, Spiegelebene  $\perp X$ ) nach der Voigt-Notation [Rae78]:

$$d_{ij} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 0 & d_{31} & -d_{22} \\ -d_{22} & d_{22} & 0 & d_{31} & 0 & 0 \\ d_{31} & d_{31} & d_{33} & 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \quad (1.31)$$

Der nichtlineare Koeffizient ist von den Wellenlängen der wechselwirkenden Wellen abhängig. Nach der Miller'schen Regel ergibt sich der Koeffizient für einen Mischprozess (z.B. mit  $\lambda_1, \lambda_2, \lambda_3$ ) aus einer Mischung anderer Wellen (z.B. mit  $\lambda'_1, \lambda'_2, \lambda'_3$ ) mit bekanntem nichtlinearen Koeffizienten  $d'$  wie folgt [SK+97]:

$$d_{ij} = d'_{ij} \frac{(n^2(\lambda_1) - 1) \cdot (n^2(\lambda_2) - 1) \cdot (n^2(\lambda_3) - 1)}{(n^2(\lambda'_1) - 1) \cdot (n^2(\lambda'_2) - 1) \cdot (n^2(\lambda'_3) - 1)} \quad (1.32)$$

Für die Frequenzkonversion im nichtlinearen Wellenleiter tritt anstelle des Brechungsindexwertes der sich aus dem Wellenleitermodell ergebende effektive Brechungsindex  $n_{\text{eff}}$ . In Abbildung 1-02 sind exemplarisch die wellenlängen-abhängigen Werte für die Koeffizienten  $d_{33}$  und  $d_{31}$  für LiNbO<sub>3</sub> tabellarisch aufgeführt, welche sich experimentell aus der SHG in einem Volumenkristall ergaben.

$\lambda_{\text{fundamental}} (\text{nm})$		852	1064	1313
$d_{ki} (\text{pm/V})$	$d_{33}$	25.7	25.2	19.5
	$d_{31}$	4.8	4.6	3.2

*Abb.1-02:* Tabellarische Übersicht bestimmter Koeffizientenwerte  $d_{33}$  und  $d_{31}$  für verschiedene Wellenlängen der Fundamentalen [SK+97]

### 1.1.4 Die Phasenanpassung

Die Fundamentalwelle und die zweite Harmonische besitzen aufgrund der Materialdispersion verschiedene Phasengeschwindigkeiten. Somit laufen die nichtlineare Polarisationswelle und die getriebene Oberwelle außer Phase, was zur destruktiven Interferenz führt. Je schneller die beiden Wellen aus Phase laufen, desto weniger Energie kann von der Fundamentalen auf die Oberwelle übertragen werden. Im Normalfall kann in einem dispersiven Medium die Intensität der ersten Oberwelle nicht quadratisch mit der Kristalllänge ansteigen, sondern oszilliert mit  $\sin^2$ . Die an der Stelle  $x$  erzeugte Oberwelle kann im Fall  $\Delta k = 2k_{\omega} - k_{2\omega} \neq 0$  nicht mit einer an der Stelle  $x + \Delta x$  erzeugten Oberwelle in Phase sein. Mit zunehmenden  $\Delta x$  erfolgt dann periodisch konstruktive und destruktive Interferenz. Es gilt:

$$E_{2\omega} \propto E_{\omega}^2 \int_{-\frac{1}{2}}^{\frac{1}{2}} e^{i\Delta k x} dx = \frac{\sin(\Delta k l/2)}{\Delta k l/2} \cdot l \cdot E_{\omega}^2 \quad (1.33)$$

$$I_{2\omega} \propto \left( \frac{\sin(\Delta k l/2)}{\Delta k l/2} \right)^2 \cdot l^2 \cdot I_{\omega}^2 \quad (1.34)$$

Für  $\Delta k=0$  ergibt sich maximale Verstärkung. Um diese Phasenanpassung zu gewährleisten, gibt es verschiedene Möglichkeiten, wie beispielsweise die Verwendung doppelbrechender Kristalle mit spezieller Orientierung.

#### Phasenanpassung durch Doppelbrechung:

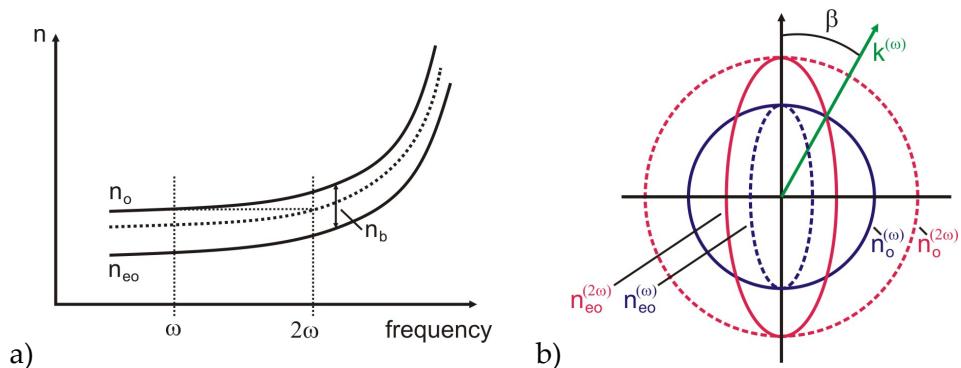
Man spricht von optischer Doppelbrechung, wenn der Brechungsindex eines Mediums von der Polarisation des eingestrahlten Lichtes abhängt. Doppelbrechung tritt auf in Kristallen mit einer oder mehreren ausgezeichneten Richtungen, den optischen Achsen. In Kristallen mit einer optischen Achse (d.h. Rotationssymmetrie des Brechungsindex) wird durch diese und die Ausbreitungsrichtung des Lichtes eine Ebene definiert. Ist nun Licht senkrecht zu dieser Ebene polarisiert, so wird die Lichtausbreitung durch den ordentlichen Brechungsindex  $n_o$  bestimmt, für Licht das parallel zu dieser Ebene polarisiert wird die Ausbreitung vom außerordentlichen Brechungsindex  $n_{eo}$  beeinflusst.

Die Bedingung  $n_{2\omega} = n_{\omega}$  kann erfüllt werden, wenn Anordnung so gewählt, dass die Oberwelle außerordentlich und die Grundwelle ordentlich polarisiert sind. Bei der Lichtausbreitung unter einem Winkel  $\beta$  zur optischen Achse kann durch Kombination beider

Brechungsindizes für die außerordentliche Polarisation jeder gewünschte Zwischenwert  $n_b$  eingestellt werden ( $n_{eo} < n_b < n_o$ ), es gilt:

$$\frac{1}{n_b^2} = \frac{\sin^2 \beta}{n_{eo}^2} + \frac{\cos^2 \beta}{n_o^2} = \frac{1}{n_{eo}^2} + \left( \frac{1}{n_o^2} - \frac{1}{n_{eo}^2} \right) \cdot \cos^2 \beta \quad (1.35)$$

Betrachte man einen strahlenden Dipol im einachsigen doppelbrechenden Kristall, so breitet sich bei ordentlicher Polarisation die Phase des Feldes auf Kugeloberflächen aus (wie im isotropen Medium), bei außerordentlicher Polarisation jedoch ergeben sich ellipsoidförmige Flächen konstanter Phasenlage.

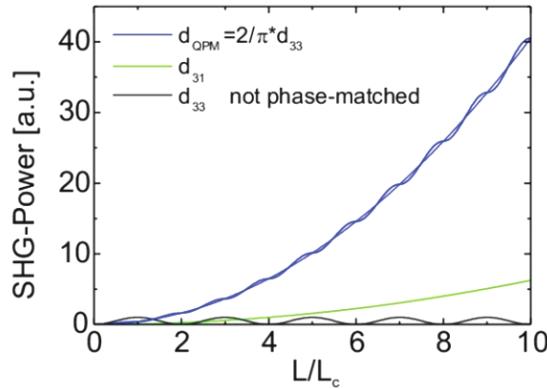


*Abb. 1-03: a) Darstellung zur Brechungsindexanpassung in einem einachsig negativ doppelbrechenden Kristall ( $n_{eo} < n_o$ ). b) Phasenanpassung erster Art: Oberwelle ( $2\omega$ ) außerordentlich und Fundamentale ( $\omega$ ) ordentlich polarisiert. Der Phasenanpassungswinkel zur optische Achse liegt im Schnittpunkt von Brechungsindexellipse des eo-polarisierten Strahls der Oberwelle und Brechungsindexkreis des o-polarisierten Strahls.*

### Quasiphasenanpassung:

Bei der Phasenanpassung durch Doppelbrechung kann der größte nichtlineare Koeffizient  $d_{33}$  nicht genutzt werden, da dieser nur Wellen gleicher Polarisation koppelt. Ein spezieller Lösungsvorschlag zur Phasenanpassung, welcher eine periodische Abfolge von Bereichen mit alternierendem Vorzeichen des nichtlinearen Koeffizienten vorsieht, wurde bereits 1962 von J. A. Armstrong und anderen gemacht [AB+62]. In früheren Arbeiten von S. Somekh und A. Yariv wurde vorgeschlagen, die Phasenanpassung durch eine Gitterstruktur an der Wellenleiteroberfläche zu erreichen [SY72]. Mittlerweile ist die Quasi-Phasenanpassung, basierend auf der periodischen Inversion des nichtlinearen Mediums, zur Standardmethode gereift. Die für die Anpassung notwendige Domänenbreite ( $\Lambda/2$ ) ist durch die Dispersion bestimmt. Unter der Kohärenzlänge  $L_c$  versteht man die Länge, bis die Phasendifferenz gekoppelter Moden den Wert  $\pi$  annimmt. Wenn die Kohärenzlänge an einer

Domänengrenze endet, entsteht eine zusätzliche Phasendifferenz von  $\pi$ , so dass die gekoppelten Moden dann wieder in Phase sind (Abb. 1-04).



**Abb. 1-04:** Diagramm zur Entwicklung der SHG ( $10x L_c$ ) ohne Phaseanpassung (schwarz), mit Phasenanpassung durch Doppelbrechung (grün) und durch QPM (blau) [Orl09].

Der periodisch modulierte nichtlineare Koeffizient in Z-Richtung kann durch eine Fourierreihe beschrieben werden. Für den effektiven nichtlinearen Koeffizienten  $d_{\text{eff}}$  gilt:

$$d_{\text{eff}} = d(z) \sum_{m=-\infty}^{\infty} G_m \exp(-i k_m z) \quad (1.36)$$

Hier stellt  $G_m$  den Fourierkoeffizienten dar. Für den Betrag des Gittervektors  $k_m$  der m-ten Fourierkomponente gilt:

$$k_m = 2\pi m / \Lambda \quad (1.37)$$

Der Fourierkoeffizienten  $G_m$  ist wie folgt definiert:

$$G_m = \frac{2}{\pi m} \sin(\pi m D) \quad (1.38)$$

$D$  ist das Tastverhältnis des Gitters, welches den Quotienten aus der Länge  $l$  und der Periode  $\Lambda$  der periodischen Struktur darstellt. Für einen QPM Prozess erster Ordnung ( $m=1$ ) mit einem Tastverhältnis von  $D = 0,5$  wird der effektive nichtlineare Koeffizient maximal. Somit gilt:

$$d_{\text{eff}} = 2d/\pi \quad (1.39)$$

Die Phasenanpassung  $\Delta k$  muss nun um einen Betrag des Gittervektors  $k_m$  erweitert werden. Für die hier betrachtete nichtlineare Wechselwirkung ändert sich die Phasenanpassungsbedingung zu:

$$\Delta k_{QPM} = \Delta k - k_i = k_p - k_s - k_i - 2\pi/\Lambda \quad (1.40)$$

Bei QPM Prozessen muss, hinsichtlich einer Änderung der Temperatur, auch die Materialausdehnung (Änderung der Periode) und die Temperaturabhängigkeit des Brechungsindexes berücksichtigt werden [Rae78].

### 1.1.5 Frequenzverdopplung

Die SHG wird auch als entartet SFG bezeichnet, wobei aus zwei Photonen der Fundamentalen ( $\omega_f$ ) über die nichtlineare Interaktion ein Photon doppelter Frequenz ( $\omega_{SH}$ ) gemäß  $\omega_f + \omega_f = \omega_{SH}$  erzeugt wird. Die in den Wellenleiter eingekoppelte Leistung  $P_f$  reduziert sich innerhalb des Mediums auf der Strecke  $L$  durch Dämpfung und die nichtlineare Wechselwirkung auf den Wert  $P_{f,L}$ . Es sollen ausschließlich Terme 2. Ordnung betrachtet werden, wobei der größte nichtlineare Koeffizienten  $d_{33}$  von LiNbO<sub>3</sub> ausgenutzt wird. Aus der Lösung der zeitabhängigen Wellengleichung ergibt sich die Bestimmungsgleichung für die Amplitude  $A(z)$ . Im Fall der Frequenzverdopplung erhält man ein System gekoppelter Differentialgleichungen wie folgt:

$$\begin{aligned} \frac{\partial A_f}{\partial z} &= -\alpha_f A_f + i \frac{2}{\pi} \frac{d_{33} \tilde{\kappa}}{c} \frac{\omega_f}{n_f} A_{SH} A_f \cdot e^{+i\Delta\beta z} \\ \frac{\partial A_{SH}}{\partial z} &= -\alpha_{SH} A_{SH} + i \frac{2}{\pi} \frac{d_{33} \tilde{\kappa}}{c} \frac{\omega_{SH}}{n_{SH}} A_f^2 \cdot e^{-i\Delta\beta z} \end{aligned} \quad (1.41)$$

$$\begin{aligned} \text{mit } \Delta\beta &= \beta_{SH} - 2\beta_f - \frac{2\pi}{\Lambda} \\ P_j &= \frac{n_{j,\text{eff}} \mathcal{E}_0 c}{2} |A_j|^2 \quad j = f, SH \end{aligned} \quad (1.42)$$

Geht man von gleichen Verlusten im Wellenleiter für die fundamentale und die frequenzverdoppelte Welle aus ( $\alpha_f = \alpha_{SH} = \alpha$ ) und betrachtet den Fall optimaler Phasen-anpassung ( $\Delta\beta = 0$ ) ergibt sich eine analytische Lösung des DGL-Systems aus (1.41) folgendermaßen:

$$\begin{aligned} P_f(L) &= P_f e^{-2\alpha L} \tanh^2(G(L)) \\ P_{SH}(L) &= P_f e^{-2\alpha L} \operatorname{sech}^2(G(L)) \end{aligned} \quad (1.43)$$

Entwicklung der Funktionen  $G(L)$ ,  $\operatorname{sech}^2(G(L))$  u.  $\exp(-2\alpha L)$  von  $P_{SH}(L)$  unter alleiniger Berücksichtigung des jeweiligen ersten Terms liefert folgende Näherung:

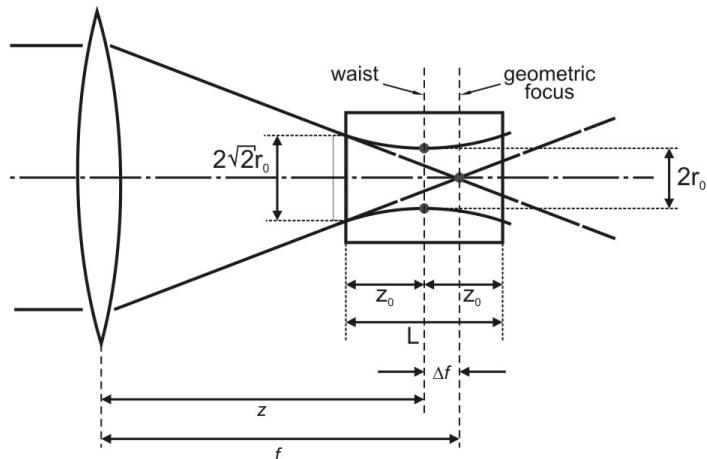
$$P_{SH}(L) = \eta_{SH,n} P_f^2 L^2$$

$$\eta_{SH,n} = \frac{32}{\epsilon_0 n_f^2 n_{SH} c} \frac{d_{33}^2 \tilde{\kappa}^2}{\lambda_f^2} e^{-2\alpha L} = \frac{8\pi^2}{\epsilon_0 n_f^2 n_{SH} c} \frac{d_{eff}^2}{A_{eff} \lambda_f^2} e^{-2\alpha L} \quad (1.44)$$

Hier stellt  $\eta_{SH,n}$  den normierten Wirkungsgrad dar (in %/Wm<sup>2</sup>), welcher mit  $1/\lambda^2$  abnimmt. Zudem weist er eine inverse Abhängigkeit zur effektiven Querschnittsfläche  $A_{eff} = \tilde{\kappa}^{-2}$  und eine quadratische vom effektiven nichtlinearen Koeffizienten auf.

### SHG mit Gaußschem Strahlenbündel:

Praktischer Weise tritt anstelle von ebenen Wellen ein fokussierter Gaußscher Strahl, dessen Fokus innerhalb des Mediums liegt. Dieser ist durch den konfokalen Parameter  $z_0$  charakterisiert (siehe Abb. 1-05). Der Rayleigh-Bereich entspricht der doppelten Länge der Strecke  $z_0 = \pi \cdot r_0^2 \cdot n / \lambda$ , bei der sich das Bündel vom kleinsten Durchmesser  $d_0=2r_0$  (Strahltaille) bis zu einem Durchmesser von  $d=2\sqrt{2}r_0$  aufgeweitet hat.



**Abb.1-05:** Schematische Darstellung zur Erläuterung der geometrischen Verhältnisse beim Gaußschem Strahlenbündel.

Bei der so genannten konfokalen Fokussierung entspricht der Rayleigh-Bereich der Probenlänge L. Für diesen Fall ( $L=2z_0$ ) ergibt sich für den Konversionswirkungsgrad  $\eta_{con}$  [Yar89]:

$$\eta_{con} = \left. \frac{P^{(2\omega)}}{P^{(\omega)}} \right|_{con} = \frac{8}{\pi c} \sqrt{\frac{\mu_0^3}{\epsilon_0^3}} \cdot \frac{\omega^3 d_{eff}^2 L}{n^2} \cdot P^{(\omega)} \cdot \frac{\sin^2(\Delta k L / 2)}{(\Delta k L / 2)^2} \quad (1.45)$$

Im Gegensatz zur Konversion im Falle ebener Wellen, steigt die Leistung  $P^{(2\omega)}$  der zweiten Harmonischen jetzt nur noch linear mit der Länge des nichtlinearen Mediums an.

## 1.2 Eigenschaften ferroelektrischer Materialen

### 1.2.1 Allgemeine Betrachtung

Von den 21 nichtzentrosymmetrischen Kristallklassen besitzen elf eine singulär polare Richtung (kein Inversionszentrum) und wiesen daher eine optische Nichtlinearität  $\tilde{\chi}^{(2)}$  auf. Diese Kristallklassen können ohne äußeres Feld eine elektrische Polarisation  $P_0$  ausbilden. Da sich bei diesen Kristallklassen die spontane Polarisation mit der Temperatur  $T$  ändert, spricht man von Pyroelektrika. Bilden sich in pyroelektrischen Kristallen Gebiete mit unterschiedlichen Richtungen der spontanen Polarisation aus, dann spricht man von ferroelektrischen Kristallen. Durch ein externes elektrisches Feld ( $\text{kV/mm}$ ) kann die spontane Polarisation entsprechend ausgerichtet werden. Räumlich abgegrenzten Bereichen unterschiedlich ausgerichteter Polarisation werden als Domänen bezeichnet, wobei übertragene Domänenstrukturen für Temperaturen unterhalb der Curie-Temperatur langzeitstabil sind. Ferroelektrische Stoffe weisen eine hohe Permittivitätszahl (bis 10000) auf, welche nicht konstant ist.

Im Gegensatz zu dielektrischen Substanzen, die eine lineare Beziehung zwischen Polarisation und elektrischer Feldstärke aufweisen, wird dieser Zusammenhang bei ferroelektrischen Kristallen durch eine Hysterese beschrieben.

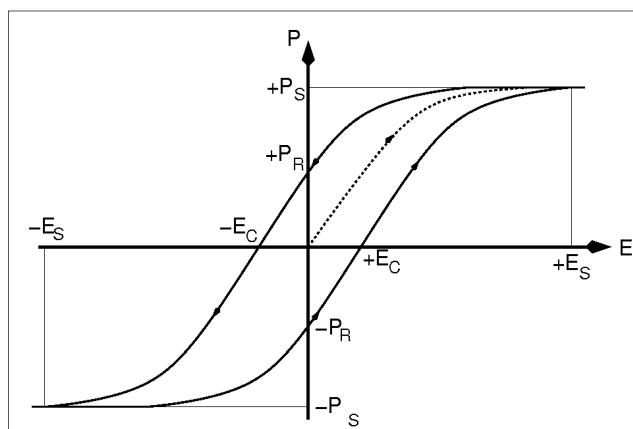


Abb.1-06: Verlauf der dielektrischen Hysterese.

In der ferroelektrischen Phase gibt es keine ausgezeichnete Orientierung für die spontane Polarisation, dabei ergibt sich die Anzahl der möglichen Orientierungen aus dem Verhältnis der Zahl der Symmetrieelemente der paraelektrischen Polarisation zu denen der ferroelektrischen Phase. Kann  $P_0$  nur in einer Richtung auftreten, dann spricht man von einem einachsigen bzw. uniaxialen Ferroelektrikum, sonst von mehrachsigen Ferroelektrika.

Oberhalb der ferroelektrischen Curie-Temperatur  $T_c$  verschwindet die spontane Polarisation. Diese Temperaturabhängigkeit wird durch das Curie-Weiss-Gesetz beschrieben:

$$\varepsilon = \varepsilon_\infty + \frac{K}{T - T_c} \quad (1.46)$$

Hier stellen  $T_c$  die Curie-Temperatur,  $K$  die Curie-Konstante und  $\varepsilon_\infty$  die optische Dielektrizitätskonstante dar. Bei Temperaturen von  $T < T_c$  bestimmt das elektrische Feld und die „Vorbehandlung“ des Kristalls die Größe der elektrischen Suszeptibilität  $\chi$ . Das Anlegen zeitlich veränderlicher elektrischer Felder führt zu einem nichtlinearen hysteresischen Zusammenhang zwischen Polarisation und elektrischer Feldstärke. Die Beschreibung dieser Kurve ist durch charakteristische Größen gekennzeichnet wie die Koerzitivfeldstärke  $E_c$  (Feldstärke bei  $P=0$ ) und die remanente Polarisation  $P_r$  (Polarisation bei  $E=0$ ).

#### Ferroelektrischer Phasenumwandlung:

Aussagen über Umwandlungsprozesse aus paraelektrische in ferroelektrische Phasen können im Rahmen der Landau-Theorie getroffen werden. Eine Phasenumwandlung zweiter Ordnung überführt die Anordnung der Atome im Kristall stetig, während die Symmetrie am Umwandlungsort sprunghaft geändert wird. Ordnungsprozesse dieser Art werden durch den Ordnungsparameter  $Q$  beschrieben, welcher in höhersymmetrischen paraelektrischen Phasen 0 und in der niedersymmetrischen Phase ungleich 0 ist. Weiter wird zwischen eigentlichen Ferroelektrika, hier ist die Polarisation selbst das Ordnungsschema, und den uneigentlichen Ferroelektrika unterschieden. Das Gibbssche Potential  $G$  des Kristalls kann für kleine Ordnungsparameter, d.h. in der Umgebung der Phasenumwandlungstemperatur, in eine Potenzreihe nach  $Q$  entwickelt werden:

$$G = G_0 + \sum_{i=1}^n \frac{1}{i!} \frac{\partial^i G}{\partial Q^i} Q^i \quad (1.47)$$

### 1.2.2 Eigenschaften von Lithiumniobat

Lithiumniobat ist aufgrund seiner vielgearteten Eigenschaften und der guten Verfügbarkeit des Materials ein häufig eingesetztes Basismaterial für integriert optische Bauelemente. Es ist in hoher Reinheit (z.B. Verunreinigung durch Fe < 2 ppm) und guter optischer Qualität verfügbar. LN weist große elektrooptische, elastooptische und piezoelektrische Koeffizienten

auf. Die große optische Nichtlinearität und der ausgedehnte optische Transparenzbereich sind wesentlich für den kommerziellen Einsatz auf LN basierender Bauelemente.

Lithiumniobat ist ein ferroelektrischer Kristall, welcher nach dem Czochralski-Verfahren synthetisch hergestellt wird. Die Ausgangsmaterialen  $\text{Nb}_2\text{O}_5$  und  $\text{Li}_2\text{CO}_3$  bzw.  $\text{LiNO}_3$  liegen pulverisiert vor. Der  $\text{LiNbO}_3$  Kristall wird nach der Reaktion  $(\text{Li}_2\text{CO}_3 + \text{Nb}_2\text{O}_5 \rightarrow 2 \text{LiNbO}_3 + \text{CO}_2)$  aus der Schmelze gezogen, wobei hier ein großer Kompositionsbereich  $(\text{Li}_2\text{O})_x (\text{Nb}_2\text{O}_5)_{1-x}$  möglich ist. Bei einer Temperatur von  $1253^\circ$  existiert ein kongruenter Schmelzpunkt für  $x=0.486$ , bei dem sich die kontaktierende feste und flüssige Phase im Gleichgewicht befinden. Hier ist also der  $\text{Li}_2\text{O}$ -Gehalt gleich dem des kristallinen Materials, man spricht dann von kongruentem  $\text{LiNbO}_3$ . Durch das Lithiumdefizit weist der Kristall eine größere Konzentration von Antisitedefekten auf. Es entsteht so eine Mischphase aus  $\text{LiNbO}_3$  und  $\text{LiNb}_3\text{O}_8$  die bei Temperaturen bis  $600^\circ\text{C}$  stabil ist. Im Temperaturbereich zwischen  $600^\circ\text{C}$  und  $900^\circ\text{C}$  kommt es zu einer Phasenseparation unter Ausbildung von  $\text{LiNb}_3\text{O}_8$ -Inseln. Zur Herstellung von stöchiometrischem  $\text{LiNbO}_3$  muss ständig Li nachgeführt werden, was beim Zwei-Tiegel-Verfahren durch Zugabe von Li in die Schmelze und beim VTE-Verfahren (Vapour Transport Equilibration) durch Temperung des Kristalls in einem Lithiumniobat-Pulver stöchiometrischer Zusammensetzung erfolgt.

$\text{LiNbO}_3$  stellt einen trigonalen Kristall der Punktgruppe 3m dar (Raumgruppe R3c). Die  $\text{Li}^+$ - und  $\text{Nb}^{5+}$  Ionen sind relativ zu den O-Oktaeder-Ebenen in z-Richtung verschoben so dass der Kristall eine permanente dielektrische Polarisierung in z-Richtung besitzt. Aufgrund dessen ist  $\text{LiNbO}_3$  ein Ferroelektrikum. Entlang der optischen Achse (c-Achse) ergibt sich eine charakteristische Anordnung Nb-Li-Vakanz, die sich periodisch wiederholt. Die Sauerstoffatome liegen in Ebenen senkrecht zur optischen Achse. Im Falle von kongruentem LN (Nb-Überschuss) sind einige Li-Leerstellen und Vakanzen durch Nb besetzt [AM86]. Unterhalb der Curie-Temperatur von etwa  $1145^\circ\text{C}$  weist LN eine ferroelektrische Phase auf. Oberhalb der Curie-Temperatur geht LN in die inversionssymmetrische paraelektrische Phase über. In der paraelektrischen Phase liegen die Li-Atome zentral in und die Nb-Atome zentral zwischen den Sauerstoffebenen. Hingegen sind in der ferroelektrischen Phase die Li- und Nb-Atome relativ zu den Sauerstoffebenen verschoben, wobei die Richtung der Verschiebung der Polarisierung des elektrischen Dipolmoments entspricht (Abb. 1-07). Aus einer induzierten Polarität resultiert dann eine Anisotropie der physikalischen Eigenschaften (z.B. thermische Ausdehnung, Pyroelektrizität, Ferroelektrizität)[WG85].

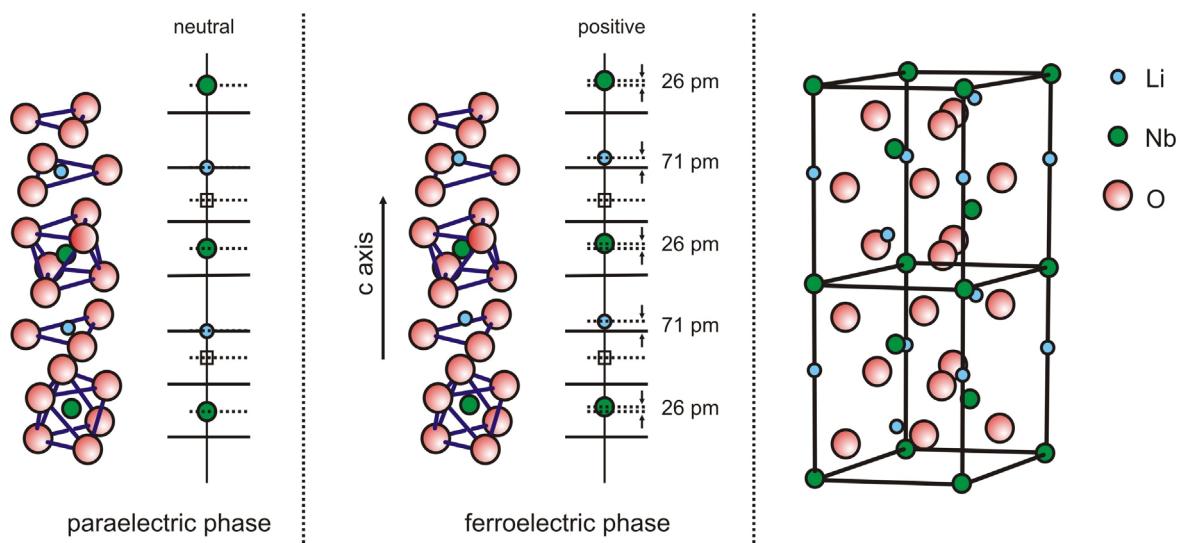


Abb. 1-07: Darstellungen zur Erläuterung der Kristallstruktur von Lithiumniobat.

Lithiumniobat weist einen großen optischen Transparenzbereich von ca. 350 nm (Absorptionskante) bis ca. 5 µm (Einsetzen der Phononenabsorption) auf. Es ist optisch einachsig und negativ doppelbrechend. Somit ist der außerordentliche Brechungsindex  $n_e$  (Polarisation  $\parallel$  c-Achse) kleiner als der ordentliche Brechungsindex  $n_o$  (Polarisation  $\perp$  c-Achse) ( $n_e < n_o$ ). In allgemeiner Form können die optischen Eigenschaften durch einen Indexellipsoiden beschrieben werden:

$$\left(\frac{x}{n_0}\right)^2 + \left(\frac{y}{n_0}\right)^2 + \left(\frac{z}{n_e}\right)^2 = 1 \quad (1.48)$$

Eine Verformung des Indexellipsoide resultiert dann aus „äußereren“ Einwirkungen über den jeweiligen physikalischen Effekt bzw. über den zugehörigen Koeffizienten.

Der Dielektrizitätstensor des Hauptachsensystems ergibt sich wie folgt:

$$\tilde{\epsilon}_r = \begin{pmatrix} \epsilon_{xx} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{xx} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{zz} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} n_{xx}^2 & 0 & 0 \\ 0 & n_{xx}^2 & 0 \\ 0 & 0 & n_{zz}^2 \end{pmatrix} \quad (1.49)$$

Hier ist  $n_0 = n_{xx}$  der ordentliche und  $n_e = n_{zz}$  der außerordentliche Brechungsindex. Die Abhängigkeit der Brechungsindizes von Temperatur und Wellenlänge kann durch den Sellmeier-Fit beschrieben werden.

In LN tritt der photorefraktive Effekt auf, man spricht dann vom „optical damage“, beidem es zu einer lichtinduzierten Änderung des Brechungsindex kommt. Bei inhomogener Beleuchtung werden hier Ladungsträger aus Störstellen ins Leitungsband angeregt und in

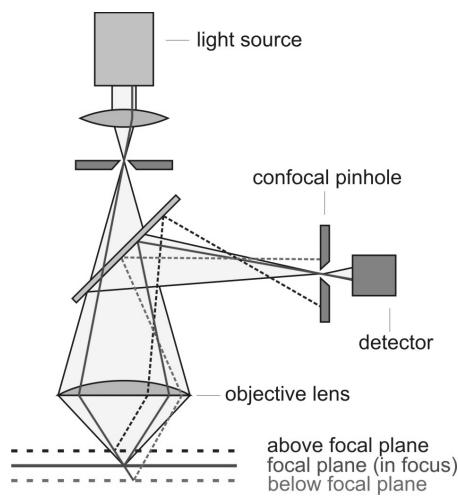
nicht beleuchtete Bereichen wieder eingefangen. Es resultiert ein Raumladungsfeld, das über den elektrooptischen Effekt den Brechungsindex moduliert. Die Photorefraktivität lässt sich bei entsprechender Dotierung deutlich reduzieren (z.B. MgO-Dotierung) bzw. erhöhen (Übergangsmetalle) [BGT84] [Som89].

