Udo Dörfler

Der lichtinduzierte Ladungstransport und der Relaxor-Phasenübergang in Strontium-Barium-Niobat ($Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$) dotiert mit Ce, Cr, Rh, Tm oder Co

Cuvillier Verlag Göttingen

Der lichtinduzierte Ladungstransport und der Relaxor-Phasenübergang in Strontium-Barium-Niobat ($Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$) dotiert mit Ce, Cr, Rh, Tm oder Co

Inaugural-Dissertation
zur
Erlangung des Doktorgrades
der Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät
der Universität zu Köln

vorgelegt von
Udo Dörfler
aus Brühl

Köln 2002

Die Deutsche Bibliothek - CIP-Einheitsaufnahme

Dörfler, Udo:
Der lichtinduzierte Ladungstransport und der Relaxor-Phasenübergang in Strontium-Barium-Niobat ($Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$) dotiert mit Ce, Cr, Rh, Tm oder Co / vorgelegt von Udo Dörfler. -
1. Aufl. - Göttingen : Cuvillier, 2002
Zugl.: Köln, Univ., Diss., 2002
ISBN 3-89873-501-X

Berichterstatter: Priv.-Doz. Dr. Th. Woike
Prof. Dr. W. Rammensee

Tag der mündlichen Prüfung: 09. Juli 2002

© CUVILLIER VERLAG, Göttingen 2002
Nonnenstieg 8, 37075 Göttingen
Telefon: 0551-54724-0
Telefax: 0551-54724-21
www.cuvillier.de

Alle Rechte vorbehalten. Ohne ausdrückliche Genehmigung des Verlages ist es nicht gestattet, das Buch oder Teile daraus auf fotomechanischem Weg (Fotokopie, Mikrokopie) zu vervielfältigen.
1. Auflage, 2002
Gedruckt auf säurefreiem Papier

ISBN 3-89873-501-X

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung **1**

2 Strontium-Barium-Niobat **7**
2.1 Struktur, Züchtung und Einbau von Dotierungselementen 7
2.2 Verwendete Proben 9

3 Theoretische Grundlagen **13**
3.1 Schreiben holographischer Gitter 13
3.1.1 Zweistrahlkopplung, holographischer Verstärkungsfaktor Γ 16
3.2 Ladungstransportmodelle und Raumladungsfeld 19
3.2.1 Die Stromdichte 19
3.2.2 Adiabatische Näherung 21
3.2.3 Ein-Zentren-Modell 21
3.2.4 Zwei-Zentren-Modell 27
3.2.5 Drei-Valenzen-Modell 29
3.3 Der lineare elektrooptische Koeffizient 31
3.4 Auslesen holographischer Gitter, Beugungswirkungsgrad η 32
3.5 Photoleitfähigkeit 34
3.6 Abhängigkeit von Γ von der Bestrahlung Q 36
3.7 Abhängigkeit von Γ von der Wellenlänge λ 36
3.8 Abhängigkeit von Γ vom Bragg-Winkel θ 37
3.9 Abhängigkeit von Γ von der Temperatur T 43
3.10 Abhängigkeit von Γ und η von einem externen elektrischen Feld E_0 43

4 Experimenteller Aufbau **47**
4.1 Vorbereitung der Proben und Einstellung der Optik 50
4.1.1 Polung 50
4.1.2 Einbau in den Kristallhalter 51
4.1.3 Einstellung der Polarisation und der Lichtintensität 51
4.2 Schreiben und Löschen von Hologrammen 51
4.3 Messungen von Γ in Abhängigkeit des Bragg-Winkels 53
4.4 Messungen von Γ in Abhängigkeit von der Temperatur 54

4.5 Messungen von Γ und η in Abhängigkeit von einem externen elektrischen Feld 54

5 Experimentelle Ergebnisse 57
5.1 Einbau von Chrom in den Kristall 57
5.2 Materialparameter 60
5.2.1 Dichte 60
5.2.2 Piezoelektrische Koeffizienten 61
5.2.3 Dielektrizitätskonstanten 63
5.2.4 Brechungsindizes 63
5.2.5 Optische Absorption 64
5.3 Photoleitfähigkeit 65
5.4 Abhängigkeit von Γ von der Bestrahlung Q 68
5.5 Abhängigkeit von Γ von der Wellenlänge λ 76
5.5.1 Wellenlängenabhängigkeit der Gitterdynamik 76
5.5.2 Wellenlängenabhängigkeit des Sättigungswertes von Γ . . . 78
5.6 Abhängigkeit von Γ vom Bragg-Winkel θ 80
5.7 Abhängigkeit von Γ von der Temperatur T 87
5.8 Abhängigkeit von Γ und η von einem externen elektrischen Feld E_0 93
5.8.1 Rockingkurven 100

6 Diskussion 107
6.1 Photoleitfähigkeit 107
6.2 Abhängigkeit von Γ von der Bestrahlung Q 108
6.3 Abhängigkeit von Γ von der Wellenlänge λ 110
6.3.1 Wellenlängenabhängigkeit der Gitterdynamik 110
6.3.2 Wellenlängenabhängigkeit des Sättigungswertes von Γ . . . 111
6.4 Abhängigkeit von Γ vom Bragg-Winkel θ 112
6.5 Abhängigkeit von Γ von der Temperatur T 115
6.6 Abhängigkeit von Γ und η von einem externen elektrischen Feld E_0 120
6.6.1 Rockingkurven 122

A Abhängigkeit von Γ vom Bragg-Winkel θ 125
A.1 Der lineare elektrooptische Koeffizient 125
A.2 Symmetrischer Einfall in Transmissionsgeometrie 126
A.3 Symmetrischer Einfall in Reflexionsgeometrie 127
A.4 Asymmetrischer Einfall in Reflexionsgeometrie 128
A.5 Drehung des Kristalls in Reflexionsgeometrie 128
A.6 Reflexionsgeometrie, Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse 129

Literaturverzeichnis 131

Danksagung **143**

Eidesstattliche Erklärung **145**

Zusammenfassung **147**

Abstract **149**

Lebenslauf **151**

Kapitel 1

Einleitung

Die Anforderungen an einen Datenspeicher bestehen hauptsächlich in einer großen Geschwindigkeit bei der Datenverarbeitung und einer hohen Speicherkapazität. Die Zugriffszeiten konventioneller magnetischer Datenspeicher, wie z. B. die Festplatte eines Computers, sind durch eine serielle Verarbeitung der Daten begrenzt. Zudem wird die Speicherkapazität konventioneller Datenspeicher bei einer jährlich anwachsenden Datenmenge [1] in absehbarer Zeit nicht mehr wesentlich zu steigern sein [2]. Dies führte zu der Entwicklung neuer Speichermedien und -methoden in der Datenverarbeitung, basierend auf optischen Grundlagen [3, 4, 5, 6, 7, 8, 9, 10]. Der große Vorteil insbesondere von holographischen gegenüber konventionellen Datenspeichern besteht in einer schnellen, da parallelen Verarbeitung von Informationen.
In den letzten etwa zehn Jahren zeichnen sich bzgl. der Entwicklung neuer optischer Speichermedien zwei unterschiedliche Wege ab: Einerseits werden organische Materialien wie Polymere favorisiert, vergleichbar mit den heutzutage im Handel erhältlichen Compact Discs (CDs). Diese eignen sich gut für eine Massenproduktion, nicht zuletzt wegen der kostengünstigen Produktion. Andererseits können in photorefraktiven Kristallen wie $LiNbO_3$ im ganzen Volumen Informationen holographisch gespeichert werden. Dies hat enorme Vorteile. Man kann abschätzen, dass in einem Kristall mit einer Kantenlänge von nur 60 mm etwa 1 TByte Daten gespeichert werden können, was der Speicherkapazität von $\approx$ 1600 CDs entspricht. Eine solche auf einem Volumeneffekt basierende Speicherung wirkt also einer Miniaturisierung keinesfalls entgegen. Ein weiterer Vorteil von Kristallen gegenüber Polymeren besteht in ihrer großen Resistenz gegenüber Umwelteinflüssen wie elektromagnetischen Feldern oder Temperatureinwirkung. Ist die Information erst einmal thermisch fixiert, so lassen sich Lebensdauern von bis zu 100 Jahren garantieren. Aufgrund der derzeit noch kostspieligen Herstellung insbesondere der Hardware-Komponenten, die zum Schreiben, Fixieren, Lesen, Kopieren und Löschen von Informationen in dem kristallinen Material nötig sind, eignet sich ein solcher holographischer Massenspeicher nicht für eine Massenproduktion.

Historisch gesehen eröffnete die Entdeckung der Holographie durch D. Gabor im Jahre 1948 [11] erstmals die Möglichkeit der dreidimensionalen Aufzeichnung von Informationen. Im Gegensatz zur Fotografie wird bei der Holographie neben der Amplitude auch die Phase einer Objektwelle nach Interferenz mit einer Referenzwelle in einem Speichermedium aufgezeichnet. Die bis heute anhaltende Entwicklung der holographischen Informationsspeicherung begann allerdings erst in den sechziger Jahren des 20. Jahrhunderts, was der elektronischen Datenverarbeitung, als deren Ausgangspunkt die Entdeckung des Transistoreffekts ebenfalls im Jahre 1948 [12] angesehen werden kann, einen Vorsprung verschaffte. Der Aufschwung der holographischen Informationsspeicherung wurde im Wesentlichen durch zwei Faktoren begünstigt: Einerseits durch die Entdeckung des Lasers als kohärente Lichtquelle, andererseits durch die Entdeckung des photorefraktiven Effekts in Lithiumniobat ($LiNbO_3$) im Jahre 1966 durch Ashkin [13]. Der photorefraktive Effekt wird dort als optisch induzierte Inhomogenität des Brechungsindex beschrieben und hinsichtlich der nichtlinearen optischen Eigenschaften des Materials zunächst als störend betrachtet. Erst Chen erkannte die Bedeutung des Effektes für die Anwendung als holographische Speichermethode [14]. Um gezielt photorefraktive Kristalle insbesondere für die Anwendung in der Informationstechnologie herstellen zu können, beschäftigten sich zahlreiche folgende Arbeiten mit dem lichtinduzierten Ladungstransport, auf dem der photorefraktive Effekt beruht. Dabei wird das Interferenzmuster, das durch die Überlagerung zweier zueinander kohärenter Schreibstrahlen entsteht, durch den elektrooptischen Effekt in eine Modulation des Brechungsindex überführt, die als elementares Volumenphasenhologramm bezeichnet wird.
Elementare Volumenphasenhologramme können in alle photorefraktiven elektrooptischen Materialien eingeschrieben werden, wie z. B. die bekannten oxidischen Materialien Lithiumniobat ($LiNbO_3$), Lithiumtantalat ($LiTaO_3$), Bariumtitanat ($BaTiO_3$) und Strontium-Barium-Niobat ($Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$, SBN) sowie Kristalle des Sillenit-Typs wie Bismuthsilikat ($Bi_{12}SiO_{20}$, BSO), Bismuthtitanat ($Bi_{12}TiO_{20}$, BTO) und Bismuthgermanat ($Bi_{12}GeO_{20}$, BGO). Die Anwendbarkeit eines Materials als optischer Speicher wird dabei durch die Möglichkeit eines definierten Schreibens, Lesens und Löschens von eingeschriebenen Informationen bestimmt. Zudem müssen die Informationen fixiert werden können, um eine Zerstörung beim Auslesen zu verhindern. Insbesondere SBN hat sich im Laufe der letzten zwanzig Jahre als Material sowohl für die Grundlagenforschung als auch für zahlreiche Anwendungen wie Volumenholographie [15], Zwei- oder Vier-Wellenmischung [16], Phasenkonjugation [17] und Untersuchungen von relaxorartigen Phasenübergängen [18] etabliert. Die Züchtung von SBN-Kristallen, die Optimierung der Züchtungsmethoden, -apparaturen und -bedingungen sowie kristallchemische, -physikalische und strukturelle Untersuchungen erfolgen schon seit den sechziger Jahren des 20. Jahrhunderts [19, 20, 21, 22, 23, 24, 25, 26, 27, 28, 29, 30]. Als Ausgangspunkt für das bis heute ständig gestiegene Interesse an dem Material sowohl bzgl. der Grundlagenforschung als auch bzgl. einer Anwendung

als holographischer Speicher kann die Arbeit von Megumi et al. angesehen werden [15], die eine signifikante Erhöhung der photorefraktiven Empfindlichkeit von SBN durch Dotierung mit Cer feststellten. Dies initiierte zahlreiche Studien der photorefraktiven Eigenschaften von Ce-dotiertem SBN [16]. Eine detaillierte Liste mit Daten und Referenzen hierzu findet man bei Buse et al. [31]. Gegenstand der meisten Untersuchungen waren dabei Kristalle mit schwachen Ce-Konzentrationen $< 0.22\,\mathrm{mol\%}$, optische Messungen erfolgten vor allem im blau-grünen Spektralbereich. R. Pankrath aus dem Kristallzüchtungslabor des Fachbereichs Physik der Universität Osnabrück ist es gelungen, Kristalle der kongruenten Zusammensetzung $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$ (SBN61) mit starken Ce-Dotierungen bis $2.07\,\mathrm{mol\%}$ Ce (Angabe bezogen auf den im Kristall vorliegenden Wert [32]) zu züchten. Diese stark dotierten SBN-Kristalle besitzen interessante neue Eigenschaften, die für Anwendungen von Bedeutung sind [33]. Die starke Dotierung der Kristalle mit Seltenen-Erd-Elementen, insbesondere mit Cer, erhöht signifikant die holographischen Verstärkungseigenschaften, insbesondere im roten und nahen infraroten Spektralbereich. Weiterhin wird die Temperatur des ferroelektrischen Phasenübergangs von etwa $87\,^\circ\mathrm{C}$ für das undotierte Material auf etwa $22\,^\circ\mathrm{C}$ für eine Dotierung mit $2.07\,\mathrm{mol\%}$ Ce deutlich verringert [33]. SBN gehört zur Klasse der Relaxor-Systeme, vollzieht also keinen kritischen Phasenübergang. Vielmehr gibt es einen breiten Temperaturbereich, in dem der Übergang von der azentrischen Punktgruppe 4mm in die zentrosymmetrische Punktgruppe $\frac{4}{\mathrm{m}}$mm erfolgt. Im Bereich des Phasenübergangs tritt also neben dem quadratischen elektrooptischen Effekt, den es sowohl in azentrischen als auch in zentrosymmetrischen Kristallen gibt, immer noch der lineare elektrooptische Effekt auf, den es nur in azentrischen Kristallen gibt. Als Modell des ferroelektrischen Phasenübergangs in SBN wurde das 3-dimensionale Random-Field Ising-Modell vorgeschlagen und bestätigt [34, 35, 36]. Die Ce-Ionen besetzen Sr-Plätze in der Kristallstruktur [32] und werden off-center eingebaut [37]. Der Einbaukoeffizient von Cer in den Kristall beträgt bis zu einer Dotierung von etwa $0.22\,\mathrm{mol\%}$ 1, für stärkere Dotierungen ist er kleiner [32]. Die Dotierung mit Cer erhöht den optischen Absorptionskoeffizienten insbesondere für $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$ [38]. Damit ist im Fall der starken Dotierungen eine wesentliche Vorraussetzung für das Schreiben von Hologrammen im roten und nahen infraroten Spektralbereich erfüllt. Dies ermöglicht die Verwendung von Diodenlasern, die aufgrund ihrer kompakten Bauform für die Miniaturisierung optischer Aufbauten insbesondere im Hinblick auf Anwendungen geeignet sind.
Die Sensibilisierung des Materials für den roten und nahen infraroten Spektralbereich wird auch durch die Dotierung mit Chrom aufgrund der Cr-Absorption bei $\lambda \approx 650\,\mathrm{nm}$ erreicht. Die Züchtung von Cr-dotierten SBN-Kristallen und optische Messungen sind seit etwa 1990 in der Literatur dokumentiert, vor allem von Tomita et al. [39], Sayano et al. [40] und Vazquez et al. [41]. Es stellt sich heraus, dass für Cr-dotierte Kristalle die photorefraktive Response-Zeit bis zu einer Größenordnung kleiner als für das Ce-dotierte Material ist, wobei der Verstärkungsfaktor etwa halbiert wird [40]. Die Untersuchungen beschränkten sich auf einzelne Kri-