## 1.3 Konfokale Mikroskopie und Spektroskopie

### 1.3.1 Mikroskopie und konfokales Prinzip

Bei der konventionellen Mikroskopie erfolgt die Bildaufnahme durch eine gleichzeitige Erfassung aller Objektpunkte. Im Gegensatz zu diesem Parallelverfahren werden bei der CLSM seriell einzelne Punkte bestrahlt (Punktanregung) und entsprechend punktweise das zugehörige Messsignal erfasst (Punktdetektion). Um nun eine örtliche Information zu erhalten, bzw. die Probe abzubilden, erfolgt eine Probenrasterung. Durch die konfokale Anordnung kommt es zu einer realen Auflösung in den drei Raumrichtungen, was dann eine dreidimensionale Analyse bzw. Abbildung ermöglicht. Zudem hat die Filterung mittels Lochblende eine streulichtunterdrückende Wirkung, wodurch eine kontrastreichere Abbildung resultiert. Voraussetzung für den breiten Einsatz konfokaler Analysemethoden war die Entwicklung des Lasers, kombiniert mit einer hochpräzisen Scannertechnik und entsprechender Datenverarbeitung.

Das konfokale Prinzip wurde 1961 von Marvin Minsky, Professor am Massachusetts Institute of Technology in Cambridge, entwickelt. Bei der konfokalen Anordnung erfolgt die Anregung und Detektion punktförmig, wobei Beleuchtungs- und Beobachtungspunkt ineinander abgebildet werden, daher spricht man auch von konjugierten Ebenen (Abb.1-08).

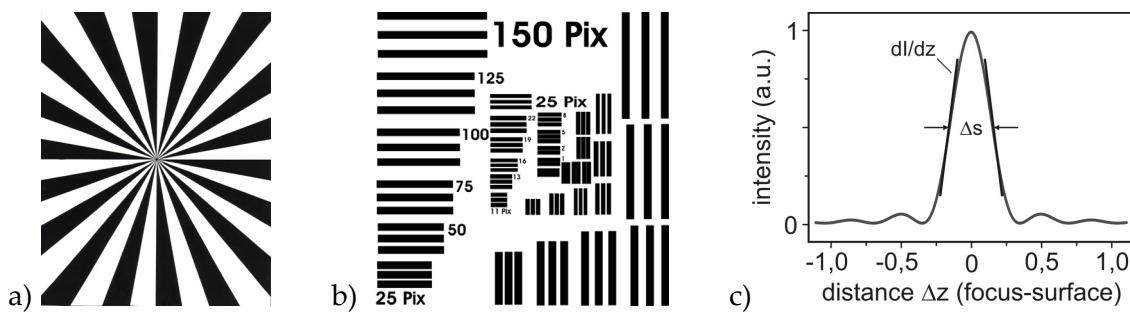


*Abb. 1-08: Schematische Darstellungen zur Erläuterung des konfokalen Prinzips.*

In den optisch konjugierten Orten des Strahlengangs eingebrachte Blenden stellen quasi eine Punktlichtquelle und einen Punktlichtdetektor dar. Die in einer konjugierten Ebene zur Objektebene angeordnete Lochblende, ist für die konfokale Eigenschaft des Systems verantwortlich. Informationen, welche nicht aus der Fokusebene des Mikroskopobjektivs

stammen, werden durch die konfokale Lochblende ausgeblendet. Das aus der Fokusebene stammende Licht passiert die Lochblende und wird vom Detektor registriert. Der Grad der Konfokalität ist dann über den Durchmesser der konfokalen Lochblende bestimmt. Durch das Vermögen, Informationen über und unter der Fokusebene auszublenden, ist das konfokale System inhärent tiefendiskriminierend und ermöglicht so eine optische Tomographie. Die Stapelung konfokaler Aufnahmen aufeinander folgender Ebenen ermöglicht eine 3D-Bildgenerierung.

Praktischerweise wird das laterale Auflösungsvermögen anhand konfokaler Aufnahmen definierter Teststrukturen und die Tiefenauflösung mittels Halbwertsbreiten-Kriterium durch die Signalaufnahme eines „Spiegeldurchlaufs“ (axiale Richtung) bestimmt (Abb. 1-09).

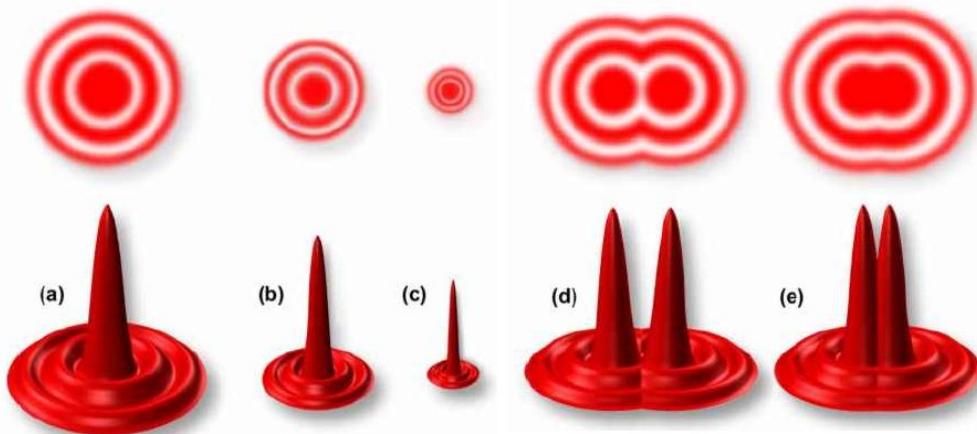


*Abb. 1-09: a) Siemensstern und b) Maskenvorlage mit definierten Abständen zur lithografischen Erzeugung von Referenzproben für die Bestimmung der lateralen Auflösungsgrenze. c) Experimentelle Bestimmung des axialen Auflösungsvermögens nach dem Halbwertsbreiten-Kriterium.*

Die hier eingesetzten Teststrukturen wurden lithographisch auf einem GaAs-Substrat mit aufgeschleudertem PMMA Fotolack realisiert. Die Belichtung entsprechend der Maskenvorlage (Bitmap, 4000 x 4000 Pixel) erfolgte mittels Elektronenstrahl ( $UB = 20$  KV,  $IB = 200$  mA,  $WD = 29$  mm).

### 1.3.2 Beugungsbegrenztes Auflösungsvermögen

Die Wellennatur des Lichtes stellt die Grundlage des Beugungsbegriffens dar. Entsprechend dem Huygens-Fresnel-Prinzip ist jeder Punkt einer Wellenfront der Ausgangspunkt einer neuen Elementarwelle. Das Beugungsbild, der durch eine Apertur tretenden ebenen Wellenfront, ergibt sich im Fernfeld (Fraunhofer Beugung) aus der Überlagerung aller elementaren Kugelwellen [Hec91]. Die Abbildungsfunktion einer Apertur wird hier durch die „Point Spread Function“ (PSF) beschrieben, welche die Intensitäts- oder Amplitudenverteilung (IPSF oder APSF) einer in der Fokusebene abgebildeten ebenen Lichtwelle ( $\text{IPSF} \sim \text{APSF}^2$ ) [CK96] darstellt.



**Abb. 1-10:** Darstellung von Airy-Scheibchen mit entsprechender Intensitätsverteilung. Die Intensität nimmt von a) nach c) ab. d) Airy-Scheibchen am Auflösungslimit und e) die Überlappung der beiden zentralen Maxima [DA99].

Durch die Beugung an einer Lochblende ergibt sich eine radialsymmetrische Beugungsfigur (Abb. 1-10), deren Intensitätsverlauf  $I(v)$  durch eine Airy-Funktion (IPSF) wie folgt beschrieben wird [Wil90]:

$$I(v) = \left( \frac{2J_1(v)}{v} \right)^2 \quad (1.50)$$

$J_1$  stellt die Bessel-Funktion 1. Ordnung und  $v$  das Phasenargument dar. Betrachtet man nun das Beugungsbild (Licht der Wellenlänge  $\lambda$ ) mit der Radialkoordinate  $r$  im Abstand  $R$  von der Lochblende (Radius  $a$ ), so ist das Argument  $v$  wie folgt gegeben:

$$v = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot \frac{ar}{R} = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot r \sin(\theta) \quad (1.51)$$

Der Wellenvektor  $k$  ist hier durch  $2\pi / \lambda$  und der halbe Öffnungswinkel durch  $\theta$  präsentiert. Legt man nun das Auflösungskriterium nach Rayleigh zugrunde, so sind zwei Punkte noch getrennt wahrnehmbar, wenn das Maximum der ersten Beugungsfigur in das erste Minimum der zweiten fällt. Somit lässt sich aus dem Argument der Intensitätsverteilung  $v$  der minimale Abstand zweier noch auflösbarer Objektpunkte berechnen. Das erste Minimum der Airy-Funktion kann wie folgt bestimmt werden:

$$J_1\left(\frac{2\pi ar_1}{\lambda R}\right) = 0 \Leftrightarrow \frac{2\pi ar_1}{\lambda R} = 3,83 \quad (1.52)$$

$$\Rightarrow r_1 = \Delta x = 1,22 \cdot \frac{\lambda R}{2a} = 0,61 \frac{\lambda}{\sin \theta} \quad (1.53)$$

Hier bezeichnet  $r_1$  die radiale Entfernung vom Zentrum der Airy-Scheibe, welche dann dem minimalen Abstand  $\Delta x$  zweier noch auflösbarer Objektpunkte entspricht. Das Verhältnis vom Radius der Lochblende  $a$  zum Abbildungsabstand  $R$  (entspricht ggf. in guter Näherung der Brennweite  $f$ ) drückt sich im Sinus des Winkels  $\theta$  (halber Öffnungswinkel) aus. Dieses Verhältnis wird im Allgemeinen als numerische Apertur NA bezeichnet und ist damit ein direktes Maß für das Auflösungsvermögen.

$$NA = n \cdot \sin(\theta) = \frac{a}{R} = \frac{D/2}{f} \quad (1.54)$$

Bei Betrachtung einer Linse (Objektiv) stellt hier  $D$  den Linsendurchmesser und  $f$  deren Brennweite dar. Der Brechungsindex  $n$  bezieht sich auf das Medium zwischen Linse und Objekt. Die numerische Apertur ist bei der Mikroskopie direkt mit der Lichtausbeute und dem Arbeitsabstand des Objektivs verknüpft. Neben dem Rayleigh Kriterium gibt es weitere und zum Teil auch strengere Definitionen des Auflösungsvermögens. Beispielsweise wird beim Kriterium nach Sparrow der kleinste Winkelabstand zweier Punktquellen herangezogen, bei dem das Zwischenminimum (zwischen den zwei Maxima) gerade verschwindet. Im Zentrum des resultierenden Gesamtmaxima ist die zweite Ableitung der Intensitätsfunktion gleich Null (kein Anstieg).

Bei konfokalen Anwendungen werden laterale Größen oft in Airy-Einheiten (AE) und axiale Größen in Rayleigh-Einheiten (RE) angegeben, so dass eine vom Objektiv unabhängige Darstellung erfolgen kann.

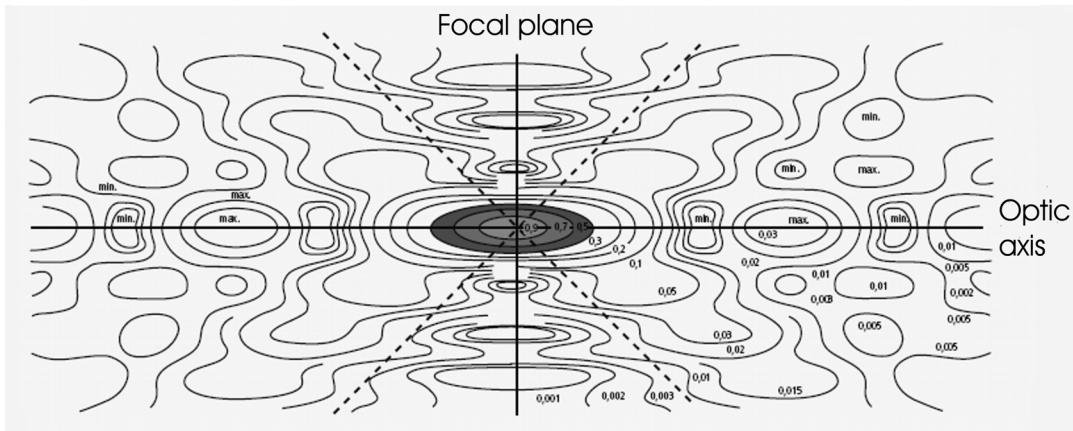
Unter Berücksichtigung einer mittleren Wellenlänge  $\bar{\lambda}$  ergibt sich für die AE (entspricht  $\emptyset$  Airy-Scheibe):

$$AE = 2r_1 = 1,22 \cdot \frac{\bar{\lambda}}{NA} \quad (1.55)$$

Die Rayleigh-Einheit entspricht der wellenoptischen Tiefenschärfe, somit gilt:

$$RE = \frac{n \cdot \bar{\lambda}}{NA^2} \quad (1.56)$$

Um die dreidimensionale Abbildungseigenschaft zu beschreiben, wird im konfokalen Fall die 3D-PSF betrachtet. Es ergibt sich ein rotationssymmetrisches Beugungsgebilde mit einem zentralen Rotationsellipsoid. Die Auflösung ist über die Halbwertsflächen des Rotationsellipsoids definiert, also über die Flächen, auf denen jeweils in axialer und lateraler Richtung, ein Abfall auf die Hälfte der Zentrumsintensität vorliegt. Bei konfokaler Anordnung ergibt sich die gesamte PSF ( $PSF_{com}$ ) aus dem Produkt der Funktionen für die Anregung ( $PSF_{exc}$ ) und die Detektion ( $PSF_{em}$ ). In Abbildung 1.11 ist ein Schnitt durch das sich ergebende dreidimensionale Beugungsgebilde (Rotation um die optische Achse) für den Anregungsfokus ( $PSF_{exc}$ ) dargestellt.



**Abb. 1-11:** Normierte Intensitätsverteilung in Isophotendarstellung im Bereich des Anregungsfokus [BW88].

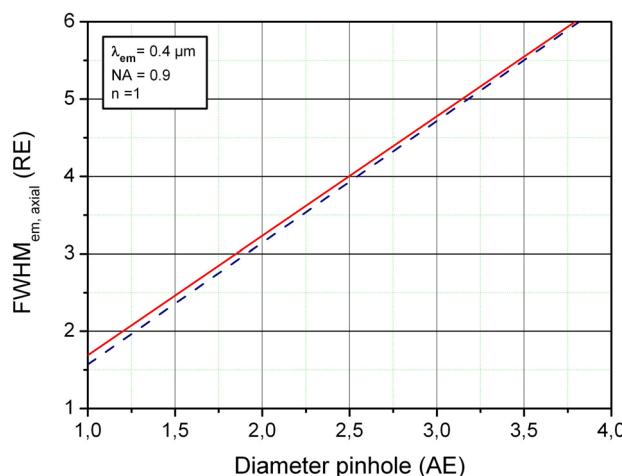
Das jeweilige Auflösungsvermögen wird meist über das Halbwertsbreiten-Kriterium festgelegt, wobei dann hier von einer Einzelpunkt-Auflösung gesprochen wird. Zur quantitativen Beschreibung ist die laterale und axiale Auflösung durch die jeweilige Halbwertsbreite (FWHM) des zentralen Maximums definiert (siehe Abb. 1-11). Je nach Durchmesser der konfokalen Blende, hier in AE, wird zwischen geometrisch- und wellenoptischer Konfokalität unterschieden.

### Geometrische Konfokalität:

Im Realfall kann die Lochblende nicht als ideal punktförmig angenommen werden. Die gesamte Intensitätsverteilung setzt sich aus einem geometrischen und einem wellenoptischen Teil zusammen. Zunächst soll der Fall eines Durchmessers der konfokalen Lochblende von  $d_B > 1$  AE betrachtet werden soll. Sowohl die Tiefendiskriminierung (optische Schnittdicke) als auch die Kontrasterhöhung (Unterdrückung von Streulicht) werden dann ausschließlich durch die  $\text{PSF}_{\text{em}}$  bestimmt. Hier kann also im Gegensatz zur konventionellen Mikroskopie eine optische Schnittdicke definiert werden. Die axiale Halbwertsbreite der sich hinter der Blende ergebenden  $\text{PSF}_{\text{em}}$  (entspricht der optischen Schnittdicke) ergibt sich somit zum einen aus der emissionsseitigen Beugungsfigur und zum andern aus der geometrischen Blendenwirkung:

$$\text{FWHM}_{\text{em, axial}} = \sqrt{\left( \frac{0.88 \lambda_{\text{em}}}{n - \sqrt{n^2 - NA^2}} \right)^2 + \left( \frac{\sqrt{2} \cdot n \cdot d_B}{NA} \right)^2} \quad (1.57)$$

Der wellenoptische Term ist bei gegebener Emissionswellenlänge  $\lambda_{\text{em}}$  und fixem Objektiv (NA) konstant. Der geometrische Term ist allein durch den Durchmesser  $d_B$  der konfokalen Lochblende bestimmt (siehe auch Abb. 1-12). Bei einem Durchmesser der Lochblende von  $d_B > 1$  kann der Einfluss von Beugungseffekten als konstant angesehen werden.



**Abb. 1-12:** Abhängigkeit der Schnittdicke ( $\text{FWHM}_{\text{em, axial}}$ ) (durchgezogener Graph) und des geometrischen Terms (gestrichelter Graph) aus Gleichung (1.57) vom Lochblendendurchmesser. Basierend auf einer konfokalen Anwendung mit einer Emissionswellenlänge = 400 nm u. einem Trockenobjektiv ( $n = 1$ ) mit einer  $NA = 0.9$ .

Die laterale Auflösung entspricht hier zunächst der im konventionellen Fall, wobei jetzt die Auflösung nur von der Anregungswellenlänge  $\lambda_{\text{exc}}$  abhängt. Geht man von einer homogenen

Ausleuchtung aus, so ergibt sich für die laterale Auflösung  $d_{l,co}$  auf Basis der Halbwertsflächen der PSF<sub>exc</sub> [Bey85]:

$$d_{l,co} = \Delta x_{FWHM,co} = 0,51 \frac{\lambda_{exc}}{NA} \quad (1.58)$$

Für die axiale Auflösung  $d_{a,co}$  gilt:

$$d_{a,co} = \Delta z_{FWHM,co} = \frac{0.88 \lambda_{exc}}{n - \sqrt{n^2 - NA^2}} \quad (1.59)$$

*Taylornäherung :*

$$d_{a,co} \approx 1,77 \cdot \frac{n \cdot \lambda_{exc}}{NA^2} \quad \text{für } NA < 0,5$$

Gegenüber der herkömmlichen Mikroskopie kann, aufgrund der alleinigen Abhängigkeit von der Anregungswellenlänge, gegebenenfalls ein Auflösungsgewinn von  $\lambda_{em}/\lambda_{exc}$  erreicht werden (z.B. Fluoreszenzmikroskopie).

#### Wellenoptische Konfokalität:

Bei kleinen Blendendurchmessern ( $d_B \leq 0.25 \text{ AE}$ ) liegt die Halbwertsfläche der Detektion in der Größenordnung der Anregungshalbwertsfläche. Ausgehend von einem infinitesimalen Durchmesser der Lochblende ( $PSF_{em} = PSF_{exc}$ ), kann die PSF quadriert werden. Durch das Quadrieren wird das zentrale Maximum der PSF steiler und höher, die Intensität der Beugungsringe hingegen nimmt nach außen hin schnell ab. Für die IPSF im konfokalen Modus gilt dann:

$$I_{co}(v) = \left( \frac{2J_1(v)}{v} \right)^4 \quad (1.60)$$

Für viele konfokale Methoden weisen Anregungs- und Detektionslicht unterschiedliche Wellenlänge auf, was hier durch die Definition einer mittleren Wellenlänge  $\bar{\lambda}$  berücksichtigt wird. Es gilt:

$$\bar{\lambda} \approx \frac{\lambda_{em} \cdot \lambda_{exc}}{\sqrt{\lambda_{em}^2 + \lambda_{exc}^2}} \cdot \sqrt{2} \quad (1.61)$$

Gegenüber der konventionellen Mikroskopie resultiert bei konfokaler Anwendung eine um den Faktor  $\sqrt{2}$  kleinere laterale Halbwertsbreite (vgl. Gl. 1.58). Für das laterale Auflösungsvermögen gilt nun:

$$d_{1,co} = \Delta x_{FWHM,co} = 0,37 \frac{\bar{\lambda}}{NA} \quad (1.62)$$

Mit der Annahme einer ideal sphärischen Linse ergibt sich das axiale Auflösungsvermögen  $\Delta z$  nach dem Halbwertsbreiten-Kriterium zu:

$$d_{a,co} = \Delta z_{FWHM,co} = \frac{0.64 \bar{\lambda}}{n - \sqrt{n^2 - NA^2}} \quad (1.63)$$

Der angegebene Faktor variiert anwendungsbedingt (Probenmaterial, etc.). Im Fall eines Spiegels wird in Gleichung (1.63) der Faktor 0,64 (fluoreszierender Punkt) durch 0,45 ersetzt. Ist die NA kleiner als 0,5 kann  $\Delta z$  näherungsweise durch  $\Delta z = 1,28 \cdot n \cdot \bar{\lambda} \cdot NA^{-2}$  berechnet werden. Die hier dargestellten Gleichungen können in guter Näherung bis zu einem Blendendurchmesser von 1 AE herangezogen werden. Die Abhängigkeit des jeweiligen Vorfaktors (laterale u. axiale Auflösung) vom Durchmesser der Lochblende ist nun in Abbildung 1-13 dargestellt.

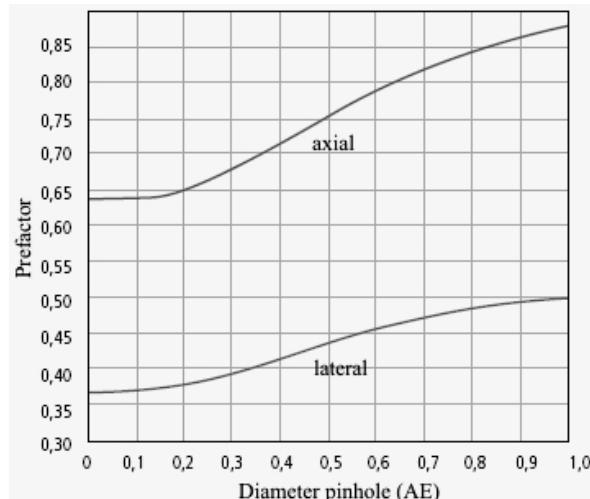
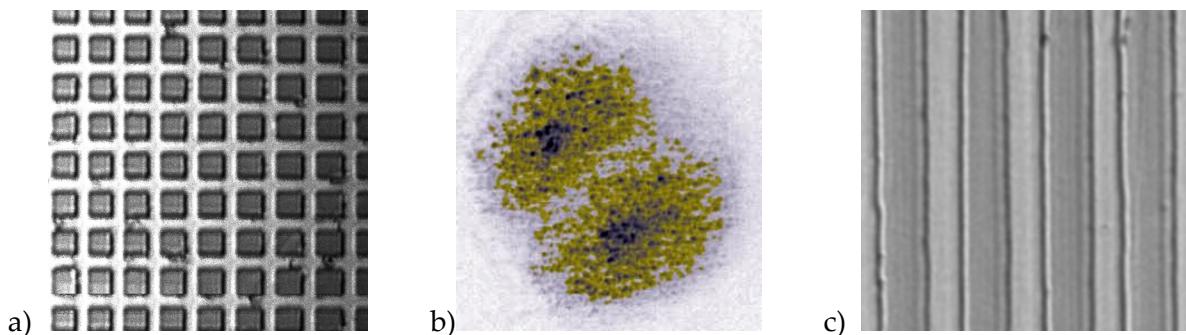


Abb. 1-13: Abhängigkeit des Faktors für die laterale und axiale Auflösung vom Durchmesser der Lochblende [WGB06].

### 1.3.3 Beispiele konfokaler Mikroskopieanwendungen

#### CLSM an Oberflächenstrukturen:

Ein typisches Anwendungsbeispiel der konfokalen Mikroskopie ist die Oberflächenabbildung und -kontrolle von Mikrostrukturen. Exemplarisch sind nun in Abbildung 1-14 konfokale Aufnahmen unterschiedlicher Oberflächenstrukturen dargestellt.



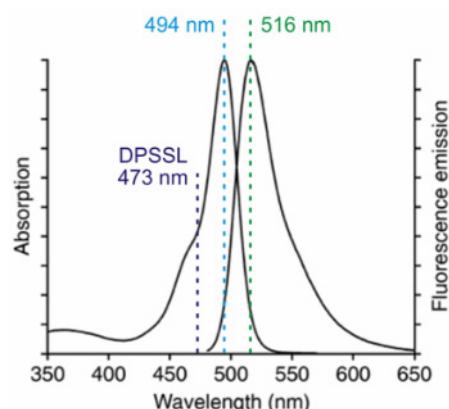
*Abb. 1-14: Konfokale Abbildung a) einer strukturierten GaAs-Oberfläche ( $70 \mu\text{m} \times 70 \mu\text{m}$ ), b) einer Pollenoberfläche ( $90 \mu\text{m} \times 90 \mu\text{m}$ ) und c) der X/Y-Fläche einer geätzten Z-PPLN Probe ( $65 \mu\text{m} \times 65 \mu\text{m}$ ). In allen drei Fällen wurde ein Festkörperlaser (532 nm) mit 10 mW Ausgangsleistung eingesetzt. Die Rasterschrittweiten betragen jeweils 250 nm.*

Erste konfokale Analysen wurden an einer strukturierten GaAs-Probe (AFM-Referenzprobe, Topometrix) durchgeführt (Abb. 1-14a). Diese weist eine hinreichende Strukturtiefe auf, so dass eine Prüfung der Tiefendiskriminierung des konfokalen Systems erfolgen konnte. Bei der Aufnahme des gezeigten Ausschnittes lag der Laserfokus auf dem oberen Level der Probe. Die sich aus konfokalen Schnittebenen ergebende Oberflächenstruktur eines Pollens ( $\varnothing \sim 90 \mu\text{m}$ ) ist in Abbildung 1-14b angedeutet. Zur Bildgebung wurden hier drei farblich kodierte Ebenen (jeweils 20  $\mu\text{m}$  Abstand) ineinander abgebildet. Die Abbildung 1-14c zeigt die konfokale Aufnahme einer Z-Schnitt PPLN Oberfläche, die zuvor in HF/HNO<sub>3</sub> geätzt wurde. Durch das selektive Ätzen (-Z wird schneller geätzt) wurde die periodische Domänenstruktur (Periode = 16.7  $\mu\text{m}$ ) an die Oberfläche transferiert und ist somit deutlich in der konfokalen Aufnahme (linearer Modus) zu erkennen.

#### Konfokale Fluoreszenzmikroskopie:

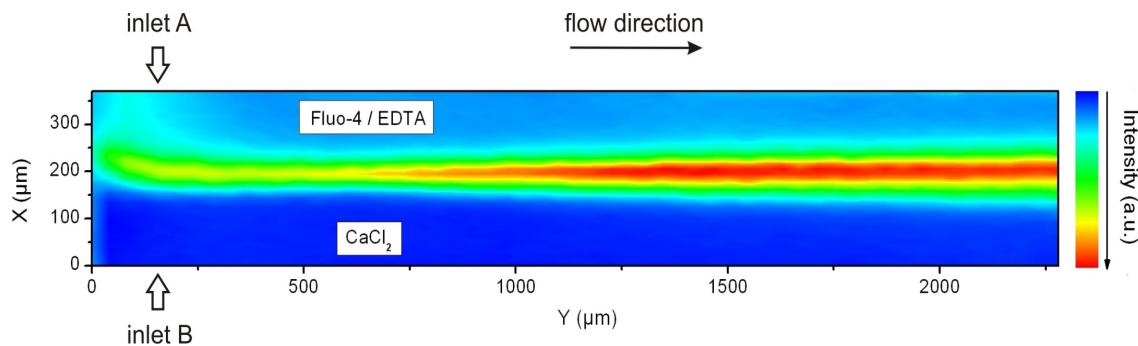
Die Fluoreszenzmethode stellt ein äußerst wichtiges Kontrastierungsverfahren im Bereich der Biologie/Medizin dar, welches häufig mit der konfokalen Messtechnik verknüpft wird. In Kooperation mit dem Arbeitskreis von Herr Prof. Warnecke (Universität Paderborn, Technische Chemie) wird hier die konfokale Fluoreszenzmikroskopie zur Klärung physiko-chemischer Prozesse im Flachbettmikroreaktor eingesetzt. Im unten aufgeführten Beispiel

dient Fluo-4 als Fluophor, welches in wässriger Lösung mit EDTA (Ethyldiamintetraessigsäure) zur Fluoreszenzunterdrückung versetzt wurde (Zulauf A). Durch das EDTA werden bereits im Wasser vorhandene Calcium-Ionen abgefangen und somit die Eigenfluoreszenz des Fluo-4 gering gehalten. Im zweiten Zulauf (B) wird eine  $\text{CaCl}_2$ -Lösung eingeleitet. Die betrachtete Reaktion im Mikroreaktor ist die Komplexierung von Calcium durch Fluo-4 ( $\text{Ca}^{2+} + \text{Fluo-4} \rightarrow [\text{Ca-Fluo-4}]$ ), woraus bei entsprechender Anregung eine Fluoreszenz resultiert. Das Absorptionsmaximum von Fluo-4 liegt bei 494 nm und die Fluoreszenzwellenlänge bei 516 nm (Abb. 1-15). Die Anregung des Fluo-4/ $\text{Ca}^{2+}$ -Komplexes erfolgte für die durchgeföhrten Analysen bei einer Wellenlänge von 473 nm, welche noch hinreichend in der Absorptionsbande von Fluo-4 liegt (42% des Absorptionsmaximums).



*Abb. 1-15: Diagramm mit Absorptions- und Fluoreszenzspektrum von Fluo-4. Die Anregungswellenlänge des eingesetzten Lasers von 473 nm ist angekennzeichnet.*

Zur Ausblendung des Anregungslichtes wurden vor der Detektoreinheit (Lochblendenmodul und Photodiode) entsprechende Fluoreszenzfilter eingesetzt. Exemplarisch ist das Ergebnis einer konfokalen Aufnahme am Mikroreaktor in Abbildung 1.16 dargestellt. Die konfokale Aufnahme zeigt eine  $10 \mu\text{m}$  tief liegende Schnittebene im Reaktionszweig eines T-Mikroreaktors. Die Reaktion ist durch die Strömungscharakteristika im Mikroreaktor und entsprechend im vorliegenden Fall ausschließlich durch die Diffusion bestimmt (nicht mischungsmaskiert).



**Abb. 1-16:** Konfokale Fluoreszenzaufnahme (Falschfarbendarstellung) einer  $10 \mu\text{m}$  tief gelegenen Ebene im Reaktionskanal eines Mikroreaktors für das Stoffsystem: Fluo4 ( $1,7 \cdot 10^{-7} \text{ mol/l}$ ) / EDTA ( $1,25 \cdot 10^{-3} \text{ mol/l}$ ) und  $\text{CaCl}_2$  ( $1,0 \cdot 10^{-2} \text{ mol/l}$ ). Der Volumenstrom im Reaktor betrug hier  $8 \mu\text{l/min}$ . Die Rasterschrittweiten lagen bei  $dx = 10 \mu\text{m}$  und  $dy = 40 \mu\text{m}$ .

Im Reaktionsbereich wird eine konzentrationsabhängige Fluoreszenzerhöhung registriert. Bei angepasstem Stoffsystem und definierter Strömungscharakteristik bildet sich ein Reaktionskeil aus. Unter Berücksichtigung der Randbedingungen (laminare Strömung, Stationarität etc.) können dann aus dem erfassten Konzentrationsfeld (nach entsprechender Kalibrierung) die kinetischen Parameter ermittelt werden.

### 1.3.4 Aspekte der Spektroskopie

Spektroskopische Verfahren ermöglichen die Untersuchung der Wechselwirkung elektromagnetischer Strahlung mit Materie. Zur spektralen Analyse werden disperse Elemente, wie beispielsweise Prisma oder Beugungsgitter, eingesetzt. Beim Beugungsgitter handelt es sich prinzipiell um eine regelmäßige Anordnung von Einzelpalten, deren Abstand der Gitterkonstante  $g$  entspricht. Die Strukturen müssen hierbei in der Größenordnung der Wellenlänge des zu beugenden Lichtes sein. Durch die Beugung am Gitter resultiert ein Interferenzmuster mit Haupt- und Nebenmaxima, welche durch die Spalt-Beugungsfunktion moduliert sind. Aus den Phasenlagen der Wellenzüge lassen sich die Kriterien der Minima und Maxima bestimmen. Für die resultierenden Hauptmaxima gilt die Gittergleichung:

$$g(\sin \theta_m - \sin \theta_i) = m \cdot \lambda \quad (1.64)$$

Hier bezeichnet  $\theta_i$  den Einfallswinkel und  $\theta_m$  den Beugungswinkel für die  $m$ -te Beugungsordnung ( $m = 0, 1, 2, \dots$ ) der Hauptmaxima. Für  $m \neq 0$  erfolgt durch die Abhängigkeit von der Wellenlänge  $\lambda$  konsequenterweise ein wellenlängenabhängige Änderung des Beugungswinkels und somit eine spektrale Zerlegung des Lichtes.

Wie aus der Gittergleichung ersichtlich, ergeben sich für die nullte Ordnung ( $m=0$ ) gleiche Winkel für den einfallenden und gebeugten Strahl. Somit überlagern sich bei der nullten Ordnung alle Wellenlängen, so dass dieses Licht nicht für die Spektroskopie nutzbar ist. Durch Gitter mit bevorzugter Reflexion (Blaze-Gitter) ist es nun möglich, dies zu umgehen. Einfalls- u. Beugungswinkel beziehen sich auf die Normale der Gitteroberfläche und nicht zur Normalen der einzelnen Rille. Das Beugungsmaximum einer einzelnen Rille hingegen ist durch die Reflexion an deren Oberfläche und somit durch den Blaze-Winkel (Winkel zwischen den Normalen von Gitteroberfläche und Rillenoberfläche) bestimmt. Beugungsgitter können als Transmissions- oder Reflexionsgitter realisiert sein, wobei unterschiedlichste Techniken für die Herstellung der Gitterstrukturen eingesetzt werden. Für eine inkohärenten Punktlichtquelle kann als effektive Breite der Spektrallinie der Winkelabstand zwischen den links- und rechtsseitig liegenden Nullpunkten eines Hauptmaximums angesehen werden ( $\Delta\alpha=2\pi/N$ ) [HEC91]. Bei schiefem Lichteinfall wird  $\alpha=(ka/2)(\sin\theta-\sin\theta_i)$  und es ergibt sich die Winkeländerung  $\Delta\alpha$ :

$$\Delta\alpha = \frac{2\pi}{N} = \frac{k \cdot g}{2} \Delta\theta \cos\theta \quad (1.65)$$

Die Winkelbreite einer Spektrallinie ist (auch für monochromatisches Licht) somit gegeben durch:

$$\Delta\theta = \frac{2\lambda}{N g \cos\theta_m} \quad (1.66)$$

Die Winkeldisperison  $D$  beschreibt, analog zum Prisma, die Differenz in der Winkelposition für eine bestimmte Wellenlängendifferenz, so dass durch Differentiation der Gittergleichung gilt:

$$D = \frac{d\theta}{d\lambda} = \frac{m}{g \cos\theta_m} \quad (1.67)$$

Mit zunehmender Ordnung  $m$  wird also der Winkelabstand zwischen zwei Spektrallinien größer.

Das spektrale Auflösungsvermögen  $R$  ist nun wie folgt definiert:

$$R = \frac{\lambda}{\Delta\lambda_{\min}} \quad (1.68)$$

Die spektrale Auflösungsgrenze  $\Delta\lambda_{\min}$  stellt die kleinste noch auflösbare Wellenlängendifferenz und  $\lambda$  die mittlere Wellenlänge zweier benachbarter Spektrallinien

dar. Hier kann dann wiederum das Kriterium von Rayleigh (vgl. 1.3.2) herangezogen werden. An der Auflösungsgrenze entspricht der Winkelabstand einer halben Linienbreite oder mit Gleichung (1.66):

$$\Delta\theta_{\min} = \frac{\lambda}{N g \cos\theta_m} \quad (1.69)$$

Der Ausdruck für die Winkeldispersion liefert für  $\Delta\theta_{\min}$ :

$$\Delta\theta_{\min} = \frac{\Delta\lambda_{\min} m}{g \cos\theta_m} \quad (1.70)$$

Somit ergibt sich mit den Gleichungen (1.69) und (1.70) für die spektrale Auflösungsgrenze:

$$\Delta\lambda_{\min} = \frac{\lambda}{N m} \quad (1.71)$$

Mit der Gittergleichung (1.64) ergibt sich das spektrale Auflösungsvermögen dann zu:

$$R = \frac{N g (\sin\theta_m - \sin\theta_i)}{\lambda} \quad (1.72)$$

Das Auflösungsvermögen eines Gitters hängt also von der Ordnung  $m$ , der Gitterbreite ( $N \cdot g$ ), der Wellenlänge  $\lambda$  und dem Einfallswinkel  $\theta_i$  ab.

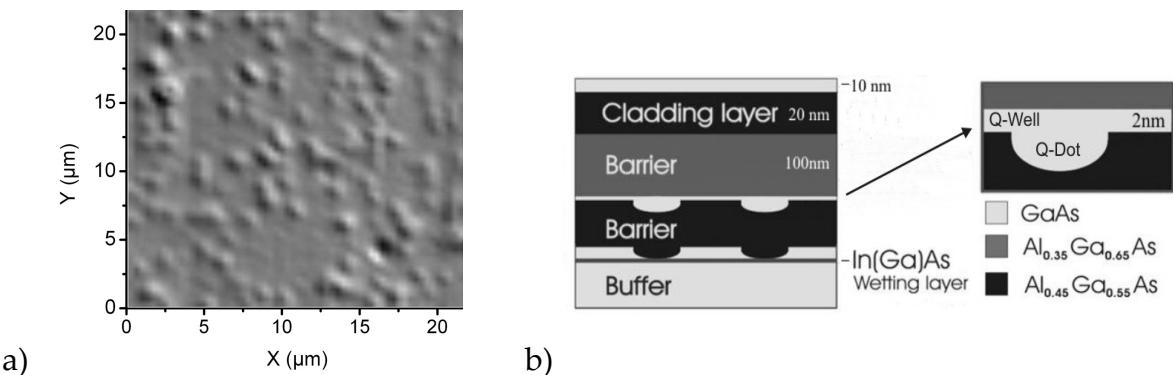
Bei konfokaler Spektroskopieanwendung wird nun die spektrale mit der örtlichen Auflösung gekoppelt. Für jeden Rasterpunkt wird dann ein entsprechendes Spektrum aufgenommen.

#### Anwendungsbeispiel zur konfokalen Spektroskopie:

Im vorliegenden Fall wurde die konfokale Spektroskopie an einem Halbleiterschichtsystems mit eingebetteten Quantenpunkten durchgeführt. Die Erfassung der örtlich variierenden Lumineszenz diente hier der Auffindung und Dichtebestimmung der Quantenpunkte. Es handelt sich um eine Probe mit „invertierten“ GaAs/AlGaAs-Quantendots (siehe Abb. 1-17b). Eine detaillierte Beschreibung der Schichtstruktur findet sich in [RS+04].

Die Messungen erfolgten bei Raumtemperatur, was gegenüber Tieftemperaturmessungen (4K) zum einen zu einer Verbreiterung und Überlappung der Lumineszenzsignale und zum andern zu einer Rotverschiebung (um ca. 30 nm) führt. Durch die örtliche begrenzte Anregung und Detektion ist hier jedoch auch bei Raumtemperatur eine hinreichend genaue Analyse möglich. Abbildung 1-17a zeigt nun eine konfokale Aufnahme der örtlichen

Verteilung spezifisch für die Lumineszenzwellenlänge von 812 nm. Als Detektoreinheit des konfokalen Aufbaus diente ein Spektrometer (SpectraPro 500i, Acton) mit angeschlossener Si-CCD-Kamera (LN/CCD-1340/400-E, Roper Scientific). Ein vor dem Spektrometer platziertes Langpassfilter (610 nm) blockt Licht der Anregungswellenlänge (DPSSL, 532 nm) und lässt das relevante Lumineszenzlicht passieren.



*Abb. 1-17:* a) Konfokale Abbildung der wellenlängenspezifischen örtlichen Verteilung von Quantenpunkten (hier für 812 nm). Die Rasterschrittweite betrug jeweils 360 nm (Gitter: 300g/mm, Integrationszeit: 3s). b) Schematische Darstellung zur Schichtstruktur [RS+04].

Hier konnte eine Quantenpunktdichte von etwa 0,9 Dots/ $\mu\text{m}^2$  ermittelt werden, was den bereits bekannten Wert aus Voruntersuchungen bestätigt. Durch die Aufnahme des gesamten Spektrums pro Rasterpunkt kann hier eine wellenlängenselektive Zuordnung der Quantenpunkte erfolgen. Somit ermöglicht die konfokale Spektroskopie hier ein Verfahren zur örtlichen Positionsfindung einzelner überwachsener Quantenpunkte bei Raumtemperatur.

### 1.3.5 Raman-Effekt und Raman-Spektroskopie

#### Allgemeine Betrachtung:

Die Ramanspektroskopie stellt neben der Infrarotspektroskopie eines der wichtigsten Verfahren zur Untersuchung der Schwingungs- und Rotationsspektren von Molekülen dar. Licht kann nicht nur gemäß der Resonanzbedingung von Molekülen absorbiert oder emittiert werden, sondern auch gestreut werden. Durch ein elektromagnetisches Wechselfeld werden die Hüllenelektronen des Moleküls zu Schwingungen angeregt und so ein Dipolmoment  $p_{ind} = \alpha E$  induziert, das mit der Anregungsfrequenz oszilliert. Somit bildet es einen Hertzschen Oszillator, welcher Licht gleicher Frequenz emittiert (Rayleighstreuung). Im Streuspektrum entdeckte 1928 C.V. Raman die inelastische Streuung an Molekülen, welche sich durch Frequenzverschiebungen zu kleineren (Stokes-Streuung) und zu höheren Energien (Anti-Stokes-Streuung) relativ zur Rayleighstreuung ausdrückt. Diese Differenzen entsprechen Schwingungs- und Rotationsfrequenzen der streuenden Moleküle. Der Raman-Effekt wurde theoretisch bereits 1925 von A. Smekal vorhergesagt. Im Gegensatz zur Rayleighstreuung ist das inelastisch gestreute Licht nicht kohärent zum Anregungslight. Die Frequenzverschiebung ist hier eine alleinige Eigenschaft des streuenden Moleküls und somit unabhängig von der Frequenz des Anregungslichtes. Der relative Frequenzunterschied zur Anregung wird in der Spektroskopie üblicherweise in Wellenzahlen angegeben.

#### Klassische Beschreibung:

Im Folgenden sei nun die Molekülrotation vernachlässigt. Betrachtet man die Rayleighstreuung, so wird angenommen, dass das streuende Molekül keine Schwingungsbewegung ausführt. Es ergibt sich dann ein induziertes Dipolmoment  $\mu_{ind}$ , welches mit der Frequenz  $\nu_0$ , entsprechend der des E-Vektors des Anregungslichtes, schwingt:

$$\mu_{ind}(t) = \alpha E_0 \cos(2\pi\nu_0 t) \quad (1.73)$$

Hier ist  $E_0 \cos(2\pi\nu_0 t) = E$  die Feldstärke des Anregungslichtes und  $\alpha$  die Polarisierbarkeit des Moleküls. Geht man jetzt davon aus, dass das Molekül bereits eine Eigenschwingung (Frequenz  $\nu_{vib}$ ) ausführt, dann koppelt das induzierte Dipolmoment mit der Molekülschwingung. Es resultiert eine amplituden-modulierte Dipolschwingung, so dass zusätzlich bei der Summen- und Differenzfrequenz elektromagnetische Wellen emittiert werden. Voraussetzung ist hier, dass sich die Polarisierbarkeit  $\alpha$  mit dem Abstand  $R$  ändert. Die Polarisierbarkeit lässt sich durch eine Taylorentwicklung nach  $R$  entwickeln:

$$\alpha(R) = \alpha(R_0) + \frac{d\alpha}{dR_i} (R_i - R_0) + \dots \quad (1.74)$$

Hier ist  $R_0$  der Gleichgewichtsabstand und  $R_i$  die Elongationen entlang der Molekül-schwingungsfreiheitsgrade. Die Terme der Polarisierbarkeitsänderungen stellen die Raman-Tensoren dar und werden je nach Anzahl der Richtungsabhängigkeiten als fundamentaler Raman-Tensor oder Raman-Tensoren n-ter Ordnung bezeichnet. Mit  $R = R_0 + q \cos(2\pi \nu_{vib} t)$  ergibt sich dann für das Dipolmoment:

$$\mu(t) = \left( \alpha(R_0) + \frac{d\alpha}{dR} q \cos(2\pi \nu_{vib} t) \right) E_0 \cos(2\pi \nu_0 t) \quad (1.75)$$

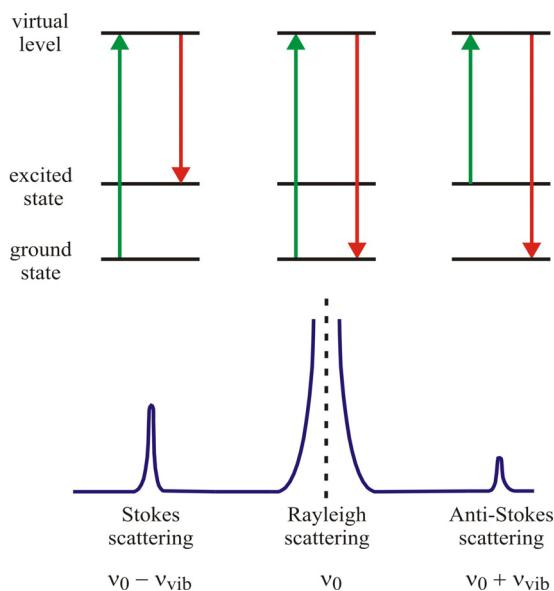
Die Anwendung des Additionstheorems liefert:

$$\mu(t) = \alpha(R_0) E_0 \cos(2\pi \nu_0 t) + \frac{d\alpha}{dR} E_0 q (\cos[2\pi(\nu_0 + \nu_{vib})t] + \cos[2\pi(\nu_0 - \nu_{vib})t]) \quad (1.76)$$

Der erste Term kann der Rayleighstreuung, der zweite der Stokes-Streuung und der dritte der Anti-Stokes-Streuung zugeordnet werden. Im Streulicht entstehen also Seitenbänder mit Frequenzen von  $\nu_0 \pm \nu_{vib}$ . Man spricht dann vom Raman-Effekt erster Ordnung. Entsprechend der Reihenentwicklung von  $\alpha(R)$  gibt es Glieder höherer Ordnung aufgrund der immer vorhandenen Anharmonizität. Analog spricht man bei Bändern mit Frequenzen von  $\nu_0 \pm n\nu_{vib}$  mit  $n=2, 3\dots$  vom Raman-Effekt n-ter Ordnung. Eine Schwingung ist Raman-aktiv, wenn sich während der Schwingung die Polarisierbarkeit des Moleküls ändert, also wenn gilt:  $d\alpha/dR \neq 0$ .

### Quantentheoretische Beschreibung:

Es wird nun der Raman-Effekt als inelastische Photonenstreuung betrachtet. Im Fall der Anti-Stokes-Streuung gibt das Molekül Energie ab und im Fall der Stokes-Streuung nimmt das Molekül Energie vom Photon auf (Abb. 1-18). Stokes-Linien beginnen in einem Niveau kleiner Schwingungsquantenzahl  $v$  und enden in einem mit höherer Quantenzahl. Im Anti-Stokes-Fall startet der Streuprozess in einem angeregten Schwingungszustand und endet in einem Zustand kleinerer Quantenzahl. Es gilt die Auswahlregel  $\Delta v = \pm 1$ .



**Abb. 1-18:** Schematische Darstellung zur Erläuterung der Raman-Streuung (Stokes- u. Anti-Stokes-Streuung). Frequenzabstände der Ramanlinien zum elastisch gestreuten Licht entsprechen Schwingungsfrequenzen der Moleküle. Die Stokes-Linien sind energieärmer und die Anti-Stokes-Linien energiereicher als das Anregungslight.

Für Stokes- und Anti-Stokes-Übergänge sind die Besetzungswahrscheinlichkeiten  $n$  der Ausgangszustände unterschiedlich groß. Im thermischen Gleichgewicht kann die Schwingungszustandsbesetzung durch eine Boltzmann-Verteilung beschrieben werden. Daraus erklärt sich auch die höhere Intensität der Stokes-Linien. Der Anti-Stokes-Prozess setzt ein Molekül im Anregungszustand voraus, so dass dessen Besetzungswahrscheinlichkeit zu kleineren Temperaturen hin abnimmt. Es gilt:

$$\frac{n_i}{n_0} = \frac{I_{\text{Anti-Stokes}}}{I_{\text{Stokes}}} = e^{-\frac{\hbar\nu_{\text{vib}}}{k_B T}} \quad (1.76)$$

Hier sind  $I_{\text{Anti-Stokes}}$  und  $I_{\text{Stokes}}$  die jeweilige Intensität der Anti-Stokes- und Stokes-Linie,  $T$  die Temperatur und  $k_B$  die Boltzmannkonstante.

### Raman-Effekt in Festkörpern:

In Festkörpern wechselwirkt das einfallende Licht mit den Dipolmomenten der Kristallatomschwingungen. Hier erfolgt hauptsächlich eine elastische Streuung und nur ein kleiner Teil der Energie wird durch Schwingungsanregung des Kristalls absorbiert. Beim Raman-Effekt im Festkörper wird jetzt die Suszeptibilität  $\chi$  betrachtet. Das induzierte Dipolmoment ist durch  $\vec{\mu} = \underline{\underline{\chi}} \vec{E}$  gegeben. Die Reihenentwicklung von  $\chi$  nach den Normalkoordinaten  $R_i$  ergibt:

$$\chi = \chi(R_0) + \frac{d\chi}{dR_i}(R_i - R_0) + \frac{d^2\chi}{dR_i dR_j}(R_i - R_0)(R_j - R_0) \quad (1.77)$$

Der Gitterabstand im Gleichgewicht wird mit  $R_0$  und die Elongationen der Gitterebenen entlang der Symmetriearchsen mit  $R_i$  bezeichnet. Die Änderung der Suszeptibilität mit der Normalkoordinate ist hier ursächlich für die Raman-Aktivität. Für den Raman-Tensor gilt dann:

$$\underline{\underline{R}} = \frac{d\chi_j}{dx_i} x_i \quad (1.78)$$

Die fundamentale Raman-Linie (Raman-Tensor erster Ordnung) weist eine relativ schmale und intensive Intensitätsverteilung auf. Der Raman-Tensor zweiter Ordnung stellt die gekoppelte Schwingung zweier Normalkoordinaten dar. Unter quantentheoretischem Gesichtspunkt erfolgt beim Raman-Effekt im Festkörper die inelastische Streuung des Photons an einem Kristallatom unter Erzeugung oder Vernichtung eines Phonons. Nur mit optischen Phononen ist eine inelastische Streuungs-Wechselwirkung der elektromagnetischen Strahlung mit dem Kristall möglich, da nur dann ein schwingendes Dipolmoment zwischen den einzelnen Kristallatomen existiert. Es wird dann zwischen longitudinal optischen (LO) und transversal optischen Phononen (TO) unterschieden. Infrarot- und Raman-Aktivität schließen sich in Kristallen mit Symmetriezentrum gegenseitig aus, hingegen sind bei Kristallen ohne Symmetriezentrum beide gleichzeitig möglich. Beispielsweise rufen so longitudinale optische Phononen in piezoelektrischen Kristallen ein zusätzliches langreichweitiges E-Feld hervor, was eine Änderung der Bindungskräfte und somit eine Änderung der Frequenz bewirkt. Es resultiert eine Aufspaltung der LO- und TO-Schwingungszweige. Das Verhältnis der beiden Frequenzen wird durch die Lydanne-Sachs-Teller-Formel beschrieben. Es gilt [And71]:

$$\frac{\nu_{LO}}{\nu_{TO}} = \left( \frac{\epsilon_0}{\epsilon_\infty} \right)^{\frac{1}{2}} \quad (1.79)$$

Die Dielektrizitätskonstanten in Ausbreitungsrichtung bzw. senkrecht dazu sind hier durch  $\epsilon_0$  und  $\epsilon_\infty$  dargestellt. Die Größe der Aufspaltungen in anisotropen Kristallen ist richtungsabhängig (relativ zur optischen Achse).

## 2 Nichtlineare Mikroskopie an Domänenstrukturen

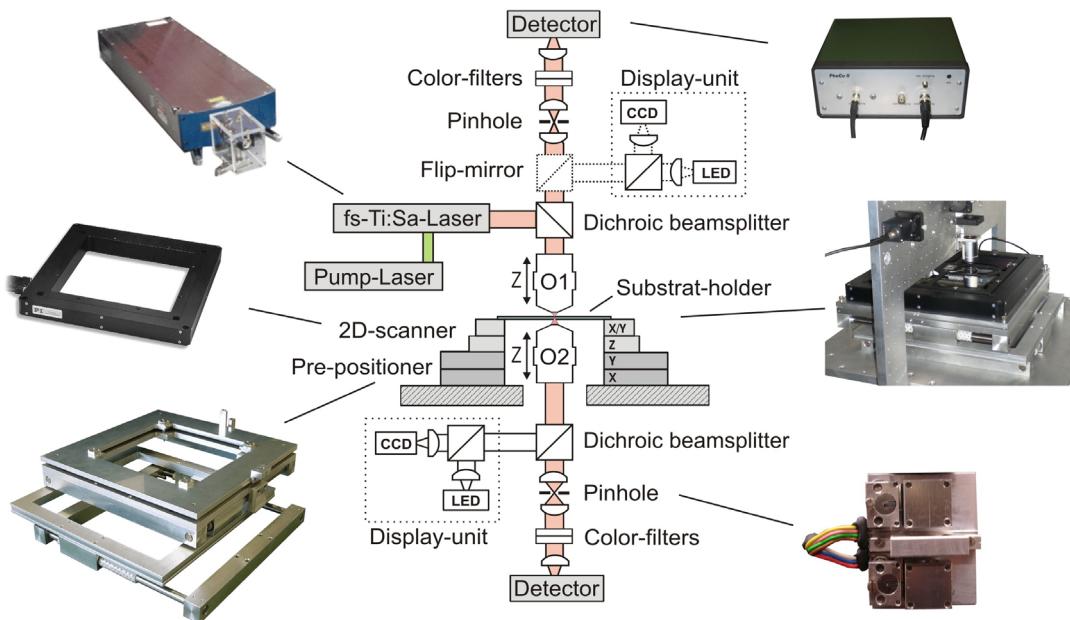
Zur Charakterisierung der ferroelektrischen Domänenstrukturen wurde ein spezieller Aufbau für die nichtlineare Mikroskopie entwickelt und umgesetzt. Im ersten Teil dieses Kapitels wird näher auf das experimentelle Setup des Mikroskops und die ermittelten Systemparameter eingegangen. Es folgt eine Präsentation von Ergebnissen aus der nichtlinearen Analyse an periodisch und zirkular gepolten Z-Schnitt LN. Im letzten Teil des Kapitels werden Resultate aus der nichtlinearen CLSM an periodisch gepolten planaren Strukturen und an Rippenwellenleitern auf X- und Y-Schnitt LN vorgestellt.

### 2.1 Experimenteller Aufbau des nichtlinearen CLSM

Prinzipiell wurde beim realisierten Mikroskopaufbau (Abb. 2-01) auf eine modulare Gestaltung geachtet, um so einer ständigen Anpassung und Weiterentwicklung Rechnung zu tragen. Das System weist somit eine hohes Maß an Flexibilität bezüglich des zu untersuchenden Mikrosystems, dem Austausch bzw. Hinzufügen optischer Komponenten und der Verwendung unterschiedlicher Anregungs- und Detektoreinheiten auf. Die wesentlichsten Features des Mikroskops sind hier:

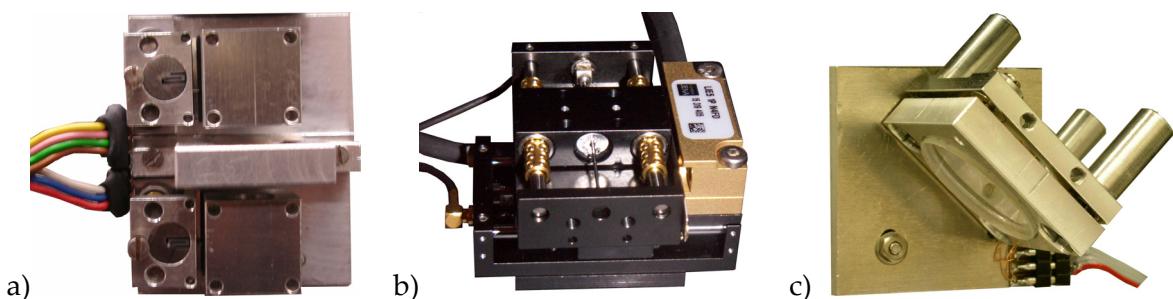
- *Betrieb im linearen und nichtlinearen Modus*
- *Mikroskopie in Reflexions- und Transmissions-Geometrie*
- *Konfokaler Modus: Örtlich hoch aufgelöste 3D-Analyse*
- *Untersuchung von Proben mit einer Ausdehnung von bis zu 5 Zoll*

Die Basis des Mikroskops stellt ein konfokaler optischer Aufbau dar, welcher in der "Infinity-Corrected"-Version realisiert ist. Durch den Einsatz von auf unendlich korrigierten Objektiven ist hier, im Gegensatz zur Standard-Konfiguration, der Abstand von Fokusebene zur Detektor-Lochblende nicht ortsfest. Der kollinierte Strahl ist somit, bezüglich des Designs, nicht durch Einbringen bzw. Entfernen optischer Komponenten beeinflusst und die sphärische Aberration im Laserspot ist reduziert. Sowohl in Reflektions- als auch Transmissionsgeometrie wird der einfallende Laserstrahl durch ein Objektiv (N-Plan-100x/0.9/0.27 bzw. PL-Fl-L-100x/0.75/4.7) auf einen beugungsbegrenzten Punkt auf der Probe fokussiert. Je nach Messgeometrie erfolgt die Signaldetektion ( $\omega$  oder  $2\omega$ ) über das Objektiv-1 (O1) oder über das Objektiv-2 (O2).



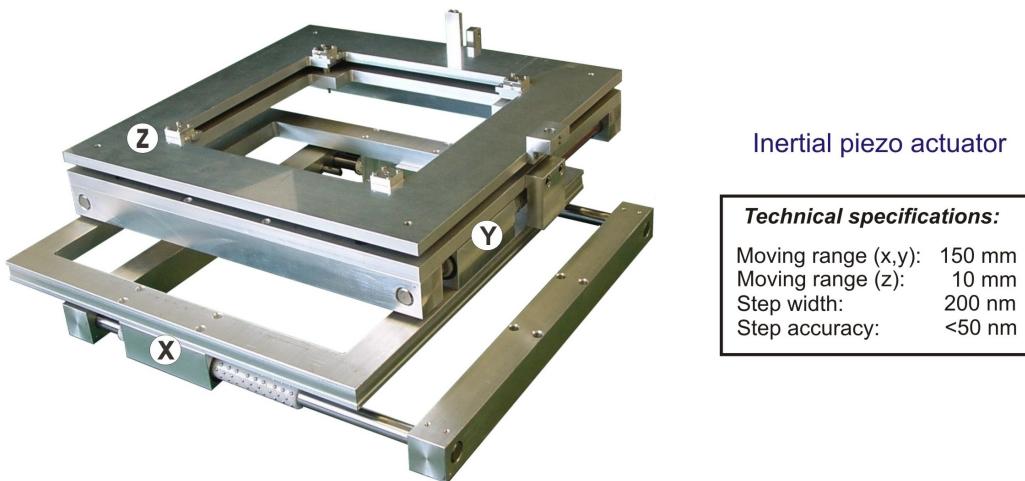
*Abb. 2-01:* Schematische Darstellung zum Aufbau des nichtlinearen CLSM. O1 und O2 stellen auf unendlich korrigierte Objektive dar. Ein komplexes System von Verstellereinheiten (2D-Scanner, Pre-Scanner) ermöglicht eine 3D-Analyse.

Der konfokale Abbildungsmodus wird durch das Einbringen einer Lochblende ( $\varnothing$  typischerweise  $1-2 \mu\text{m}$ ) im jeweiligen Detektionspfad erreicht. Information, welche nicht aus der Fokusebene stammt, wird somit durch diese Anordnung ausgeblendet. Das aus der Fokalebene stammende Signal passiert die Lochblende und kann somit detektiert werden. Der konfokale Aufbau ermöglicht so, optische Transparenz der Probe für die entsprechenden Wellenlängen vorausgesetzt, eine tiefenaufgelöste Analyse. Zur konventionellen Bildgebung sind zwei Abbildungseinheiten (LED, CCD, Strahlteiler) integriert, welche in das System eingekoppelt werden können. Die Justage des optischen Systems erfolgt über Piezo-Aktoren, welche durch piezoelektrische Trägheitsantriebe realisiert sind [Zre96] (Lochblenden-Justierungen, Faserkoppler, Linearversteller für Objektiv-1 in Z, Objektiv-2 in X/Y/Z und die Zwischenbilderzeugung).



*Abb. 2-02:* Photographien umgesetzter Piezo-Aktoren auf Basis des piezoelektrischen Trägheitsantriebes.  
a) Lochblendenmodul, b) gekoppelter Linearversteller und c) Kippversteller für Strahlteiler.

Die „punktförmige“ Anregung und Detektion bei der konfokalen Anordnung bedingt für die Bildgebung eine Rasterung. Der konfokale Laser-Rasterbetrieb erfolgt hier bei fixer Optik (ortsfester Laserfokus) durch eine dreidimensionale Probenpositionierung. Um möglichst einen großflächigen Bereich analysieren zu können ist hier ein kombiniertes Verstellersystem eingesetzt. Dieses beinhaltet einen kommerziellen 2D-Nanopositionierer und eine selbst entwickelte 3D-Verstellereinheit (Abb. 2-03).



**Abb. 2-03:** Photographische Aufnahmen der 3D-Verstellereinheit. Diese ermöglicht eine Mikroskopie in Reflexions- u. Transmissionsgeometrie. Der maximale Verstellbereich in x,y,z beträgt 150 mm x 150 mm x 10 mm)

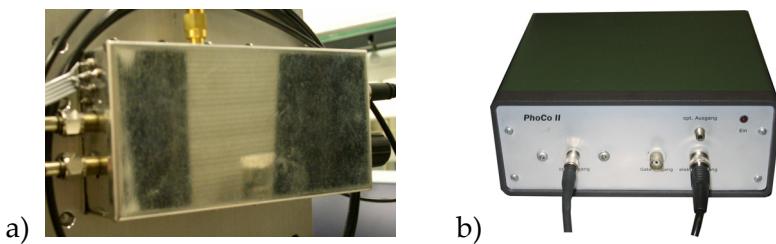
Die 3D-Verstellereinheit (Pre-Scanner) ist so umgesetzt, dass sie zum einen den Betrieb in Transmissionsgeometrie ermöglicht und zum andern einen großen Verstellbereich abdeckt (150 mm x 150 mm x 10 mm). Für alle drei Raumrichtungen sind die jeweiligen Verstellereinheiten über piezoelektrische Trägheitsantriebe realisiert, die in Verbindung mit dem jeweiligen Linearmesssystem bereits für eine Rasterung einsetzbar sind, aber meist für „selektives Rastern“ herangezogen werden. Die Steuerung erfolgt dann rechnergestützt. Alternativ kann zur Steuerung der 3D-Vertellereinheit auch eine Handsteuerung verwendet werden, was zur Positionsfindung hilfreich ist.

Die Längenmesssysteme (LIA-20, Numerik Jena) werden über einen Regelkreis für eine genaue Positionierung und eine etwaige Rasterung eingesetzt (closed loop). Hier erfasst ein Messkopf optisch die auf einem Maßband befindlichen Teilstriche. Die Teilungsperiode des Maßstabes beträgt 20 µm bei einer Genauigkeit von 1 µm. Durch Interpolation weist dieses Linearmesssystem eine Auflösung von 0,1 µm auf. Die maximale Verfahrgeschwindigkeit des Messsystems beträgt 10 m/s. Die vom Messkopf erfassten Daten gelangen über einen Quadraturzähler zur USB-2.0-Schnittstelle, der diese über eine Software verarbeitet bzw. verknüpft.

Der konfokale Rasterbetrieb erfolgt im Allgemeinen mit dem auf den Pre-Scanner aufgesetzten Nanopositionierer (P-770 PTC, PI), der einen Scanbereich von  $200 \mu\text{m} \times 200 \mu\text{m}$  bei einer Auflösung  $< 10 \text{ nm}$  abdeckt. Dieser besitzt ebenfalls einen zentralen Öffnungsbereich, so dass die Transmissionsgeometrie hier möglich ist.