stalle mit Dotierungen zwischen 0.015 und 1.6 Gew.% Cr (0.038 und 4.09 mol% Cr_2O_3). Bzgl. der Werte in Klammern ist Folgendes festzustellen: Generell erfolgt die Angabe von Dotierungskonzentrationen in der Literatur in [Gew.%]. Dabei ist nicht ersichtlich, ob sich die Angabe auf das Reinelement oder das Oxid bezieht, das beim Züchten in die Schmelze gegeben wurde. Wegen der besseren Vergleichsmöglichkeit mit anderen Dotierungselementen und -konzentrationen wird in dieser Arbeit die Angabe in [mol%] bevorzugt. Für eine Umrechnung der Literaturwerte wird angenommen, dass diese sich auf das Oxid beziehen. Im Allgemeinen handelt es sich nicht um die im Kristall vorliegenden Dotierungskonzentrationen. Im Fall von SBN61:Cr ist es R. Pankrath genau wie für SBN61:Ce gelungen, eine ganze Serie von Kristallen mit unterschiedlich starken Dotierungen von 0.012 mol% bis 4.02 mol% Cr im Kristall zu züchten. Dies gestattet erstmalig systematische Untersuchungen der optischen Eigenschaften in Abhängigkeit von der Dotierungskonzentration, insbesondere die Bestimmung photorefraktiver Parameter wie die linearen elektrooptischen Koeffizienten r_{ijk} und die effektive Anzahldichte der photorefraktiven Zentren N_{eff}.
In der vorliegenden Arbeit werden daher die Ergebnisse von Messungen der Zweistrahlkopplung und des Beugungswirkungsgrades für verschieden stark mit Elementen der seltenen Erden bzw. Übergangsmetallelementen dotierte SBN-Kristalle in Abhängigkeit von der Bestrahlung Q, der Wellenlänge λ, dem Bragg-Winkel θ, der Temperatur T und einem externen elektrischen Feld E_0 präsentiert. Als Grundlage für die holographischen Messungen erfolgt zunächst die Bestimmung und Zusammenstellung der Materialparameter Dichte, piezoelektrischer Koeffizient, Dielektrizitätskonstante, Brechungsindex und optische Absorption.
Die Abhängigkeit des holographischen Verstärkungsfaktors Γ und der beim Auslesen des Hologramms abgebeugten Intensität I_d von der Bestrahlung Q, dem Produkt aus eingestrahlter Intensität und der Zeit, gibt Aufschluss über die Schreib- und Löschgeschwindigkeiten der Hologramme. Aus der Anpassung mit einer Exponentialfunktion, mit der Summe aus zwei Exponentialfunktionen und einer gestreckten Exponentialfunktion (KWW-Funktion) an die Verläufe $\Gamma(Q)$ bzw. $I_d(Q)$ erhält man Hinweise auf das zugrunde liegende Ladungstransportmodell (Ein-Zentren-, Zwei-Zentren-, Drei-Valenzen-Modell). Die Ergebnisse werden mit Messungen der Photoleitfähigkeit verglichen. Hier ist eine sublineare Abhängigkeit der Photoleitfähigkeit von der Intensität ein Hinweis auf das Vorliegen eines Mehr-Zentren- bzw. Mehr-Valenzen-Modells. Theoretische Ansätze für das sublineare Verhalten der Photoleitfähigkeit in $BaTiO_3$ findet man bei Mahgerefteh et al. [42]. Überträgt man das Modell von Mahgerefteh et al. auf SBN61, so kann damit das beobachtete Verhalten der Leitfähigkeit ebenfalls erklärt werden. Die Eigenschaften des Ladungstransportes in SBN61:Ce für Dotierungskonzentrationen zwischen 0.025 und 1.6 Gew.% CeO_2 in der Schmelze (0.056 und 2.07 mol% Ce im Kristall) werden ausführlich von Buse et al. vorgestellt [38]. Eine Zusammenstellung der Ladungstransportparameter für SBN61:Ce findet man in [31]. Messungen der Photoleitfähigkeit für Cr-dotiertes SBN werden in dieser Arbeit

vorgestellt und die Ergebnisse mit denjenigen aus holographischen Messungen verglichen. Generell ist zu bemerken, dass im Fall der holographischen Messungen für SBN61:Ce eine starke holographische Streuung auftritt, die in SBN61:Cr vernachlässigbar klein ist.
Für ein genaues Verständnis der optischen Eigenschaften ist die Kenntnis der linearen elektrooptischen Koeffizienten r_{ijk} wichtig. Die Koeffizienten r_{113} und r_{333} wurden für undotierte Kristalle für $\lambda = 514.5\,\mathrm{nm}$ [43] bzw. $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$ [44] und bei Raumtemperatur interferometrisch bestimmt. Eine holographische Methode findet man u.a. in [16, 45]. Man erhält dort r_{113} (Lichtpol. || a) und einen effektiven elektrooptischen Koeffizienten r_{eff} (Lichtpol. || c) sowie die Anzahldichte der photorefraktiven Zentren N_{eff}. Dort werden einzelne Kristalle mit Dotierungen von 0.1 bzw. 0.011 Gew.% CeO_2 in der Schmelze (0.22 bzw. 0.0245 mol% Ce im Kristall) vermessen. Die Methode basiert auf winkelabhängigen Messungen des holographischen Verstärkungsfaktors und wurde in dieser Arbeit übernommen, um r_{113} und r_{eff} für die oben bereits genannte Serie stark mit Cer dotierter Kristalle ($c_{Ce} > 0.22\,\mathrm{mol\%}$) in Abhängigkeit von der Dotierungskonzentration zu bestimmen. Das genannte Verfahren wurde im Rahmen dieser Arbeit zu einer Prozedur erweitert, die bei Kenntnis des Ladungstransports die holographische Bestimmung aller nicht verschwindenden linearen elektrooptischen Koeffizienten nach Betrag und Vorzeichen sowie die Bestimmung von N_{eff} gestattet. Hierfür wurden zusätzlich Messungen in Reflexionsgeometrie durchgeführt. Für stark mit Cer dotierte SBN-Kristalle kann man aufgrund der oben erwähnten Absenkung der Phasenübergangstemperatur, die mit einem starken Anwachsen der Dielektrizitätskonstante bei Raumtemperatur verbunden ist [33], ein signifikantes Anwachsen der r_{ijk} bei Raumtemperatur erwarten. Lee et al. berichten über ein solches Verhalten in dem System $Pb_xBa_{1-x}Nb_2O_6$ [46].
Der relaxorartige Phasenübergang in SBN wurde anhand von temperaturabhängigen Messungen von Γ untersucht und mit pyroelektrischen Messungen verglichen. Die Untersuchung des Phasenübergangs ist deshalb möglich, weil Γ über den Ausdruck für den linearen elektrooptischen Koeffizienten direkt proportional zur ferroelektrischen Polarisation, also dem Ordnungsparameter des Phasenübergangs, ist. Dabei wird diese Proportionalität von dem Verhalten der Dielektrizitätskonstanten in Abhängigkeit von der Temperatur überlagert. Insbesondere erfolgt eine Bestimmung der Phasenübergangstemperaturen T_m für verschieden starke Ce- und Cr-Dotierungen aus den Wendepunkten der Verläufe $\Gamma(T)$. Für beide Dotierungselemente resultiert bei Erhöhung der Dotierungskonzentration ein linearer Abfall von T_m bis auf Raumtemperatur. Das ist in SBN61:Ce für eine Dotierung von 2.07 mol% der Fall, in SBN61:Cr für eine Dotierung von 1.0 mol%. In den Verläufen $\Gamma(T)$ für SBN61:Ce findet man im Gegensatz zu SBN61:Cr neben den Wendepunkten noch ein Maximum, das auf die oben erwähnte Überlagerung der Temperaturverläufe der Dielektrizitätskonstanten und der ferroelektrischen Polarisation zu $\Gamma(T)$ zurückgeführt werden können.
Aus Messungen des Verstärkungsfaktors Γ beim Schreiben und des Beugungswir-

kungsgrades η beim Auslesen eines Hologramms in Abhängigkeit von einem externen elektrischen Feld resultiert, dass die ferroelektrische Polarisation für starke Dotierungen schon bei Raumtemperatur mit vergleichsweise kleinen Feldstärken geschaltet werden kann, da eine zunehmende Dotierung sowohl mit Cer als auch mit Chrom die Phasenübergangstemperatur bis auf Raumtemperatur absenkt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde zum ersten Mal ein hystereseartiges Verhalten von Γ beim Schreibprozess gemessen, wobei das externe Feld zunächst entgegengesetzt zur Richtung der ursprünglichen Polung angelegt wurde. Die durch das äussere Feld hervorgerufene Umkehrung der elektrischen Polarisation bewirkt dabei eine Umkehrung des Energietransfers zwischen den Schreibstrahlen. Hier eröffnet sich die Möglichkeit, nicht nur den Einfluss des externen Feldes auf das Hologramm, also den Beitrag des externen Feldes zum internen Raumladungsfeld, zu untersuchen, wie in [47] gezeigt wurde, sondern das eingeschriebene Hologramm zur Detektion der ferroelektrischen Polarisation zu verwenden. Dafür muss sichergestellt werden, dass das Hologramm selbst durch das externe Feld nicht beeinflusst wird. Dies ist der Fall, wenn das Hologramm ohne ein angelegtes Feld und unter symmetrischem Einfall der Schreibstrahlen geschrieben wird und anschließend bei angelegtem Feld der Beugungswirkungsgrad mit einem schwachen Taststrahl ausgelesen wird [48]. Ein simultanes Auslesen mit zwei Taststrahlen, die die Bragg-Bedingung erfüllen, erlaubt die Bestimmung von Werten des Verstärkungsfaktors beim Auslesen. Dies ist von Vorteil, da die Methode wegen der Proportionalität von Γ zur ferroelektrischen Polarisation direkt auf Änderungen der Orientierung der Polarisation empfindlich ist. Auf dieser Basis werden holographische Messungen vorgestellt, die das mit ferroelektrischen Methoden nachgewiesene dreidimensionale Random-Field Ising-Modell unterstützen. Der Vorteil der holographischen Messmethode besteht darin, dass die Detektion der ferroelektrischen Polarisation in Abhängigkeit von einem externen elektrischen Feld im Gegensatz zu einer elektrischen Messung im gesamten Kristallvolumen erfolgt, sich also nicht auf die Detektion von Oberflächenladungen beschränkt. Der Einfluss äusserer elektrischer Felder hat zudem eine Bedeutung für Anwendungen. Ein lokales Schalten der homogen orientierten ferroelektrischen Polarisation kann zu einer Kompensation des periodisch modulierten Raumladungsfeldes durch eine Modulation der Polarisation führen. Dadurch wird das Hologramm elektrisch fixiert [49, 50]. Der Effekt wird auch in neueren Arbeiten beschrieben [51, 52], hier zeigen sich jedoch große Unterschiede bzgl. der Höhe des Beugungswirkungsgrades der fixierten Hologramme. Der Mechanismus des Fixierprozesses ist bis heute nicht vollständig geklärt. Daher wird für die meisten Anwendungen das besser verstandene thermische Fixieren bevorzugt. Weiterhin kann das Material durch gezieltes periodisches Polen für die Frequenzverdopplung nutzbar gemacht und optimiert werden [53, 54]. Dabei wird die Intensitätsabschwächung der frequenzverdoppelten Welle, die sich nach dem Durchlaufen einer bestimmten Weglänge durch den Kristall aus einer Phasendifferenz zwischen Grundwelle und frequenzverdoppelter Welle ergibt, durch die Umkehrung der Polarisationsrichtung teilweise kompensiert.

Kapitel 2

Strontium-Barium-Niobat

2.1 Struktur, Züchtung und Einbau von Dotierungselementen

Strontium-Barium-Niobat ($Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$, SBN) kristallisiert in der offenen Wolfram-Bronze-Struktur. Das System wird in der Literatur zum ersten Mal von Francombe et al. beschrieben [19]. Die obere Hälfte der Abbildung 2.1 ist [55] entnommen und gemäß den Verhältnissen in SBN modifiziert worden. Sie zeigt schematisch einen Ausschnitt der Struktur in einer Projektion auf die (001) Ebene. Die Darstellung in [55] geht auf die Arbeiten von Jamieson und Abrahams [56] sowie von Stephenson [57] an der tetragonalen Bronze $Ba_6Ti_2Nb_8O_{30}$ zurück. Die Koordination ist in der unteren Hälfte der Abbildung 2.1 verdeutlicht [16, 58]. Durch die über Ecken verknüpften Niob-Sauerstoff-Oktaeder ergeben sich charakteristische Lücken, in die sowohl Sr^{2+} und Ba^{2+} als auch Dotierungselemente eingebaut werden können. In die 12-fach koordinierte Lücke vom Typ A baut sich ausschließlich Strontium ein. In die 15-fach koordinierte Lücke vom Typ B können Barium (Typ B1) oder Strontium (Typ B2) eingebaut werden. Betrachtet man die vollständige Summenformel für Kristalle der kongruenten Zusammensetzung mit x = 0.6, $Sr_3Ba_2Nb_{10}O_{30}$, dann stellt man fest, dass die sechs Lücken des Typs A oder B nur von fünf Kationen besetzt werden können. Daher bleibt die als B3 gekennzeichnete Lücke in jeder Elementarzelle stets leer, es handelt sich um eine *offene* Struktur. Die 9-fach koordinierte Lücke vom Typ C bleibt aufgrund der Größe der beteiligten Ionen ebenfalls leer.

Durch Messungen hoch auflösender Transmissions-Elektronenmikroskopie [59] sowie mittels Röntgenbeugungs- [60] und Neutronenstreuexperimenten [61] wurde eine inkommensurable Modulation der Kristallstruktur gefunden. Kürzlich durchgeführte Neutronenbeugungsexperimente [62] und eine Strukturanalyse [63] geben Hinweise auf den Typ dieser inkommensurablen Struktur.

Die Züchtung von $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$-Kristallen, die in der tetragonalen Wolfram-Bronze-Struktur kristallisieren, ist für $0.25 \leq x \leq 0.75$ möglich [20]. SBN vollzieht

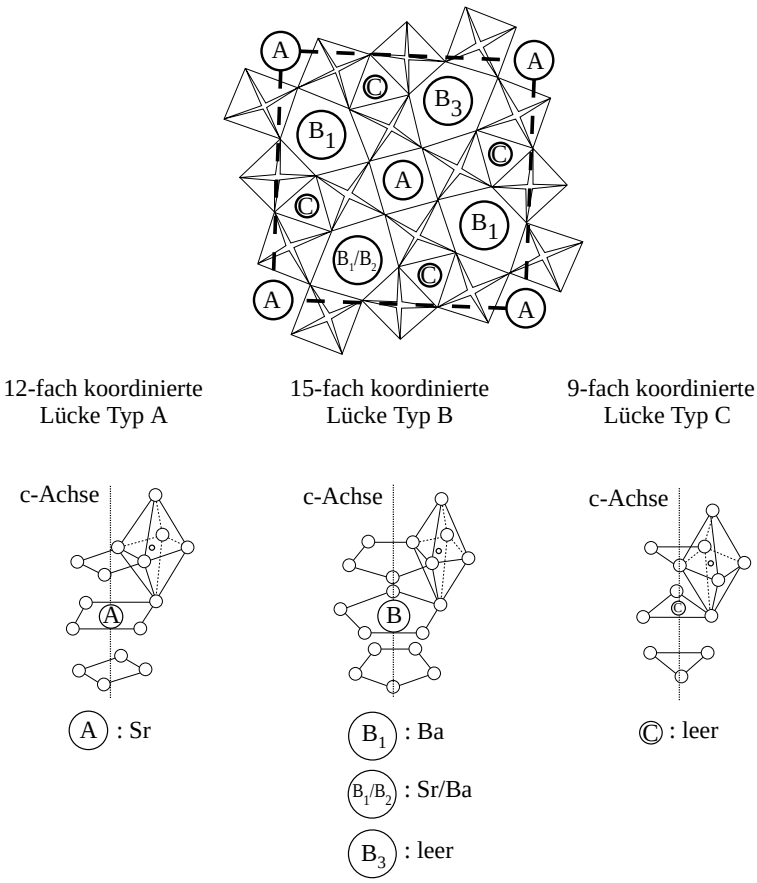


Abbildung 2.1: Kristallstruktur der tetragonalen Bronzen am Beispiel von SBN, Projektion auf (001). Dargestellt ist der Ausschnitt einer Elementarzelle. Der untere Bildabschnitt verdeutlicht die Koordination der drei charakteristischen Lücken.

einen Phasenübergang von der ferroelektrischen, azentrischen Tieftemperaturphase (tetragonal, Punktsymmetriegruppe 4mm) in die paraelektrische, zentrosymmetrische Hochtemperaturphase (tetragonal, Punktsymmetriegruppe $\frac{4}{\mathrm{m}}$mm). Die Phasenübergangstemperatur hängt vom Strontium-/Barium-Verhältnis ab [64]. Sie fällt von 250 °C für x = 0.25 auf 50 °C für x = 0.75 ab. Der Ordnungsparameter des Phasenübergangs ist die Spontanpolarisation P_S. Bereiche mit derselben Orientierung der Spontanpolarisation werden als ferroelektrische Domänen bezeichnet. Da die Spontanpolarisation in SBN nur zwei Orientierungen annehmen kann, kommen in der ferroelektrischen Tieftemperaturphase ausschließlich perfekte 180°-Domänen vor [65].
Die Serien der mit Cer und Chrom dotierten SBN-Kristalle der kongruenten Zusammensetzung wurden von R. Pankrath im Kristallzüchtungslabor der Universität Osnabrück hergestellt. Die Züchtung erfolgt mittels der Czochralski-Methode bei Temperaturen von etwa 1480 °C mit einer Widerstandsheizung und

langsamen Ziehraten von etwa 0.8 mm/h. Die entsprechenden Oxide, CeO_2 und Cr_2O_3, wurden jeweils in die Schmelze gegeben. Der mit Rhodium dotierte Kristall wurde ebenfalls von R. Pankrath gezüchtet. Die mit Thullium oder Cobalt dotierten Kristalle der kongruenten Zusammensetzung wurden von L. Ivleva (Russische Akademie der Wissenschaften, Moskau) hergestellt.
Für die systematische Untersuchung einer ganzen Serie von unterschiedlich stark dotierten Kristallen eines Dotierungselements (Cer oder Chrom) ist es wichtig, die Reinheit der Kristalle, die tatsächlich im Kristall vorliegende Dotierungskonzentration und den Gitterplatz des Dotierungselements zu kennen. Dies spielt eine entscheidende Rolle bei der Identifikation der photorefraktiven Zentren und des Ladungstransportmodells. Zu diesem Zweck wurden die Kristalle einer Neutronenaktivierungs- (INAA) und einer Röntgenfluoreszenzanalyse (XRF) unterzogen. Dabei wurden die Konzentrationen sowohl der Komponenten Strontium, Barium und Niob als auch der Dotierungselemente Cer und Chrom und von Spurenelementen, die mit den genannten Elementen oder während des Züchtungsprozesses in den Kristall eingebaut werden, bestimmt. Die Ergebnisse für SBN61:Ce sind in [32], diejenigen für SBN61:Cr in [66] veröffentlicht. Dabei wird Cer off-center auf einem Sr-Platz und Chrom auf einem Nb-Platz in den Kristall eingebaut. Die Messverfahren und -ergebnisse werden beispielhaft für SBN61:Cr in dem Kapitel 5.1 erläutert und vorgestellt.