### Linearer Modus

Im linearen Modus kann direkt ein diodengepumpter Festkörperlaser (MBL-473-100), welcher bei einer Ausgangleistung von 100 mW Licht einer Wellenlänge von 473 nm emittiert, in den Anregungspfad eingekoppelt werden. Nach örtlicher Filterung wird das aus der Fokusebene stammende Licht durch eine fasergekoppelte Detektoreinheit erfasst. Wie in 1.3.1 beschrieben, wurde das laterale Auflösungsvermögen mittels Aufnahme definierter Strukturen einer Referenzprobe zu ca. 300 nm und das axiale Auflösungsvermögen nach dem Halbwertbreiten-Kriterium zu 500 nm ermittelt.



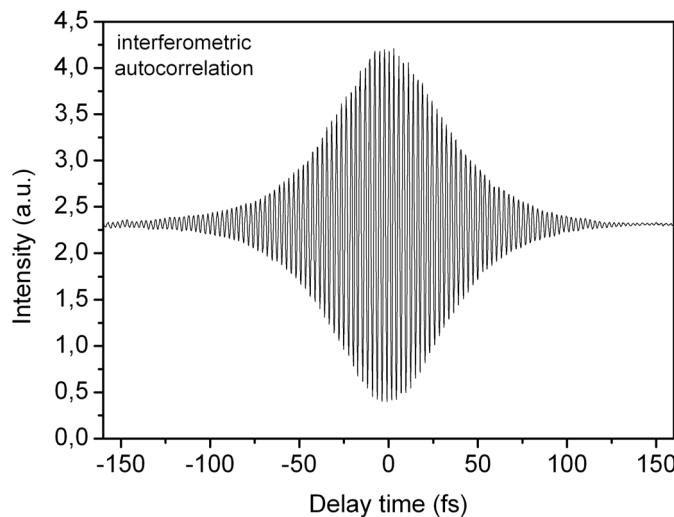
*Abb. 2-04: a) Fasergekoppelte Detektoreinheit für lineare Messungen und  
b) Photonenzählmodul mit einer Si-Avalanche-Photodiode.*

Die Detektoreinheit (Abb. 2-04a) beinhaltet eine Photodiode und einen Signalverstärker, der durch Zuschalten verschiedener Widerstände eine sechsstufig einstellbare Signalverstärkung ermöglicht. Nach einer Strom/Spannungswandlung erfolgt die Digitalisierung des analogen Signals durch einen integrierten Analog/Digital-Wandler (ADC, 16 Bit), was jedoch erst nach Eingang eines Trigger-Signals erfolgt. Das digitale Signal dient dann der weiteren Datenverarbeitung.

### Nichtlinearer Modus

Bei der nichtlinearen Mikroskopie wird für die optische Anregung ein modengekoppelter Ti:Sa-Laser (Femtosource C-20), mit Pulsdauern von 20 fs bei einer Pulswiederholfrequenz von 80 MHz und einer Zentralwellenlänge von  $\lambda = 800 \text{ nm}$ , eingesetzt. Nach Durchlaufen des optischen Einkopplungspfades beträgt die mittlere Leistung ca. 100 mW. Zur Bestimmung der Pulsdauer wurde eine Autokorrelationsmessung durchgeführt. Bei dieser interferometrischen Methode wird ein Lichtimpuls in zwei gleiche Anteile aufgespalten, wobei einer eine fixe Strecke und der andere eine einstellbare geometrische

Verzögerungsstrecke durchläuft. Die beiden Anteile werden in einem optisch nichtlinearen Kristall räumlich überlappt. Dort wird die erzeugte Oberwelle der Laserimpulse als Funktion der relativen Verzögerungsstrecke detektiert (Abb. 2-05). Die resultierende Pulsdauer betrug hier ca. 100 fs. Unter diesen Bedingungen ergibt sich eine Pulseistungsdichte in der Größenordnung von  $1 \times 10^{12} \text{ W/cm}^2$ .

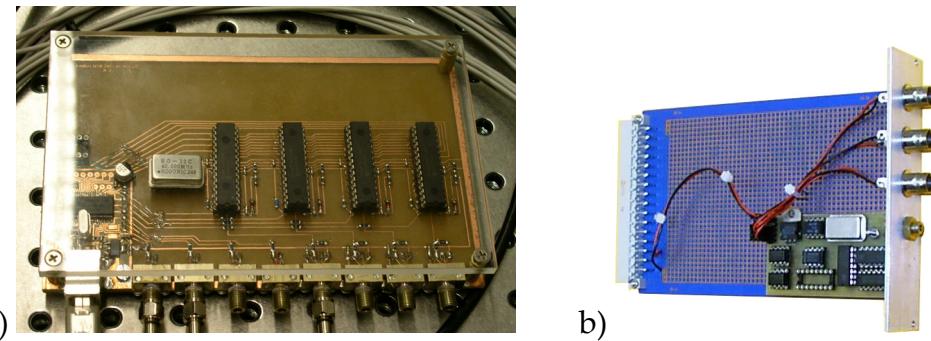


**Abb. 2-05:** Ergebnis der interferometrischen Autokorrelationsmessung zur Bestimmung der Pulslänge des Anregungslichtes nach Durchlaufen des Einkopplungspfades.

Die notwendige Separation von Anregungslight (800 nm) und frequenzverdoppeltem Signal (400 nm) erfolgt durch dichroitische Strahlteiler (Layertec FS 101495) und durch Farbglasfilter (BG39), welche sich direkt vor der Detektoreinheit befinden. Ein Glan-Thomson-Prisma kann zur Polarisationsanalyse eingesetzt werden. Für die Detektion des nichtlinearen Signals wird ein Photonenzählmodul (SPCM-AQR, PerkinElmer) auf Basis einer Silizium-Avalanche-Photodiode eingesetzt (Abb. 2-04b). Die zwei dem System für die nichtlineare Mikroskopie eigene Werte für laterale und axiale Größen ergeben sich nach Gl. 1.55 bzw. Gl. 1.56 zu AE = 670 nm und RE = 618 nm.

### Regelungs- u. Steuertechnik

Bezüglich Betrieb und Analyse wurde eine komplexe Regelungs- und Steuertechnik entworfen, welche die Probenpositionierung, die Rasterung und das mittels Detektor aufgenommene Signal korreliert. Die Schnittstelle zwischen Mikroskop und Computer stellt hier ein Glasfaser-Interface dar (Abb. 2-06a). Dieses ist über Glasfasern (und über eine implementierte optische Empfängereinheit, Abb. 2-06b) mit der Steuereinheit des Nanopositionierers und mit der jeweiligen Detektoreinheit verbunden.



*Abb. 2-06:* Fotographische Aufnahme a) des USB-2.0 Glasfaser-Interface und b) der optischen Empfängereinheit für die Steuerung des PI Nanopositionierers.

Das Glasfaser-Interface besitzt jeweils vier optische Ein- und Ausgänge. Die integrierte USB-2.0-Einheit enthält einen Mikrocontroller (Assembler Programmierung), der die eigentliche Scanroutine steuert. Im Vergleich zu einer „reinen“ PC-Steuerung resultiert aus dem Mikroprozessor gesteuerten Scanablauf eine exaktere Taktfolge und eine wesentlich höhere maximale Scangeschwindigkeit (Faktor 10x). Das erstellte PC-Programm für die konfokale Mikroskopie basiert auf der Hochsprache Delphi.

## 2.2 Ferroelektrische Domänenstruktur in Z-Schnitt LN

Effiziente nichtlineare Prozesse erfordern eine konstante Phasenbeziehung der wechselwirkenden Wellen zueinander, was durch die Dispersion des Trägermaterials aber auf sehr kurze Strecken beschränkt ist. Für die QPM benötigt man nun eine periodische Struktur entgegengesetzt gepolter Domänen. Prinzipiell wird hier periodisch die Phase der nichtlinearen Polarisation verschoben. Diese Phasenverschiebung (Vorzeichenwechsel,  $\pi$ -Sprung) erfolgt an den Grenzen entgegengesetzt gepolter Domänen. Ein wesentlicher Vorteil der Quasi-Phasenanpassung ist die Ausnutzung des größten nichtlinearen Koeffizienten  $d_{33}$ , welcher bei der Phasenanpassung über Doppelbrechung nicht genutzt werden kann, da er Wellen gleicher Polarisation koppelt. Der nichtlineare Koeffizient  $d_{33}$  ist in etwa fünfmal größer als der bei Phasenanpassung über Doppelbrechung genutzte Koeffizient  $d_{31}$ . Ein oft eingesetzter Kristall im Bereich periodischer Polungsstrukturen ist Lithiumniobat [Tam90]. Alle hier untersuchten Strukturen sind in diesem Material realisiert. Wie bereits im Abschnitt 1.2 näher erläutert, besitzen ferroelektrische Materialien wie Lithiumniobat eine polare (gerichtete) Symmetriearchse und daher kein Inversionszentrum. Sie weisen eine spontane Polarisation auf, welche sich durch externe elektrische Felder (einige kV/mm) umkehren lässt. Man spricht dann von Domäneninversion. Mikroskopisch betrachtet, werden im Kristall die Kationen relativ zum Anionengerüst verschoben. Für Temperaturen unterhalb der Curie-Temperatur ist die Inversion langzeitstabil. Problematisch sind zum einen die Herstellung sehr kleiner Polungsperioden (Sub- $\mu\text{m}$ -Bereich) und zum anderen die Lichtabsorption im sehr langen oder kurzen Wellenlängenbereich. Die Beherrschung der überaus komplexen Polungsprozesse ist hier wesentlich.

### Herstellung der periodische Domänenstruktur

Alle im Rahmen dieser Arbeit untersuchten PPLN- und Ti:PPLN-Proben wurden von Mitgliedern der Arbeitsgruppe „Integrierte Optik“ von Herrn Prof. Sohler (Universität Paderborn) prozessiert. Als Ausgangsmaterial diente hier kongruentes und eindomäiges Z-Schnitt LN (Crystal Technology, Palo Alto, USA). Die von den Wafern geschnittenen Substrate (Schnitt parallel zur kristallographischen X-Achse) weisen eine Dicke von 500  $\mu\text{m}$  auf. Für Proben mit Wellenleiter erfolgte eine Eindiffusion von Titanstreifen ( $\sim 1060$  °C, Argon-Inertgasumgebung) auf der -Z Fläche, deren Struktur in einem photolithographischen Prozess übertragen wurde. Es ist bekannt, dass das Domänenwachstum im elektrischen Feld auf der positiven Seite startet (+Z-Fläche) und somit hinsichtlich vorgegebenem Tastverhältnis das beste Ergebnisse liefert. Daher erfolgte vor der eigentlichen Polungsstrukturierung noch ein komplettes Umpolen des Substrates mit Hilfe eines elektrischen Feldes (ca. 21 kV/mm). Das zur Domäneninversion benötigte E-Feld kann beispielsweise durch den pyroelektrischen Effekt [SS91] oder wie bei den untersuchten

Proben durch Anlegen einer externen Spannung (feldunterstützte Polung) erzeugt werden [GH+08].

*Polung:*

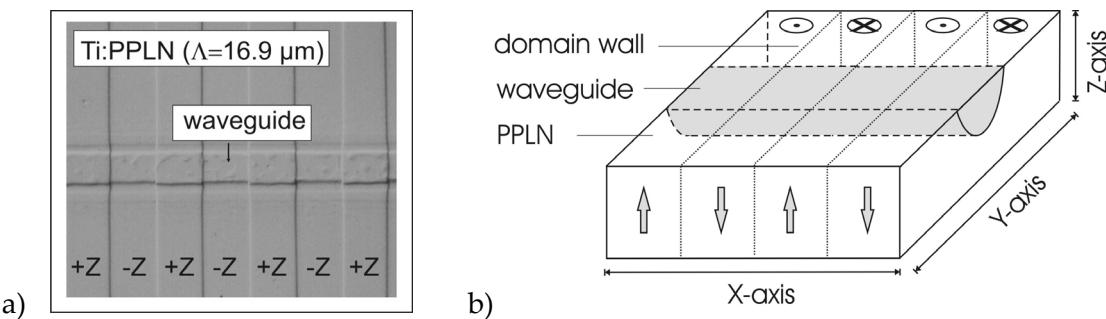
Die Herstellung der periodischen Domänenstruktur erfolgt nach der Standardmethode. Dazu wurde auf der +Z-Fläche eine photolithographisch definierte elektrisch isolierende Streifenstruktur (Photolack) aufgebracht ( $\Lambda=2 \cdot l_c$ ). Dieser Prozess beinhaltet das Aufschleudern/Backen des Photolackes ( $1 \mu\text{m}$ ), die Übertragung der Struktur (Chrommaske) durch Kontaktbelichtung/Härten und den anschließenden Ätzvorgang. Die elektrische Kontaktierung erfolgt anschließend durch einen Elektrolyten. Somit hat man quasi Flüssigelektroden (hier aus LiCl-Lösung), wobei die auf der +Z Seite eine periodische Elektrodenstruktur und die auf der -Z Seite eine homogene elektrische Kontaktfläche darstellt. Das Tastverhältnis für die periodische Polung wird durch den eingestellten Ladungsmengenfluss festgelegt (bei konstant gehaltenem Strom). Die Domäneninversion wird ab einer Feldstärke von ca.  $21 \text{ kV/mm}$  erreicht, welche der Koerzitivfeldstärke von Lithiumniobat entspricht. Eine der Polung anschließende Temperung der PPLN-Proben bei über  $120^\circ\text{C}$  (2h) trägt zum Abbau mechanischer Verspannungen bei und im Fall periodisch gepolter Wellenleiter somit zu einer Verminderung der Ausbreitungsverluste.

Domänenstruktur und Charakterisierung

Für eine erste qualitative Beurteilung der Domänenstruktur nach der Polung eignet sich die Polarisationsmikroskopie, welche auf der induzierten Doppelbrechung beruht. Diese röhrt von elektrischen Feldern (verblichener Ladungen an den Domänenwänden) und mechanischen Verspannungen her.

Eine andere Methode zur Strukturabbildung macht sich den pyroelektrischen Effekt zu nutze, die so genannte Toner-Dekoration [Sch01]. Die PPLN-Probe wird nach einem Benzinbad erwärmt, so resultieren aus dem pyroelektrischen Effekt unterschiedliche Oberflächenladungen für die entgegengesetzt orientierten Domänen (+Z negativ, -Z positiv). Der Positiv-Toner (negativ geladen) lagert sich nun an den positiv geladenen Oberflächen der -Z-Domänen an.

Eine häufig angewandte Methode ist die des selektiv chemischen Ätzens ( $\text{HF:HNO}_3$ ), die Ätze greift hier die  $-Z$ -Flächen wesentlich schneller an. Die übertragene ferroelektrische Domänenstruktur kann so auf die Probenfläche transferiert und lichtmikroskopisch kontrolliert werden (Abb. 2-07).

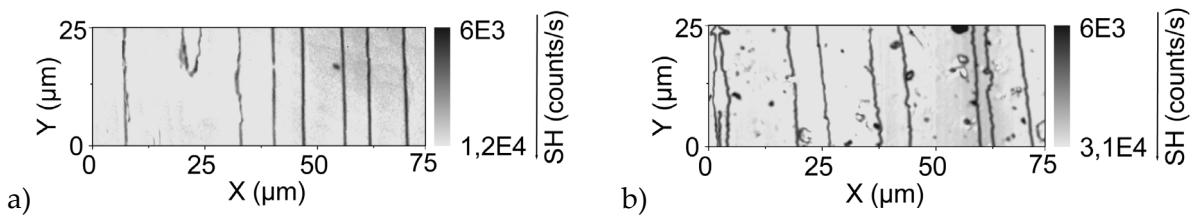


**Abb. 2-07:** a) Mikroskopische Aufnahme einer PPLN-Oberfläche mit Ti-Wellenleiter nach selektiv chemischem Ätzen. b) Schematische Darstellung zur Erläuterung der Strukturverhältnisse. Die Koordinaten entsprechen den kristallographischen Achsen.

Eine herausragende Methode zur Charakterisierung der ferroelektrischen Domänenstruktur stellt die nichtlineare Mikroskopie dar. Als zerstörungsfreie und kontaminationsarme Methode ermöglicht sie eine dreidimensionale Analyse und Abbildung der Domänenstruktur. Bei der konfokalen nichtlinearen Mikroskopie wird ortsaufgelöst beispielsweise die generierte zweite Harmonische detektiert. Die Untersuchung der SHG Signatur von periodisch gepoltem Z-Schnitt LN ist nun Thema dieses Kapitels.

## 2.2.1 SHG-Signatur der PPLN-Oberfläche

In früheren Arbeiten erfolgte eine nichtlineare Analyse der SHG-Signatur ausschließlich in Reflektionsgeometrie, wobei der SHG-Mechanismus bis heute noch nicht endgültig geklärt ist [RF01]. Gerade deshalb scheint ein Vergleich der SH-Emission in Vorwärts- u. Rückwärtsrichtung sehr vielversprechend, was hier durch den speziellen Aufbau des eingesetzten Mikroskops ermöglicht wird. In Abbildung 2-08 sind zwei typische konfokale SH-Aufnahmen einer PPLN-Oberfläche (Z-Fläche) für den Reflektions- und Transmissionsmodus gegenübergestellt. Der Fokus lag in beiden Fällen auf dem gleichen Niveau (obere Fläche), wobei hier unterschiedliche Oberflächengebiete abgebildet sind. In beiden Modi war es möglich, die Domänenstruktur und etwaige Störungen dieser abzubilden.



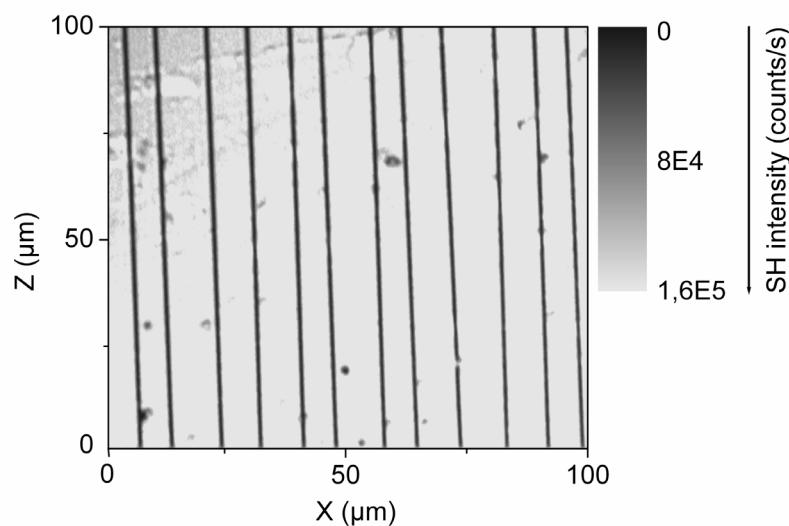
**Abb. 2-08:** Konfokale SH-Aufnahmen einer Z-Schnitt PPLN-Oberfläche, wobei die Mikroskopie im a) Reflektions- und b) Transmissionsmodus erfolgte. Die Rasterschrittweite lag hier jeweils bei 250 nm.

Hier stellen die Bereiche geringer SH-Intensität (dunkle Linien) Domänengrenzen dar. Das von den Domänengrenzen stammende SH-Oberflächensignal ist relativ zum Domänensignal erniedrigt. Ein Vergleich der beiden Aufnahmemodi zeigt, dass in der Transmissionsgeometrie ein etwa dreimal höheres nichtlineares Signal detektiert werden kann. Zudem ergibt sich ein stärkerer SH-Kontrast zwischen Domäne und Domänenwand. Es kann somit auf eine vorwiegend kolinear zur Richtung der Fundamentalen verlaufenden Erzeugung der zweiten Harmonischen geschlossen werden. Bei einer Ausbreitung der zweiten Harmonischen ergibt sich in Vorwärtsrichtung eine Phasenfehlpanpassung  $\Delta k_{fo} = k_{SH} - 2k_F$  und in Rückwärtsrichtung eine Fehlanpassung von  $\Delta k_{ba} = k_{SH} + 2k_F$ . Wobei  $k_{SH}$  die Wellenzahl der zweiten Harmonischen und  $k_F$  die Wellenzahl der fundamentalen Welle darstellt. Für die Kohärenzlänge  $L_C$  der zwei Prozesse gilt dann:

$$L_C = \frac{\pi}{\Delta k}, \quad \text{mit} \quad \Delta k_{ba} = \frac{2\pi}{\lambda_{SH}}(n(2\omega) + n(\omega)) \quad \text{oder} \quad \Delta k_{fo} = \frac{2\pi}{\lambda_{SH}}(n(2\omega) - n(\omega)) \quad (2.01)$$

Bei einer rückwärtigen Ausbreitung der zweiten Harmonischen ( $L_{C,ba} \sim 43$  nm) ergibt sich eine viel kürzer Kohärenzlänge als bei einer Ausbreitung in Vorwärtsrichtung ( $L_{C,fo} \sim 1$  μm). Bei dieser qualitativen Argumentation werden die aus der Strahlfokussierung resultierende  $k$ -Verteilung und die Anisotropie des Mediums nicht berücksichtigt. Neben dem Vorteil der größeren kohärenten Wechselwirkungslänge im Transmissionsmodus werden etwaige Farbfehler des Objektivs keinen Einfluss haben, da Anregung (Fundamentale) und Detektion (zweite Harmonische) unabhängig fokussiert werden [BQ+06].

In der SH-Aufnahme einer X/Z-Oberfläche von Z-Schnitt PPLN sind ebenfalls die Domänenwände auszumachen (Abb. 2-09). Die Anregung erfolgte senkrecht zu dieser Ebene (Y-Fläche) im Reflektionsmodus.

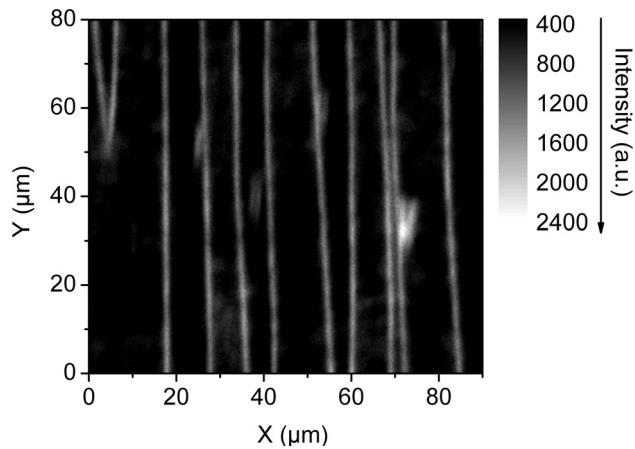


**Abb. 2-09:** Ergebnis eines Oberflächenscans der Y-Ebene eines PPLN-Kristalls (Z-Schnitt) im Reflektionsmodus (Raster schrittweite 250 nm).

Die Welle der Fundamentalen war hier parallel zur Z-Achse polarisiert, so dass aufgrund der Ausnutzung des größten nichtlinearen Koeffizienten  $d_{33}$  die Intensität der zweiten Harmonischen sich wesentlich erhöht darstellt. Auch hier ist das erfasste SHG-Signal der Domänengrenzen gegenüber dem aus den Domänen reduziert. Die von den Domänengrenzen stammende SHG-Signatur weist bei den hier untersuchten Proben (2h Temperung bei 120°C) eine Breite von weniger als 300 nm auf. Das erwähnte Kontrastverhalten des SHG Oberflächensignals aus Domäne und Domänenwand lag bei allen untersuchten PPLN-Proben vor.

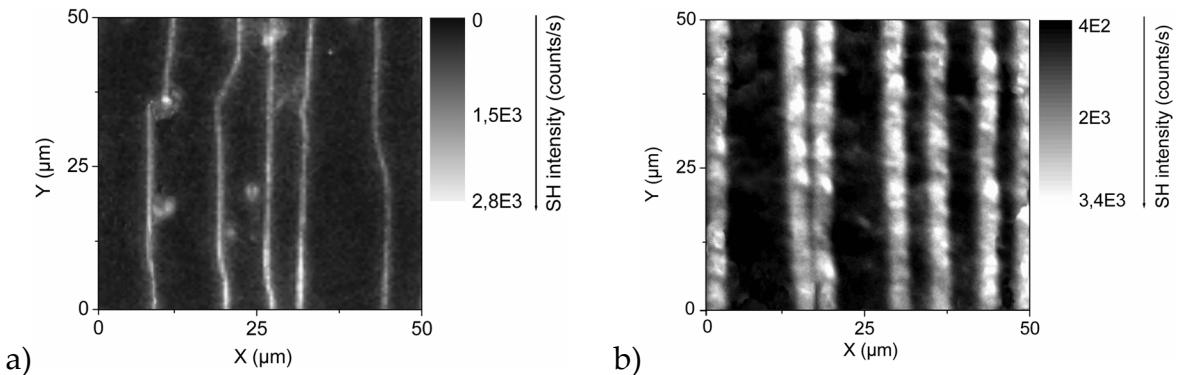
## 2.2.2 Analyse des PPLN-Volumenkristalls

Die SHG-Signatur des periodisch gepolten Volumenkristalls unterscheidet sich signifikant von der des Oberflächenbereichs. Zunächst konnte hier ein inverser SHG-Charakter beobachtet werden. Das im Kristall generierte nichtlineare Signal der Domänen weist gegenüber dem der Domänewände eine geringere Intensität auf. In Abbildung 2-10 ist die SH-Aufnahme einer 30 μm tief im PPLN-Kristall liegenden konfokalen X/Y-Ebene dargestellt. Jetzt stellen Bereiche erhöhter SH-Intensität (helle Linien) das nichtlineare Signal der Domänenwände dar.



**Abb. 2-10:** Nichtlineare Aufnahme einer  $30 \mu\text{m}$  tief liegenden konfokalen X/Y-Ebene der PPLN-Probe (Pb784zB) (Reflektionsmodus, Rasterschrittweite  $250 \text{ nm}$ ).

Durch Tiefenscans wurde die beobachtete Inversion systematisch verifiziert. Um nun den Einfluss von Prozessparametern auf die innere Domänenstruktur zu prüfen, wurden verschiedene prozessierte Proben charakterisiert. Das Ergebnis einer Analyse bezüglich des Einflusses der Temperung auf die PPLN-Strukturen findet sich in Abbildung 2-11, hier sind zwei SH-Aufnahmen konfokaler Schnittebenen aus ca.  $20 \mu\text{m}$  Tiefe für eine getemperte und eine nicht getemperte PPLN-Probe gegenübergestellt.

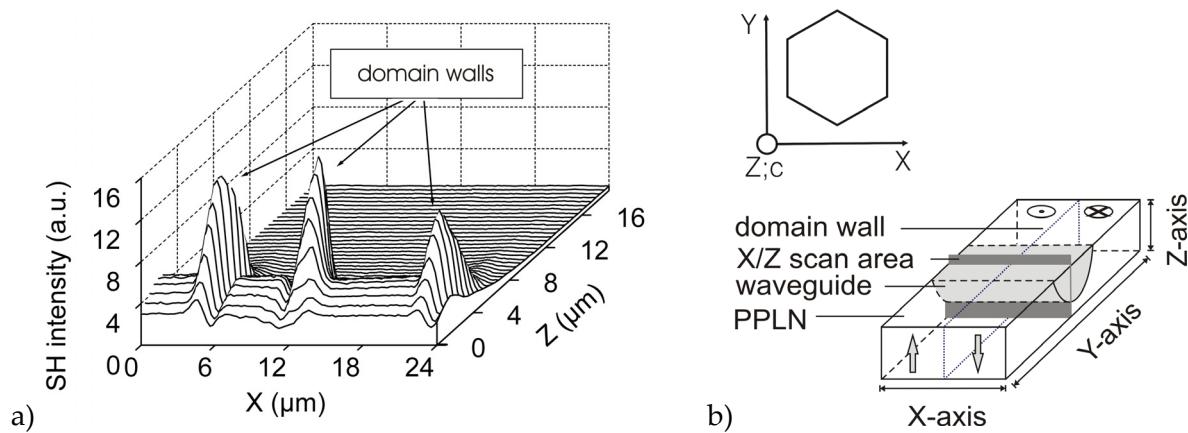


**Abb. 2-11:** SH-Aufnahmen von  $20 \mu\text{m}$  tief liegenden X/Y-Ebenen in PPLN, wobei eine Probe getempert (a) und eine nicht getempert (b) ist. Die Rasterschrittweite lag hier bei  $250 \text{ nm}$ .

Die SH-Signatur der Domänenwände weist bei der nicht getemperten Probe eine örtliche Verbreiterung der Domänenwände von bis zu  $3 \mu\text{m}$  auf. Diese lässt auf eine starke Verspannung oder auf eine Wechselwirkung mit einem inneren elektrischen Feld schließen, welches die dielektrische Konstante von Lithiumniobat reduziert [CKI01]. Um in den PPLN-Strukturen eine möglichst effiziente Quasi-phasenanpassung zu erreichen, scheint eine Temperung der Proben notwendig. Betracht man die SH-Aufnahme der nicht getemperten Proben etwas genauer, so lässt sich entlang der Domänengrenzen eine zusätzliche Periodizität erkennen, die auch bei anderen nicht getemperten Proben beobachtet werden konnte.

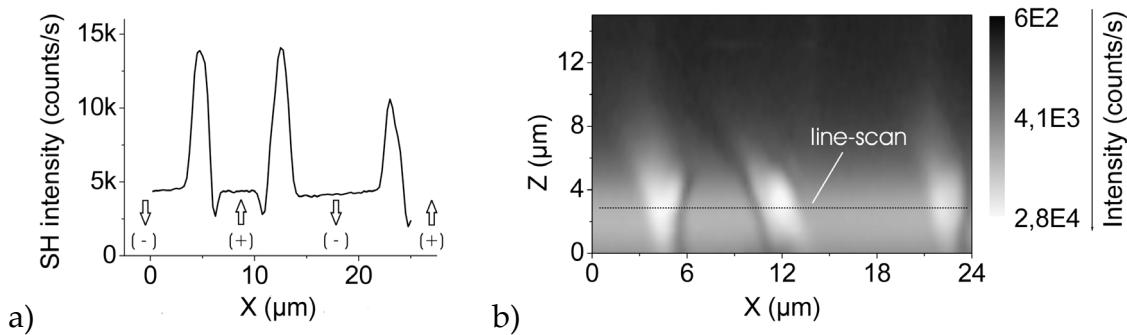
### 2.2.3 SHG-Verhalten im Streifenwellenleiter (Ti:PPLN)

Um einen integrierten Wellenleiter zu realisieren, muss in einem Material lokal der Brechungsindex erhöht werden, so dass eine Wellenleitung auf Basis der Totalreflexion ermöglicht wird. Zwei standardmäßige Techniken für die Herstellung eines Streifenwellenleiters in Lithiumniobat sind die Titan-Eindiffusion und der Protonenaustausch (APE, Annealed Proton Exchange) [YN+93] [SK74]. Für die Phasenanpassung erfolgt auch hier eine periodische Polung. Das Ergebnis einer tiefenaufgelösten nichtlinearen Analyse eines periodisch gepolten Ti-Streifenwellenleiters in Lithiumniobat (Ti:PPLN) ist in Abbildung 2-12 gezeigt. Hier fand der Polungsvorgang nach Titan-Eindiffundierung mit einer finalen Temperung bei 120°C statt. Es wurden entlang des Wellenleiters (X-Richtung) Linienscans durchgeführt, wobei sukzessive tiefer in das Ti:PPLN eingedrungen wurde (Z-Richtung).



*Abb. 2-12: a) Diagramm aus Linienscans verschiedener Tiefe (Z) entlang eines Ti: Wellenleiters (X-Richtung) in Z-Schnitt PPLN und b) Skizze zur Klärung der Messgeometrie.*

Hier konnte ein SH-Signal aus dem Oberflächenbereich des Ti:PPLN detektiert werden, welches im Bereich der Domänengrenzen eine starke Erhöhung aufweist. Allein dies stellt schon einen signifikanten Unterschied zur SHG-Signatur der PPLN-Oberfläche dar (erniedrigtes SH-Wandsignal). Das maximale detektierbare SH-Signal stammt aus einer Tiefe von ca. 3 μm. Tiefenaufgelöste Untersuchungen zeigen, dass sich diese Kontrastinversion des SH-Signals der Domänen und Domänenwände sowie die massive SH-Erhöhung an den Domänenwände tatsächlich über den ganzen Ti-diffundierten Bereich des Wellenleiters erstreckt. Die nichtlineare Antwort im Bereich der Domänenwände kann hier nicht mehr als symmetrische Funktion des Ortes x angesehen werden (Abb. 2-13).

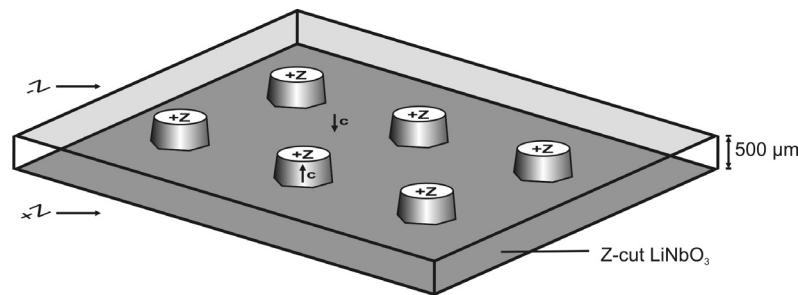


**Abb. 2-13:** Resultat der nichtlineare Analyse quer zu den invertierten Domänen in Ti:PPLN als  
a) Linienscan in 3  $\mu\text{m}$  Tiefe und b) tiefenaufgelöst Kontur-Plot der X/Z-Fläche.

Wie aus der Abbildung 2-13a ersichtlich, findet man in (+)-Domänen am jeweiligen Übergangsbereich zu (-)-Domänen einen relativ scharfen Signaleinbruch, gefolgt von einer starken Signalerhöhung. Im Gegensatz zum PPLN erscheinen hier die Domänengrenzen nicht mehr als „scharfe“ Signaleinbrüche, sondern vielmehr als verbreiterte Strukturen mit einem stark erhöhten SH-Signal. Die Tatsache, dass der Polungsvorgang nach der Titan-Eindiffundierung erfolgte, lässt auf einen Zusammenhang zwischen dem hier beobachteten Verhalten und der inneren E-Feld-Verteilung schließen. Der langreichweitige Charakter des Phänomens stützt diese Vermutung, zumal zusätzliche strukturelle Veränderungen während der finalen Temperung unwahrscheinlich sind.

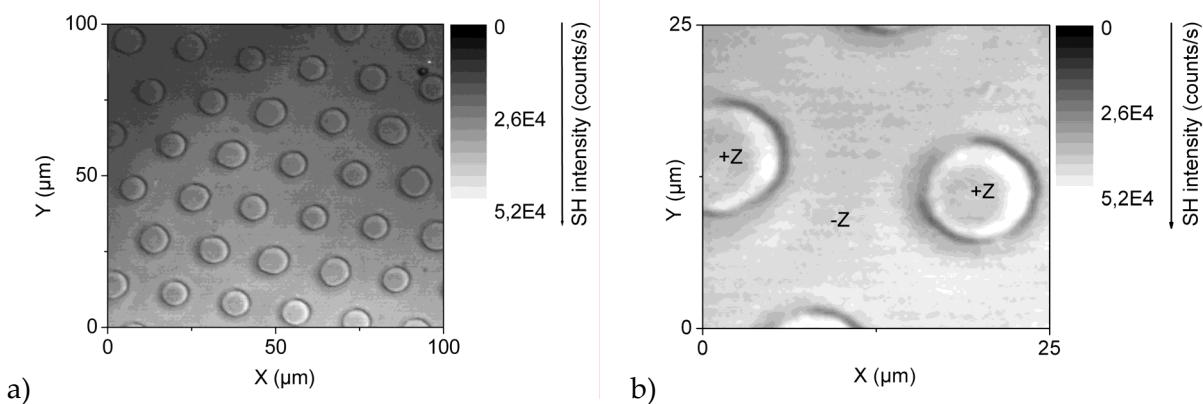
## 2.2.4 Zirkulare Polungsstruktur in LN

Es wurden auch Z-Schnitt LN Proben mit zirkularer Polungsstruktur untersucht. Diese wurden bereits von Frau Dr. Soergel und Herrn Dr. Jungk (Universität Bonn) mittels elektrostatischer Kraftmikroskopie (SFM, Scanning Force Microscopy) charakterisiert und mir freundlicher Weise für eine nichtlineare Analyse überlassen. Zur Darstellung der geometrischen Verhältnisse dient die schematische Darstellung in Abbildung 2-14. Die zirkulare Struktur wurde durch feldunterstützte Polung realisiert, wobei eine Polungsmaske mit kreisförmigen Öffnungen verwendet wurde. Wie bereits mittels SFM nachgewiesen werden konnte, geht die zirkulare Struktur im Kristall in eine hexagonale über [JS05]. Diese Tiefeninformation konnte jedoch nur durch sukzessives Entfernen der Schichten (Abpolieren auf der ursprünglichen -Z-Fläche) und jeweiliger Charakterisierung der Domänenstruktur (Oberfläche) gewonnen werden.



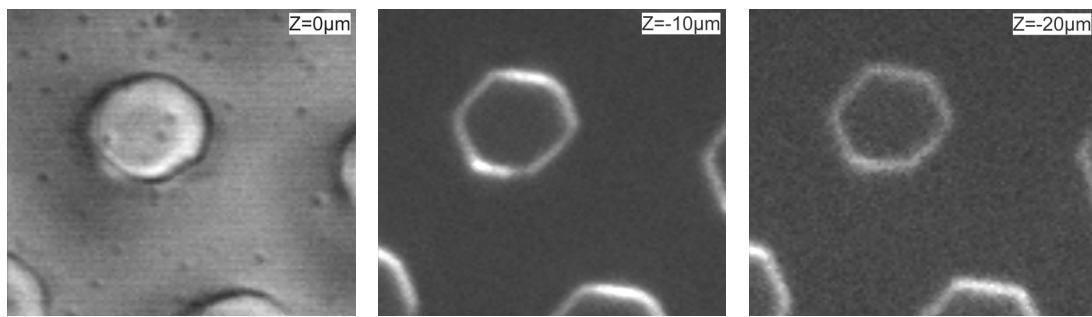
*Abb. 2-14:* Schematische Darstellung zur Erläuterung der geometrischen Verhältnisse bezüglich der zirkular gepolten LN-Proben.

Um nun diese Tiefeinformation ohne eine Zerstörung der Probe zu erhalten, wurde die nichtlineare Mikroskopie als berührungslose Methode eingesetzt, wobei nichtlineare Mikroskopie und die Kraftmikroskopie sich hinsichtlich der unterschiedlich gearteten Informationen ergänzen. In Abbildung 2-15 sind zwei SH-Aufnahmen der Oberfläche (ursprüngliche  $-Z$ -Fläche) einer solchen LN-Probe (HexP1) dargestellt.



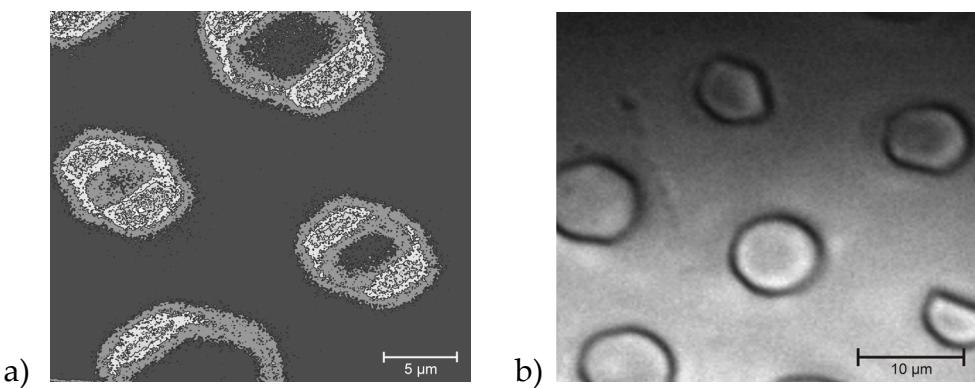
*Abb. 2-15:* SH-Aufnahmen einer Z-Schnitt LN-Oberfläche mit zirkularer Polungsstruktur.  
a) Übersichtsscans mit einer Rasterschrittweite von 500 nm. b) Detailausschnitt mit einer Rasterschrittweite von 250 nm.

Es zeigt sich klar die übertragene Struktur, wobei die abgebildeten Kreise die Domänenwände darstellen. Wie in PPLN ist das detektierbare nichtlineare Signal an den Domänengrenzen im Verhältnis zum Domänsignal erniedrigt. Für die tiefenaufgelöste Analyse wurde nun eine Serie unterschiedlich tief liegender konfokaler Schnittebenen ( $X/Y$ -Ebene) aufgenommen. Exemplarisch sind drei dieser SH-Aufnahmen in Abbildung 2-16 abgebildet.



**Abb. 2-16:** Serie von SH-Aufnahmen konfokaler X/Y-Ebene (Z-Fläche) unterschiedlicher Tiefe (Oberfläche, 10  $\mu\text{m}$  u. 20  $\mu\text{m}$  Tiefe) einer zirkular gepolten Z-Schnitt LN-Probe (HexP1). Die Rasterschrittweite betrug jeweils 250 nm.

Zwischen dem nichtlinearen Signal der Domänen und der Wände zeigt sich hier wieder das typische Flippen des Kontrastes. Deutlich ist zu erkennen, wie mit zunehmender Tiefe die zirkuläre Struktur in eine hexagonale übergeht und der Einfluss der kristallinen Umgebung im Volumen zunimmt. Weiterhin fällt auf, dass die SHG an den Domänengrenzen von deren Orientierung abhängt, was bei einer Betrachtung einer nicht getemperten Probe noch deutlicher hervortritt. Die Abbildung 2-17a zeigt die nichtlineare Aufnahme der konfokalen X/Y-Schnittebene in 20  $\mu\text{m}$  Tiefe (Z) einer nicht getemperten Z-Schnitt LN-Probe (HexP2, zirkulare Polung). Die Rasterschrittweite betrug hier jeweils 100 nm. Im Oberflächenbereich konnte keinerlei unterschiedliches Verhalten zu den getemperten Proben festgestellt werden (Abb. 2-17b).



**Abb. 2-17:** SH-Aufnahme der X/Y-Ebenen einer nicht getemperten, zirkular gepolten Z-Schnitt LN-Probe 20  $\mu\text{m}$  a) unterhalb und b) im Oberflächenbereich der ursprünglichen -Z-Fläche.

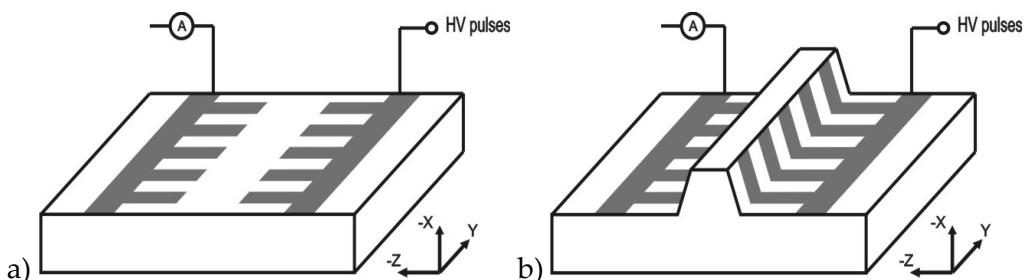
Im Volumenkristall zeigt sich hier, analog zu den PPLN-Proben, eine Verbreiterung der Domänenwände bis zu einer Dicke von 3  $\mu\text{m}$  und eine klare Orientierung an der hexagonalen Struktur mit richtungsabhängigen Bereichen.

## 2.3 Mikrodomänen in X- u. Y-Schnitt LiNbO<sub>3</sub>

Periodisch gepolte X-Schnitt-Bauelemente auf Basis der integrierten Optik sind für eine Vielzahl von Anwendungen von großem Interesse [GB07]. So können beispielsweise in X-Schnitt LN Bandpassmodulatoren realisiert werden [KTR00]. Ferroelektrische Materialien sind hinsichtlich der Entwicklung hin zu photonischen Nanodrähten von regem Forschungsinteresse, wobei hier auch die Quasi-Phasenanpassung für nichtlineare Prozesse zweiter Ordnung benötigt wird [FT+08].

### Feldunterstützte Polung

Im Vergleich zum Z-Schnitt LiNbO<sub>3</sub> weisen X- und Y-Schnitt LiNbO<sub>3</sub> eine unterschiedliche Orientierung der optischen Achse auf. Für die oberflächennahen Wellenleiter, welche als Streifen- oder Rippenstruktur realisiert sein können, erfolgt die Polung mittels Elektroden, die sich direkt auf der Substratoberfläche befinden. Alle nachfolgend charakterisierten Proben stammen aus der Arbeitsgruppe „Integrierte Optik“ von Herrn Prof. Sohler, wobei deren Polung von Frau M. Sc. Li Gui durchgeführt wurde [GH+08]. Für die feldunterstützte Polung wurden in einem lithographischen Verfahren kammartige Titan-Elektroden ( $d_T \sim 100$  nm) erzeugt (Abb. 2.18). Die Periode der Elektroden beträgt bei den untersuchten Strukturen 16,6  $\mu\text{m}$ , wobei der Abstand der entgegengesetzten Elektroden zwischen 8  $\mu\text{m}$  und 14  $\mu\text{m}$  variiert. Im Fall der Rippenwellenleiter liegen die Elektroden auf den Z-Flächen, was eine Abgrenzung der Mikrodomänen zum Basiskristall bewirkt.



**Abb. 2-18:** Schema der Polungskonfiguration für a) planares X-Schnitt LN und b) für einen Rippenwellenleiter auf X-Schnitt LN. Die angegebenen Koordinaten entsprechen den kristallographischen Achsen.

Um beim Polungsvorgang eine gute Isolation zwischen den entgegengesetzten Elektroden zu gewährleisten, erfolgte dieser in einem Ölbad. Bei den hier aufgeführten Proben wurde die Polung durch Serien von Rechteckpulsen realisiert. Die angelegte Pulsspannung variierte, je nach Elektrodenabstand, zwischen 250 V und 550 V, wobei die Pulsdauer meist bei 10 ms lag. Der Pulsabstand betrug 100 ms. Bei der Polung weisen planare Struktur und Rippenwellenleiter keinen signifikanten Unterschied im Strom/Ladungs-Verhalten auf. Wie

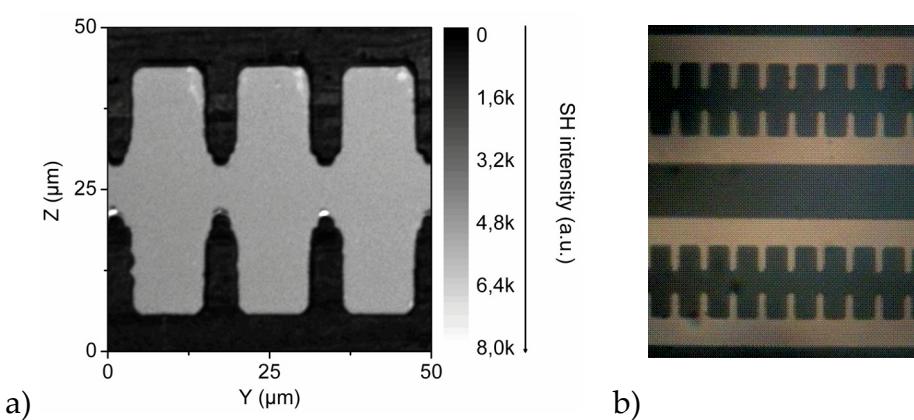
auch in früheren Arbeiten [Hof97] wurde der größte Ladungsfluss während des ersten Pulses beobachtet, welcher dann mit jedem weiteren Puls abnimmt und nach fünf Pulsen schließlich bei einem bestimmten Niveau eine Sättigung erfährt [GH+08].

### Angewandte Charakterisierungsmethoden

Nach der Polungsprozedur wurden die Proben mittels unterschiedlicher Methoden charakterisiert. Standardmäßig erfolgte eine Inspektion durch ein linearoptisches Mikroskop. Polarisationsmikroskop-Aufnahmen der Oberfläche zeigten hier keinerlei Anzeichen einer Domänenstruktur. Mit Hilfe des selektiven chemischen Ätzens kann die Domänenstruktur indirekt aufgezeigt werden. Hierfür wird die Probe für 20 Minuten in HF:HNO<sub>3</sub> geätzt und anschließend mikroskopisch abgebildet. Als zerstörungsfreie Analysemethode wurde die nichtlineare Mikroskopie eingesetzt. Um den größten nichtlinearen Koeffizienten d<sub>33</sub> auszunutzen, war bei allen nachfolgenden beschriebenen nichtlinearen Untersuchungen die Polarisation des Pumplichtes parallel zur kristallographischen Z-Achse orientiert.

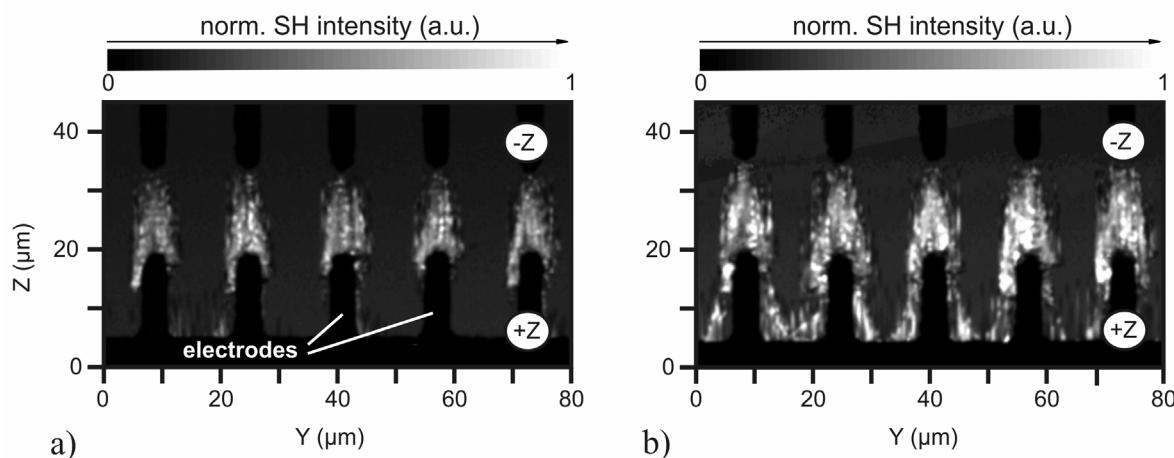
#### 2.3.1 Planare Polungsstruktur in X- Schnitt PPLN

Nichtlineare Aufnahmen von noch ungepolten Proben mit Ti-Elektroden zeigen das erwartete SHG-Verhalten (Abb. 2-19a). Das von der LN-Oberfläche generierte nichtlineare Signal wird detektiert, während vom Elektrodenbereich quasi kein Signal erfasst wird. Zwischen den Elektroden ist keinerlei Struktur auszumachen.



**Abb. 2-19:** a) Konfokale SH-Mikroskopaufnahme der X-Fläche einer ungepolten planaren LN Probe (Pb299x-H) mit Ti-Elektroden. Die Rasterschrittweite betrug hier in Y und Z jeweils 250 nm.  
b) Photographische Aufnahme einer Probe mit einer Periodizität der Elektroden von 16,6  $\mu\text{m}$ .

Im Gegensatz dazu zeigte sich in gepolten X-Schnitt LN Proben ein erhöhtes nichtlineares Signal aus Breichen zwischen den Elektroden, wobei diese invertierten Bereiche Domänen von endlicher Tiefe darstellen. Nachfolgende Abbildung 2-20 zeigt zwei typische SH-Aufnahmen der X-Fläche zweier planaren Proben mit periodischen Mikrodomänen, wobei hier zur einfacheren Orientierung die Elektroden nach der Polung auf den Proben belassen wurden. Die Pulsdauern bezüglich der Polung lagen bei 10 ms (Abb. 2-20a, Pb296xA-D3) und bei 20 ms (Abb. 2-20b, Pb296xA-G2). In beiden Fällen ist eine periodische „Musterung“ mit einem starken SH-Kontrast auszumachen, wobei ein durchschnittliches Tastverhältnis von 50:50 vorliegt.



**Abb. 2-20:** Konfokale SH-Aufnahmen planarer X-Schnitt LN-Proben mit Mikrodomänen. Die Polung erfolgte mit Pulsdauern von a) 10 ms und b) 20 ms. Die Rasterschrittweite für die konfokale Aufnahme betrug in beiden Fällen 250 nm.

Aus dieser nichtlinearen Analyse kann geschlossen werden, dass der Polungsprozess bei der positiven Elektrode startet und sich zur negativen fortsetzt. Ebenso kann um die positive Elektrode ein nichtlineares Signal registriert werden, welches von entsprechenden Domänen stammt. Für den Fall einer Polung mit größerer Pulsdauer kann aus dem invertierten Bereich eine stärkere nichtlineare Antwort und zudem eine homogener SH-Verteilung beobachtet werden.

Die nichtlineare Signatur dieser Strukturen wurde so nicht erwartet und steht im Gegensatz zu den bisher gemachten Erfahrungen an PPLN. Im Oberflächenbereich der Z-Schnitt PPLN Strukturen ist das von den Domänenwänden stammende nichtlineare Signal gegenüber dem Domänenignal reduziert, wobei im Kristallinneren das gegensätzliche Verhalten beobachtbar ist [BQ+07] [RF01]. Der wesentliche Unterschied ist hier, dass die invertierten Bereiche zwischen den Elektroden Domänen endlicher Tiefe (wenige Mikrometer) mit einer charakteristischen Begrenzung darstellen. Das beobachtete Phänomen könnte aufgrund dieser Tatsachen die nichtlineare Antwort eines Ensembles von eingebetteten Domänen

darstellen. In früheren Arbeiten wurde eine „Filamentierung“ von gepolten Domänen mit nadelförmiger Struktur beobachtet, was ausschließlich an Ti-dotierten Proben aufgezeigt wurde [FP+98] [Hof13]. Bei den hier untersuchten Proben ist die Sachlage anders, da keine Dotierung vorgenommen wurde und zudem andere Polungsbedingungen herrschten. Abhängig von den Polungsparametern konnte sowohl hier, als auch später bei den gepolten Rippenwellenleitern, eine unterschiedliche Aufteilung der inneren Domänenstruktur beobachtet werden. Die sich daraus ergebenden nichtlinearen Aufnahmen sollten dann direkt von der Anzahl, Größe, Länge und Form der inneren Domänenfragmente abhängen. Die planaren Proben weisen eine begrenzte Tiefenausdehnung der invertierten Domänen von etwa 1  $\mu\text{m}$  auf.

### 2.3.2 Rippenwellenleiter auf X- und Y-Schnitt LN

#### Herstellung und Geometrie

Rippenwellenleiter sind hinsichtlich einer stärkeren optischen Wellenführung von großem Interesse. Man verspricht sich hier einen höheren Wirkungsgrad bei nichtlinearen Bauelementen oder auch eine niedrigere Schwelle für integriert-optische Laser. Die untersuchten Rippenwellenleiter wurden von Herrn Dr. Hui Hu (AG Sohler) durch selektives chemisches Ätzen bzw. plasma-unterstütztes reaktives Ionenätzen (ICP, Inductively Coupled Plasma) hergestellt [HRS08]. Zunächst wurde ein ca. 220 nm dicker Chromfilm auf der -X-Fläche des LN-Substrate abgeschieden. Die Übertragung der Cr-Maske für das ICP-Ätzen erfolgte fotolithographisch durch Elektronenstrahlbelichtung und anschließendes chemisches Nassätzen. Es resultiert eine Struktur von Chromstreifen definierter Breite (z.B. 10  $\mu\text{m}$ ), die nun als Ätzmaske für das ICP-Ätzen von LN diente (Ätzverhältnis  $\sim 1:10$ ). Das Ätzen (Oxford Plasmalab System 100 mit ICP 180 Plasmaquelle) erfolgte mit einer  $\text{C}_4\text{F}_8/\text{He}$ -Gasmischung. Die hier untersuchten Rippenwellenleiter weisen eine Höhe von 2-3  $\mu\text{m}$  auf (Abb. 2-21).

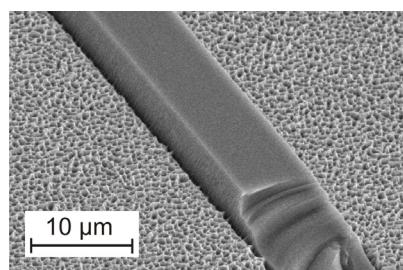
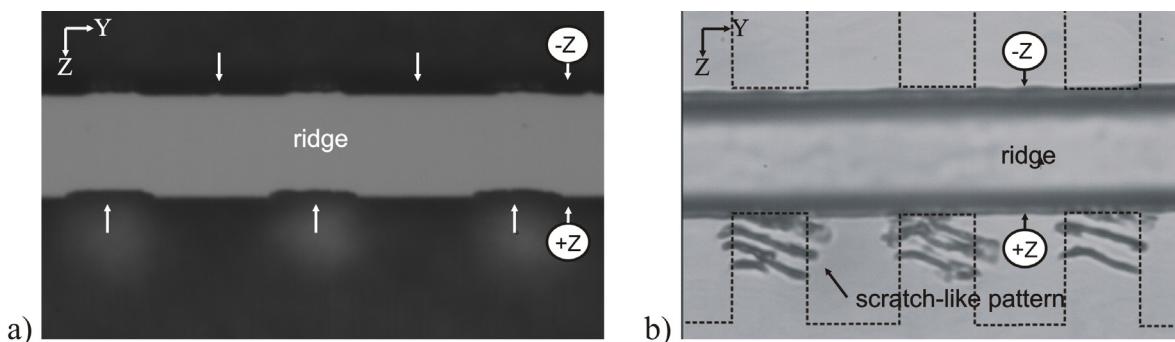


Abb. 2-21: REM-Aufnahme eines Rippenwellenleiters auf X-Schnitt LN [BW+08].

Nach Polung der Rippenwellenleiter erfolgte eine Vorcharakterisierung auf Basis des selektiven chemischen Ätzens. Die Ätze ( $\text{HF:HNO}_3$ ) greift die  $-Z$ -Fläche des Rippenwellenleiters schneller an und überträgt somit das Domänenmuster in ein Topographiemuster (Abbildung 2-22).

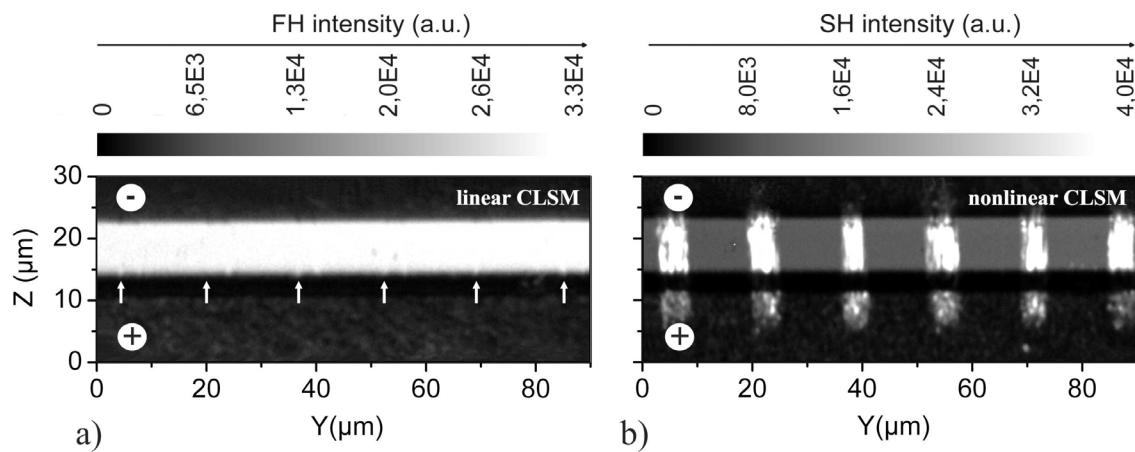


*Abb. 2-22: Mikroskopische Aufnahmen der X-Flächen eines selektiv geätzter Rippenstruktur auf X-Schnitt LN (a) ohne und b) mit Musterung im Bereich der entfernten positiven Elektroden. Die ursprünglichen Flächen der Rippenwellenleiter (vor dem Ätzen) sind mit  $-Z$  und  $+Z$  angedeutet.*

Die Rippenseiten entsprechen hier den  $+Z$ - und  $-Z$ -Flächen, so dass in der mikroskopischen Abbildung ein periodisches Ätzmuster erkennbar wird. In Bereichen der entfernten positiven Elektroden lässt sich manchmal (wie auch bei planaren Proben) eine kratzähnliche Musterung erkennen, welche vermutlich aus einer Schädigung der Oberfläche durch die angelegte Hochspannung herröhrt und so leichter geätzt werden konnte.

### Nichtlineare Analyse

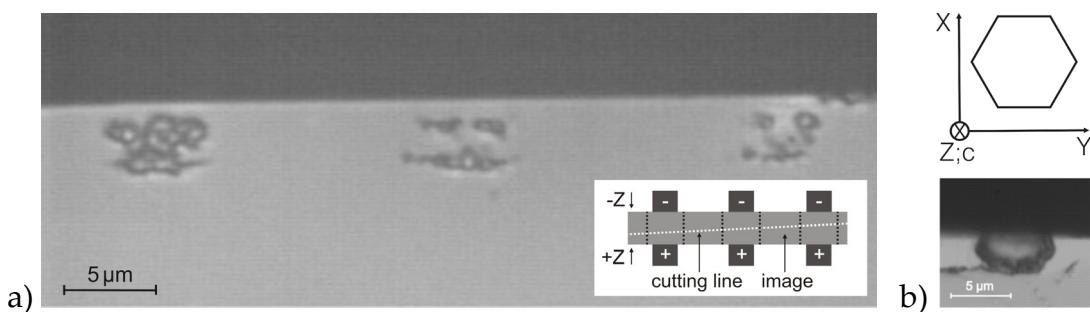
Bei den Rippenwellenleitern kann eine den planaren Strukturen ähnliche nichtlineare Signatur beobachtet werden. In Abbildung 2-23 sind zwei konfokale Aufnahmen eines gepolten Rippenwellenleiters gezeigt (Probe: Pb290xH4). In beiden Fällen handelt es sich um den identischen Aufnahmebereich, welcher im ersten Fall linear und im zweiten Fall nichtlinear abgebildet wurde. Der Laserfokus lag hier auf dem Niveau der Rippenoberfläche bei einer Rasterschrittweite von jeweils 250 nm.



*Abb. 2-23: Lineare CSLM-Aufnahme (a) und SH-Aufnahme (b) eines gepolten Rippenwellenleiters auf X-Schnitt LN (Pb<sub>290</sub>xH4). Die Aufnahmen bilden exakt den gleichen Probenbereich ab.*

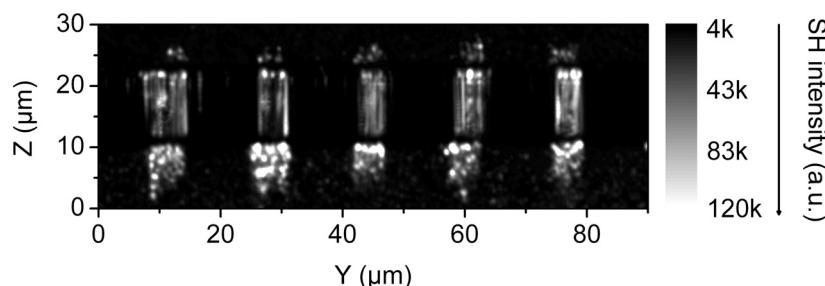
In der linearen Aufnahme bildet sich der Rippenwellenleiter ab, es zeigt sich aber keine direkte periodische Domänenstruktur. Lediglich durch kurzes Anätzen der Z-Flächen sind die Rippenseiten etwas modelliert (Andeutung durch Pfeile). In der nichtlinearen Aufnahme erkennt man durch das detektierte nichtlineare Signal aus der Oberfläche wiederum die Rippenstruktur, wobei aber eine deutliche periodische Domänenstruktur auszumachen ist. Aufgrund der Periodizität und der zuvor gezeigten periodischen Modellierung der Z-Seiten können die Bereiche starker SH-Signalerhöhung direkt den erzeugten Mikrodomänen zugeordnet werden. Wie bei den planaren Strukturen ist hier davon auszugehen, dass die nichtlineare Signalerhöhung ihre Ursache in invertierten Domänenfragmenten hat, die unterhalb der Oberfläche im Wellenleiter eingebettet sind.

Um Informationen über den Polungsforschritt und die Domänenentwicklung zu bekommen, wird häufig die Querschnittsfläche mikroskopisch abgebildet [SB+98]. Ebenso kann die Existenz solch einer Fragmentierung innerhalb des Polungsbereichs durch die Analyse der Schnittfläche des Rippenwellenleiters überprüft werden. Hierfür erfolgten ein Schnitt schräg durch den Rippenwellenleiter und ein anschließendes Ätzen. Abbildung 2-24 zeigt eine mikroskopische Aufnahme einer solchen Schnittfläche (von der ursprünglichen +Z-Seite aus).



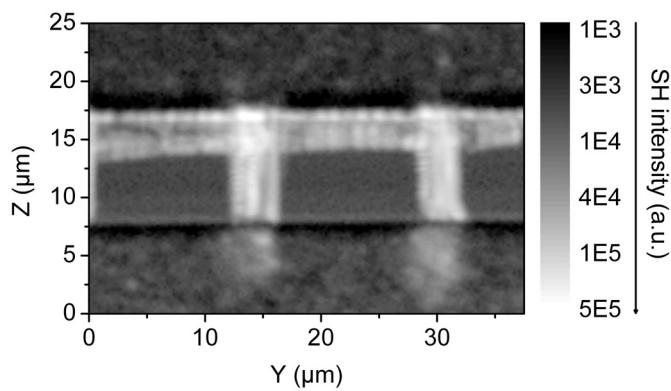
**Abb. 2-24:** a) Mikroskopische Schnittflächen-Aufnahme (Z-Fläche) eines periodisch gepolten Streifenwellenleiters auf X-Schnitt LN nach selektivem chemischem Ätzen (Pb2982). b) Schnittflächen-Aufnahme eines invertierten Domänebereichs mit hexagonaler Umrandung (unten) und schematische Darstellung der Hexagonalstruktur (oben).