2.2 Verwendete Proben

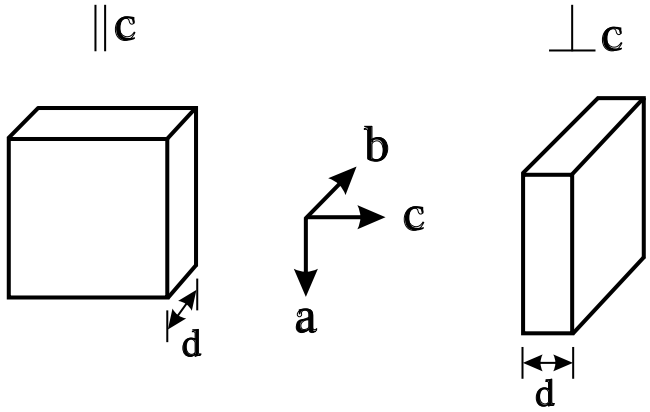


Abbildung 2.2: Orientierung der Präparate mit einem Schnitt parallel bzw. senkrecht zur kristallographischen c-Achse bzgl. des kristallographischen Achsensystems (a,b,c).

In den Tabellen 2.1 und 2.2 sind die in dieser Arbeit untersuchten Ce- und Cr-dotierten Kristalle angegeben. In der linken Spalte steht die Originalbezeichnung

Bezeichnung	Schnitt	Dotierung (Schmelze) [Gew.%] CeO_2	Dotierung (Kristall) [mol%] Ce	Dicke d [mm]
SBN-67.1	$\parallel$c	0	0	0.772
SBN-60	$\parallel$c	0.01	0.022	1.085
SBN-27.3.1	$\parallel$c	0.2	0.40	2.037
SBN-28.3.1	$\parallel$c	0.4	0.66	1.090
SBN-29.14.2	$\parallel$c			0.680
SBN-29.20.1	$\parallel$c			0.795
SBN-29.13	$\perp$c			1.072
SBN-30.5.1.1	$\parallel$c	0.8	1.13	1.005
SBN-30.5.1.1	$\parallel$c			0.490
SBN-32.1.1.1	$\parallel$c	1.6	2.07	0.700

Tabelle 2.1: Auflistung der in dieser Arbeit untersuchten Ce-dotierten Kristallpräparate.

des Züchters. Die hier gemachte Angabe zur Dotierungskonzentration bezieht sich auf den Wert in der Schmelze. Bei den Cr-dotierten Kristallen ist die Konzentrationsangabe bzgl. Niob gegeben, nicht bzgl. der gesamten Verbindung SBN. Die tatsächlich im Kristall vorliegenden Konzentrationen wurden für die Ce- und Cr-dotierten Proben mittels Neutronenaktivierungsanalyse (INAA) bzw. Röntgenfluoreszenzanalyse (RFA) bestimmt [32, 66] (Kap. 5.1). Diese Angaben stehen in der zweiten Spalte. In der dritten Spalte steht die Dicke. In dieser Arbeit wurden als Kristallpräparate ausschließlich Schnitte parallel bzw. senkrecht zur polaren c-Achse verwendet. Zur besseren Orientierung sind die geometrischen Verhältnisse der Präparate zu den Kristallachsen in der Abbildung 2.2 dargestellt. Im Fall eines Schnittes parallel zur c-Achse wird die Dicke entlang der b-Achse, im Fall eines Schnittes senkrecht zur c-Achse entlang der c-Achse der Probe gemessen.
Außerdem wurden noch einzelne mit Rhodium, Thullium oder Cobalt dotierte SBN-Kristalle untersucht:

- Ein mit 12000 ppm Rh/Nb dotierter Kristall der Dicke 0.985 mm (Bezeichnung SBN-96.3.1).
- Ein mit 2.0 Gew.% (0.69 mol%) Tm_2O_3 dotierter Kristall der Dicke 1.0 mm.
- Zwei mit 0.002 Gew.% (0.0047 mol%) Co_2O_3 dotierte Kristalle der Dicken 1.358 bzw. 6.0 mm.
- Ein mit 0.01 Gew.% (0.016 mol%) Co_3O_4 dotierter Kristall der Dicke 2.123 mm.

Bezeichnung	Schnitt	Dotierung (Schmelze) [ppm] Cr/Nb	Dotierung (Kristall) [mol%] Cr	Dicke d [mm]
SBN-43b.7.1	‖c	250	0.055	1.410
SBN-46.7.1	‖c	500	0.11	2.155
SBN-46.11.2.1	‖c			1.015
SBN-49.4.2	‖c	750	0.17	0.895
SBN-53.3.1	‖c	1000	0.22	0.680
SBN-55.2.1	‖c	1500	0.36	1.095
SBN-55.5.2	‖c			1.530
SBN-56.2.1	‖c	2000	0.51	1.180
SBN-58.2.3	‖c	3000	0.70	1.260

Tabelle 2.2: Auflistung der in dieser Arbeit untersuchten Cr-dotierten Kristallpräparate.

Bei den Präparaten handelte es sich ausschließlich um Schnitte parallel zur kristallographischen c-Achse. Die im Kristall vorliegenden Dotierungskonzentrationen sind nicht bekannt.

Kapitel 3

Theoretische Grundlagen

3.1 Schreiben holographischer Gitter

In der vorliegenden Arbeit werden die physikalischen Eigenschaften von Strontium-Barium-Niobat Einkristallen mittels der holographischen Zweistrahlkopplung untersucht. Dabei wird die durch die Interferenz der beiden kohärenten Schreibwellen erzeugte Intensitätsmodulation in eine Modulation des Brechungsindex umgesetzt (Abb. 3.1). Die geometrischen Verhältnisse sind in der Abbildung 3.2 dargestellt. Die zu Grunde liegende Theorie wird im Folgenden vorgestellt.
Die beiden zueinander kohärenten Schreibwellen, die durch ihre elektrischen Feldvektoren gegeben sind, werden als ebene Wellen angesetzt:

$$\vec{\mathcal{E}}_{\mathrm{R}}(\vec{\mathrm{r}},\mathrm{t}) = \mathrm{E}_{\mathrm{R}} \cdot \vec{\mathrm{p}}_{\mathrm{R}} \cdot \exp[\mathrm{i}(\omega\mathrm{t} - \vec{\mathrm{k}}_{\mathrm{R}}\vec{\mathrm{r}})] \tag{3.1}$$

$$\vec{\mathcal{E}}_{\mathrm{S}}(\vec{\mathrm{r}},\mathrm{t}) = \mathrm{E}_{\mathrm{S}} \cdot \vec{\mathrm{p}}_{\mathrm{S}} \cdot \exp[\mathrm{i}(\omega\mathrm{t} - \vec{\mathrm{k}}_{\mathrm{S}}\vec{\mathrm{r}})] \tag{3.2}$$

mit den komplexen Amplituden $\mathrm{E_R}$ und $\mathrm{E_S}$, den reellen Einheitsvektoren $\vec{\mathrm{p}}_{\mathrm{R}}$ und $\vec{\mathrm{p}}_{\mathrm{S}}$, die die Polarisationsebenen der beiden Wellen festlegen, der Frequenz ω und den Wellenvektoren $\vec{\mathrm{k}}_{\mathrm{R}}$ und $\vec{\mathrm{k}}_{\mathrm{S}}$. Die aus der Interferenz der beiden Wellen resultierende Intensitätsverteilung erhält man durch Bildung des Betragsquadrates:

$$\mathcal{I}(\vec{\mathrm{r}}) = |\vec{\mathcal{E}}_{\mathrm{R}}(\vec{\mathrm{r}},\mathrm{t}) + \vec{\mathcal{E}}_{\mathrm{S}}(\vec{\mathrm{r}},\mathrm{t})|^2 = \mathrm{I} \cdot [1 + \mathrm{m} \cdot \cos(\vec{\mathrm{K}}\vec{\mathrm{r}})] \tag{3.3}$$

mit der gesamten einfallenden Intensität $\mathrm{I} = \mathrm{I_R} + \mathrm{I_S}$ und den reellen Amplituden $\mathrm{I_R} = |\mathrm{E_R}|^2$ und $\mathrm{I_S} = |\mathrm{E_S}|^2$. Der Modulationsgrad m ist die Amplitude des Interferenzmusters und ein Maß für dessen Kontrast:

$$\mathrm{m} = \frac{2 \cdot \sqrt{\mathrm{I_R} \cdot \mathrm{I_S}}}{\mathrm{I_R} + \mathrm{I_S}} \cdot \cos(\Upsilon) = \frac{2 \cdot \sqrt{\beta_0}}{\beta_0 + 1} \cdot \cos(\Upsilon). \tag{3.4}$$

Υ ist der Winkel, den die Polarisationsebenen der beiden Wellen miteinander einschließen, $\beta_0 = \mathrm{I_R}/\mathrm{I_S}$ ist das Intensitätsverhältnis der Schreibwellen. Man erhält den maximalen Kontrast für $\beta_0 = 1$ und $\Upsilon = 0\,^\circ$, also parallel polarisierte Wellen.

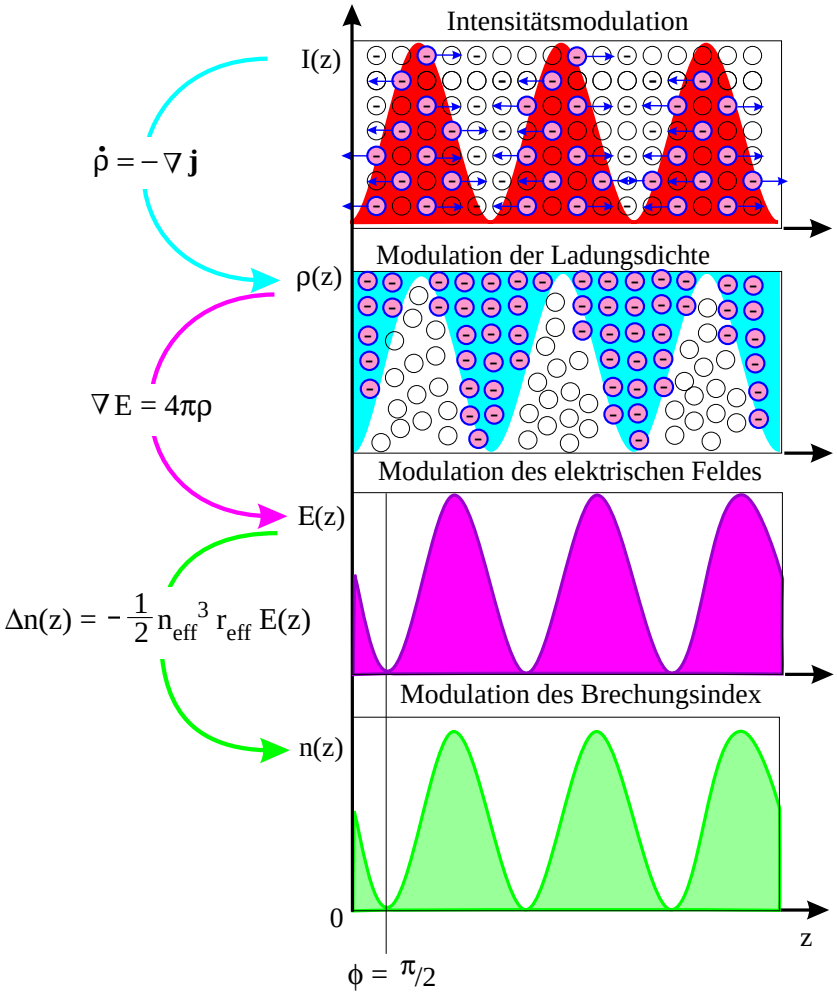


Abbildung 3.1: Photorefraktiver Effekt. Schematische Darstellung des lichtinduzierten Ladungstransports.

In dieser Arbeit werden ausschließlich parallel polarisierte Schreibwellen betrachtet. Für den Gittervektor $\vec{K}$ des Hologramms gilt:

$$\vec{K} = \vec{k}_S - \vec{k}_R. \tag{3.5}$$

Die Raumfrequenz $|\vec{K}| = K$ und die Gitterperiode Λ hängen folgendermaßen zusammen:

$$\Lambda = \frac{2\pi}{K} = \frac{\lambda}{2 \cdot \sin(\theta)} = \frac{\lambda}{2 \cdot n_{eff} \cdot \sin(\theta_i)}. \tag{3.6}$$

Dabei ist λ die Wellenlänge, θ der Einfallswinkel der Schreibstrahlen (Bragg-Winkel) und n_{eff} ein effektiver Brechungsindex. Der Index i bezeichnet die Situation *im* Kristall.
Die Intensitätsmodulation erzeugt beleuchtete und unbeleuchtete Bereiche im Kristall. In den beleuchteten Bereichen des Kristalls können Ladungsträger aus

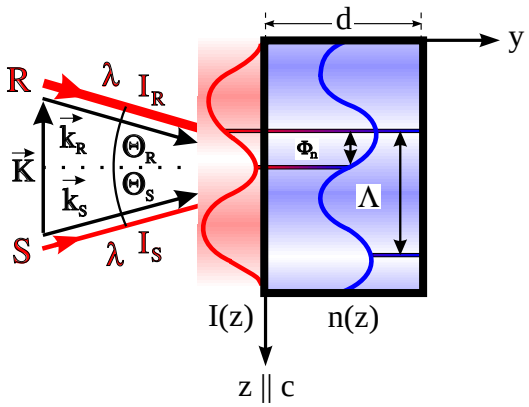


Abbildung 3.2: Photorefraktiver Effekt. Intensitätsmodulation durch Interferenz der Schreibwellen und resultierende Modulation des Brechungsindex.

einem photorefraktiven Zentrum heraus angeregt werden. Im Fall von SBN61:Ce sind die dominierenden Ladungsträger Elektronen [16], ein photorefraktives Zentrum ist $Ce^{3+/4+}$ [67]. Im Leitungsband des Festkörpers sind die Elektronen beweglich und können durch die Ladungstransportmechanismen Drift, Diffusion und volumenphotovoltaischer Effekt wandern, bevor sie in den unbeleuchteten Bereichen eingefangen werden. Es entsteht eine Modulation der Stromdichte, die zu einer Ladungsumverteilung führt. Die resultierende Modulation der Ladungsdichte verursacht gemäß der Poisson-Beziehung eine Modulation des elektrischen Feldes, des internen Raumladungsfeldes E_{sc} (mittlerer Abschnitt von Abbildung 3.1). Das Raumladungsfeld koppelt in photorefraktiven elektrooptischen Materialien an den effektiven linearen elektrooptischen Koeffizienten r_{eff} des Materials und moduliert den Brechungsindex (unterer Abschnitt von Abbildung 3.1) gemäß

$$n(\vec{r}) = n_0 + \Delta n \cdot \cos(\vec{K} \cdot \vec{r} - \Phi) \tag{3.7}$$

mit dem mittleren Brechungsindex n_0 und der Amplitude

$$\Delta n = -\frac{1}{2} \cdot n_{eff}^3 \cdot r_{eff} \cdot E_{sc}. \tag{3.8}$$

Im Allgemeinen ist die Modulation des Brechungsindex gegenüber der Intensitätsmodulation um Φ phasenverschoben, für reine Diffusionseffekte genau um $\pi/2$. Dies ist in SBN61:Ce der Fall [68]. Für dicke Hologramme liegt die Modulation des Brechungsindex im gesamten Kristallvolumen vor und wird als elementares Volumenphasenhologramm bezeichnet. Ein Auswahlkriterium für das Vorliegen eines dicken Hologramms findet man in [69, 70]:

$$Q = \frac{2\pi \cdot \lambda \cdot d}{n_0 \cdot \Lambda^2} > 1 \quad \text{und} \quad \rho = \frac{\lambda^2}{\Lambda^2 \cdot n_0 \cdot \Delta n} > 10 \tag{3.9}$$

Während des Schreibprozesses findet eine Zweistrahlkopplung statt, die im Folgenden erläutert wird.