Es ist ersichtlich, dass die Polung für diese Probe noch nicht abgeschlossen ist. Man erkennt hier aber in den einzelnen invertierten Polungsbereichen verschiedene eingebettete Domänen. Ebenfalls kann durch den schrägen Schnitt die Entwicklung der Domänen in Z-Richtung beobachtet werden. Aufgrund dieser Gegebenheiten ist davon auszugehen, dass die Fragmentierung für die beobachtete örtliche SH-Intensitätsverteilung verantwortlich ist. Die zwei SH-Aufnahmen einer periodisch gepolten Rippenstruktur auf X-Schnitt LN in den Abbildungen 2-25 und 2-26 zeigen deutlich die Abhängigkeit der SH-Signatur von den Polungsparametern. Die beiden abgebildeten Strukturen entspringen zwei unterschiedlich gepolten Rippenwellenleitern, welche sich auf dem gleichen LN-Substrat befinden.



**Abb. 2-25:** SH-Signatur eines periodisch gepolten Rippenwellenleiters auf X-Schnitt LN (Pb290xE2) der mit zehn Pulsen von 500 V gepolt wurde (Pulsdauer: 5ms, Pulsintervall: 100ms). Der Fokus lag bei der Rasterung (100 nm) ca. 2 μm unterhalb der Rippenoberfläche.

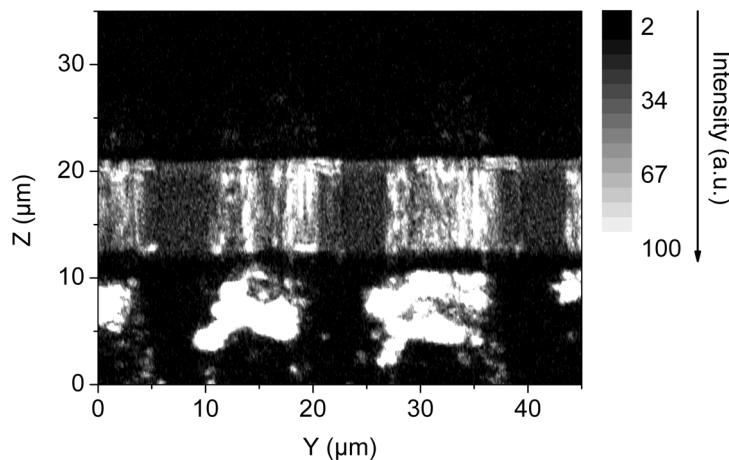
Die Polung des Rippenwellenleiters erfolgte hier mit zehn Pulsen von 500 V und einer Pulsdauer von 5 ms (Pulsabstand: 100 ms). Deutlich erkennt man die invertierten Domänenbereiche und die periodische Struktur des Wellenleiters. Die Polung der in Abbildung 2-26 abgebildeten Rippe erfolgte bei gleicher Pulzahl und Pulsdauer, jedoch bei einer Spannung von 400 V.



**Abb. 2-26:** Konfokale SH-Aufnahme aus einer X-Ebene leicht unterhalb der Oberfläche einer periodisch gepolten „Rippe“ auf X-Schnitt LN (Pb290xD2). Die Rasterschrittweite betrug hier 100 nm. (Polungsparameter:  $U_P = 400$  V, Pulsdauer: 5ms, Pulsintervall: 100 ms).

Hier zeigt sich, wie komplex sich eine homogene periodische Polung von Rippenwellenleitern gestaltet und somit die Notwendigkeit, die jeweiligen Polungsparameter aufeinander und auf das Materialsystem abzustimmen.

Es wurden auch Rippenwellenleiter auf Y-Schnitt LN bezüglich ihrer SHG-Signatur untersucht. Stellvertretend für diesen Typ ist ein SH-Bild solch einer Probe in Abb. 2-27 dargestellt.

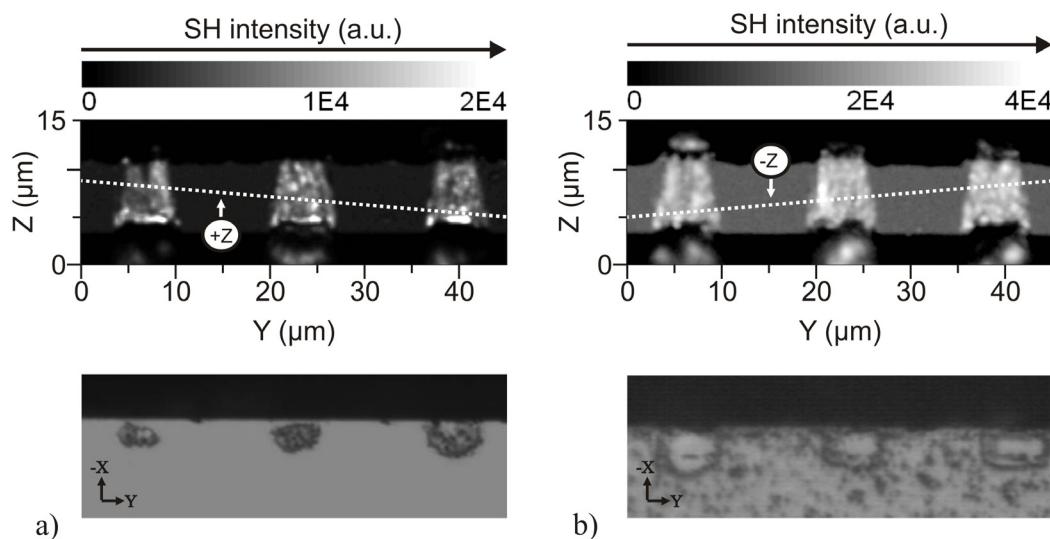


**Abb. 2-27:** Nichtlineare Aufnahme der SH-Oberflächensignatur eines periodisch gepolten Rippenwellenleiters auf Y-Schnitt LN (Pb5Y3). Rasterschrittweite: 100 nm.

Im Wesentlichen zeigt sich hier bezüglich der Domänenstruktur kein signifikanter Unterschied zu den Wellenleitern in X-Schnitt.

Zwei nichtlineare Aufnahmen der Oberflächen von gepolten Rippenwellenleitern auf X-Schnitt LN und die zugehörigen mikroskopischen Aufnahmen der Querschnittsflächen sind

nun in Abb. 2-28 dargestellt. Die zugeordneten Querschnittsbilder stammen von gleich prozessierten Rippen, aber nicht identischen Rippenbereichen. Die Schnittlinien sind hier durch gestrichelte Linien angedeutet. Man erkennt zunächst in den SH-Aufnahmen klar die periodische Domänenstruktur mit einem starken Kontrast des nichtlinearen Signals zwischen den entgegengesetzt gepolten Bereichen. Da der Fokus des anregenden Lichtes auf der Oberfläche lag, ist hier durch die örtliche Abgrenzung auch ein relativ starker Kontrast zwischen der Rippenoberfläche und der X-Oberfläche des LN-Substrates zu erkennen.



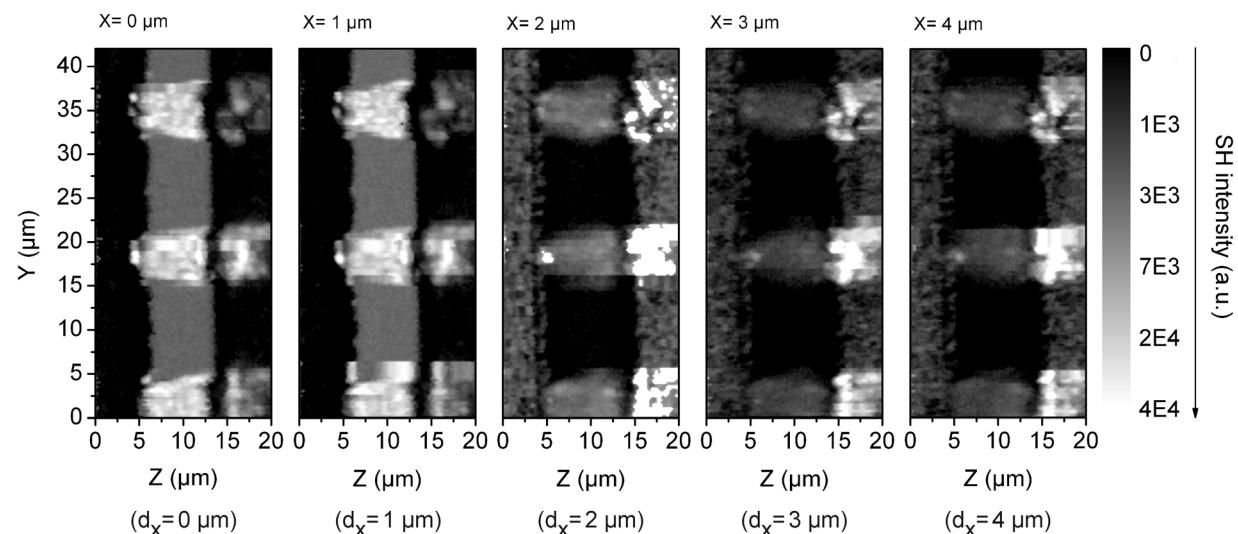
*Abb. 2-28: SH-Aufnahmen der Rippenwellenleiteroberflächen (oben) und jeweils zugehörige Schnittflächen-Bilder (unten). Die Polung erfolgte durch 5x 5ms Pulse mit Pulsen von a) 500 V und b) 550 V. Die Rasterschrittweite betrug bei der nichtlinearen Analyse jeweils 250 nm.*

Im Vergleich bezüglich der nichtlinearen Antwort zeigt die Probe in Abb. 2-28 b, welche mit einer Pulsspannung von 550 V gepolt wurde, gegenüber der mit einer Pulsspannung von 500 V (Abb. 2-28 a) einen um den Faktor zwei größeren SH-Kontrast zwischen den gegensätzlich gepolten Rippenbereichen. Hingegen ist der SH-Kontrast zwischen ursprünglicher Rippenoberfläche und dem LN-Basismaterial in etwa gleich. Die Schnittflächen-Bilder, welche nach dem selektiven Ätzen aufgenommen wurden, deuten wiederum eine Fragmentierung der Domänen innerhalb oder an den Grenzen der gepolten Bereiche an.

Sowohl die nichtlinearen Aufnahmen als auch die Schnittflächenbilder zeigen, dass die Querschnittsfläche des gepolten Bereich von der +Z- zur -Z-Seite der Rippen abnimmt. Konsequenter Weise folgt daraus, dass sich entweder Größe, Anzahl oder Abstände der Domänenfragmente quer zum Rippenwellenleiter ändern muss; vermutlich sogar eine Kombination dieser Eigenschaften. Sicher scheint zu sein, dass die Polungsparameter die Fragmentierung selbst und deren Erscheinung maßgeblich bestimmen. Daher liegt die

Annahme nahe, dass alle geometrischen Veränderungen in den drei Dimensionen sehr stark die örtliche Verteilung der SH-Signatur gepoler Bereichs beeinflussen.

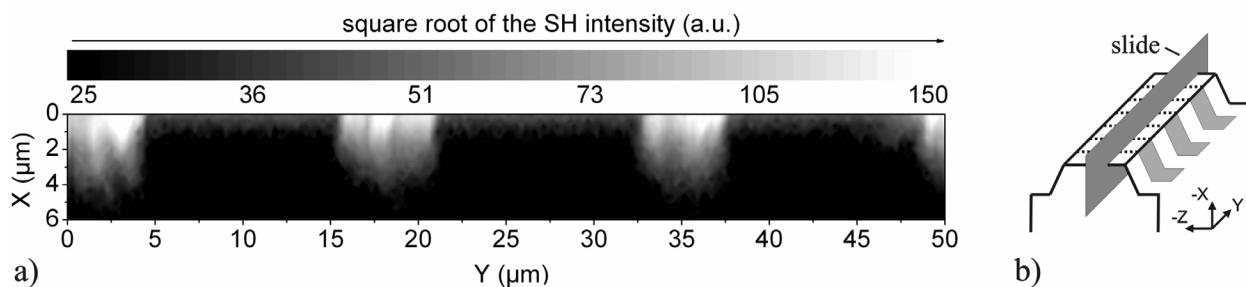
Eine Serie nichtlinearer Aufnahmen aus fünf konfokalen Schnittebenen unterschiedlicher Tiefe soll hier das Ergebnis einer SH-Tomographie darstellen (Abb. 2-29). Das oberste Level der Sequenz lag hier leicht unter dem Niveau der Rippenoberfläche ( $d_x=0\mu\text{m}$ ).



**Abb. 2-29:** Sequenz fünf konfokaler SH-Aufnahmen aus X-Ebenen unterschiedlicher Tiefe eines gepolten Rippenwelleleiters auf X-Schnitt LN. Die Schrittweite betrug hier 1 μm für X („Tiefe“) und in Y/Z jeweils 250 nm.

Alle fünf konfokalen Aufnahmen weisen einen deutlichen Kontrast des nichtlinearen Signals zwischen unterschiedlich gepolten Gebieten des Rippenwellenleiters auf, wobei auch hier eine leichte Verjüngung der invertierten Bereiche hin zur ursprünglichen -Z-Seite erkennbar ist. Ebenfalls kann hier aus Bereichen neben dem Rippenwellenleiter, die unterhalb der entfernten positiven Elektroden lagen, ein erhöhter nichtlinearer Beitrag ausgemacht werden. In den ersten beiden Aufnahmen liegt der Laserfokus noch oberhalb des Basismaterials, so dass hier ein stärkeres nichtlineares Signal aus dem nicht invertierten Bereich gegenüber dem LN-Substrat detektiert wird. Dieser Kontrast wird dann beim Erreichen der konfokalen Schnittebene bei  $d_x=2\mu\text{m}$  invertiert, welche auf dem Level der Substratoberfläche liegt. Die Domäneninversion konnte hier bis zu einer Tiefe von ca. 5 μm nachgewiesen werden und reicht somit noch ca. 3 μm in das Substrat hinein.

Besonders reizvoll ist auch die Abbildung der Querschnittsfläche eines Rippenwellenleiters in der konfokalen X/Y-Ebene, was gerade mit Hilfe der nichtlinearen konfokalen Mikroskopie möglich ist, da diese ohne Schnitt- und Ätzprozess abgebildet werden kann. Exemplarisch ist nun eine so resultierende SH-Aufnahme in Abbildung 2-30 dargestellt.



**Abb. 2-30:** a) SH-Aufnahmen der konfokalen X/Y-Ebene (innerhalb einer Rippenwellenleiter bis 4  $\mu\text{m}$  in das LN-Substrat hinein) quer zu den Mikrodomänen (PB2972). Die Rasterschrittweite betrug hier 250 nm. b) Schematische Darstellung zur Erläuterung der Scan-Geometrie.

In der konfokalen Aufnahme erkennt man deutlich die unterschiedlichen Domänenbereiche. Die invertierten Gebiete weisen gänzlich ein erhöhtes nichtlineares Signal auf, so dass die Form des Polungsbereichs erkennbar wird. Die Domäneninversion reicht hier mit ca. 5  $\mu\text{m}$  über die Rippentiefe in das Substrat hinein. Innerhalb der invertierten Domänen lässt sich eine Struktur erahnen, was wiederum auf das Vorhandensein von eingebetteten Domänenfragmenten hindeutet.

### 3. Bildgebende Ramanspektroskopie an PPLN

Die  $\mu$ -Ramanspektroskopie findet ein breites Anwendungsspektrum in Wissenschaft und Technik. Im Besonderen wird sie für die spektroskopische Untersuchung von Mikrosystemen eingesetzt [WJS01]. Hier wird die charakteristische spektrale Information der Ramanspektroskopie mit der örtlichen Auflösung (3D) der konfokalen Anwendung gekoppelt, so dass beispielsweise Verspannungen oder die örtlich variierende Materialzusammensetzung von Mikrostrukturen untersucht bzw. visualisiert werden kann [SMN07] [SM+05] [Wol95]. Aufgrund des hohen Potentials der konfokalen Raman-Spektroskopie, gerade im Bezug auf der Kopplung von spektraler und örtlicher Auflösung, wurde diese Methode nun zur Analyse von PPLN angewandt.

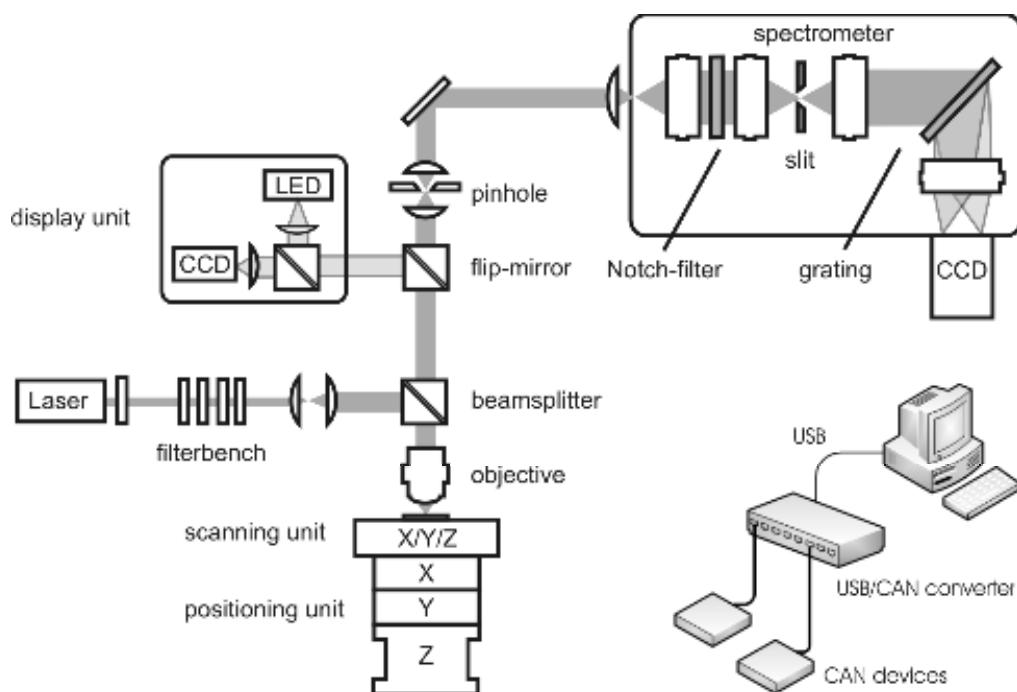
#### 3.1 Experimenteller $\mu$ -Raman Aufbau

Erste spektroskopische Messungen an PPLN-Strukturen wurden an einem speziell dafür ausgelegten Aufbau durchgeführt. Im Zuge einer örtlichen Umstrukturierung (Umzug in ein neues Gebäude) und aus der Notwendigkeit heraus, die bildgebende Ramanspektroskopie auch an weiteren Mikrosystemen (z.B. Mikroreaktorsystem, Halbleiter etc.) durchführen zu können, wurde ein komplett neuer Aufbau für die  $\mu$ -Ramanspektroskopie realisiert. So soll im Weiteren nur auf den weiterentwickelten und leistungsfähigeren Aufbau eingegangen werden, an dem ältere Ergebnisse reproduziert und neuere gewonnen werden konnten. Prinzipiell besteht das experimentelle Setup aus einem optischen Aufbau mit Anregungs- und Detektionspfad, der Rastereinheit und der Regelungs- und Steuertechnik. Eine schematische Darstellung zum umgesetzten  $\mu$ -Romanspektroskop findet sich in Abbildung 3-01.

##### Optischer Aufbau und Detektionssystem

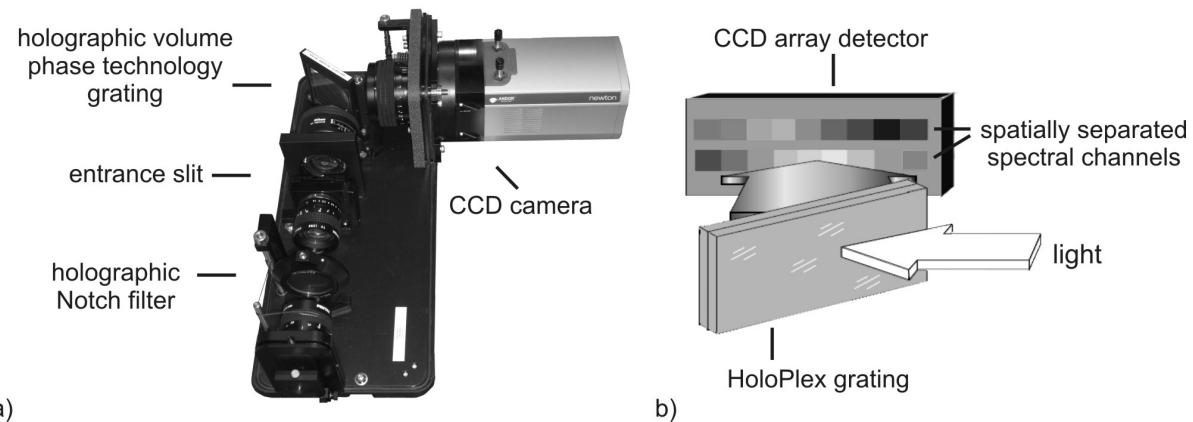
Die Basis des optischen Aufbaus stellt hier wiederum ein konfokales Setup dar. Zur Anregung wurde ein diodengepumpter Festkörperlaser (Impex-MSL50, single frequency, 50 mW) eingesetzt, der Licht einer Wellenlänge von 532 nm emittiert. Das Laserlicht gelangt über einen optischen Zweig (mit Strahlaufweitung) zum Objektiv (Mitutoyo OBJ Plan SL 100x) und wird durch dieses auf eine Konfokalebene der Probe fokussiert. Das vom Objektiv (auf unendlich korrigiert) gesammelte Streulicht (Raman u. Rayleigh) passiert im Detektionspfad die konfokale Lochblende und wird über eine Sammellinse in den Monochromator eingekoppelt. Alternativ kann auch hier auf eine konventionelle

Abbildungseinheit umgeschaltet werden, die eine mikroskopische Kontrolle der Probe ermöglicht. Die laterale Auflösung des konfokalen Systems beträgt hier  $\Delta x \leq 500$  nm (Teststruktur) und die axiale Auflösung  $\Delta z \leq 1$   $\mu\text{m}$  (Halbwertsbreiten-Kriterium). Die Separation von Rayleigh gestreutem und inelastisch gestreutem Licht erfolgt dann durch einen Notch-Filter mit einer optischen Dichte von  $OD = 6$  ( $OD = \log_{10}(P_{in}/P_{trans})$ ). Im Vergleich zu dielektrischen Filtern, die einen rechteckförmigen Brechungsindexverlauf besitzen, verfügt das hier verwendete Notch-Filter über einen sinusförmigen Verlauf. Somit werden Reflexionsbanden unterdrückt und somit die Zerstörschwelle erhöht.



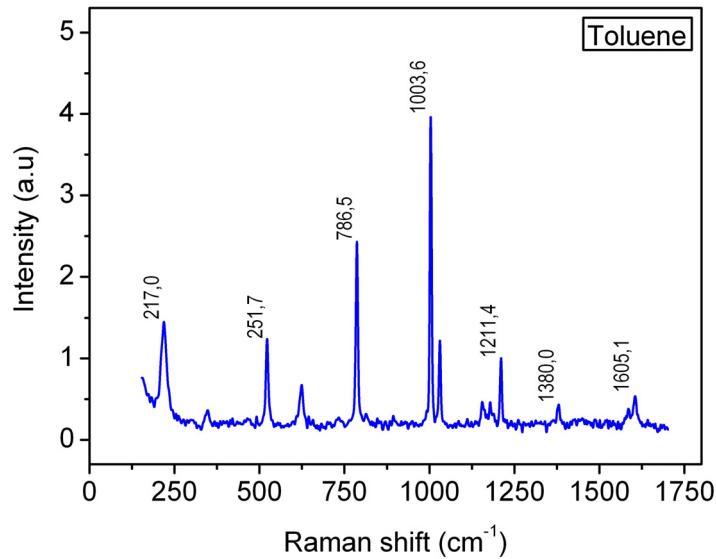
**Abb. 3-01:** Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus zur konfokalen Raman-Spektroskopie. Der Aufbau beinhaltet den konfokalen optischen Aufbau, das Spektrometer inkl. CCD und das Raster- u. Positioniersystem. Das CAN-Bussystem ist durch eine Topologie angedeutet.

Der Monochromator (KOSI, Holospec f/1.8i) und die adaptierter CCD-Kamera (Andor Newton) stellen das Detektionssystem dar. Als dispersives Element ist ein Transmissionsgitter (KOSI, HoloPlex) eingesetzt, welches ein holographisch erzeugtes Gitter mit sinusförmigem Strukturverlauf darstellt (Abb. 3-02). Die Andor Kamera weist im relevanten Spektralbereich (532-600 nm) eine Quanteneffizienz von ca. 90% auf, die Ausleserate beträgt 2,5 MHz.



*Abb. 3-02:* a) *Photographische Aufnahme des Detektionssystems (Monochromator u. CCD-Kamera).*  
b) *Schema zur Erläuterung der Spurenerzeugung durch das holographische Gitter.*

Die spektrale Auflösung hängt neben der Pixelgröße des CCD-Chips auch von der linearen Dispersion des Gitters ( $2,3 \text{ cm}^{-1}$ ) und der Spaltbreite ( $25 \mu\text{m}$ ) ab. Es ergibt sich somit eine spektrale Auflösung von  $2,31 \text{ cm}^{-1}$ . Die Kalibrierung des Spektrometers erfolgte mittels definierter Ramanlinien von Toluol (Abb. 3-03) bzw. einer Xe-Kalibrierungsleuchte.

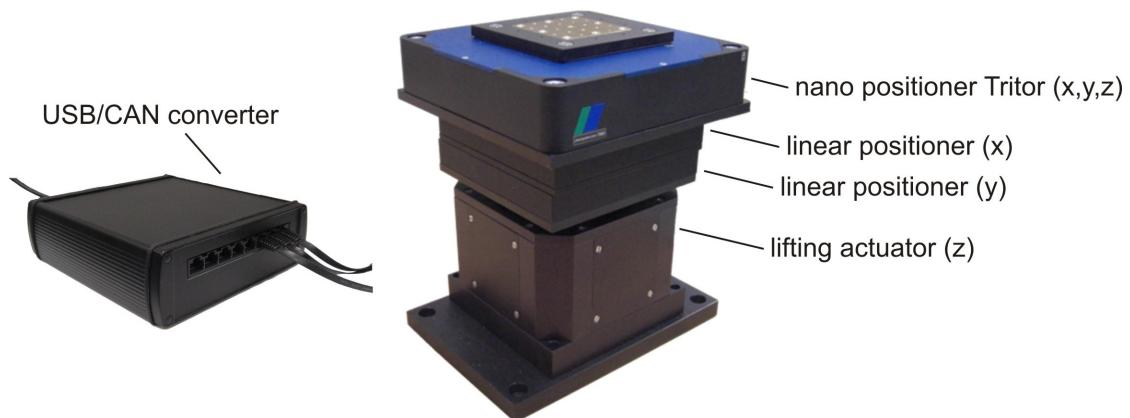


*Abb. 3-03:* *Aufgenommenes Ramanspektrum von Toluol zur Kalibrierung einer Spur auf der CCD-Kamera*

Im diesem Beispiel kann anhand der bekannten Ramanlinien von Toluol eine definierte Zuordnung von Wellenzahl und entsprechendem Pixel erfolgen.

### Raster- u. Positionierungssystem

Der konfokale Rasterbetrieb erfolgt, analog zur nichtlinearen CLSM, bei ortsfestem Laserfokus (fixe Optik) durch Probenpositionierung (Abb. 3-04). Das hier eingesetzte Positioniersystem (Tritor 200/20 SG, Piezosystem Jena) ermöglicht eine dreidimensionale Rasterung mit sub-nm-Auflösung. Der laterale Stellweg (X u. Y) beträgt im ungeregelten Modus jeweils 220 µm (geregelt 180 µm) und der axiale (Z) 30 µm (geregelt 20 µm). Für die „Grobpositionierung“, alternativ auch für Rasterungen über größere Bereiche, wurde ein System aus Hubversteller (Z) und Linearpositionieren (X, Y) entworfen. Der Hubversteller (Schrittmotor/Spindel) weist bei einem maximalen Verstellweg von 25 mm eine Auflösung von 1 µm auf. Die Linearversteller (Piezo Legs Antrieb) besitzen einen Stellweg von 35 mm bei einer minimalen Schrittweite von 50 nm. Die Versteller sind über den CAN-Bus, der hier ein Multimastersystem darstellt, miteinander und mit dem PC (USB/CAN-Umsetzter) verbunden.



**Abb. 3-04:** Bild des gesamten Verstellerkomplexes bestehend aus Hubversteller, zwei Linearverstellern und dem Tritor-3Achsen-Nanopositionierer. Die Schnittstelle für die Steuerung stellt der USB/CAN-Konverter dar.

Um einen automatisierten Messprozess im konfokalen Rasterbetrieb zu gewährleisten, wurde eine entsprechende Steuerungssoftware entwickelt. Hinsichtlich der enormen Datenmengen bei dieser örtlich aufgelösten Spektroskopie - für jeden Punkt wird ein komplettes Ramanspektrum aufgenommen - ist eine physikalisch sinnvolle und automatisierte Auswertung großer Datenmengen notwendig. Für die graphische Abbildung (Visualisierung) muss jedem Ort der zugehörige Intensitätswert einer bestimmten spektralen Lage zugeordnet werden. Eine etwas genauere Beschreibung hierzu findet sich im Anhang. Es steht somit ein leistungsfähiges System für die konfokale Ramanspektroskopie an Mikrosystemen zur Verfügung.

## 3.2 Visualisierung der ferroelektrischen Domänenstruktur

In LiNbO<sub>3</sub> weist die primitive rhomboedrische Elementarzelle zwei Moleküle mit jeweils fünf Atomen auf ( $N = 10$ ), somit ergeben sich  $3N - 3 = 27$  optische Phononenmoden. Man unterteilt diese in ordentliche (9x Typ E, zweifach entartet) und außerordentliche Phononen (4x Typ A1 u. 5x Typ A2), wobei die Phononen vom Typ A2 ramaninaktiv sind. Bei den ramanaktiven E-Moden steht die elektrische Feldstärke senkrecht zur optischen c-Achse, bei A1-Moden steht sie parallel zur c-Achse. Aufgrund elektrostatischer Felder wird die TO-LO-Entartung der Moden aufgehoben, sie spalten also in TO- und LO- Komponenten auf (LO-Komponente schwingt bei höherer Frequenz) [BL66]. Die entsprechenden Polarisationstensoren lauten [Lou64]:

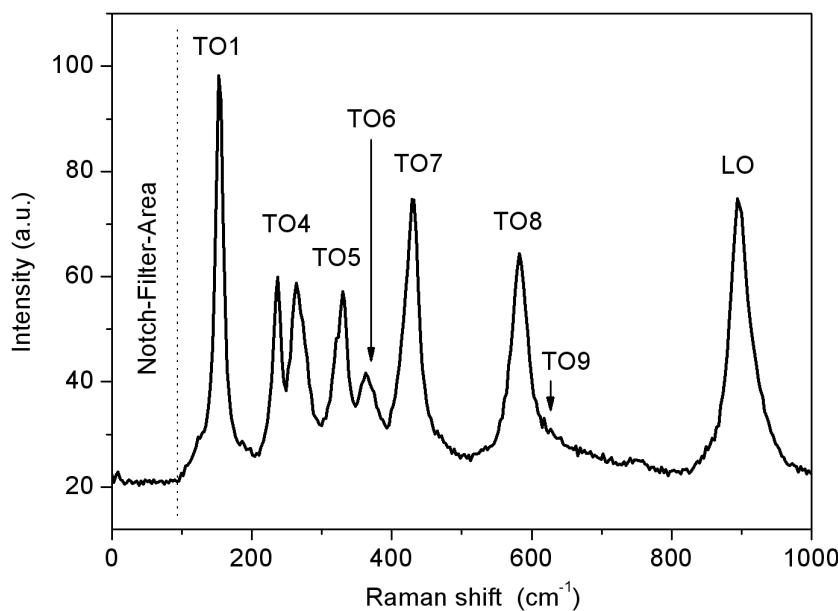
$$A_l = \begin{pmatrix} a & 0 & 0 \\ 0 & a & 0 \\ 0 & 0 & b \end{pmatrix}, \quad E(x) = \begin{pmatrix} 0 & c & d \\ c & 0 & 0 \\ d & 0 & 0 \end{pmatrix}, \quad E(y) = \begin{pmatrix} c & 0 & 0 \\ 0 & -c & d \\ 0 & d & 0 \end{pmatrix} \quad (3.01)$$

Somit ergibt sich die Intensität zu:

$$I = e_i^x e_s^x (c\zeta^y + a\zeta^z) + e_i^y e_s^y (-c\zeta^y + a\zeta^z) + e_i^z e_s^z b\zeta^z + (e_i^y e_s^z + e_i^z e_s^y) d\zeta^y + (e_i^z e_s^x + e_i^x e_s^z) d\zeta^x + (e_i^x e_s^y + e_i^y e_s^x) d\zeta^x \quad (3.02)$$

Hier stellt  $e_i^{x,y,z}$  die Polarisationsrichtung des einfallenden und  $e_s^{x,y,z}$  die Polarisationsrichtung des gestreuten Strahls dar.  $\zeta^{x,y,z}$  kennzeichnet die Polarisationsrichtung des Phonons. Die Anregung und Detektion erfolgte hier (bezüglich der präsentierten Messergebnisse) ausschließlich parallel zur optischen c-Achse (Z). Hier weist das Anregungslicht eine  $\sigma$ -Polarisation auf, also eine lineare Polarisierung parallel zur Z-Fläche des Z-Schnitt PPLN. Somit tritt nur der erste Term der Raman-Intensität auf, es können daher nur E(TO)- bzw. E(LO)-Phononen detektiert werden. Die Ausgangspolarisation des inelastisch gestreuten Lichts ist relativ zur Rayleigh-Streuung um 30° gedreht, was dem Winkel des Sauerstoff-Rhomboeders entspricht.

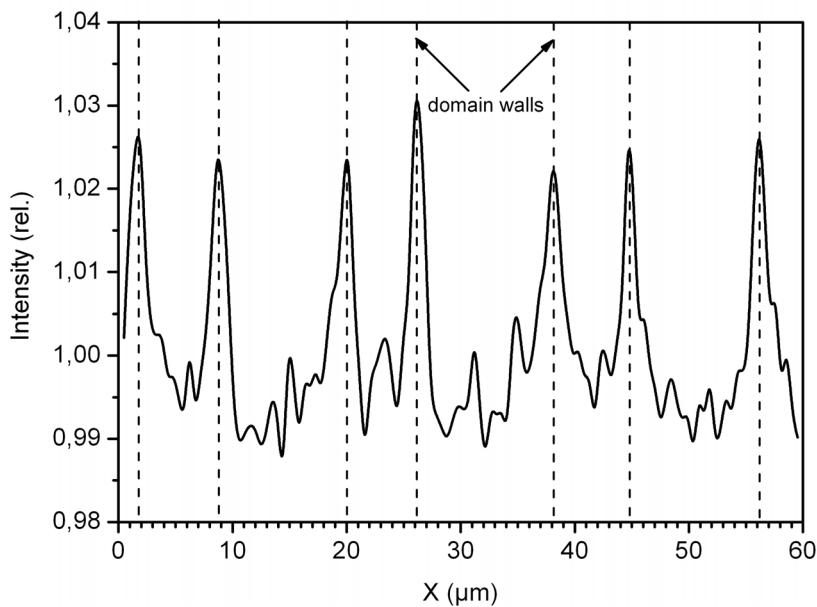
Alle Messungen fanden bei Raumtemperatur statt. Zur Charakterisierung der optischen Phononen wurde zunächst ein Ramanspektrum von kongruentem Lithiumniobat aufgenommen (Abb. 3-05).



*Abb. 3-05: Raman-Spektrum von kongruentem Z-Schnitt PPLN in  $z(xy)z$ -Konfiguration ( $\sigma, \sigma$ ).*

Das Spektrum weist sieben Linien der transversal-optischen E-Schwingungsmoden und eine LO-Linie auf. Dabei werden durch den Notch-Filter zwei der bei dieser Konfiguration zu erwartenden neuen E-Schwingungsmoden ausgeblendet. Die E(TO1)-Linie bei  $150\text{ cm}^{-1}$  röhrt von der Nb/O-Schwingung her, wobei deren Halbwertsbreite ein direktes Maß für die stöchiometrische Komposition in Z-Schnitt LN darstellt [RB+97]. Die E(TO8)-Linie entspricht der Sauerstoff-Oktaeder Strettschwingung (O/O). Die Ramanlinie bei  $900\text{ cm}^{-1}$  kann einer longitudinalen Schwingung zugeordnet werden.

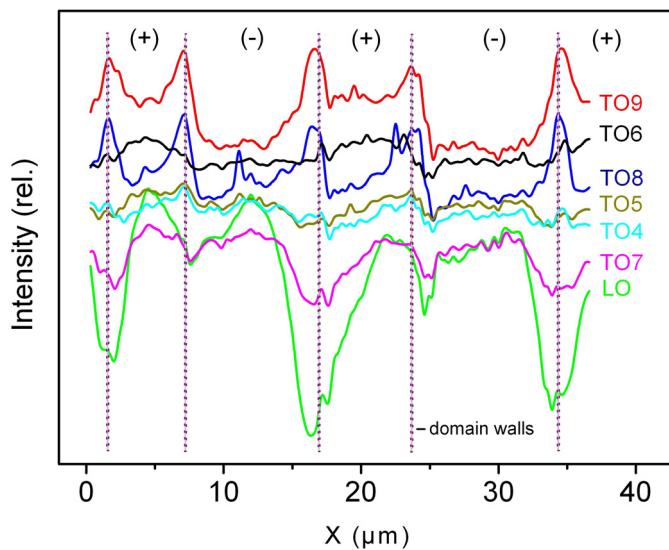
Für die bildgebende Ramanspektroskopie wird jetzt pro Rasterpunkt ein komplettes Spektrum aufgenommen, so dass sich durch die Rasterung eine vom Ort abhängige spektrale Information ergibt. Für die Auswertung und Visualisierung wurde hier die örtliche Variation der Intensität einer bestimmten Ramanbande (auch integrale Werte) herangezogen. Je nach System und physikalischer Intention, kann auch eine Linienverschiebung, die Änderung der Halbwertsbreite oder das sich ändernde Verhältnis zweier Ramanlinien ortsabhängig betrachtet werden. Das Ergebnis eines Linienscans quer zu den Domänen (X-Scan) einer Z-Schnitt PPLN Probe ist in Abbildung 3-06 dargestellt. Die Messung erfolgte mit einer Schrittweite von 240 nm bei fixem Fokus auf der X/Y-Oberfläche (Integrationszeit 2 s pro Rasterpunkt).



**Abb. 3-06:** Diagramm der ortsabhängigen Intensität der E(TO9) Ramanlinie aus einem Linienscan quer zur Domänenstruktur von Z-Schnitt PPLN. Die Rastschrittweite betrug hier 240 nm (Fokus auf Z-Oberfläche,  $N=1$ ,  $t_f=2\text{s}$ ).

Im Diagramm ist die örtliche Variation der E(TO9) Ramanlinie in X-Richtung dargestellt. Es zeigt sich entsprechend der periodischen Domänenstruktur eine erhöhte Intensität der TO9 Ramanlinie an den Domänengrenzen, die im Diagramm gestrichelt angedeutet sind. Um nun zu untersuchen, ob noch weitere Linien eine spezifische Signatur bezüglich der periodischen Polung aufweisen, wurde dieses Verfahren auf alle auftretenden Ramanlinien angewandt.

Die Abbildung 3-07 zeigt den ortsabhängigen Intensitätsverlauf mehrerer Ramanlinien als Ergebnis eines X-Linienscans in einer Tiefe von  $40\ \mu\text{m}$  unterhalb der Z-Oberfläche (wiederum quer zu den Domänen einer Z-Schnitt PPLN-Probe). Prinzipiell zeigen alle Linien eine örtliche Modulierung durch die vorhandene Domänenstruktur, wobei diese unterschiedlich stark ausgeprägt bzw. gestaltet ist. Die Intensität der Linien TO9, TO8 u. TO4 ist im Bereich der Domänenwände erhöht und für die anderen Linien teils erniedrigt, bzw. im Bereich der Domänen erhöht. Somit liegt es nahe, dass nicht nur die Domänengrenzen, sondern auch die Domänen selbst direkt abgebildet werden können.

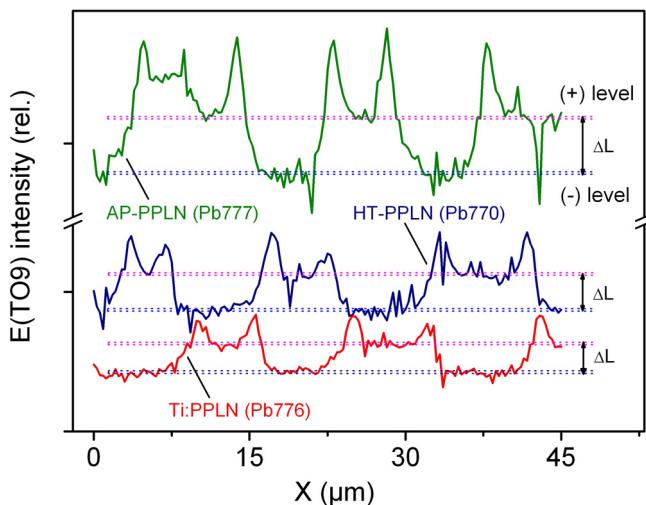


**Abb. 3-07:** Übersichtsdiagramm der örtlichen Intensitätsabhängigkeit des Ramansignals aus einem Linienscan quer zur Domänenstruktur in Z-Schnitt PPLN (Pb776Z) für verschiedene Ramanlinien. Die Messung wurde mit einer Rasterschrittweite von 300 nm in einer Tiefe von 40 μm durchgeführt ( $N=1$ ,  $t_r=2\text{s}$ ,  $z(xy)z$ -Konfiguration).

Im Gegensatz zum Ergebnis des Linienscans in Abbildung 3-06, welcher an der Kristalloberfläche durchgeführt wurde, erkennt man hier bei der TO9-Linie ein nicht-symmetrisches Messsignal als Funktion von X. Es lassen sich zudem deutlich unterschiedliche „Signalebenen“ der entgegengesetzt gepolten Domänen erkennen. Eine eindeutige Zuordnung der unterschiedlichen 180°-Domänen bezüglich ihrer Polarisation ist somit möglich.

Die E(TO8)- und die E(TO9)-Linie koppeln mit der bei höherer Frequenz liegenden LO-Schwingung, die sich durch ein komplementäres Verhalten auszeichnet. Beide Schwingungen reagieren äußerst sensitiv auf strukturelle Änderungen bezüglich der periodischen Domänenstruktur. Da die Raman-Linien spezifisch durch die periodische Domänenstruktur moduliert sind, kann der Einfluss von Prozessparametern untersucht werden und somit eine Aufklärung der lokalen Struktur erfolgen.

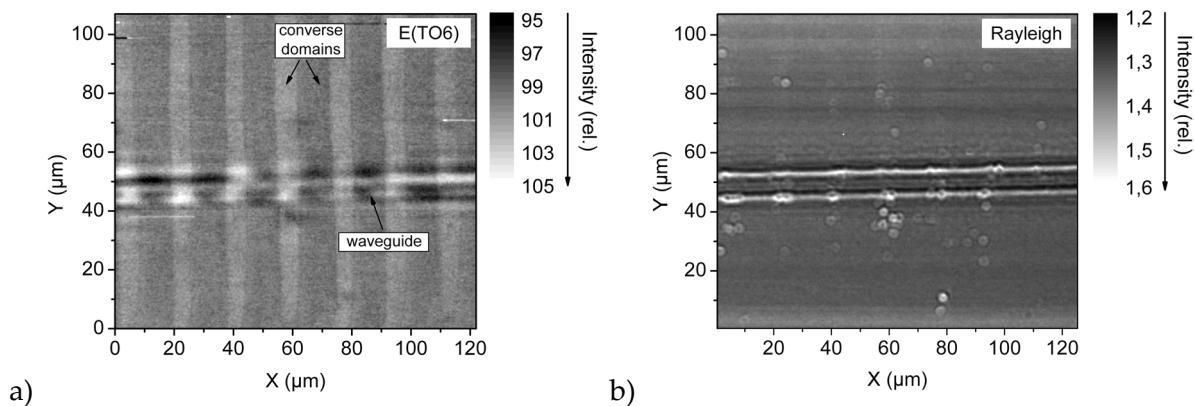
Die Abbildung 3-08 zeigt die örtliche Variation der E(TO9) Intensität quer zu den Domänen (X) unterschiedlich prozessierter PPLN-Proben. Der Fokus lag hier jeweils 40 μm unterhalb der Probenoberfläche (Z-Ebene). Bei der Interpretation des Diagramms muss beachtet werden, dass den unterschiedlichen Linienscans nicht der gleiche Ort (X) zugewiesen werden kann, da sie von verschiedenen Proben stammen.



**Abb. 3-08:** Vergleich der Linienscans basierend auf der E(TO9) Raman-Linie dreier unterschiedlich prozessierter Z-Schnitt PPLN Proben. Das Diagramm zeigt die jeweilige örtliche Abhängigkeit der TO9-Intensität in X-Richtung (quer zu den Domänen) aus 40  $\mu\text{m}$  unterhalb der Z-Oberfläche (Schrittweite:320 nm,  $t=2\text{s}$ ,  $N=1$ ). AP-PPLN stellt hier eine nicht getemperte Probe, HT-PPLN eine getemperte und Ti:PPLN eine ebenfalls getemperte Probe, jedoch mit Titan Streifenwellenleiter dar. Die unterschiedlichen Signalebenen für die entgegengesetzt gepolten Domänen sind durch Strichlinien angedeutet.

Deutlich sind für alle drei Probentypen die unterschiedlichen Signalebenen für die entgegengesetzt gepolten Domänen erkennbar. Im Bereich der Domänenwände ist das Ramansignal erhöht. Für die nicht getemperte Probe (AP-PPLN) ist ein relativ starker Kontrast zwischen den unterschiedlich orientierten Domänen auszumachen. Eine Temperung führt, wie aus dem Intensitätsverlauf der beiden anderen Proben (HT-PPLN, Ti:PPLN) ersichtlich, zu einer Annäherung der Domänenlevels. Dies könnte als ein „Ausheilen“ der zuvor gestörten Kristallstruktur verstanden werden. Der Einfluss des Ti-Streifenwellenleiters (liegt nicht im Messbereich) bzw. etwaiger zusätzlicher Prozessschritte äußert sich hier, wenn überhaupt, nur durch eine weitere „Glättung“ der Levels.

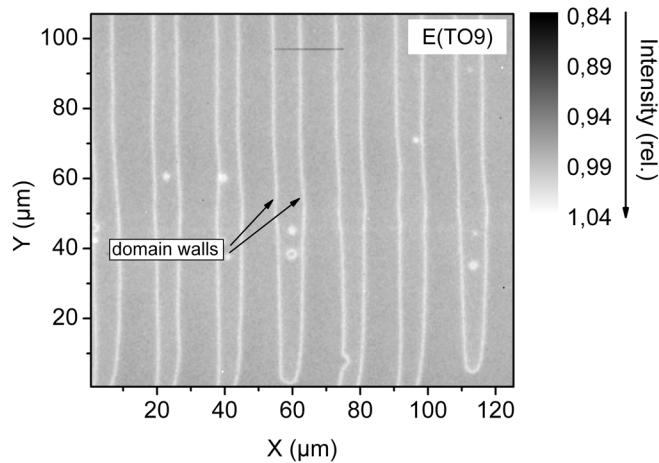
Als Ergebnis der bildgebenden Ramanspektroskopie sind nun in Abbildung 3-09 zwei Aufnahmen einer 3  $\mu\text{m}$  tief gelegenen Konfokalebene (Z-Fläche) in Ti:PPLN dargestellt, welche zum einen auf Basis der E(TO6) Ramanlinie (3-09a) und zum andern auf Basis der Rayleigh-Streuung (3-09b) generiert wurden. Die Schrittweite der Rasterung lag hier für X und Y jeweils bei 320 nm.



**Abb. 3-09:** Ergebnis eines konfokalen X/Y-Flächenscans an einer Ti:PPLN Wellenleiterstruktur mittels  $\mu$ -Ramanspektroskopie auf a) Basis der TO6-Linie und b) auf Basis der Rayleigh-Streuung (Schrittweite: 320 nm, Integrationszeit 2 s).

In beiden Fällen kann der Titan Streifenwellenleiter ausgemacht werden. Durch die Abbildung der örtlich variierenden Intensität der E(TO6) Ramanlinie kann, im Gegensatz zur „Rayleigh-Abbildung“, bei welcher nur der Ti-Wellenleiter selbst und Störungen erkennbar sind, die periodische Domänenstruktur sichtbar gemacht werden. Die Abbildung der detektierten periodischen Struktur beruht im Fall der TO6-Linie auf der „Sichtbarmachung“ der gegensätzlich gepolten Domänen selbst.

Ein Beispiel für die Abbildung der Struktur durch die Domänenwände zeigt nun die Abbildung 3-10. Als Basis für die 2- dimensionale Darstellung diente hier die TO9-Linie. Die konfokale Aufnahme stammt aus einer 10  $\mu\text{m}$  tief liegenden Ebene in Z-Schnitt PPLN parallel zur Z-Fläche (X/Y-Ebene).



**Abb. 3-10:** Ergebnis eines konfokalen xy-Flächenscans an einer Ti:PPLN Wellenleiterstruktur mittels  $\mu$ -Ramanspektroskopie (Basis: TO6-Linie, Schrittweite: 320 nm, Integrationszeit 2 s)

Man erkennt ein erhöhtes Signal der ET(09) Ramanlinie im Bereich der Domänengrenzen (helle Streifen) und eine deutliche Abzeichnung der Domänenstruktur. Bei geeigneter Intensitätsskalierung können hier zusätzlich die unterschiedlichen Signallevels der entgegengesetzt gepolten Domänen abgebildet werden.

## 4. Zusammenfassung und Ausblick

Im Rahmen dieser Arbeit erfolgte eine Charakterisierung und Abbildung der übertragenen ferroelektrischen Domänenstruktur in Lithiumniobat (LN). Hierfür wurde ein spezieller konfokaler Mikroskopaufbau für eine nichtlineare Analyse auf einer sub- $\mu\text{m}$  Längenskala entwickelt und realisiert, was sowohl den optischen Aufbau selbst als auch die entsprechende Regelungs- und Steuertechnik beinhaltet. Die nichtlineare konfokale Mikroskopie erfolgte im Wesentlichen an periodisch gepoltem LiNbO<sub>3</sub>, wobei hier der Volumenkristall selbst sowie verschieden realisierte Wellenleiterstrukturen untersucht wurden. Als weiteres bildgebendes Verfahren wurde die  $\mu$ -Raman-Spektroskopie eingesetzt, welche sich auch als geeignete Methode zur Visualisierung der übertragenen Domänenstruktur erwies. Die gewonnenen detaillierten Ergebnisse der beiden sich ergänzenden Methoden (nichtlineare konfokale LRM u.  $\mu$ -Raman-Spektroskopie) bilden die Grundlage für die Modellierung der zugrunde liegenden Kontrastmechanismen und für ein tieferes Verständnis physikalischer Prozesse in nichtlinearen Bauelementen.

Im ersten Kapitel wurde auf wesentliche Aspekte der nichtlinearen Optik eingegangen, welche sich vor allem auf die Struktur der hier untersuchten Systeme beziehen. Es wurden die für LiNbO<sub>3</sub> spezifischen Materialeigenschaften diskutiert, die letztendlich den breiten Einsatz dieses Materials im Bereich der integrierten Optik erklären. Die dargelegten Grundlagen in den Bereichen der Mikroskopie und Spektroskopie standen im engen Zusammenhang mit der konfokalen Anwendung. So wurden hier exemplarisch Ergebnisse aus der linearen CLSM, der konfokalen Fluoreszenzmikroskopie und der ortsaufgelösten Spektroskopie diskutiert. Letztendlich erfolgte auch eine kurze theoretische Beschreibung des Raman-Effektes.

Für die nichtlineare Mikroskopie wurde ein modular gehaltener konfokaler Aufbau umgesetzt. Für wesentliche Schnittstellen des optischen Systems wurden mechano-optische Komponenten realisiert, die zum einen funktionale Aufgaben erfüllen und zum andern eine definierte Justage gewährleisten (Lochblendenmodul, Faserkoppler, Linearversteller, Kippversteller, etc.). Der konfokale Rasterbetrieb erfolgt bei ortsfestem Laserfokus durch Probenpositionierung, was durch ein kombiniertes Positioniersystem aus kommerziellem 2D-Scanner und entwickelter 3D-Verstellereinheit auf Basis piezolektrischer Trägheitsantriebe ermöglicht wird. Es können somit Proben von bis zu 5 Zoll Durchmesser in Reflexions- und Transmissionsgeometrie untersucht werden. Je nach eingesetztem Anregungs- u. Detektorsystem, kann die Mikroskopie dann im linearen oder nichtlinearen Modus erfolgen. Im linearen Modus lässt sich das laterale Auflösungsvermögen (definierte Referenzprobe) zu  $d_l \leq 300$  nm und das axiale Auflösungsvermögen (Halbwertbreiten-Kriterium) zu  $d_a \leq 500$  nm bestimmen. Bei der nichtlinearen Mikroskopie wurde als Anregungsquelle ein Ti:Sa-Lasersystem, welches bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm

Pulse von 20 fs Dauer mit einer Pulswiederholfrequenz von 80 MHz emittiert. Die Pulsdauer nach Durchlaufen des Anregungspfades wurde mittels Autokorrelation zu  $\sim 100$  fs ermittelt. Nach Separation von frequenzverdoppeltem Signal und Anregungslicht erfolgt die Detektion durch fasergekoppelte Photonenzählmodule. Mit der entwickelten Regelungs- und Steuertechnik steht dann ein leistungsfähiges System speziell für die Bedürfnisse der nichtlinearen Mikroskopie zur Verfügung.

Die konfokale nichtlineare Mikroskopie mit fs-Laseranregung und Detektion des frequenzverdoppelten Signals wurde als Standardmethode zur Visualisierung und Analyse der ferroelektrischen Domänenstruktur etabliert. Es wurden systematische Untersuchungen als Funktion wichtiger Prozessparameter an Z-Schnitt PPLN-Strukturen sowohl im Reflektions- als auch im Transmissionsmodus durchgeführt. Ein Vergleich der beiden Modi zeigte, dass die SHG vor allem in Vorwärtsrichtung erfolgt. Dies ist durch die wesentlich größere nichtlineare Kohärenzlänge im Transmissions-Modus erkläbar. Bei tiefenaufgelösten Untersuchungen der Z-Schnitt PPLN-Strukturen zeigte sich ein unterschiedliches SHG-Verhalten für Oberflächenbereich und Volumenkristall. Im Kristallvolumen wurde eine Inversion des SHG Kontrastes festgestellt, wobei für nicht getemperte Proben eine örtliche Verbreiterung des Signals vom Bereich der Domänenwände von bis zu  $3 \mu\text{m}$  beobachtet werden konnte. In getemperten Proben liegt die Breite unterhalb von 300 nm, was in etwa der lateralen Auflösungsgrenze des Systems entspricht. Ein ähnliches SHG-Verhalten konnte auch an LN-Proben mit zirkularer Polungsstruktur festgestellt werden, wobei diese dann im Kristall in eine hexagonale Struktur übergeht. Im Ti:PPLN Streifenwellenleiter wurde eine starke und spezifische Erhöhung des nichtlinearen Signals der Domänenwände entdeckt, wobei tiefenaufgelöste Untersuchungen zeigten, dass diese SHG-Erhöhung nur im Ti-diffundierten Bereich auftaucht. Die nichtlineare Antwort aus dem Wandbereich der Domänen ist hier keine symmetrische Funktion des Ortes, was eine Zuordnung der entgegengesetzten Domänen ermöglicht. Hier kann ein Zusammenhang zur inneren E-Feld-Verteilung angenommen werden. Ausschließlich beim Ti:PPLN Wellenleiter konnte hier die Inversion des üblichen SHG-Oberflächen-Kontrastes zwischen den Domänen und den Grenzen beobachtet werden.

Als äußerst interessant zeigte sich die Analyse periodischen Mikrodomänen unterschiedlich prozessierte Planar- und Rippen-Strukturen in X- u. Y-Schnitt LN. In beiden Fällen konnte aus Bereichen zwischen den Elektroden ein erhöhtes nichtlineares Signal erfasst werden. Es zeigt sich ein starker Kontrast im SHG-Signal bezüglich der gegensätzlich gepolten Domänenbereiche, welcher dann über die gesamte Tiefenausdehnung der invertierten Domänen erhalten bleibt. So konnte beispielsweise bei der Rippenstruktur eine erfolgreiche Polung über den Rippenbereich hinaus bis zu einer Gesamttiefe von  $5 \mu\text{m}$  nachgewiesen werden. Die SHG-Signatur erscheint hier gegensätzlich zu den Erfahrungen, die an PPLN gewonnen wurden, da hier auch im Volumen ein erhöhtes SH-Signal aus den

Domänenbereichen (und nicht von den Wänden) registriert wird. Weitere Untersuchungen und eine Querschnittsanalyse der Strukturen legen nahe, dass die Ursache für das erhöhte nichtlineare Signal in einer Filamentierung des invertierten Bereichs liegt, sodass es sich um den überlagerten nichtlinearen Beitrag mehrerer Domänenwände handelt. Hier könnte künftig eine theoretische Modellierung zu einer Bestätigung bzw. endgültigen Klärung führen.

Als zusätzliches bildgebendes Analyseverfahren wurde die  $\mu$ -Raman-Spektroskopie herangezogen. Der Aufbau gestaltete sich auch hier modular mit einem konfokalen Setup als Basis. Die Detektion des inelastisch gestreuten Lichtes erfolgte über ein Spektrometer mit angeschlossener CCD-Kamera. Die Unterdrückung des elastisch gestreuten Lichts erfolgt durch einen, dem holographischen Gitter vorgesetzten, Notch-Filter. Den Anforderungen der  $\mu$ -Raman-Spektroskopie entsprechend wurde eine Positioniertechnik realisiert und die Steuer- und Auswertesoftware entwickelt. Bei der  $\mu$ -Raman-Spektroskopie erwies sich gerade die Verknüpfung aus örtlicher Auflösung und spektraler Information als sehr nützlich. Analog zu den Ergebnissen der nichtlinearen Mikroskopie kann auch hier ein nicht-symmetrisches Messsignal als Funktion von  $x$  detektiert werden. Die Raman-Linien sind spezifisch durch die periodische Polung der Domänenstruktur modelliert. Es konnte gezeigt werden, dass in Abhängigkeit zur gewählten Ramanlinie sowohl die Domänengrenzen als auch die unterschiedlich orientierten Domänen selbst abgebildet werden können und eine eindeutige Zuordnung bezüglich der Polarität möglich ist. An Z-Schnitt PPLN wurde exemplarisch gezeigt, dass die  $\mu$ -Raman-Spektroskopie eine informationsreiche 3D-Analysemethode zur Charakterisierung von ferroelektrischen Domänenstrukturen darstellt und darüber hinaus deren Visualisierung ermöglicht. Erste Ergebnisse der konfokalen Ramanspektroskopie an periodisch gepolten Rippenwellenleitern auf X- und Y-Schnitt PPLN sind sehr vielversprechend, aber weitere Analysen sollen Gegenstand künftiger Forschungsaktivitäten sein.

## Anhang A: Technik zur LSM

### Programmablauf der Scanroutine:

Die grundlegenden Steuerroutinen des Scanners wurden in Assembler programmiert und in die Maschinensprache des verwendeten Mikroprozessors übersetzt. Diese Routinen implementieren nur rudimentäre Linienscans und sind im Speicher des Mikrocontrollers abgelegt. Über ein Software-Interface können diese Routinen vom Programm angesteuert bzw. ausgeführt werden. Der Datenaustausch mit dem Mikrocontroller erfolgt hier mit der Hochsprache Delphi. Der vom Software-Interface zur Verfügung gestellte Befehl zur Steuerung der Bewegungsrichtung und Festlegung der Auflösung ist: *Fib537out(FibScanner\_out, Kanal, i\*dx)*. Die in diesem Befehl aufgeführten Variablen sind die Adresse des Glasfaserinterface (Fibbox): *FibScanner\_out*, die Belegung der Interfacekanäle (Richtung, Triggerung, Detektorbelegung) und die inkrementelle Schrittweite *dx*. Die Datenübergabe der in der Software angegebenen Parameter, erfolgt über den Befehl: *Fib537out(...)*. Die Daten gelangen über die USB-Schnittstelle zur Fibbox und somit zum integrierten Mikrocontroller, der sie dann weiter verarbeitet. Die Steuerung des Scanners erfolgt über eine Spannungsrampe (Abb. A-1).

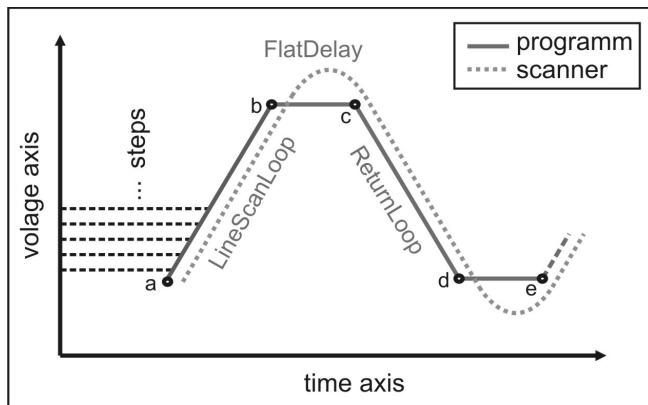


Abb. A-1: Darstellung des Rampenverlaufs zur Scannersteuerung

Dabei sind die steigende und die fallende Flanke der jeweils positiven oder negativen Bewegungsrichtung zugeordnet. Die Geschwindigkeit der Rasterung ist direkt von der eingestellten Auflösung (der Spannungsrampe) abhängig. So resultiert aus einer hohen Auflösung eine geringe Geschwindigkeit.

Mittels *Fib537out(...)* werden den Routinen zur Ausführung des Scannvorgangs die jeweilige Schrittzahl mit entsprechender Auflösung übergeben. Die Steuerung der Scanbewegung findet in einer Schleife statt, in der ein Zähler inkrementiert und mit dem Counter verglichen. Bei jedem Schleifendurchlauf wird der Zähler und somit die Spannung

am entsprechenden Kanal (entsprechende Richtung) des Scanners erhöht. Hat der Zählerwert den Counterwert erreicht (Endposition), wird die Schleife abgebrochen und eine kurze Verzögerungsphase eingeleitet (FlatDelay). Diese Verzögerungsphase ermöglicht dem Scanner die Umkehrung der Bewegungsrichtung. Anschließend wird der Scanner über eine lineare Spannungsflanke mit negativer Steigung auf die Nullposition der Messung zurückgeführt. Diese Bewegung wird ebenfalls in einer Schleife ausgeführt, hier wird der Zähler so lange dekrementiert bis er mit dem Wert für die Start- bzw. Nullposition übereinstimmt.

## Anhang B: Technik zur $\mu$ -Raman-Spektroskopie

### Algorithmen zur Datenerfassung und Visualisierung

Mit der zunehmender Leistungsfähigkeit moderner Computer wird die Verarbeitung größerer Datenmengen, wie sie bei bildgebenden Verfahren zwingend notwendig sind, erst möglich. Die Generierung aussagekräftiger Bilder steht dabei im Vordergrund jeder algorithmischen Verarbeitung von Messdaten. Hier liegt die Schwierigkeit vor allem in der sinnvollen Organisation und der Extraktion der gewünschten Daten aus der gemessenen Rohinformation.

Das Controller Area Network (CAN) Bus-System wurde für den schnellen seriellen Datenaustausch zwischen elektronischen Steuer- und Messvorrichtungen entwickelt. Ein integrales Merkmal dieser Bus-Topologie ist, dass die einzelnen Komponenten (hier Versteller- u. Detektoreinheiten) auf einer untergeordneten Automatisierungsebene autark arbeiten und die gemessenen Werte bzw. angefahrenen Positionen an die nächst höhere Automatisierungsebene zur Verarbeitung weitergeben. Die Hardware und die Steuer- und Protokollsoftware sind bidirektional implementiert und können vom Entwickler über Programme komplett kontrolliert werden. Die Erstellung speziell angepasster Steuer- bzw. Scansoftware erfolgt hier über die Hochsprache Delphi, also auf der Abstraktionsebene, welche dem Experimentator direkt zugänglich ist. Dabei orientieren sich die Mess- und Steueralgorithmen am zu vermessenden physikalischen System.

Die zur Probenuntersuchung verwendeten Messalgorithmen beziehen sich auf Punkt-, Linien- und Flächenscans. Dabei bauen Linien- und Flächenscans auf den Algorithmus für den Punktskan bzw. Einzelscan auf. Der Ursprung des für den Messprozess gültigen Koordinatensystems fällt mit der Nullpunktsstellung des Positioniersystems zusammen. Auf diese absoluten Ursprungskoordinaten beziehen sich alle räumlichen Angaben, die in den Algorithmen verwendet werden. Bei dem hier verwendeten Messverfahren wird für jeden Messpunkt ein komplettes Spektrum aufgenommen. Die räumliche Zuordnung der Messkoordinaten wird im Dateinamen angegeben und kann so bei der Weiterverarbeitung der entsprechenden Position des Messpunktes im Bild zugeordnet werden.