3.1.1 Zweistrahlkopplung, holographischer Verstärkungsfaktor Γ

Die theoretische Beschreibung der Zweistrahlkopplung gelingt mit der Theorie der gekoppelten Wellen [71]. Die Situation ist in der Abbildung 3.3 dargestellt. Während das Hologramm durch die Interferenz von Referenz- und Signalwelle

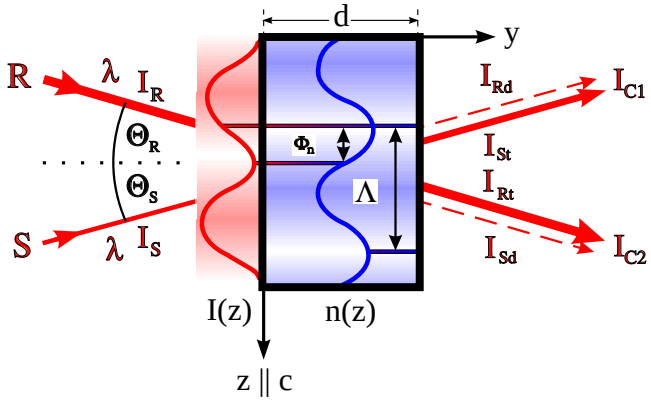


Abbildung 3.3: Zweistrahlkopplung in einer Transmissionsgeometrie. Die Größen I_{Rt} bzw. I_{St} sind die transmittierten Intensitäten des Referenz- bzw. Signalstrahls, I_{Rd} bzw. I_{Sd} die entsprechenden abgebeugten Intensitäten.

auf der Grundlage des elektrooptischen Effektes geschrieben wird, wie zuvor dargestellt, werden die beiden Schreibwellen an dem entstehenden holographischen Gitter abgebeugt. Dadurch überlagern sich die transmittierte Referenzwelle und die abgebeugte Signalwelle und entsprechend die transmittierte Signalwelle und die abgebeugte Referenzwelle. Aufgrund der Bragg-Bedingung verlaufen beide Wellen kollinear. Daher können jeweils die transmittierten und die abgebeugten Wellen miteinander interferieren. Es kommt zu einem Energieübertrag zwischen Referenz- und Signalwelle, der in der Verstärkung einer der beiden Wellen resultiert. Im Fall der in der Abbildung 3.3 dargestellten Orientierung der c-Achse und Elektronenleitung wird die Signalwelle verstärkt und die Referenzwelle entsprechend abgeschwächt. Wird die Intensität der Referenzwelle gegenüber der Intensität der Signalwelle sehr groß gewählt, d.h. ist der Modulationsgrad des Lichtinterferenzmusters sehr klein, dann erfolgt der Verstärkungsprozess ohne signifikanten Intensitätsverlust der Referenzwelle. Man spricht dann von einer Kleinsignalverstärkung. Die Referenzwelle wird dann auch Pumpwelle genannt. Hinter dem Kristall werden die transmittierten Intensitäten I_{C1} der Signalwelle bzw. I_{C2} der Referenzwelle gemessen, die aus der Interferenz resultieren.
Für die quantitative Beschreibung der Zweistrahlkopplung werden die Referenz- und die Signalwelle, die durch ihre elektrischen Feldvektoren $\vec{\mathcal{E}}_{R,S}(\vec{r}, t)$ gegeben sind, als ebene Wellen angesetzt (Gl. (3.1), (3.2)) und nur die Komponenten in y-Richtung $\mathcal{E}^{y}_{R,S}(y, t) =: \mathcal{E}_{R,S}$ betrachtet (Abb. 3.2, 3.3). Unter Berücksichtigung

der Gleichung (3.7) für die Modulation des Brechungsindex wird die foldende Wellengleichung für die Summe $\mathcal{E} = \mathcal{E}_R + \mathcal{E}_S$ gelöst:

$$\nabla^2\mathcal{E} + \frac{\omega^2}{c^2}n^2\mathcal{E} = 0. \tag{3.10}$$

Die Intensitäten der Wellen erhält man wie im Kapitel 4.1 beschrieben durch die Bildung des Betragsquadrates ihrer komplexen Amplituden. Bei der Zweistrahlkopplung können sowohl die Amplituden als auch die Phasen beider Wellen koppeln. Für die in der Abbildung 3.3 dargestellte Transmissionsgeometrie erhält man folgendes System von gekoppelten Differentialgleichungen, die die Amplituden- bzw. Phasenkopplung beschreiben:

$$\frac{d}{dy}\mathcal{I}_R = -\Gamma \cdot \frac{\mathcal{I}_R\mathcal{I}_S}{\mathcal{I}_R + \mathcal{I}_S} - \alpha\mathcal{I}_R \tag{3.11}$$

$$\frac{d}{dy}\mathcal{I}_S = \Gamma \cdot \frac{\mathcal{I}_R\mathcal{I}_S}{\mathcal{I}_R + \mathcal{I}_S} - \alpha\mathcal{I}_S \tag{3.12}$$

und

$$\frac{d}{dy}\Psi_R = \Gamma \cdot \frac{\mathcal{I}_S}{\mathcal{I}_R + \mathcal{I}_S} \tag{3.13}$$

$$\frac{d}{dy}\Psi_S = B \cdot \frac{\mathcal{I}_R}{\mathcal{I}_R + \mathcal{I}_S} \tag{3.14}$$

mit den Kopplungskonstanten

$$\Gamma = \frac{4\pi \cdot \Delta n}{\lambda \cdot \cos(\theta_i)} \cdot \sin(\Phi) \tag{3.15}$$

$$B = \frac{2\pi \cdot \Delta n}{\lambda \cdot \cos(\theta_i)} \cdot \cos(\Phi). \tag{3.16}$$

Die Ausdrücke für die Kopplungskonstanten resultieren aus der Gleichung für die Modulation des Brechungsindex (3.7) und den Komponenten der Wellenvektoren $\vec{k}_R$ und $\vec{k}_S$ in y-Richtung (Abb. 3.2), die in den Ansatz für die gekoppelten Wellengleichungen eingehen. Für die Situation *im* Medium gilt:

$$k^y_{R,i} = k^y_{S,i} = k^y_i \cdot \cos(\theta_i) = \frac{2\pi}{\lambda} \cdot n_0 \cdot \cos(\theta_i). \tag{3.17}$$

Die Lösungen für die Intensitäten $\mathcal{I}_R(y)$ und $\mathcal{I}_S(y)$ lauten:

$$\mathcal{I}_R(y) = I_R \cdot \frac{1 + \beta_0^{-1}}{1 + \beta_0^{-1}\exp(\Gamma y)} \cdot \exp(-\alpha y) \tag{3.18}$$

$$\mathcal{I}_S(y) = I_S \cdot \frac{1 + \beta_0^{-1}}{1 + \beta_0^{-1}\exp(\Gamma y)} \cdot \exp((\Gamma - \alpha)y). \tag{3.19}$$

Es sei daran erinnert, dass $\beta_0 = I_R/I_S$ das Verhältnis der einfallenden Intensitäten ist. Man beachte, dass $I_{C1} = \mathcal{I}_S(d)$ bzw. $I_{C2} = \mathcal{I}_R(d)$. Die Kopplungskonstante Γ ist der holographische Verstärkungsfaktor und liefert ein quantitatives Maß für den holographischen Verstärkungsprozess. Gemäß Formel (3.19) liegt netto eine Verstärkung der Signalwelle vor, wenn $\Gamma > 0$ (für die in der Abbildung 3.3 gegebene Orientierung der c-Achse und Elektronenleitung ist das der Fall) und wenn Γ größer als der optische Absorptionskoeffizient α ist: $\Gamma > \alpha$. Dividiert man Gleichung (3.19) durch Gleichung (3.18) und setzt $y = d$ ein, dann erhält man einen Ausdruck, der die Berechnung von Γ aus den gemessenen Intensitäten gestattet:

$$\Gamma = \frac{1}{d} \cdot \ln\left(\frac{I_{C1}}{I_S} \cdot \frac{I_R}{I_{C2}}\right). \tag{3.20}$$

Bei der Normierung von I_{C1} und I_{C2} auf die transmittierten statt die einfallenden Intensitäten betrachtet man die Situation zu Beginn des Schreibprozesses. Dann gilt $I_R \cdot \exp(-\alpha d) = I_{Rt}$ und $I_S \cdot \exp(-\alpha d) = I_{St}$ wegen $I_{Rd} = 0 = I_{Sd}$ (Abb. 3.3). Auf diese Weise erhält man den folgenden, von der optischen Absorption explizit unabhängigen Ausdruck, der in dieser Arbeit ausschließlich verwendet wird:

$$\Gamma = \frac{1}{d} \cdot \ln\left(\frac{I_{C1}}{I_{St}} \cdot \frac{I_{Rt}}{I_{C2}}\right). \tag{3.21}$$

Da die Intensitäten $\mathcal{I}_R(y)$ und $\mathcal{I}_S(y)$ bekannt sind, kann man die Phasen Ψ_R und Ψ_S durch direkte Integration bestimmen. Die Lösungen lauten

$$\Psi_R(y) - \Psi_R(0) = -\frac{B}{\Gamma} \cdot \ln\left(\frac{\beta_0 + 1}{\beta_0 + \exp(\Gamma y)}\right), \tag{3.22}$$

$$\Psi_S(y) - \Psi_S(0) = \frac{B}{\Gamma} \cdot \ln\left(\frac{1 + \beta_0}{1 + \beta_0 \exp(-\Gamma y)}\right). \tag{3.23}$$

Man sieht insbesondere, dass die Phasenverschiebungen von der optischen Absorption unabhängig sind.
Im Fall einer Reflexionsgeometrie (Abb. 3.4) erhält man einen zu (3.11) und (3.12) bzw. (3.13) und (3.14) analogen Satz von Gleichungen mit dem Unterschied, dass die rechten Seiten der Gleichungen für die Signalwelle ein negatives Vorzeichen an Stelle eines positiven aufweisen. Die Definition der Kopplungskonstanten (Gl. (3.15) und (3.16)) bleibt unverändert. Eine Lösung in geschlossener Form erhält man hier nur für den verlustfreien Fall $\alpha = 0$ [71]. Diese Lösung entspricht formal der Lösung im Fall einer Transmissionsgeometrie (Gl. (3.18) und (3.19) mit $\alpha = 0$). Berücksichtigt man die optische Absorption im gesamten Kristallvolumen, dann können die Gleichungen für die Amplitudenkopplung nur numerisch gelöst werden. Für $\alpha \ll |\Gamma|$ erhält man in guter Näherung

$$\mathcal{I}_R^{\alpha}(y) = \mathcal{I}_R^{\alpha=0}(y) \cdot \exp(-\alpha y) \tag{3.24}$$

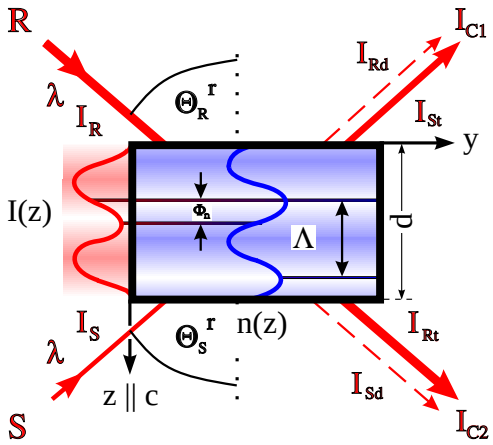


Abbildung 3.4: Zweistrahlkopplung in einer Reflexionsgeometrie. Die in der Skizze dargestellten Einfallswinkel hängen mit den Bragg-Winkeln über $\theta^{\mathrm{r}}_{\mathrm{R,S}} + \theta_{\mathrm{R,S}} = (\pi/2)$ zusammen.

$$\mathcal{I}^{\alpha}_{\mathrm{S}}(\mathrm{y}) = \mathcal{I}^{\alpha=0}_{\mathrm{S}}(\mathrm{y}) \cdot \exp(\alpha(\mathrm{y} - \mathrm{d})). \tag{3.25}$$

Die mit dem Index ($\alpha = 0$) gekennzeichneten Lösungen sind die Lösungen für den verlustfreien Fall. Für y = d entsprechen die Lösungen formal den Ausdrücken, die für die Transmissionsgeometrie abgeleitet wurden (Gl. (3.18) und (3.19)). Die vollständigen numerischen Lösungen findet man in der theoretischen Arbeit von Ja [72]. Eine theoretische Betrachtung, die im Wesentlichen auf der Arbeit von Ja basiert, sowie die Anwendung der Theorie auf Rh-dotiertes SBN61 findet man bei Ewbank et al. [73].
In dem folgenden Kapitel 3.2 werden das Ein-Zentren, Zwei-Zentren und Drei-Valenzen Modell für den lichtinduzierten Ladungstransport vorgestellt. Der Inhalt dieses Kapitels ist im Wesentlichen der Referenz [74] entnommen. In diesem Rahmen werden die Stromdichte und das Raumladungsfeld erläutert. Der lineare elektrooptische Koeffizient wird im Kapitel 3.3 behandelt.

3.2 Ladungstransportmodelle und Raumladungsfeld

3.2.1 Die Stromdichte

Der Ladungstransport der Elektronen im Leitungsband kann durch die Drift, die Diffusion und den volumenphotovoltaischen Effekt erfolgen. Dementsprechend ist die gesamte Stromdichte die Summe der einzelnen Beiträge:

$$\vec{j} = \vec{j}_{\mathrm{drift}} + \vec{j}_{\mathrm{diff}} + \vec{j}_{\mathrm{phv}}. \tag{3.26}$$

Der Drift-Strom resultiert aus der Coulomb-Wechselwirkung der Elektronen mit einem elektrischen Feld und wird durch das Ohmsche Gesetz beschrieben:

$$\vec{j}_{\mathrm{drift}} = \hat{\sigma}\vec{\mathrm{E}}, \tag{3.27}$$

$$\hat{\sigma} = \mathrm{e} \cdot \hat{\mu}_{\mathrm{e}} \mathrm{N}_{\mathrm{e}}. \tag{3.28}$$

Dabei ist $\hat{\sigma}$ der Leitfähigkeitstensor, $\vec{\mathrm{E}}$ das elektrisches Feld, $\hat{\mu}_{\mathrm{e}}$ der Mobilitätstensor und N_{e} die Dichte der Elektronen im Leitungsband. Im Allgemeinen ist die Beweglichkeit der Elektronen für eine Wanderung in unterschiedliche Richtungen im Kristall verschieden. Das elektrische Feld $\vec{\mathrm{E}}$ enthält im Wesentlichen drei Beiträge, das Raumladungsfeld $\vec{\mathrm{E}}_{\mathrm{sc}}$, ein extern angelegtes elektrisches Feld $\vec{\mathrm{E}}_0$ und das pyroelektrische Feld $\vec{\mathrm{E}}_{\mathrm{pyro}}$. Das Raumladungsfeld hat seinen Ursprung in den umverteilten Elektronen, wie eingangs beschrieben, und das Feld $\vec{\mathrm{E}}_0$ kann von außen eingestellt werden. Pyroelektrische Felder entstehen in ferroelektrischen Kristallen aufgrund einer Änderung der Spontanpolarisation infolge einer Aufheizung der Kristalle durch Lichtabsorption. Der Einfluss des pyroelektrischen Effekts macht sich in holographischen Experimenten jedoch nur bei sehr hohen Lichtintensitäten ($\mathrm{I} > 10^4\,\mathrm{Wcm}^{-2}$) bemerkbar [75] und wird deshalb hier ausgeschlossen.
Eine inhomogene Beleuchtung verursacht räumlich variierende Konzentrationen freier Ladungsträger, wodurch Diffusions-Ströme entstehen:

$$\vec{j}_{\mathrm{diff}} = \mathrm{e} \cdot \hat{\mathrm{D}}\,\vec{\nabla}\mathrm{N}_{\mathrm{e}}, \tag{3.29}$$

$$\hat{\mathrm{D}} = \frac{\mathrm{k_B T}}{\mathrm{e}} \cdot \hat{\mu}_{\mathrm{e}}. \tag{3.30}$$

Dabei ist $\hat{\mathrm{D}}$ der Diffusionstensor.
Volumenphotovoltaische Ströme sind typisch für nicht zentrosymmetrische Kristalle und werden folgendermaßen beschrieben [76, 77, 78, 79]:

$$(\vec{j}_{\mathrm{phv}})_{\mathrm{i}} = \frac{1}{2}(\beta_{\mathrm{ijk}} \mathrm{E}_{\mathrm{j}}^{*} \mathrm{E}_{\mathrm{k}} + \mathrm{k.k.}) \tag{3.31}$$

mit dem volumenphotovoltaischen Tensor β_{ijk} und den Komponenten E_{j}, E_{k} des Lichtwellenfeldes. Der Stern bedeutet komplexe Konjugation von E_{j}, der komplex konjugierte Ausdruck des ersten Summanden (k.k.) wird gebildet, um einen reellen Strom zu gewährleisten.
Ferner muss für alle Ladungstransportmodelle die Poisson- und die Kontinuitätsgleichung erfüllt sein:

$$\vec{\nabla}(\hat{\epsilon}\vec{\mathrm{E}}) = \frac{\rho}{\epsilon_0}, \tag{3.32}$$

$$\vec{\nabla}\vec{j} + \dot{\rho} = 0 \tag{3.33}$$

mit dem Dielektrizitätstensor $\hat{\epsilon}$ und der Ladungsdichte ρ.

3.2.2 Adiabatische Näherung

Eine empirische Abschätzung der Dichte $N_e = \sigma/(e \cdot \mu_e)$ der freien Elektronen im Leitungsband mit typischen Werten für die Leitfähigkeit σ und die Beweglichkeit μ_e ergibt, dass N_e für eine Dauerstrich-Beleuchtung sehr viel kleiner ist als die Konzentration der photorefraktiven Zentren und daher vernachlässigbar ist. Dies gilt nicht für die Beleuchtung mit Licht-Pulsen, die kürzer als Nanosekunden sind. Eine Ausnahme bilden hier die Kristalle des Sillenit-Typs (z.B. $Bi_{12}SiO_{20}$), die eine so große Photoleitfähigkeit besitzen, dass auch für Licht-Pulse im Bereich von Nanosekunden die Dichte N_e nicht vernachlässigbar ist.
Die Ladungsdichte kann im Fall von Elektronenleitung folgendermaßen geschrieben werden:

$$\rho = -e \cdot (N_e + N_{pr} - N_c) \tag{3.34}$$

wobei N_{pr} die Konzentration der in den photorefraktiven Zentren gefangenen Elektronen ist und N_c die Konzentration von unbeweglichen Kompensationsladungen, die die Ladungsneutralität gewährleisten. In der Kontinuitätsgleichung (3.33) tritt die Zeitableitung $\dot{\rho}$ auf. Dies erfordert einen Vergleich zwischen $\dot{N}_e$ und $\dot{N}_{pr}$, wobei $\dot{N}_c = 0$. Das Anschalten des Lichts ergibt zunächst ein schnelles Anwachsen von N_e, das für Kristalle des Typs der Wolfram-Bronzen (z.B. SBN) im Bereich von Nanosekunden liegt. Danach ändern sich N_e und N_{pr} auf derselben Zeitskala. Für eine konstante Lichtintensität resultieren alle weiteren Vergrößerungen oder Verkleinerungen von N_e ausschließlich von den sich ändernden Konzentrationen der photorefraktiven Zentren. Wegen $N_e \ll N_{pr}$ kann $\dot{N}_e$ in $\dot{\rho}$ ebenfalls vernachlässigt werden. Dies ist die sogenannte adiabatische Näherung.

3.2.3 Ein-Zentren-Modell

Das Ein-Zentren Modell ist bereits in den siebziger Jahren des 20. Jahrhunderts entwickelt worden und damit das am längsten und besten bekannte Ladungstransportmodell. Die Vorhersagen des Modells sind in sehr guter Übereinstimmung mit den Ergebnissen der Untersuchungen an Fe- und Cu-dotiertem Lithiumniobat bei Dauerstrich-Beleuchtung.
Die Abbildung 3.5 zeigt eine schematische Darstellung des Ein-Zentren Modells im Bändermodell des Festkörpers. Elektronen können durch die Bestrahlung mit Licht oder thermisch von C^- in das Leitungsband angeregt werden, dadurch entsteht C^0. Die thermische Anregung ist dabei nur für eine flache Störstelle relevant. Die freien Elektronen können nach Wanderung an anderer Stelle mit leeren Störstellen C^0 rekombinieren. Die Ratengleichung für diesen Prozess erhält man aus der Bilanz von Anregung aus C^- und Rekombination mit C^0:

$$\frac{dN^-}{dt} = -(\beta + q \cdot S \cdot I)N^- + r \cdot N^0 \cdot N_e, \tag{3.35}$$

$$N = N^- + N^0, \tag{3.36}$$

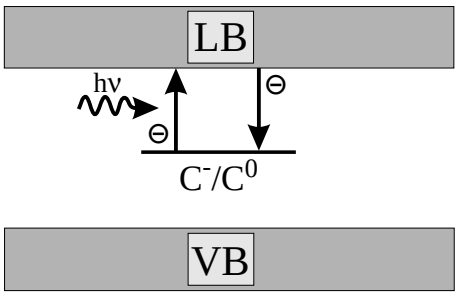


Abbildung 3.5: Ein-Zentren Modell. Schematische Darstellung im Bändermodell.

$$N_{pr} = N^{-}. \tag{3.37}$$

Dabei sind N^{-} und N^{0} die Konzentrationen der Zentren C^{-} und C^{0}, β ist die thermische Erzeugungsrate, q der Wirkungsgrad für die Anregung eines Elektrons nach Absorption eines Photons, S der Wirkungsquerschnitt für die Absorption eines Photons, I die Lichtintensität in [Photonen/(m^2s)], r der Rekombinationskoeffizient, N_e die Konzentration von Elektronen im Leitungsband und N die gesamte Konzentration der photorefraktiven Zentren.
Im Fall der homogenen Beleuchtung ist die Photoleitfähigkeit (Gl. (3.28)) im Sättigungszustand, d.h. für $dN^{-}/dt = 0$, gegeben durch

$$\sigma = e \cdot \mu_e \cdot N_e = e \cdot \mu_e \cdot \frac{\beta + q \cdot S \cdot I}{r} \cdot \frac{N^{-}}{N^{0}}. \tag{3.38}$$

Für eine vernachlässigbare thermische Anregung, d.h. $\beta \ll q \cdot S \cdot I$, wächst die Photoleitfähigkeit also *linear* mit der Lichtintensität an und ist proportional zu dem Verhältnis der Konzentrationen gefüllter und leerer Störstellen.
Die lichtinduzierte Absorption ergibt sich unter Beachtung von $\alpha = S \cdot N$ wie folgt:

$$\alpha_{li} = \alpha(I) - \alpha(I = 0) = [S^{0} \cdot N^{0} + S^{-} \cdot (N^{-} - \Delta N^{-})] - S^{-} \cdot N^{-} = (S^{0} - S^{-}) \cdot \Delta N^{-}. \tag{3.39}$$

Wegen $N_e \ll N_{pr}$ und wegen der adiabatischen Näherung ist $\Delta N^{-} \ll 1$ und entsprechend $\alpha_{li} \ll 1$. D.h. im Rahmen des Ein-Zentren Modells wird *keine* lichtinduzierte Absorption beobachtet.
Im Fall von inhomogener Beleuchtung wird die Amplitude des Raumladungsfeldes, dessen Betrag und Phase sowie die Zeitkonstante für den Aufbau und Zerfall des Raumladungsfeldes berechnet.
Eine Differentialgleichung, die die zeitliche Entwicklung der Amplitude des Raumladungsfeldes beschreibt, ist [80]

$$\tau_{sc} \cdot \dot{E}_{sc(1)} + E_{sc(1)} = -m \cdot E_{eff}. \tag{3.40}$$

Die Amplitude E_{sc} des Raumladungsfeldes strebt mit der Zeitkonstanten τ_{sc} den Sättigungswert E_{eff} an. Hier wurden alle ortsabhängigen veränderlichen Größen

in Fourierreihen der Raumfrequenz $K = |\vec{K}|$ entwickelt und nach dem ersten periodischen Glied abgebrochen sowie Effekte höherer Ordnungen unter der Annahme eines kleinen Modulationsgrades m des Interferenzmusters vernachlässigt [80]. Für den Fall, dass nur Elektronen am Ladungstransport beteiligt sind, ergibt sich im Sättigungszustand:

$$E_{sc(1)} = -m \cdot E_{eff} = \frac{-m \cdot [R_{oc}(I) \cdot E_0 + E_{phv} + i \cdot R_{oc}(I) \cdot E_d]}{\left[1 + \frac{E_d - iE_0}{E_q} - \frac{iE_{phv}}{E'_q}\right]}. \tag{3.41}$$

Eine Umformung dieses Ausdrucks ergibt für den Real- und den Imaginärteil von $E_{sc(1)}$

$$\Re(E_{sc(1)}) = m \cdot \frac{-(R_{oc} \cdot E_0 + E_{phv}) + \left(\frac{R_{oc}}{E'_q} - \frac{1}{E_q}\right) \cdot E_{phv} E_d}{\left(1 + \frac{E_d}{E_q}\right)^2 + \left(\frac{E_0}{E_q} + \frac{E_{phv}}{E'_q}\right)^2} \tag{3.42}$$

und

$$\Im(E_{sc(1)}) = m \cdot \frac{R_{oc} \cdot E_d + R_{oc} \cdot \frac{E_0^2}{E_q} + \frac{E_{phv}^2}{E'_q} + R_{oc} \cdot \frac{E_d^2}{E_q} + \left(\frac{R_{oc}}{E'_q} + \frac{1}{E_q}\right) \cdot E_0 E_{phv}}{\left(1 + \frac{E_d}{E_q}\right)^2 + \left(\frac{E_0}{E_q} + \frac{E_{phv}}{E'_q}\right)^2}. \tag{3.43}$$

Daraus kann gemäß der bekannten Beziehung $|E_{sc(1)}| = \sqrt{\Re^2(E_{sc(1)}) + \Im^2(E_{sc(1)})}$ der Betrag des Raumladungsfeldes bestimmt werden. Die Phase ergibt sich aus

$$\tan(\Phi) = \frac{\Im(E_{sc(1)})}{\Re(E_{sc(1)})} = -\frac{R_{oc} \cdot E_d E'_q (E_q + E_d) + (E_0 E'_q + E_{phv} E_q)(R_{oc} \cdot E_0 + E_{phv})}{E_{phv} E'_q (E_q - E_d) - R_{oc} \cdot E_q (E_0 E'_q + E_{phv} E_d)}. \tag{3.44}$$

Die in den Gleichungen auftretenden Größen sind ein Reduktionsfaktor

$$R_{oc} = 1 - \frac{\sigma_d}{\sigma_{ph}}, \tag{3.45}$$

ein externes elektrisches Feld E_0, das photovoltaische Feld

$$E_{phv} = \frac{\beta I}{\sigma}, \tag{3.46}$$

das Diffusionsfeld

$$E_d = \frac{k_B T}{e} \cdot K \tag{3.47}$$

und die Felder, die die Begrenzung des Raumladungsfeldes berücksichtigen:

$$E_q = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} \cdot \frac{1}{K} \cdot N_{eff}, \tag{3.48}$$

$$E_q' = \frac{e}{\epsilon\epsilon_0} \cdot \frac{1}{K} \cdot N^- . \tag{3.49}$$

Die Raumladungsfeldbegrenzung wird im weiteren Verlauf des Kapitels noch ausführlich am Beispiel der Diffusion als dominierendem Ladungstransportmechanismus erläutert. Die effektive Anzahldichte der photorefraktiven Zentren ist gegeben durch

$$N_{eff} = \left(\frac{1}{N^-} + \frac{1}{N^0} \right)^{-1} \tag{3.50}$$

mit den Konzentrationen der photorefraktiven Zentren N^- und N^0. Die Größen σ_d und σ_{ph} sind die Dunkelleitfähigkeit und die Photoleitfähigkeit, β ist die Komponente des photovoltaischen Tensors, d.h. $\beta = \beta_{333}$ (Lichtpol. || c) bzw. $\beta = \beta_{133}$ (Lichtpol. || a), T die absolute Temperatur und ϵ die Komponente ϵ_{33} des Dielektrizitätstensors. Der Reduktionsfaktor R_{oc} berücksichtigt, dass der Modulationsgrad m des Lichtinterferenzmusters im Fall einer hohen Dunkelleitfähigkeit nicht vollständig wirksam wird. Da für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben stets $\sigma_d \ll \sigma_{ph}$ gilt, wird im Folgenden $R_{oc} = 1$ gesetzt. Das Auftreten von sowohl Elektronen- als auch Löcherleitung reduziert das Raumladungsfeld, dies kann durch einen weiteren Reduktionsfaktor R_{eh} berücksichtigt werden [81, 82]. Da, wie bereits erwähnt, im Falle von SBN61:Ce die Elektronenleitung dominiert, wird $R_{eh} = 1$ gesetzt.
Es ist zu bemerken, dass der Fall $\Phi = \pi/2$ gerade für $E_0 = 0$ und $E_{phv} = 0$ vorliegt. In diesem Fall wirkt sich eine Raumladungsfeldbegrenzung, d.h. der Einfluss der Felder E_q bzw. E_q' also nicht auf Φ aus. In der Abbildung 3.6 ist die Abhängigkeit von Φ von einem externen elektrischen Feld für $E_{phv} = 0$ und für vier Werte von $E_q \propto N_{eff}$ dargestellt. Folgende Parameter wurden fest gewählt: $T = 298.15\,K$, $K = 67920\,cm^{-1}$ ($\theta = 20\,°$, $\lambda = 632.8\,nm$) und $\epsilon_{33} = 1700$. Man erkennt, dass der Verlauf $\Phi(E_0)$ ein Minimum ausbildet. Für $\lim_{E_0 \to \infty}$ nähert sich Φ asymptotisch dem Wert 90 °. Mit steigenden Werten von E_q bzw. N_{eff}, d.h. wachsender Raumladungsfeldbegrenzung, prägt sich das Minimum stärker aus und verschiebt sich zu größeren Feldstärken. In dem Kapitel 3.10 wird für $E_0 \neq 0$ gezeigt, dass ein holographisches Gitter, das ohne angelegtes externes Feld geschrieben wurde, nicht signifikant beeinflusst wird, wenn ein externes elektrisches Feld während des Auslesens angelegt wird.
Der Aufbau und der Zerfall des Raumladungsfeldes sind monoexponentiell mit der Zeitkonstante [80]

$$\tau_{sc} = \tau_M \cdot \frac{\left(1 + \frac{E_d - iE_0}{E_M}\right)}{\left[1 + \frac{E_d - iE_0}{E_q} - \frac{iE_{phv}}{E_q'}\right]} \tag{3.51}$$

mit

$$E_M = \frac{r \cdot N^0}{\mu_e} \cdot \frac{1}{K} = \frac{1}{\mu_e \cdot \tau_R \cdot K} \tag{3.52}$$

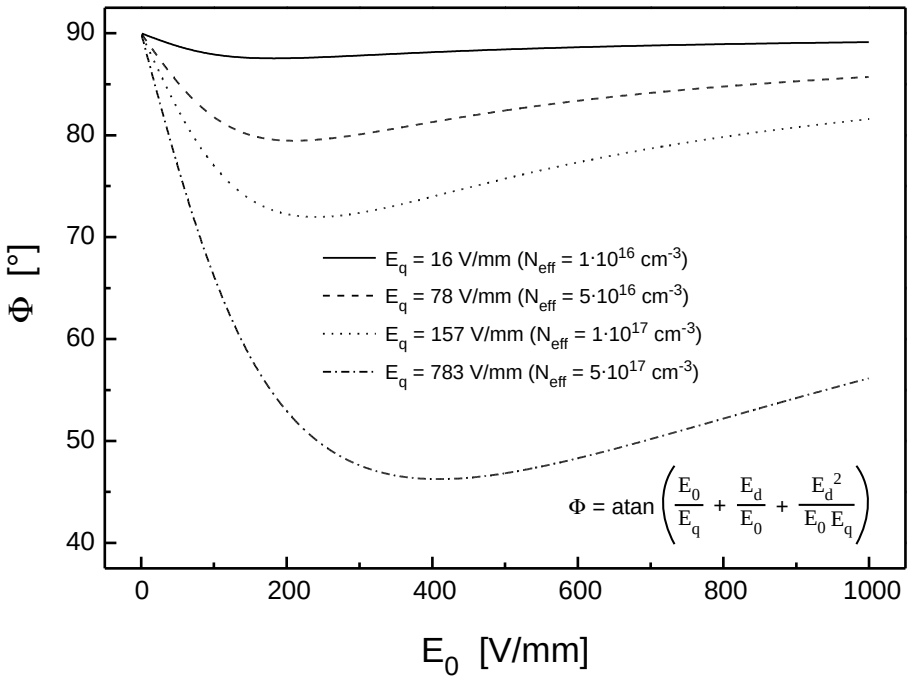


Abbildung 3.6: Phasenverschiebung Φ zwischen der Modulation des Raumladungsfeldes und der Intensitätsmodulation in Abhängigkeit von einem externen elektrischen Feld für vier verschiedene Werte des raumladungsbegrenzenden Feldes $E_q \propto N_{eff}$.

und der dielektrischen Relaxationszeit oder Maxwell-Zeit

$$\tau_M = \frac{\epsilon\epsilon_0}{\sigma}. \tag{3.53}$$

Dabei ist r der Rekombinationskoeffizient und $\mu_e \cdot \tau_R$ das Produkt aus der Beweglichkeit und der Rekombinationszeit der Elektronen.
Berücksichtigt man nur die Diffusion als Ladungstransportmechanismus, so erhält man für die Amplitude des Raumladungsfeldes

$$E_{sc(1)} = -i \cdot m \cdot E_d \cdot \frac{1}{\left(1 + \frac{E_d}{E_q}\right)} \cdot (\vec{e}_S \cdot \vec{e}_R) = -i \cdot m \cdot \left(\frac{k_B \cdot T}{e}\right) \cdot \frac{K}{1 + \left(\frac{K}{K_0}\right)^2} \cdot (\vec{e}_S \cdot \vec{e}_R) \tag{3.54}$$

und für die Zeitkonstante

$$\tau_{sc} = \tau_M \cdot \frac{1 + \left(\frac{K}{K_d}\right)^2}{1 + \left(\frac{K}{K_0}\right)^2} \tag{3.55}$$

mit der inversen Debye-Abschirmlänge [82]

$$K_0 = e \cdot \sqrt{\frac{N_{eff}}{\epsilon\epsilon_0 \cdot k_B T}} \tag{3.56}$$

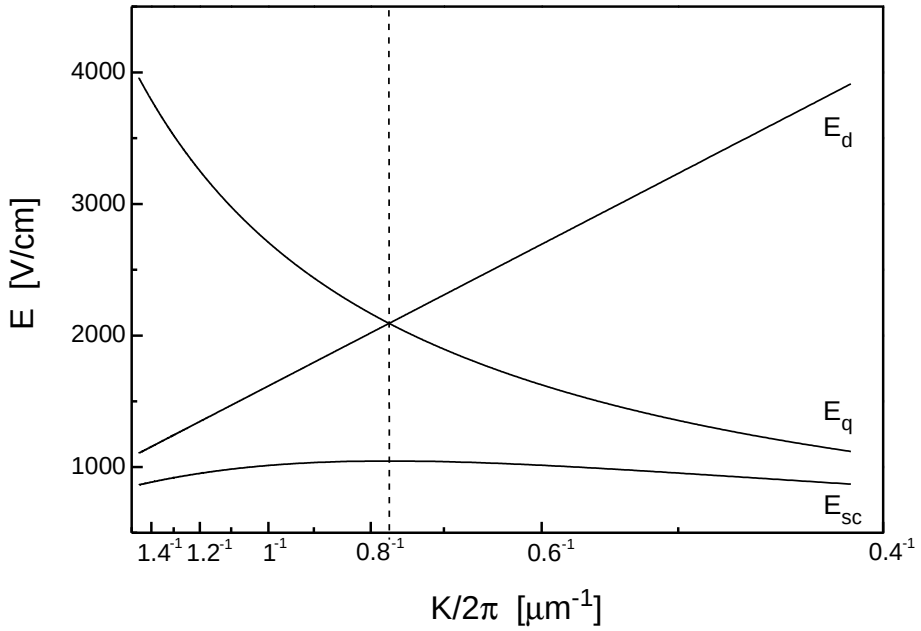


Abbildung 3.7: Diffusionsfeld E_d, raumladungsbegrenzendes Feld E_q und resultierendes Raumladungsfeld E_{sc} in Abhängigkeit vom Betrag K des Gittervektors. Die Abszisse ist in Einheiten von 2π und einem reziprokem Maßstab skaliert, so dass direkt die Gitterkonstante $\Lambda = 2\pi/K$ abgelesen werden kann.

und dem Kehrwert der Diffusionslänge

$$K_d = \sqrt{\frac{e}{\mu \cdot \tau_R \cdot k_B T}}. \tag{3.57}$$

In der Gleichung 3.54 wurde noch das Produkt der Einheitsvektoren, die die Polarisationsrichtung der Lichtwellen festlegen, $(\vec{e}_S \cdot \vec{e}_R)$, berücksichtigt. Dieses ist gleich 1 im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse und ist gleich $\cos(2\theta_i)$ im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse. Es sei daran erinnert, dass das Diffusionsfeld der Imaginärteil der Amplitude des Raumladungsfeldes ist und damit um $\pi/2$ gegenüber der Intensitätsmodulation phasenverschoben ist.
Das Raumladungs-, das Diffusions- und das raumladungsbegrenzende Feld wurde theoretisch mit den Werten $N_{eff} = 1.6 \cdot 10^{17}\,cm^{-3}$ [45], $\lambda = 632.8\,nm$, $\epsilon_{33} = 1700$ (Tabelle 5.3) und $T = 298.15\,K$ berechnet. Die Abbildung 3.7 zeigt diese charakteristischen Felder in Abhängigkeit vom Betrag K des Gittervektors in Einheiten von 2π und einem reziproken Maßstab. Auf diese Weise kann direkt die Gitterkonstante Λ abgelesen werden. Bei einem bestimmten Wert von K besitzt E_{sc} ein Maximum, hier etwa bei $K = 8.1\ \mu m^{-1}$. Bei diesem Wert entspricht das Diffusionsfeld gerade dem raumladungsbegrenzenden Feld, das für die Anzahl von N_{eff} beweglichen Ladungsträgern im Kristall erreicht wird. Dieses maximale

Raumladungsfeld liegt bei einer Gitterkonstanten Λ vor, die gerade der Debye-Abschirmlänge $L_0 = 1/K_0$ entspricht. Für größere Gitterkonstanten, also kleinere Bragg-Winkel, wird das Diffusionsfeld vollständig als Raumladungsfeld aufgebaut. Bei kleineren Gitterkonstanten, also bei größeren Bragg-Winkeln, wird das Raumladungsfeld teilweise abgeschirmt. Das führt zu kleineren Raumladungsfeldern als es von reinen Diffusions-Effekten erwartet wird.
Der Beitrag eines externen elektrischen Feldes E_0 zum internen Raumladungsfeld wird im Kapitel 4.9 erläutert.