Der folgende Algorithmus (Algorithm 1) beschreibt die Messung an einem Punkt der Koordinaten (x, y, z). Dazu muss die Probe an die gewählte Position gebracht werden. Anschließend werden die Integrationszeit und die Anzahl der Mittlungen festgelegt. Die Messung startet in der Schleife (Zeile 8 bis 10) und wird so oft wie gewünscht wiederholt. Anschließend wird das Messergebnis in einer Datei abgespeichert.

---

**Algorithm 1 PointScan CAN-Bus**

---

```
1: local x
2: local y
3: local z
4: local intTime set integration time
5: local average set number of average
6: local spectra
7: setpos goto position
8: for average
9:   get_spectra
10: end for
11: save spectra
```

---

Beim Linienscan (Algorithm 2) werden zwei von drei Variablen für die Raumrichtung konstant gehalten, während die dritte Raumrichtung in äquidistanten Schritten durchlaufen wird. An jedem Stützpunkt wird eine Einzelpunktmessung mit den entsprechenden Parametern durchgeführt und das gemessene Spektrum in einer Datei gespeichert. Der Linienscan erzeugt eine Reihe von Dateien die jeweils ihre absoluten Messkoordinaten im Namen tragen, was die Zuordnung im Messkontext und in der Auswertung ermöglicht.

---

**Algorithm 2 LineScan CAN-Bus**

---

```
1: local x
2: local y
3: local z
4: local step_width set step width
5: local length set scan length
6: local spectra
7: local intTime set integration time
8: local average set number of average
9: setpos goto start position
10: for length do
11:   for amount of measurements do
12:     get_spectra
13:   end for
14:   save spectra
15:   (x,y,z)  $\leftarrow$  calculate next position
16:   setpos next position
17: end for
```

---

Der Flächenscan (Algorithm 3) ist aus mehreren Linienscan zusammengesetzt. Bei ihm wird zuerst ein vollständiger Linienscan ausgeführt (in x- oder y-Richtung) und anschließend wird die Startposition des folgenden Linienscan angefahren. Von dort beginnt der erneute Linienscan. Die beim Flächenscan erzeugten Messdateien tragen ebenfalls die absoluten Koordinaten ihrer Messpunkte im Namen.

---

**Algorithm 3 PlaneScan CAN-Bus**


---

```

1: local x
2: local y
3: local z
4: local step_width_x set step width in x direction
5: local step_width_y set step width in y direction
6: local length_x set scan length in x direction
7: local length_y set scan length y direction
8: local spectra
9: local intTime set integration time
10: local average set number of average
11: setpos goto start position
12: for length_x do
13:   for length_y do
14:     for amount of measurements do
15:       get_spectra
16:     end for
17:     save spectra
18:     (x,y,z)  $\leftarrow$  calculate next y position
19:     setpos next y position
20:   end for
21:   (x,y,z)  $\leftarrow$  calculate next x position
22:   Setpos next y position
23: end for

```

---

Um große Datenmengen, wie sie bei Flächenscans anfallen, sinnvoll bearbeiten zu können, wurden hierfür spezielle Algorithmen entwickelt. Diese ermöglichen es, aus großen Datenmengen Informationen zu extrahieren und diese in beliebiger Form, z.B. als Graphen oder Abbildungen, darzustellen.

Der Visualisierung der Messdaten als Bild liegt die Idee zu Grunde, dass die Messfläche mit einem Netz von Messpunkten fest definierter Abstände überzogen ist. An jedem Stützpunkt wird eine Einzelpunktmessung vorgenommen, so dass zu jedem Punkt (x,y,z) ein Spektrum existiert. Zur Bildgenerierung wird wie folgt vorgegangen:

Zuerst wird ein der Messfläche entsprechendes Array im Computer erzeugt. D.h. für eine Messung mit 100 x 100 Messpunkten wird ein zweidimensionales Array mit 100 x 100 Einträgen angelegt. Danach wird in den Dateien für die auszuwertende Bande die

Integration mit den entsprechenden Bedingungen (z.B. FWHM) ausgeführt und das Ergebnis an die korrespondierende Stelle des Array geschrieben. Die Arrays können als einfache zweidimensionale Matrizen angesehen werden. Als letzter Schritt wird das Array (Matrix) in einer Textdatei gespeichert und steht dann zur weiteren bildgebenden Verarbeitung zur Verfügung.

---

**Algorithm 4 Visualization**

---

```
1: local x
2: local y
3: local step_x
4: local step_y
5: local integration
6: local summe
7: local array[x,y]
8: local file_name
9: local start_wavenumber
10: local end_wavenumber
11: for all x
12:   for all y
13:     filename ← ,messung' + ,x' + ,_ ' + ,y' + ,.txt'
14:     summe ← 0
15:     for integration = start_wavenumber to end_wavenumber
16:       summe ← summe + intensitat(integration)
17:     end for
18:     array[x,y] ← summe
19:     y ← y + Stepp_y
20:   end for
21:   x ← x + step_x
22: end for
23: save array
```

---

Mit diesem Algorithmus können beliebig viele Matrizen erzeugt und in Dateien abgespeichert werden. Diese Matrizen können dann mathematisch bearbeitet bzw. elementweise unter einander verknüpft (addiert, multipliziert, subtrahiert, dividiert) werden. Mit diesen Algorithmen können spezielle Aspekte der Messung hervorgehoben bzw. einzeln betrachtet werden.

## Anhang C: Moden in Wellenleitern

Die Beschreibung der Lichtausbreitung, insbesondere auch die der Moden eines Wellenleiters, basiert auf den Maxwellgleichungen. Das hier untersuchte Lithiumniobat ist ein dielektrisches nichtmagnetisches Material, in dem weder freie noch bewegliche Ladungen auftreten, so dass sich die Maxwellgleichungen gemäß den Gleichungen aus 1.01 ergeben. Im Wellenleiter können sich, analog zum Oszillator im Potentialtopf, Moden ausbilden. Hierfür muss ein effektiver Brechungsindex  $n_{\text{eff}}$  der geführten Mode und für die Wellenzahl  $k$  ein Ausbreitungsparameter  $\beta = n_{\text{eff}} k$  berücksichtigt werden. Für das elektrische Feld einer geführten Mode gilt [Her91]:

$$\vec{E}(r, t) = \frac{1}{2} [A(z) \vec{E}_0(x, y) \cdot e^{i(\omega t - \beta z) + \Phi} + c.c.] \quad (\text{C.01})$$

Es wird also  $\vec{E}(\vec{r}, t)$  in eine longitudinale Komponente, das Skalar  $A(z)$  und in einen Vektor  $\vec{E}_0(x, y)$  (Koordination senkrecht zur Ausbreitungsrichtung) aufgespalten. Der Amplitudenfaktor  $A(z)$  definiert die optische Leistung der Welle, wobei seine  $z$ -Abhängigkeit von Dämpfungsverlusten und dem Energieübertrag zwischen den Wellen über den  $\tilde{\chi}^{(2)}$ -Prozess herrührt. Die  $\vec{E}_0$ -Feld-Verteilung wird durch das Brechungsindexprofil des Wellenleiters bestimmt und ist nicht von der Ausbreitungsrichtung der Welle abhängig. Die zeitunabhängige Wellengleichung lässt sich durch Einsetzen von Gleichung C.01 in die Maxwellschen Gleichungen ableiten, es gilt:

$$\left\{ \alpha_x \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \alpha_y \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \beta_0^2 (n^2(x, y) - n_{\text{eff}}^2) \right\} \tilde{\Phi}(x, y) = 0 \quad (\text{C.02})$$

Für planare Wellenleiter (keine Brechzahlerhöhung in  $x$ -Richtung) erhält man als Lösungen der Maxwellgleichungen transversal elektrische (TE,  $\vec{E} = (E_x, 0, 0)$ ,  $\vec{H} = (0, H_y, H_z)$ ) und transversal magnetische (TM,  $\vec{E} = (0, E_y, E_z)$ ,  $\vec{H} = (H_x, 0, 0)$ ) Moden, bei denen nur die  $E_x$  bzw.  $H_x$  von Null verschieden sind. Im Fall von Streifenwellenleitern liegen keine reinen transversalen Moden vor. Die Feldverteilung weicht dann von der idealisierten Verteilung ab, so dass man von Quasi-TM- (QTM) und Quasi-TE-Moden (QTE) spricht.

Im Falle relativ kleiner Änderungen des Brechungsindexes in transversaler Ausbreitungsrichtung ergeben sich entsprechend für Gleichung C.02 in guter Näherung zweidimensionale, skalare Wellengleichungen:

$$QTM : \left( \frac{\partial^2}{\partial x^2} + \frac{n_y^2}{n_z^2} \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \beta_0^2 (n_y^2 - n_{eff}^2) \right) H_x = 0 \quad (\text{C.03a})$$

$$QTE : \left( \frac{n_x^2}{n_z^2} \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \frac{\partial^2}{\partial y^2} + \beta_0^2 (n_x^2 - n_{eff}^2) \right) E_x = 0 \quad (\text{C.03b})$$

Hier stellt  $n_{eff}$  den effektiven Brechungsindex der geführten Mode und  $\beta_0 = 2\pi/\lambda$  die Bewegungskonstante im Vakuum dar. Das Gleichungssystem besitzt keine analytisch geschlossenen Lösungen. Aus diesem Grund müssen approximative bzw. numerische Methoden, wie beispielsweise die Finite-Elemente-Methode (FEM) oder die Effektiv-Index-Methode (EIM) zur Berechnung herangezogen werden [Str91][HB77]. Näherungsweise kann man zur Bestimmung der Feldverteilung einen Gauß-Hermite-Gauß Ansatz (GHG-Ansatz) verwenden. Hier wird für die Modenprofile von einem Produkt ausgegangen, welches in lateraler Richtung ( $x$ ) eine Gauß-Verteilung und in vertikaler Richtung ( $y$ ) eine Hermite-Gauß-Verteilung aufweist [Her91]:

$$\tilde{\phi}(x, y) = \psi(x)\phi(y) \quad (\text{C.04})$$

$$\begin{aligned} \psi(x) &= \sqrt{\frac{2}{\sqrt{\pi}\theta}} \exp\left(-\frac{2x^2}{\theta^2}\right) \\ \phi(y) &= \frac{2}{\sqrt{\sigma\sqrt{\pi}}} \frac{y}{\sigma} \exp\left(-\frac{y^2}{2\sigma^2}\right) \end{aligned} \quad (\text{C.05})$$

Hier bezeichnen  $\theta$  und  $\sigma$  die GHG-Parameter, welche die Ausbreitung der Moden in vertikaler und horizontaler Richtung beschreiben. Nach geeigneter Dimensionierung von  $\vec{E}_0(x, y)$  bzw.  $\tilde{\phi}(x, y)$  gilt nun die folgende Normierung:

$$\int_0^\infty \int_{-\infty}^\infty |\tilde{\phi}(x, y)|^2 dx dy = 1 \quad (\text{C.06})$$

Die Berechnung der Modenverteilung beschränkt sich somit auf die Bestimmung der GHG-Parameter. Dies erfolgt durch Aufstellung eines Funktionalen für die beschrieben Wellengleichung (C.03), welche durch den Ansatz aus Gleichung C.04 in eine Funktion  $L(\theta, \sigma)$  übergeht. Die partiellen Ableitungen  $\delta L / \delta \theta$  und  $\delta L / \delta \sigma$  verschwinden im Extremum von  $L(\theta, \sigma)$ , so dass durch Nullstellensuche die GHG-Parameter numerisch ermittelt werden

können. In einem nichtlinearen Medium können mehrere Moden miteinander wechselwirken, man spricht dann von nichtlinearer Modenkopplung.

## Literaturverzeichnis

- [AB+62] J. A. Armstrong, N. Bloembergen, J. Ducuing, P. S. Pershan: "Interactions between light waves in a nonlinear dielectric", Phys. Rev. 127, 1918 (1962)
- [AM86] S. C. Abrahams, P. Marsh: "Defect structure dependence on composition on lithium niobate", Acta Cryst. B42, 61 (1986)
- [And71] A. Anderson: "The Raman Effect, Vol. 1. Principles", Dekker (1971)
- [BEY85] H. Beyer: "Handbuch der Mikroskopie", VEB (1985)
- [BGT84] D. A. Bryan, R. Gerson, H. E. Tomaschke: "Increased optical damage resistance in lithium niobate", Appl. Phys. Lett. 44, 847-849 (1984)
- [BH+08] G. Berth, K.-P. Hüsch, V. Wiedemeier, V. Quiring, W. Sohler, A. Zrenner: "Analysis and visualization of ferroelectric domain structures by nonlinear confocal microscopy", NMOC, p. 7 (2008)
- [BH+08'] G. Berth, K.-P. Hüsch, V. Wiedemeier, M. Panfilova, A. Pawlis, K. Lischka, A. Zrenner: "Multi-dimensional imaging and analysis of micro- and nanosystems by confocal Raman spectroscopy", NMOC, p. 8 (2008)
- [BL66] A. S. Barker, R. Loudon: "Dielectric Properties and Optical Phonons in LiNbO<sub>3</sub>", Phys. Rev. 158, 433-45 (1966)
- [BM+90] M. Börner, R. Müller, R. Schiek, G. Trommer: "Elemente der integrierten Optik", Teubner (1990)
- [Boy92] R.W. Boyd: "Nonlinear Optics", Academic Press (1992)
- [BQ+07] G. Berth, V. Quiring, W. Sohler, A. Zrenner: "Depth-Resolved Analysis of Ferroelectric Domain Structures in Ti:PPLN Waveguides by Nonlinear CLSM", Ferroelectrics 352: 78-85 (2007)
- [BS78] L. Bermann, C. Schäfer: "Lehrbuch der Experimentalphysik, Band III Optik", de Gruyter (1978)
- [BW88] M. Born, E. Wolf: "Principle of optics: Electromagnetic theory of propagation, interference and diffraction of light", Pergamon Press (1988)
- [BW+09] G. Berth, V. Wiedemeier, K.-P. Hüsch, L. Gui, H. Hu, W. Sohler, A. Zrenner: "Imaging of ferroelectric micro-domains in X-cut lithium niobate by confocal second harmonic microscopy", Ferroelectrics, 389:1-10 (2009)

- [CK96] T. R. Corle, G. S. Kino: "Confocal Scanning Optical Microscopy and related Imaging Systems", Academic Press, London (1996)
- [CKI01] Y. Cho, S. Kazuta, H. Ito: "Scanning-nonlinear-dielectric-microscopy study on periodically poled LiNbO<sub>3</sub> for high-performance quasi-phase matching device", Appl. Phys. Lett. 79, 2955 (2001)
- [DA99] M. W. Davidson, M. Abramowitz: "Optical Microscopy", Review Article of Florida State University (1999)
- [DDA99] A. E. Dixon, S. Damaskinos, M. R. Atkinson: "Scanning Laser Microscopy Lab: Confocal Microscopy", Article University of Waterloo (1999)
- [DGN97] V. G. Dmitriev, G. G. Gurzadyan, D. N. Nikogosyan: "Handbook of Nonlinear Optical Crystals", Optical Sciences, Springer (1997)
- [FB+97] M. Flörsheimer, M. Bösch, C. Brillert, M. Wierschem, H. Fuchs: "Second Harmonic Microscopy – A Quantitative Probe for Molecular Surface Order" Adv. Mater. 9: 1061-1065 (1997)
- [Fej94] M. M. Fejer: "Nonlinear Optical Frequency Conversion", Physics Today 47:25 (1994)
- [FK85] A. Feist, P. Koidl: "Current-induced periodic ferroelectric domain-structures in LiNbO<sub>3</sub> applied for efficient nonlinear optical frequency mixing", Appl. Phys. Lett. 47, 1125 (1985)
- [FP+98] M. Flörsheimer, R. Paschotta, U. Kubitschek, Ch. Brillert, D. Hofmann, L. Heuer, G. Schreiber, C. Verbeek, W. Sohler, H. Fuchs: "Second-Harmonic Imaging of Ferroelectric Domains in LiNbO<sub>3</sub> with Micron Resolution in Lateral and Axial Directions", Appl. Phys., B67, 593-599 (1998)
- [FT+08] M. A. Foster, A. C. Turner, M. Lipson, A. L. Gaeta: "Nonlinear Optics in Photonic Nanowires", Optics Express 16: 1300-1320 (2008)
- [GB+07] F. Génereux, G. Baldenberger, B. Bourliaguet, R. Vallée: "Deep Periodic Domain Inversion in X-Cut LiNbO<sub>3</sub> and its use for Second Harmonic Generation near 1.5 μm", Appl. Phys. Lett. 91, 231112 (2007)
- [GH+08] L. Gui, H. Hui, M. Garcia-Granda, W. Sohler, G. Berth, A. Zrenner: "Ferroelectric microdomains in plasma-etched ridges on X-cut Lithium Niobate", Proc. ECIO`08, 71-74 (2008)
- [GLN74] A. M. Glass, D. von der Linde, T. J. Negran: "High-voltage bulk photorefractive effect and the photorefractive effect in LiNbO<sub>3</sub>", Appl. Phys. Lett. 25, 233 (1974)

- [HB77] G. Hocker, W. K. Burns: "Mode dispersion in diffused channel waveguides by the effective index method", *Appl. Optics* 16(1), 113-118 (1977)
- [HB+09] K.-P. Hüsch, G. Berth, L. Schmidt, M. Holtz, H.-J. Warnecke, A. Zrenner: "Novel techniques for the visualization and determination of chemical reactions in flat microreactors based on fluorescence microscopy", *Journal of Chemical Physics* (to be published) (2009)
- [HEC91] E. Hecht: "Optik", Addison Wesley (1991)
- [Her91] H. Herrmann: "Optische nichtlineare Differenzerzeugung abstimmbarer, kohärenter Strahlung im mittleren Infrarotbereich in Ti:LiNbO<sub>3</sub>-Streifenwellenleitern", Ph. D.-thesis, University of Paderborn (1991)
- [HL99] G. S. He, S. H. Liu: "Physics on nonlinear optics", World Scientific (1999)
- [HOB67] S. E. Harris, M. K. Oshman, R. L. Byer: "Observation of tunable optical parametric fluorescence", *Phys. Rev. Lett.* 18, 732 (1967)
- [Hof07] D. Hofmann: "Nichtlineare, integriert optische Frequenzkonverter für das mittlere Infrarot mit periodisch gepolten Ti:LiNbO<sub>3</sub>-Streifenwellenleitern", Ph. D.-thesis, University of Paderborn (2007)
- [HRS08] H. Hu, R. Ricken, W. Sohler: "Etching of Lithium Niobate: From Ridge Waveguides to Photonic Crystal Structures", Conference paper ECIO, WeD3 (2008)
- [HR+07] H. Hu, R. Ricken, W. Sohler, R. B. Wehrspohn: "Lithium Niobate Ridge Waveguides Fabricated by Wet Etching", *IEEE Photon. Technol. Lett.* 19, 417-419 (2007)
- [JS05] T. Jungk, E. Soergel: "Depth-resolved analysis of ferroelectric domain structures in bulk LiNbO<sub>3</sub> crystals by scanning force microscopy", *Appl. Phys. Lett.* 86, 242901 (2005)
- [KTR00] T. Kishino, R. F. Tavlykaeva, R. V. Ramaswamy: "70+ μm deep domain inversion in X-cut LiNbO<sub>3</sub> and its use in a high-speed bandpass integrated-optic modulator", *Appl. Phys. Lett.* 76: 3852-3854 (2000)
- [LFB89] E. J. Lim, M. M. Fejer, R. L. Byer: "Second harmonic generation of green light in periodically poled planar lithium niobate waveguide", *Electron. Lett.* 25, 174-175 (1989)
- [Lou64] R. Loudon: "The Raman effect in Crystals", *Adv. Phys.* 13, 52, 423-482 (1964)

- [MM+95] L. E. Myers, G. D. Miller, R. C. Eckardt, M. M. Fejer, R. L. Byer, W. R. Bosenberg: "Quasi-phase-matched 1.064-mm-pumped optical parametric oscillator in bulk periodically poled LiNbO<sub>3</sub>", Optics Letters 20:1 (1995)
- [Orl09] S. Orlov: "Integrated optical parametric generators and oscillators for the mid-infrared (MIR) range", Ph. D.-thesis, University of Paderborn (2009)
- [PT93] G. R. Paz-Pujalt, D. D. Tuschel, "Depth profiling of proton exchanged LiNbO<sub>3</sub> waveguides by micro-Raman spectroscopy", Appl. Phys. Lett. 62, 3411 (1993)
- [Rae78] A. Räuber: "Chemistry and Physics of Lithium Niobate", Current Topics in Material Science, Vol. 1, p. 481 (1978)
- [RB+97] A. Ridah, P. Bourson, M. D. Fontana, G. Malovichko: "The composition dependence of the Raman spectrum and new assignment of the phonons in LiNbO<sub>3</sub>", J. Phys.: Condens. Matter 9, 9687-9693 (1997)
- [RS85] R. Regner, W. Sohler: "Loss in Low-Finesse Ti:LiNbO<sub>3</sub> Optical Waveguide Resonators", Applied Physics B 36: 143-147 (1985)
- [RS+04] A. Rastelli, S. Stufler, A. Schliwa, R. Songmuang, C. Manzano, G. Costantini, K. Kern, A. Zrenner, D. Bimberg, O.G. Schmidt: "From InAs/GaAs islands to inverted GaAs/AlGaAs quantum dots by hierarchical self-assembly", Paper of TU Berlin (2004)
- [RF01] A. Rosenfeldt, M. Flörsheimer: "Nondestructive remote imaging of ferroelectric domain distributions with high three-dimensional resolution", Appl. Phys. B 73, 523 (2001)
- [SB+98] V. Y. Shur, R. G. Batchko, E. L. Rumyantsev, G. D. Miller, M.M. Fejer, R. L. Byer: "Domain Engineering: Periodic Domain Patterning in Lithium Niobate", IEEE 399-405 (1998)
- [Sch01] G. Schreiber: "Quasi-phasenangepasste Frequenzkonversion mit periodischem Ti:LiNbO<sub>3</sub> Wellenleitern", Ph. D.-thesis, University of Paderborn (2001)
- [SK74] R. V. Schmidt, I.P. Kaminow: "Metal-diffused optical waveguides in LiNbO<sub>3</sub>", Appl. Phys. Lett. 25: 458 (1974)
- [SK+97] I. Shoji, T. Kondo, A. Kitamoto, M. Shirane, R. Ito: "Absolute scale second-order nonlinear-optical coefficients", J. Opt. Soc. Am., B14, 2268 (1997)
- [SM01] J. Squier and M. Müller: "High resolution nonlinear microscopy: "A review of sources and methods for achieving optical imaging", Rev. Sci. Inst. 72, 2855 (2001)

- [SM+05] S. K. Sharma, H. K. Mao, P. M. Bell, J. A. Xu: "Measurement of stress in diamond anvils with micro-Raman Spectroscopy", *Journal of Raman Spectroscopy*, Vol. 16, 350 – 352 (2005)
- [SMN07] S. K. Sudheer, V. P. Mahadevan Pillai, V. U. Nayar: "Characterization of laser processing of single-crystal natural diamonds using micro-Raman spectroscopic investigations", *Journal of Raman Spectroscopy*, Vol. 38, 4, 427-435 (2007)
- [SMT94] J. K. Stevens, L. R. Mills, J. E. Trogadis: "Three-Dimensional Confocal Microscopy: Volume Investigation of Biological Systems", Academic Press, London (1994)
- [Som89] R. Sommerfeld: "Der Einfluss weiterer Verunreinigungen auf das photorefraktive Verhalten Fe-dotierter LiNbO<sub>3</sub>-Kristalle", Ph. D.-thesis, University Osnabrück (1989)
- [SS91] H. Seibert, W. Sohler: "Ferroelectric microdomain reversal on Y-cut LiNbO<sub>3</sub> surfaces", *Physical Concepts of Materials for Novel Optoelectronic Device Applications II: Device Physics and Applications*, Proc. SPIE Vol. 1362, pp. 370-376, (1991)
- [SS97] C. J. R. Sheppard, D. M. Shotton: "Confocal Laser Scanning Microscopy" Oxford, IOS Scientific Publishers Ltd. (1997)
- [Str91] E. Strake: "Numerische Analyse integriert optischer Komponenten in LiNbO<sub>3</sub> mit der Theorie der gekoppelten Moden", Ph. D.-thesis, University of Paderborn (1991)
- [SW66] R. F. Schaufele, M. J. Weber: "Raman scattering by Lithium Niobate", *Phys. Rev.* 152 705-8 (1966)
- [SY72] S. Somekh, A. Yariv: "Phase matching by periodic modulation of the nonlinear properties", *Opt. Commun.* 6, 301 (1972)
- [Tam90] T. Tamir: "Guided-wave optoelectronics", Springer series in electronics and photonics, Vol. 26 (1990)
- [Ues98] Y. Uesu: "SHG Microscope: Principle and its Applications", *Journal of the Korean Physical Society* 32: 461-463 (1998)
- [Wil90] T. Wilson: "Confocal Microscopy", Academic Press, London (1990)
- [UKY95] Y. Uesu, S. Kurimura, Y. Yamamoto: "New nonlinear microscope and its application to the observation of ferroelectric domain structure", *Ferroelectrics* 169: 249-257 (1995)

- [WG85] R. S. Weis, T. K. Gaylord: "Lithium niobate: Summary of physical properties and crystal structure", *Appl. Phys. A* 37, 191 (1985)
- [WJS01] I. de Wolf, C. Jian , W. M. van Spengen: "The investigation of microsystems using Raman spectroscopy", *Optics & Lasers in Engineering*, Vol. 36-2, pp. 213-223, (2001)
- [Wol95] I. de Wolf: "Micro-Raman spectroscopy to study local mechanical stress in silicon integrated circuits", IMEC (1995)
- [WM+03] M. C. Wengler, M. Mueller; E. Soergel, K. Buse: "Poling dynamics of lithium niobate crystals", *Appl. Phys. B* 76 393-6 (2003)
- [Yar89] A. Yariv: "Quantum Electronics", New York, Wiley (1989)
- [YN+93] M. Yamada, N. Nada, M. Saitoh, K. Watanabe: "First-order quasi-phase matched LiNbO<sub>3</sub> waveguide periodically poled by applying an external field of efficient blue second harmonic generation", *Appl. Phys. Lett.* 62: 435 (1993)
- [Zre96] A. Zrenner, Deutsches Patent, DE19644550C1 (1996)

## Publikationsliste

- 1) **Depth-Resolved Analysis of Ferroelectric Domain Structures in Ti:PPLN Waveguides by Nonlinear Confocal Laser Scanning Microscopy**  
G. Berth, V. Quiring, W. Sohler, A. Zrenner  
*Ferroelectrics*, 352:78–85, 2007
- 2) **Ferroelectric microdomains in plasma-etched ridges on X-cut Lithium Niobate**  
L. Gui, H. Hu, M. Garcia-Granda, W. Sohler, G. Berth, A. Zrenner  
*Proc. ECIO`08*, pp. 71-74, 2008
- 3) **Micro-Raman imaging and micro-photoluminescence measurements of strain in ZnMgSe/ZnSe microdisks**  
M. Panfilova, A. Pawlis, C. Arens, S. Michaelis de Vasconcellos,  
G. Berth, K.P. Hüsch, V. Wiedemeier, A. Zrenner, K. Lischka  
*Microelectronics Journal* 40, pp. 221-223, 2008
- 4) **Analysis and visualization of ferroelectric domain structures by nonlinear confocal microscopy**  
G. Berth, K.-P. Hüsch, V. Wiedemeier, V. Quiring, W. Sohler, A. Zrenner  
*Nonlinear Microscopy and Optical Control (NMOC 2008)* Münster, p. 7, 2008
- 5) **Multi-dimensional imaging and analysis of micro- and nanosystems by confocal Raman spectroscopy**  
G. Berth, K.-P. Hüsch, V. Wiedemeier, M. Panfilova, A. Pawlis, K. Lischka, A. Zrenner  
*Nonlinear Microscopy and Optical Control (NMOC 2008)* Münster, p. 8, 2008
- 6) **Model-based determination of local valid kinetics of chemical reactions in liquid phase using flat bed microreactors**  
G. Berth, V. Wiedemeier, L. Schmidt, M. Holtz, D. Bothe, H.-J. Warnecke, A. Zrenner  
*Progress Colloquium DFG Project PAK 119* Bremen, 2008
- 7) **Imaging of ferroelectric micro-domains in X-cut lithium niobate by confocal second harmonic microscopy**  
G. Berth, V. Wiedemeier, K.-P. Hüsch, L. Gui, H. Hu, W. Sohler, A. Zrenner  
*Ferroelectrics*, 389:1–10, 2009

- 8) **Bestimmung chemischer Kinetiken in Flüssigphase im Flachbettmikroreaktor**  
H.-J. Warnecke, G. Berth, K.-P. Hüsch, D. Bothe, A. Zrenner  
Übersichtsartikel, Chemie Ingenieur Technik (to be published), 2009
- 9) **Novel techniques for the visualization and determination of chemical reactions in flat microreactors based on fluorescence microscopy**  
K.-P. Hüsch, G. Berth, V. Wiedemeier, L. Schmidt, H.-J. Warnecke, A. Zrenner  
Journal of Chemical Physics (to be published), 2009
- 10) **Lift-Off of mesoporous layers by electrochemical etching on Si substrates with 6° off**  
E. Garralaga Rojas, B. Terheiden, H. Plagwitz, J. Hensen, G.F.X. Strobl, V. Wiedemeier, G. Berth, A. Zrenner, R. Brendel  
Thin Solid Films (to be published), 2009

## Danksagung

An erster Stelle gebührt mein Dank Herrn Prof. Dr. Artur Zrenner, der mir diese Arbeit in seiner Arbeitsgruppe ermöglichte. Seine persönliche Art und Offenheit trug sehr zum angenehmen Arbeitsklima bei und ermöglichte ein motiviertes und eigenverantwortliches Arbeiten. Beeindruckt hat mich hier sein besonderes Gespür für Entwicklungspotentiale, was dann zu neuen Denkanstößen und Ideen führte.

Herrn Prof. Dr. Wolfgang Sohler danke ich für die Betreuung der Dissertation als Zweitgutachter und für die gute Kooperation im Rahmen der DFG Forschergruppe 295, die mir einen konkreten Einblick in den Bereich der integrierten Optik ermöglichte. Besonders hilfreich empfand ich hier die vielen intensiven Diskussionen, welche dann richtungweisend für die weitere wissenschaftliche Herangehensweise waren.

Ein herzlicher Dank geht an alle meine Kollegen und Kolleginnen der Arbeitsgruppe „*nanostructure optoelectronics*“ für das angenehme Arbeitsklima. Gedankt sei hier: Dr. Thomas Hangleiter und Heike Degler (Sekretariat) für die Unterstützung in verwaltungstechnischen Angelegenheiten; Rüdiger Schulte und Rainer Schneider für die bereitwillige Hilfe bei allen technischen Problemen; Steffen Michaelis, Mohannad Al-Hmoud u. Wadim Quiring für den fruchtbaren wissenschaftlichen Austausch. Ausdrücklich sei hier Marco Gemke erwähnt, der während seiner Diplomarbeit mit mir ein konfokales Mikroskop realisierte. Ein ganz besonderer Dank geht an meine aktuellen und ehemaligen Mitstreiter aus dem P8-Gebäude, die für ein konstruktives und freundschaftliches Umfeld sorgten, namentlich sind das: Janina Born, Johann Borsch, Klaus-Peter Hüsch, Volker Wiedemeier und die studentischen Hilfskräfte Sandra Engelkemeier, Fabian Meyer, David Rasche u. Nils Weber.

Der gesamten Arbeitsgruppe „*Integrierte Optik*“ von Herrn Prof. Sohler danke ich für die konstruktive Zusammenarbeit. Im Speziellen Viktor Quiring und Raimund Ricken für die Bereitstellung der PPLN-Proben, Li Gui und Dr. Hui Hu für die gute Kooperation bezüglich der Planar- u. Rippen-Strukturen und schließlich Dr. Harald Hermann u. Dr. Hubertus Suche für viele hilfreiche Diskussionen.

Bedanke möchte ich mich auch bei allen Mitgliedern der Forschergruppe „*Integrierte Optik in Lithiumniobat: Neue Bauelement, Schaltkreise und Anwendungen*“ und natürlich bei der DFG für die finanzielle Unterstützung dieser Arbeit.

Den Mitarbeitern der mechanischen Werkstatt gebührt mein Dank für die schnelle und professionelle Ausführung der zahlreichen Aufträge. Hilfreich waren hier Tipps für die konkrete Umsetzung mancher Komponenten.

Zu guter Letzt möchte ich meiner gesamten Familie für ihre unermüdliche Unterstützung und die Begleitung während dieser entscheidenden Lebensphase danken. Sie hat mich in allen Umbrüchen und Veränderungen gestärkt und mir vieles möglich gemacht, was ohne sie wohl kaum möglich gewesen wäre.