3.2.4 Zwei-Zentren-Modell

Das Zwei-Zentren Modell ist in der Abbildung 3.8 dargestellt. Es werden zwei

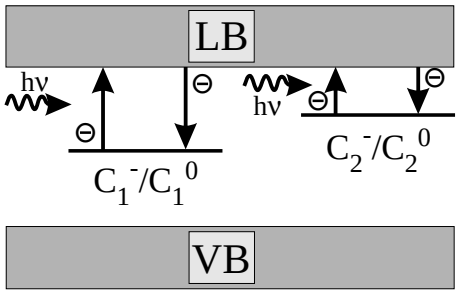


Abbildung 3.8: Zwei-Zentren Modell. Schematische Darstellung im Bändermodell.

photorefraktive Zentren C_1 und C_2 betrachtet, die beide in den Valenzzuständen "-" bzw. "0" vorkommen. Die Anregung von Elektronen in das Leitungsband und Rekombination sind für beide Zentren möglich. Dabei ist das erste Zentrum eine tiefe und das zweite eine flache Störstelle in Bezug auf die Leitungsbandkante. Die Ratengleichungen sind für jedes Zentrum identisch zu dem Ausdruck (3.34), jeweils indiziert mit "1" bzw. "2". Die Gesamtkonzentrationen sind

$$N_1 = N_1^- + N_1^0, \tag{3.58}$$

$$N_2 = N_2^- + N_2^0 \tag{3.59}$$

und

$$N_{pr} = N_1^- + N_2^-. \tag{3.60}$$

Im Fall der homogenen Beleuchtung ergibt sich eine Photoleitfähigkeit, die nichtlinear von der Lichtintensität abhängt und empirisch durch den Zusammenhang

$$\sigma \propto I^x \tag{3.61}$$

beschrieben werden kann. Diese Sublinearität wird durch folgende Wechselwirkung zwischen den Zentren erzeugt: Zunächst ist die Konzentration N_2^0 im Dunkeln sehr groß gegenüber N_2^-, da alle Elektronen thermisch angeregt sind. D.h.

die thermische Erzeugungsrate β_2 ist groß gegenüber β_1. Bei Beleuchtung werden Elektronen von C_1^- in das Leitungsband angeregt, die nach Wanderung entweder von C_1^0 oder C_2^0 eingefangen werden. Aufgrund der geringen thermischen Aktivierungsenergie können Elektronen von C_2^- leicht wieder angeregt werden, so dass die Konzentration N_2^- gering bleibt. Mit zunehmender Lichtintensität werden immer mehr Elektronen von C_1^- angeregt. Im Fall kleiner Lichtintensitäten ($I \ll \beta_2/(q_2 S_2)$, aber $I \gg \beta_1/(q_1 S_1)$) trägt das flache Zentrum nicht zum Ladungstransport bei und der Exponent x ist eins. Für Intensitäten $I \approx \beta_1/(q_2 S_2)$ dagegen fungiert das flache Zentrum als ein zusätzlicher Fänger, so dass der Anstieg der Konzentration N_e der Elektronen im Leitungsband reduziert wird und der Exponent x kleiner als eins wird. Für noch größere Intensitäten kann man einen linearen Verlauf der Photoleitfähigkeit erwarten, da dann die Anregung von Elektronen aus dem flachen Zentrum die Rekombination kompensiert.
Die lichtinduzierte Absorption beträgt

$$\alpha_{li} = (S_2 - S_1) N_2^- . \tag{3.62}$$

Eine nicht-verschwindende lichtinduzierte Absorption erhält man also, wenn die Wirkungsquerschnitte der Photonenabsorption für die beiden Zentren verschieden voneinander sind.
Im Fall von inhomogener Beleuchtung kann das Raumladungsfeld, dass sich im Sättigungszustand einstellt, analog zum Ein-Zentren Modell bestimmt werden. Für reine Diffusionseffekte erhält man

$$E_{sc(1)} = -i \cdot m \cdot E_d \cdot \frac{1}{1 + \frac{E_d}{E_{q,1}}} \cdot R_{tc}(I, K) \tag{3.63}$$

mit

$$E_{q,1} = \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} \cdot \frac{1}{K} \cdot N_{eff,1} \tag{3.64}$$

und

$$N_{eff,1} = \left(\frac{1}{N^-_{1(0)}} + \frac{1}{N^0_{1(0)}} \right)^{-1} . \tag{3.65}$$

Der Faktor R_{tc} ist ein von der Intensität und Raumfrequenz abhängiger Korrekturfaktor, für den ein analytischer Ausdruck angegeben werden kann [83]. Abgesehen von diesem Faktor ist der Ausdruck für E_{sc} derselbe wie derjenige für das Ein-Zentren Modell. Die Bestimmung der Amplitude des Raumladungsfeldes mit Hilfe der Gleichungen (3.32), (3.34) und (3.61) führt auf

$$E_{sc(1)} = i \cdot \frac{e}{\epsilon \epsilon_0} \cdot \frac{1}{K} \cdot (N^-_{1(1)} + N^-_{2(1)}). \tag{3.66}$$

Es werden zwei Gitter geschrieben, eines in dem tiefen Zentrum C_1^- und eines in dem flachen Zentrum C_2^-. Man beachte, dass sich die Aussagen im Folgenden

auf die Gitter beziehen, die durch die Konzentration der Störstellen gebildet werden. Betrachtet man wieder ausschließlich den Ladungstransport durch Diffusion, so ist das Gitter $N^-_{1(1)}$ in dem tiefen Zentrum immer gegen Phase zum Lichtinterferenzmuster. Ob das Gitter in dem flachen Zentrum gegen oder in Phase zum Lichtinterferenzmuster ist, hängt von der Lichtintensität und der Raumfrequenz ab [83]. Für geringe Lichtintensitäten und kleine Raumfrequenzen liegt eine schwache Diffusion vor und das Gitter ist in Phase zum Lichtinterferenzmuster. In diesem Fall *kompensieren* sich die in dem tiefen und flachen Zentrum geschriebenen Gitter. Für hohe Lichtintensitäten und große Raumfrequenzen dominiert die Diffusion auch den Aufbau des Gitters in dem flachen Zentrum, das dann gegen Phase zum Lichtinterferenzmuster ist. In diesem Fall sind die beiden in dem tiefen und flachen Zentrum geschriebenen Gitter *in Phase*.
Im Rahmen des Zwei-Zentren Modells gibt es folgende neue Effekte, die im Ein-Zentren Modell nicht auftreten:

- Aufbau holographischer Gitter im Dunkeln.
  Dieser Effekt ist besonders ausgeprägt bei kurzen Schreibzeiten, wenn der Aufbau des Raumladungsfeldes noch keinen Sättigungszustand erreicht hat. Wird der durch die Beleuchtung initiierte Schreibprozess unterbrochen, dann kann ein schneller thermischer Löschprozess in dem flachen Zentrum zu einem signifikanten Anstieg des Raumladungsfeldes im Dunkeln führen [83, 84, 85], weil sich die Gitter in dem tiefen bzw. flachen Zentrum kompensieren können (s. oben).

- Auftreten einer vorübergehenden Erhöhung der Dunkelleitfähigkeit.
  Dieser Effekt wird hervorgerufen durch eine thermische Anregung von Elektronen aus dem flachen Zentrum. Nach Beendigung des durch die Beleuchtung initiierten Schreibprozesses resultiert daher ein Dunkelzerfall mit einer schnellen und einer langsamen Komponente. Der schnelle Löschprozess findet so lange statt, bis die flachen Zentren geleert sind. Wie stark das Gitter innerhalb dieser Zeit gelöscht wird, hängt offenbar von der in den flachen Zentren vorliegenden Ladungsdichte ab [86].

- Auftreten von Absorptionsgittern.
  Es können Absorptionsgitter mit der Amplitude $\alpha_{(1)} = (S_2 - S_1)N^-_{2(1)}$ auftreten [87], die je nach Lichtintensität, Raumfrequenz und Vorzeichen von $(S^-_2 - S^-_1)$ in oder gegen Phase zum Lichtinterferenzmuster sein können.

3.2.5 Drei-Valenzen-Modell

Das Drei-Valenzen Modell ist in der Abbildung 3.9 schematisch im Bändermodell dargestellt. Dabei wird von einem Zentrum C ausgegangen, das in drei Valenzzuständen "0", "-" und "2-" vorliegt. Die Ratengleichungen findet man in [74] bzw. [88]. Da das Zentrum C^{2-}/C^- näher an der Leitungsbandkante liegt, ist

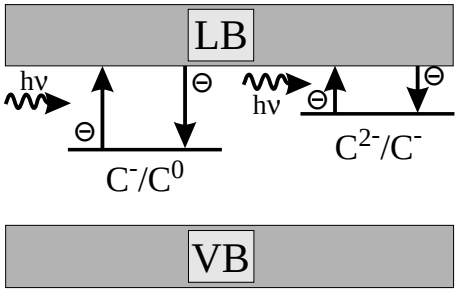


Abbildung 3.9: Drei-Valenzen Modell. Schematische Darstellung im Bändermodell.

$\beta^{2-} \gg \beta^{-}$. Bei kleinen Lichtintensitäten liegen nur die Valenzzustände "0" und "-" vor, da die Konzentration N^{2-} aufgrund von thermischen Anregungen klein ist. Bei Beleuchtung werden Elektronen von C^{-} in das Leitungsband angeregt und von C^{0} eingefangen. Für ausreichend hohe Lichtintensitäten wird die Elektronenkonzentration im Leitungsband groß genug, so dass eine beträchtliche Anzahl von Elektronen mit C^{-} rekombinieren und so C^{2-} erzeugen kann. Aus Gründen der Ladungserhaltung eliminiert dabei die Erzeugung eines C^{2-} zwei C^{-}.
Die Photoleitfähigkeit verläuft wie schon im Zwei-Zentren Modell nicht-linear mit der Lichtintensität und kann empirisch beschrieben werden durch $\sigma \propto I^{x}$. Die Vorhersagen des Modells bzgl. des Exponenten x sind ähnlich zu denjenigen des Zwei-Zentren Modells. Eine sublineare Photoleitfähigkeit liegt vor, wenn die Raten für die lichtinduzierte und die thermische Anregung für C^{2-} vergleichbar sind [74]. Die lichtinduzierte Absorption beträgt

$$\alpha_{li} = (S^{2-} - 2S^{-})N^{2-}. \tag{3.67}$$

Im Fall inhomogener Beleuchtung ergibt sich für die Amplitude des Raumladungsfeldes im Sättigungszustand

$$E_{sc(1)} = -i \cdot m \cdot E_d \cdot \frac{1}{1 + \frac{E_d}{E_q^-}} \cdot R_{tv}(I, K), \tag{3.68}$$

wenn der dominierende Ladungstransportmechanismus die Diffusion ist. Dabei ist

$$E_q^- = \frac{e}{\epsilon\epsilon_0} \cdot \frac{1}{K} \cdot N_{eff}^- \tag{3.69}$$

mit

$$N_{eff}^- = \left[\frac{1}{N_{(0)}^-} + \frac{1}{N_{(0)}^0} \right]^{-1}. \tag{3.70}$$

Der Faktor R_{tv} ist ein von der Lichtintensität und Raumfrequenz abhängiger Reduktionsfaktor. Analog zum Zwei-Zentren Modell kann man auch

$$E_{sc} = i \cdot \frac{e}{\epsilon\epsilon_0} \cdot \frac{1}{K}(N_{(1)}^- + 2N_{(1)}^{2-}) \tag{3.71}$$

schreiben, d.h. auch im Drei-Valenzen Modell werden zwei Gitter geschrieben, eines in C^- und eines in C^{2-}. Dabei kompensieren sich die Komponenten der Gitter, die in bzw. gegen Phase zum Lichtinterferenzmuster sind, im Drei-Valenzen Modell *nicht exakt*.
Man stellt generell fest, dass die Vorhersagen beider Modelle bzgl. der Parameter, die den Ladungstransport makroskopisch beschreiben (z. B. $\sigma(I)$, $\alpha_{li}(I,t)$, $E_{sc}(I,K,t)$) sehr ähnlich sind. Eine Unterscheidung zwischen beiden Modellen ist trotzdem unerlässlich, da im Zwei-Zentren Modell im Gegensatz zum Drei-Valenzen Modell die Effekte, die von dem flachen Zentrum verursacht werden, durch die Konzentration des flachen Zentrums kontrolliert werden können. Diese Tatsache eröffnet die Möglichkeit, die beiden ,,Zwei-Niveau Systeme" im Experiment voneinander zu unterschieden, z. B. durch thermische Behandlung [89] oder Messungen in Abhängigkeit von der Lichtintensität mit Dauerstrich-Beleuchtung ($I < 10\,W/cm^2$) und Puls-Beleuchtung ($I > 10\,W/cm^2$). Für einen bestimmten Intensitätsbereich muss das vorliegende Ladungstransportmodell die Effekte sowohl für eine homogene als auch für eine inhomogene Beleuchtung erklären können.

3.3 Der lineare elektrooptische Koeffizient

Der elektrooptische Effekt beschreibt eine Änderung der Komponenten a_{ij} des Polarisationstensors â durch ein elektrisches Feld:

$$\Delta a_{ij} = r_{ijk} \cdot E_k + s_{ijkl} \cdot E_k \cdot E_l + ... \tag{3.72}$$

mit den Komponenten des linearen elektrooptischen Tensors r_{ijk} und des quadratischen elektrooptischen Tensors s_{ijkl}. Die Komponenten des linearen elektrooptischen Tensors sind in der ersten und zweiten Indexposition symmetrisch: $r_{ijk} = r_{jik}$. In der Punktsymmetriegruppe 4mm gibt es 3 unabhängige Komponenten: $r_{113} = r_{223} = r_{13}$, $r_{311} = r_{322} = r_{42}$ und $r_{333} = r_{33}$. Die Gleichung (3.72) kann in Abhängigkeit von der elektrischen Polarisation geschrieben werden:

$$\Delta a_{ij} = f_{ijk} \cdot P_k + g_{ijkl} \cdot P_k \cdot P_l + ... \tag{3.73}$$

mit den Komponenten des linearen polarisationsoptischen Tensors f_{ijk} und des quadratischen polarisationsoptischen Tensors s_{ijkl}. Die Komponenten des polarisationsoptischen und des elektrooptischen Tensors hängen wie folgt zusammen:

$$r_{ijk} = \epsilon_0 \cdot f_{ijl} \cdot (\epsilon_{lk} - \delta_{lk}), \tag{3.74}$$

$$s_{ijkl} = \epsilon_0^2 \cdot g_{ijmn} \cdot (\epsilon_{mk} - \delta_{mk}) \cdot (\epsilon_{nl} - \delta_{nl}). \tag{3.75}$$

Der allgemeine Ausdruck für den effektiven linearen elektrooptischen Koeffizienten für Kristalle der Punktsymmetriegruppe 4mm und eine beliebige Geometrie

ist

$$\begin{aligned} r_{eff}^{t,c} &= (n_o^4 \cdot r_{13} \cdot \cos(\alpha_1)\cos(\alpha_2) + 2 \cdot n_o^2 n_e^2 \cdot r_{42} \cdot \cos^2\left(\frac{\alpha_1+\alpha_2}{2}\right) \\ &\quad + n_e^4 \cdot r_{33} \cdot \sin(\alpha_1)\sin(\alpha_2)) \cdot \frac{\sin\left(\frac{\alpha_1+\alpha_2}{2}\right)}{n_{eff}^4} \\ &= -r_{eff}^{r,c} \end{aligned} \tag{3.76}$$

im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse und entsprechend

$$r_{eff}^{t,a} = r_{13} \cdot \sin\left(\frac{\alpha_1+\alpha_2}{2}\right) = r_{eff}^{r,a} \tag{3.77}$$

im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse. Eine Herleitung dieser Beziehungen findet man im Anhang A.1. Die Indizes "t" bzw. "r" beziehen sich dabei auf eine Transmissions- bzw. Reflexionsgeometrie. Die geometrischen Verhältnisse werden im Kapitel 3.8 (Abb. 3.11) über die Messungen in Abhängigkeit des Bragg-Winkels erläutert. Die Größen n_e bzw. n_o sind der ausserordentliche bzw. ordentliche Brechungsindex des Materials, n_{eff} ist ein effektiver Brechungsindex. Der Winkel α_1 ist der Winkel, den der Signalstrahl, α_2 ist der Winkel, den der Referenzstrahl mit der positiven Orientierung der c-Achse einschließt (Abb. 3.11). Die Größen r_{ij} sind die nicht-verschwindenden Komponenten des Pockels-Tensors in der verkürzten Notation. Diese sind unter der Annahme, dass die durch elektrische Felder induzierte Polarisation sehr klein gegenüber der Spontanpolarisation ist, $P_{3,ind} \ll P_S$, folgendermaßen gegeben [90]:

$$r_{13} = 2 \cdot \epsilon_0 \epsilon_{33} \cdot g_{13} \cdot P_S \tag{3.78}$$

$$r_{33} = 2 \cdot \epsilon_0 \epsilon_{33} \cdot g_{33} \cdot P_S \tag{3.79}$$

$$r_{42} = 2 \cdot \epsilon_0 \epsilon_{11} \cdot g_{44} \cdot P_S. \tag{3.80}$$

Die Größen ϵ_{ij} sind die Komponenten des Dielektrizitätstensors, g_{ij} die Komponenten des quadratischen elektrooptischen Tensors, und P_S ist die Spontanpolarisation. Damit sind die Komponenten r_{ij} direkt proportional zum Ordnungsparameter des ferroelektrischen Phasenübergangs in SBN.

3.4 Auslesen holographischer Gitter, Beugungswirkungsgrad η

In der Abbildung 3.10 ist die Situation beim Auslesen des Hologramms in einer Transmissionsgeometrie dargestellt. Der Kristall wird homogen mit dem Referenzstrahl beleuchtet. Hinter dem Kristall werden dann die Intensitäten des transmittierten und des abgebeugten Referenzstrahls gemessen. Der Beugungs-

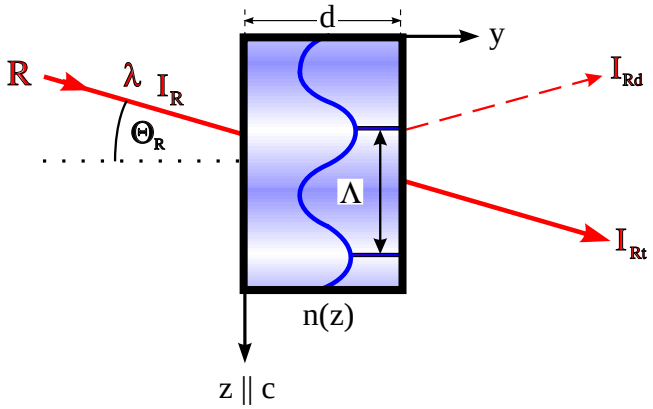


Abbildung 3.10: Auslesen eines elementaren Volumenphasenhologramms in einer Transmissionsgeometrie.

wirkungsgrad beschreibt das Verhältnis der an dem holographischen Gitter abgebeugten Intensität zur einfallenden Intensität bzw. zur gesamten transmittierten Intensität:

$$\eta = \frac{\mathrm{I_{Rd}}}{\mathrm{I_{Rd}} + \mathrm{I_{Rt}}}. \tag{3.81}$$

In Anlehnung an die Definition des holographischen Verstärkungsfaktors wird in dieser Arbeit ausschließlich diese Definition verwendet.
Die Theorie des Beugungswirkungsgrades ist ausführlich in [69] dargestellt. Danach ist der Zusammenhang zwischen η und der Amplitude der Brechungsindexmodulation in einer Transmissionsgeometrie gegeben durch

$$\eta = \sin^2\left(\frac{\pi \cdot \mathrm{d} \cdot \Delta \mathrm{n}}{\lambda \cdot \cos(\theta_\mathrm{i})}\right). \tag{3.82}$$

In einer Reflexionsgeometrie erhält man entsprechend

$$\eta = \tanh^2\left(\frac{\pi \cdot \mathrm{d} \cdot \Delta \mathrm{n}}{\lambda \cdot \cos(\theta_\mathrm{i})}\right). \tag{3.83}$$

Man beachte, dass $\theta_\mathrm{i} + \theta_\mathrm{i}^\mathrm{r} = (\pi/2)$ und daher $\cos(\theta_\mathrm{i}) = \sin(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{r})$ (Abb. 3.3 und 3.4). Eine Variation der Bragg-Bedingung ist durch eine Änderung des Bragg-Winkels oder der Wellenlänge möglich. Abweichungen von der Bragg-Bedingung beschreibt der Parameter:

$$\xi_\mathrm{Kog}(\Delta\theta_\rho, \Delta\lambda) = \Delta\theta_\rho \cdot |\vec{\mathrm{K}}| \cdot \frac{\mathrm{d} \cdot \sin(\varphi - \theta_\rho)}{2 \cdot \cos(\theta_\sigma)} - \Delta\lambda \cdot |\vec{\mathrm{K}}|^2 \cdot \frac{\mathrm{d}}{8\pi \cdot \cos(\theta_\sigma)}. \tag{3.84}$$

Dabei ist φ der Winkel, den der Gittervektor $\vec{\mathrm{K}}$ mit der z-Achse einschließt, θ_ρ ist der *interne* Einfallswinkel des Auslesestrahls, θ_σ entsprechend der *interne* Winkel, den der abgebeugte Strahl mit dem Einfallslot bildet. Wird das Hologramm in

einer Transmissionsgeometrie unter symmetrischem Einfall geschrieben und mit dem Referenzstrahl ausgelesen, so gilt $\theta_\rho = \theta_{\mathrm{R,i}} = \theta_\sigma$ und $\varphi = 0$. Der Parameter ξ_{Kog} geht in den Ausdruck für den Beugungswirkungsgrad gemäß [69] in der Form

$$\eta = \frac{\sin^2\left(\sqrt{\nu^2 + \xi_{\mathrm{Kog}}^2}\right)}{\left(1 + \frac{\xi_{\mathrm{Kog}}^2}{\nu^2}\right)} \tag{3.85}$$

bzw. gemäß [91] in der Form

$$\eta = \sin^2[\nu \cdot \mathrm{sinc}(\xi_{\mathrm{Kog}})] \tag{3.86}$$

ein, wobei $\mathrm{sinc}(\xi_{\mathrm{Kog}}) = \sin(\xi_{\mathrm{Kog}})/\xi_{\mathrm{Kog}}$ und $\nu = (\pi \cdot \mathrm{d} \cdot \Delta\mathrm{n})/(\lambda \cdot \cos(\theta_{\mathrm{i}}))$ ist.
Es ist zu beachten, dass das Hologramm beim Auslesen gleichzeitig gelöscht wird, falls es nicht thermisch oder elektrisch fixiert wurde. Die Messung des Beugungswirkungsgrades erfolgt daher immer mit einem schwachen Taststrahl.
Der Beugungswirkungsgrad kann im Fall elementarer Hologramme aufgrund der Symmetrie der Bragg-Bedingung auch mit der Signalwelle ausgelesen werden, falls kein zusätzlicher Effekt vorliegt, der diese Symmetrie stört. Das wird in dieser Arbeit ausgenutzt: Bei Messungen des Verstärkungsfaktors für eine Kleinsignalverstärkung ist die Intensität der Signalwelle gegenüber der Intensität der Pumpwelle stark abgeschwächt, typischerweise um einen Faktor 1000. Daher kann der Signalstrahl gleichzeitig als Taststrahl verwendet werden.

3.5 Photoleitfähigkeit

Das Verhalten der Photoleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Lichtintensität wurde bereits im Rahmen der Ladungstransportmodelle vorgestellt. In diesem Kapitel werden die theoretischen Zusammenhänge erläutert, die eine Beschreibung und Auswertung der gemessenen Daten gestatten.
Die Leitfähigkeit ist die Summe aus der Dunkelleitfähigkeit und der Photoleitfähigkeit und ist im Rahmen eines Ein-Zentren Modells gegeben durch:

$$\sigma = \sigma_{\mathrm{d}} + \sigma_{\mathrm{ph}} = \sigma_{\mathrm{d}} + \frac{\mathrm{e} \cdot \lambda \cdot \alpha \cdot \mu \cdot \tau_{\mathrm{R}}}{\mathrm{h} \cdot \mathrm{c}} \cdot \mathrm{I}, \tag{3.87}$$

mit der spezifischen Photoleitfähigkeit

$$\frac{\mathrm{e} \cdot \lambda \cdot \alpha \cdot \mu \cdot \tau_{\mathrm{R}}}{\mathrm{h} \cdot \mathrm{c}} = \frac{\sigma_{\mathrm{ph}}}{\mathrm{I}}, \tag{3.88}$$

dem optischen Absorptionskoeffizienten α, dem Produkt aus Beweglichkeit und Rekombinationszeit der Elektronen $\mu \cdot \tau_{\mathrm{R}}$ und der Lichtintensität I. Das Produkt $\mu \cdot \tau_{\mathrm{R}}$ kann daraus bestimmt werden gemäß

$$\mu \cdot \tau_{\mathrm{R}} = \frac{\mathrm{h} \cdot \mathrm{c}}{\mathrm{e} \cdot \lambda \cdot \alpha} \cdot \left(\frac{\sigma_{\mathrm{ph}}}{\mathrm{I}}\right), \tag{3.89}$$

wenn die spezifische Photoleitfähigkeit experimentell bestimmt wurde.
Eine holographische Messung der Photoleitfähigkeit erfolgt über die Messung der Zeitkonstante τ_{sc}, die den Aufbau und den Zerfall des Raumladungsfeldes beschreibt (Gl. (3.55)). Diese entspricht für $K_d = K_0$ der dielektrischen Relaxationszeit $\tau_M = (\epsilon\epsilon_0)/\sigma =: \tau$, d.h.

$$\sigma = \frac{\epsilon\epsilon_0}{4\pi\tau}. \tag{3.90}$$

Man beachte, dass die Bedingung $K_d = K_0$ und die Bestimmung von $\mu \cdot \tau_R$ selbstkonsistent sind: Sofern der Wert von $\mu \cdot \tau_R$ nicht aus einer anderen Messung bekannt ist, muss die Bedingung $K_d = K_0$ zur Bestimmung von $\mu \cdot \tau_R$ angenommen werden. Die Darstellung der Größe auf der rechten Seite der Gleichung (3.90) in Abhängigkeit von der Lichtintensität ist das holographische Analogon zu einer konventionellen Messung der Photoleitfähigkeit. Dividiert man die Gleichung (3.90) durch die Lichtintensität, so erhält man

$$\frac{\epsilon\epsilon_0}{4\pi Q_0} = \frac{\sigma_d}{I} + \frac{\sigma_{ph}}{I} \tag{3.91}$$

$$\approx \frac{\sigma_{ph}}{I} \quad \text{für} \quad (\sigma_d \ll \sigma_{ph}) \tag{3.92}$$

mit

$$Q_0 = I \cdot \tau. \tag{3.93}$$

Damit ist eine holographische Messung der spezifischen Photoleitfähigkeit aus Einzelmessungen möglich: Werden z.B. holographische Gitter mit verschiedenen Wellenlängen geschrieben und gelöscht, so kann daraus die Wellenlängenabhängigkeit der spezifischen Photoleitfähigkeit bestimmt werden. Dabei ist zu beachten, dass die Anwendung der oben genannten Gleichungen und damit die Bestimmung von $\mu \cdot \tau_R$ nur möglich ist, wenn der Aufbau und Zerfall der holographischen Gitter monoexponentiell, also mit *einer* Zeitkonstanten erfolgt. Auf die Beschreibung des Aufbaus und des Zerfalls holographischer Gitter wird im nächsten Kapitel eingegangen.
Im Rahmen eines Zwei-Zentren oder Drei-Valenzen Modells gelingt eine empirische Beschreibung der Intensitätsabhängigkeit der Leitfähigkeit mit einer sublinearen Funktion. Dementsprechend wird an die konventionell bestimmten Messdaten folgende Funktion angepasst:

$$\sigma = A_\sigma + B_\sigma \cdot I^x = \sigma_d + \left(\frac{\sigma_{ph}}{I^x}\right) \cdot I^x. \tag{3.94}$$

Dabei wird der Fall des linearen Verhaltens durch $x = 1$ beschrieben, der Fall des sublinearen Verhaltens durch $x < 1$. In $BaTiO_3$ findet man z.B. $0.5 \leq x < 1$ [92, 93, 94]. Aus dem Parameter B_σ kann gemäß der Gleichung (3.89) wieder das Produkt $\mu \cdot \tau_R$ bestimmt werden. Eine konventionelle Messung der Photoleitfähigkeit erfolgt über das Ohmsche Gesetz bei einer Beleuchtung mit unterschiedlichen Intensitäten.

3.6 Abhängigkeit von Γ von der Bestrahlung Q

Der experimentelle Ablauf einer holographischen Messung im Schreib- und Löschmodus wird ausführlich im Kapitel 4.2 erläutert. An dieser Stelle wird dargestellt, wie die Zeitabhängigkeit einzelner Messungen theoretisch beschrieben werden kann.
Die Vorgehensweise ist wie folgt: Zunächst wird ein Hologramm bis in den Sättigungszustand in den Kristall geschrieben. Es kann dann auf zwei verschiedene Arten gelöscht werden: Zum Einen durch das Auslesen mit dem Pumpstrahl, der die Bragg-Bedingung erfüllt (gleichzeitiges Lesen und Löschen), zum Anderen durch die Auskopplung eines externen Löschstrahls aus dem Schreiblaser. Das Hologramm wird im zweiten Fall mit dem schwachen Signalstrahl, der die Bragg-Bedingung erfüllt, ausgelesen. Man beachte, dass in beiden Fällen holographische Streugitter geschrieben werden können, deren Dynamik diejenige des Schreibens und Löschens des Primärhologramms überlagern.
Die Abhängigkeit von Γ und die Abhängigkeit der Intensität des abgebeugten Strahls während des Löschens I_d von $Q = I \cdot t$ werden gegen Q aufgetragen und mit den folgenden Funktionen angepasst:

$$\Gamma(Q) = \Gamma_{sat} \cdot \left[1 - \exp\left(-\left(\frac{Q}{Q_0}\right)^{\beta}\right)\right] \tag{3.95}$$

$$I_d(Q) = I_{d0} \cdot \exp\left(-\left(\frac{Q}{Q_0}\right)^{\beta}\right) \tag{3.96}$$

Die durch die Gleichungen (3.95) bzw. (3.96) gegebenen Funktionen sind eine modifizierte gestreckte Exponentialfunktion bzw. eine gestreckte Exponentialfunktion nach Kohlrausch, Williams und Watts (KWW-Funktion). Der Exponent β beschreibt dabei die Abweichung vom monoexponentiellen Fall, der für $\beta = 1$ vorliegt. Prozesse mit $\beta \ll 1$ laufen mit einer Überlagerung vieler Zeitkonstanten ab. Diese Darstellung ist, ähnlich wie die Beschreibung der Photoleitfähigkeit durch eine sublineare Funktion, eine empirische Beschreibung der Dynamik des Schreibens und Löschens von Hologrammen.

3.7 Abhängigkeit von Γ von der Wellenlänge λ

Eine Gleichung, die die Abhängigkeit des Verstärkungsfaktors Γ von der Wellenlänge beschreibt, erhält man durch das Einsetzen der Gleichungen (3.8), (3.54) und (3.76) bzw. (3.77) in die Gleichung (3.15) [45]:

$$\Gamma = \frac{A_\lambda}{\lambda^2 + B_\lambda^2} \tag{3.97}$$

$$A_\lambda = \frac{8\pi^2 \cdot {n_{eff}}^3 \cdot k_B T \cdot \sin(\theta)}{e \cdot \cos(\theta_i)} \cdot (\vec{e}_1 \cdot \vec{e}_2) \cdot r_{eff} \tag{3.98}$$

$$B_\lambda = \frac{4\pi \cdot \sin(\theta)}{e} \sqrt{\frac{\epsilon_{33}\epsilon_0 \cdot k_B T}{N_{eff}}}. \tag{3.99}$$

Dabei wird die Wellenlängenabhängigkeit von n_{eff} berücksichtigt, über die Wellenlängenabhängigkeit von r_{eff} und N_{eff} gibt es keine verlässlichen Literaturdaten.

3.8 Abhängigkeit von Γ vom Bragg-Winkel θ

In der Abbildung 3.11 sind die verschiedenen Geometrien dargestellt, die eine Bestimmung der linearen elektrooptischen Koeffizienten und der effektiven Anzahldichte der photorefraktiven Zentren gestatten: a) symmetrischer Einfall der Schreibstrahlen in Transmissionsgeometrie, b) symmetrischer Einfall in Reflexionsgeometrie, c) asymmetrischer Einfall in Reflexionsgeometrie und d) Drehen des Kristalls in Reflexionsgeometrie. Im Fall des symmetrischen Einfalls in Transmissionsgeometrie findet man eine Theorie, die die Abhängigkeit von Γ vom Bragg-Winkel beschreibt, wenn man die Beziehungen (3.8), (3.54) und (3.76) bzw. (3.77) in die Formel (3.15) einsetzt [16, 45]:

$$\Gamma = \frac{A_\theta \cdot \sin\theta}{1 + B_\theta^{-2} \cdot \sin^2\theta} \frac{(\vec{e_S} \cdot \vec{e_R})}{\cos\theta_i} \tag{3.100}$$

Dabei ist zu beachten, dass auch r_{eff} winkelabhängig ist (Gl. (3.76), (3.77)). Die Parameter A_θ und B_θ sind folgendermaßen gegeben:

$$A_\theta = \frac{8\pi^2 \cdot n_{eff}^3 \cdot k_B T}{\lambda^2 \cdot e} \cdot r_{eff} = \left.\frac{\delta\Gamma}{\delta\theta}\right|_{\theta=0} \tag{3.101}$$

$$B_\theta = \frac{\lambda \cdot K_0}{4\pi} = \frac{\lambda \cdot e}{4\pi} \sqrt{\frac{N_{eff}}{\epsilon_{33}\epsilon_0 \cdot k_B T}} \approx \sin\theta_{max}. \tag{3.102}$$

In dieser Darstellung erfolgt die Auftragung der Γ-Werte üblicherweise gegen den doppelten externen Bragg-Winkel 2θ. Die elektrooptischen Koeffizienten werden aus dem Parameter A_θ bestimmt, der der Steigung der $\Gamma(2\theta)$-Kurve bei $\theta = 0$ entspricht, und die effektive Anzahldichte der photorefraktiven Zentren N_{eff} gewinnt man aus B_θ, also im Wesentlichen aus dem Sinus des Einfallswinkels, bei dem Γ maximal ist. Die Ausbildung des Maximums hängt mit der Raumladungsfeldbegrenzung zusammen (Abb. 3.7).
Im Folgenden werden Gleichungen für den holographischen Verstärkungsfaktor Γ für die oben genannten holographischen Geometrien vorgestellt. Dabei werden die Winkelabhängigkeiten von r_{eff}, n_{eff} und ϵ_{ij} explizit berücksichtigt. So können bei Kenntnis des Ladungstransports alle linearen elektrooptischen Koeffizienten

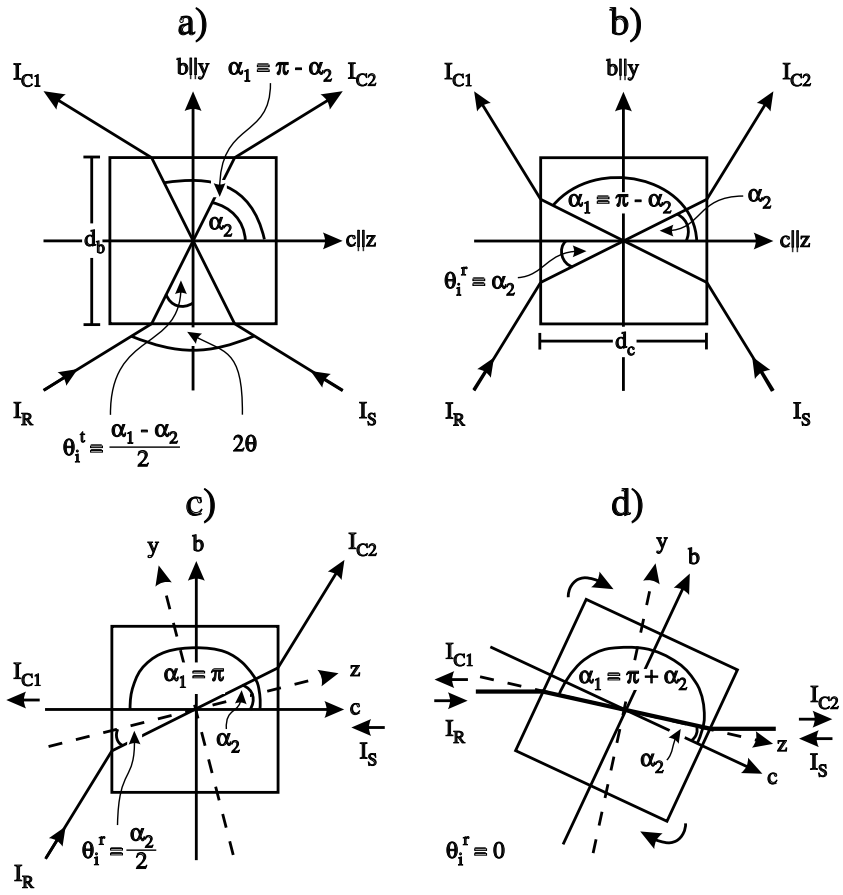


Abbildung 3.11: Schematische Darstellung der Geometrien für winkelabhängige Messungen des holographischen Verstärkungsfaktors: a) symmetrischer Einfall in Transmissionsgeometrie, b) symmetrischer Einfall in Reflexionsgeometrie, c) asymmetrischer Einfall in Reflexionsgeometrie, d) Kristall drehen in Reflexionsgeometrie. Die kristallographische a-Achse zeigt in allen Abbildungen stets in die Blattebene hinein.

r_{ij} mit Betrag und Vorzeichen sowie die effektive Anzahldichte der photorefraktiven Zentren N_{eff} bestimmt werden. Hierzu wird eine Fitprozedur entwickelt. Alle Winkel beziehen sich auf die Situation *im* Kristall.
In der Tabelle 3.1 sind die zugehörigen Gleichungen aufgelistet, deren Herleitung findet man im Anhang A. Die Konstanten A_i und B sind folgendermaßen gegeben:

$$A_1 := \frac{8\pi^2 \cdot n_o^4 \cdot k_B T}{\lambda^2 \cdot e} \cdot r_{13}, \tag{3.103}$$

$$A_2 := \frac{16\pi^2 \cdot n_o^2 n_e^2 \cdot k_B T}{\lambda^2 \cdot e} \cdot r_{42}, \tag{3.104}$$

$$A_3 := \frac{8\pi^2 \cdot n_e^4 \cdot k_B T}{\lambda^2 \cdot e} \cdot r_{33}, \tag{3.105}$$

a), b) Symmetrischer Einfall in Transmissions-, Reflexionsgeometrie				
Lichtpol. ∥ c	$\Gamma^{\mathrm{sym,c}}(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t})$	=	$[-\mathrm{A}_1 \cdot \sin^2(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t}) + \mathrm{A}_3 \cdot \cos^2(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t})] \times \frac{\sin(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t}) \cdot \cos(2\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t})}{\left[1+\left(\frac{\sin(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t})}{\mathrm{B}}\right)^2 \cdot \mathrm{n}_{\mathrm{eff}}^2(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t}) \cdot \epsilon_{33}\right]}$	(3.100i)
Lichtpol. ∥ a	$\Gamma^{\mathrm{sym,a}}(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t})$	=	$\mathrm{A}_1 \cdot \frac{\sin(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t})}{\left[1+\left(\frac{\sin(\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t})}{\mathrm{B}}\right)^2 \cdot \mathrm{n}_\mathrm{o}^2 \cdot \epsilon_{33}\right]}$	(3.100ii)
c) Asymmetrischer Einfall in Reflexionsgeometrie				
Lichtpol. ∥ c	$\Gamma^{\mathrm{r,asym,c}}(\alpha_2)$	=	$-\left[-\mathrm{A}_1 \cdot \cos(\alpha_2) + \mathrm{A}_2 \cdot \sin^2\left(\frac{\alpha_2}{2}\right)\right] \times \frac{\cos^2\left(\frac{\alpha_2}{2}\right) \cdot \cos(\alpha_2)}{\left[1+\left(\frac{\cos\left(\frac{\alpha_2}{2}\right)}{\mathrm{B}}\right)^2 \cdot \mathrm{n}_{\mathrm{eff}}^2(\alpha_2) \cdot \epsilon\left(\frac{\alpha_2}{2}\right)\right]}$	(3.100iii)
Lichtpol. ∥ a	$\Gamma^{\mathrm{r,asym,a}}(\alpha_2)$	=	$\mathrm{A}_1 \cdot \frac{\cos^2\left(\frac{\alpha_2}{2}\right)}{\left[1+\left(\frac{\cos\left(\frac{\alpha_2}{2}\right)}{\mathrm{B}}\right)^2 \cdot \mathrm{n}_\mathrm{o}^2 \cdot \epsilon\left(\frac{\alpha_2}{2}\right)\right]}$	(3.100iv)
d) Kristall drehen in Reflexionsgeometrie				
Lichtpol. ∥ c	$\Gamma^{\mathrm{r,rot,c}}(\alpha_2)$	=	$-[-\mathrm{A}_1 \cdot \cos^2(\alpha_2) + (\mathrm{A}_2 - \mathrm{A}_3) \cdot \sin^2(\alpha_2)] \times \frac{\cos(\alpha_2)}{\left[1+\mathrm{B}^{-2} \cdot \mathrm{n}_{\mathrm{eff}}^2(\alpha_2) \cdot \epsilon(\alpha_2)\right]}$	(3.100v)
Lichtpol. ∥ a	$\Gamma^{\mathrm{r,rot,a}}(\alpha_2)$	=	$\mathrm{A}_1 \cdot \frac{\cos(\alpha_2)}{\left[1+\mathrm{B}^{-2} \cdot \mathrm{n}_\mathrm{o}^2 \cdot \epsilon(\alpha_2)\right]}$	(3.100vi)

Tabelle 3.1: Formeln für den holographischen Verstärkungsfaktor Γ für die in Abb. 3.11 dargestellten Geometrien. Da $\theta_\mathrm{i}^\mathrm{r} = (\pi/2) - \theta_\mathrm{i}^\mathrm{t}$ können der symmetrische Einfall in Transmissionsgeometrie und in Reflexionsgeometrie durch eine Gleichung beschrieben werden, die nur von $\theta_\mathrm{i}^\mathrm{t}$ abhängt. Die Herleitung dieser Formeln findet man im Anhang A.2 bis A.6.

$$\mathrm{B} := \frac{\lambda \cdot \mathrm{e}}{4\pi} \sqrt{\frac{\mathrm{N}_{\mathrm{eff}}}{\epsilon_0 \cdot \mathrm{k}_\mathrm{B} \mathrm{T}}}. \tag{3.106}$$

Die Ausdrücke für die Winkelabhängigkeit des Brechungsindex und der Dielektrizitätskonstante sind aus Gründen der Übersichtlichkeit hier nicht aufgeführt. Diese kann man Anhang A entnehmen.
In der Abbildung 3.12 sind die theoretischen Kurven für die zuvor beschriebenen Situationen und für den Fall, dass alle nicht-verschwindenden linearen elektrooptischen Koeffizienten ein positives Vorzeichen haben, gezeigt. In der Abbildung 3.13 sind die Kurvenformen für alle möglichen Kombinationen der Vorzeichen dargestellt. Für die Berechnung der Kurven wurden folgende Werte für die physikalischen Parameter verwendet: $\mathrm{r}_{13} = 37\,\mathrm{pm/V}$, $\mathrm{r}_{33} = 237\,\mathrm{pm/V}$ [44], $\mathrm{r}_{42} = 30\,\mathrm{pm/V}$ [45], $\mathrm{N}_{\mathrm{eff}} = 1.0 \cdot 10^{17}\,\mathrm{cm}^{-3}$, $\epsilon_{11} = 900$ und $\epsilon_{33} = 1700$. Die Werte für r_{13} und r_{33} beziehen sich auf Ce-dotierte Kristalle. In [44] wird die genaue Dotierungskon-

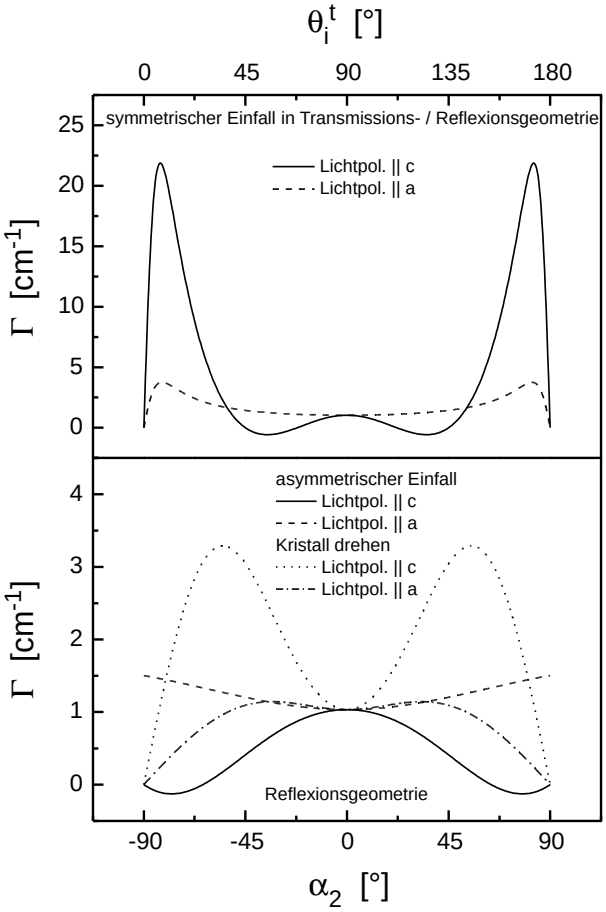


Abbildung 3.12: Theoretisch berechnete Verläufe für die Winkelabhängigkeit des holographischen Verstärkungsfaktors. Oben: symmetrischer Einfall in Transmissions- bzw. Reflexionsgeometrie. Unten: asymmetrischer Einfall und Kristall drehen in Reflexionsgeometrie. Die zur Berechnung der Kurven gewählten Parameter findet man im Text.

zentration nicht erwähnt. In [45] wird der Wert von r_{42} abgeschätzt aus dem Wert $r_{42} = 42\,\mathrm{pm/V}$ für SBN mit $x = 0.75$ [16, 95]. Die Dielektrizitätskonstanten sind der Tabelle 5.3 entnommen.

Anhand der Abbildung 3.12 kann die Größenordnung sowie die relative Änderung der Werte von Γ in Abhängigkeit des Einfallswinkels abgeschätzt werden. Dabei wurde für alle linearen elektrooptischen Koeffizienten ein positives Vorzeichen angenommen. Die größten Γ-Werte ($22\,\mathrm{cm}^{-1}$ für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse bzw. $5.2\,\mathrm{cm}^{-1}$ für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse) werden im Fall des symmetrischen Einfalls der Schreibstrahlen in Transmissionsgeometrie erreicht. Im Fall der Reflexionsgeometrie erkennt man, dass die Abhängigkeit von Γ von α_2 symmetrisch bzgl. $\alpha_2 = 0$ ist. Außerdem sieht man, dass sowohl für die Transmissions- als auch die

r_{13}	r_{42}	r_{33}	$\Gamma^{sym,c}(\theta_i^t)$	$\Gamma^{sym,a}(\theta_i^t)$	$\Gamma^{r,asym,c}(\alpha_2)$	$\Gamma^{r,asym,a}(\alpha_2)$	$\Gamma^{r,rot,c}(\alpha_2)$	$\Gamma^{r,rot,a}(\alpha_2)$
+	+	+						
−	+	+						
+	−	+	wie (+++)	wie (+++)		wie (+++)		wie (+++)
+	+	−		wie (+++)	wie (+++)	wie (+++)		wie (+++)
−	−	+	wie (-++)	wie (-++)		wie (-++)		wie (-++)
−	+	−		wie (-++)	wie (-++)	wie (-++)		wie (-++)
+	−	−	wie (++-)	wie (+++)	wie (+-+)	wie (+++)		wie (+++)
−	−	−	wie (-+-)	wie (-++)	wie (--+)	wie (-++)		wie (-++)

Abbildung 3.13: Kurvenformen für alle möglichen Kombinationen der Vorzeichen der linearen elektrooptischen Koeffizienten. Für nähere Erläuterungen s. Text.

Reflexionsgeometrie mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse die Parameter $A_1 \propto r_{13}$ und $B \propto \sqrt{N_{eff}}$ direkt bestimmt werden können. Messungen mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse stellen also eine reine Bedingung zur direkten Messung von r_{13} dar. Dagegen findet man bei Messungen mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse immer eine Kombination von mindestens zwei Parametern A_i und zusätzlich B. Es muss allerdings erwähnt werden, dass es nur eine Änderung von Γ von $\approx 6\,\%$ in dem Winkelbereich zwischen 0° und ±20° für den Fall der Reflexionsgeometrie gibt, $\Gamma^{r,asym,a}$ verläuft annähernd horizontal.

Den Einfluss der Vorzeichen der linearen elektrooptischen Koeffizienten erkennt man in der Abbildung 3.13. Die zweite Zeile beinhaltet die Kurven, die schon in der Abbildung 3.12 dargestellt sind und zuvor ausführlich diskutiert wurden. Die beiden Spalten mit den Kurven für den symmetrischen Einfall für beide Lichtpolarisationen sind dabei maßstabsgetreu, ebenso die vier Spalten mit den Kurven für die Reflexionsgeometrie. Im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse gibt es jeweils nur zwei voneinander verschiedene Kurvenformen, eine für das positive Vorzeichen von r_{13} und die an $\Gamma = 0$ gespiegelte Kurve für das negative Vorzeichen. Im Fall des symmetrischen und asym-

metrischen Einfalls mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse gibt es vier voneinander verschiedene Kurvenformen, da jeweils ein linearer elektrooptischer Koeffizient nicht wirksam ist. Im Fall des symmetrischen Einfalls ist das r_{42} und im Fall des asymmetrischen Einfalls ist das r_{33}. Die voneinander verschiedenen Kurven sind paarweise spiegelsymmetrisch zueinander bzgl. $\Gamma = 0$. Einzig im Fall der Drehung des Kristalls in Reflexionsgeometrie gibt es acht voneinander verschiedene Kurvenformen, die ebenfalls bzgl. $\Gamma = 0$ paarweise spiegelsymmetrisch zueinander sind. Hier sind alle nicht-verschwindenden linearen elektrooptischen Koeffizienten wirksam. Der Punkt $(\theta_i = 90\,°/1\,\mathrm{cm}^{-1})$, ensprechend $(\alpha_2 = 0\,°/1\,\mathrm{cm}^{-1})$ für das positive Vorzeichen von r_{13} bzw. der Punkt $(\theta_i = 90\,°/-1\,\mathrm{cm}^{-1})$, ensprechend $(\alpha_2 = 0\,°/-1\,\mathrm{cm}^{-1})$ für das negative Vorzeichen von r_{13} ist allen Kurven gemeinsam. Man sieht insbesondere, dass die Vorzeichen der Koeffizienten r_{13} und r_{33} durch die Verläufe von Γ für die unterschiedlichen Geometrien eindeutig festgelegt sind, also aus entsprechenden Messungen eindeutig bestimmt werden können. Das Vorzeichen von r_{42} kann dagegen für die gegebene Größenordnung des Wertes von r_{42} nicht eindeutig bestimmt werden, da ein Vorzeichenwechsel von r_{42} nicht zu einer Vorzeichenumkehr des Wertes von Γ führt, sondern nur die Krümmung der betreffenden Kurven ändert. Diese Änderung der Krümmung ist in dem Winkelbereich, der einer Messung zugänglich ist $(0 < \theta_i < 26\,°$ und $154 < \theta_i < 180\,°$ bzw. $-26 < \alpha_2 < +26\,°)$, nicht signifikant.
Man ist jetzt in der Lage, sowohl die nicht-verschwindenden Komponenten des linearen elektrooptischen Tensors r_{13}, r_{42}, r_{33} sowie die Anzahldichte der photorefraktiven Zentren N_{eff} zu bestimmen. Dabei werden aus den in diesem Kapitel vorgestellten Geometrien diejenigen ausgewählt, die gemäß der zuvor durchgeführten theoretischen Betrachtung die größte Variation der Winkelabhängigkeit von Γ sowie die größten Absolutwerte von Γ zeigten. Weiterhin werden so wenig wie möglich verschiedene Geometrien verwendet, um den Messaufwand zu minimieren. Eine Prozedur zur Bestimmung der eingangs genannten Größen ist dann die Folgende:

1. Da die Gleichungen (3.100i) und (3.100ii) für den symmetrischen Einfall der Schreibstrahlen mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- bzw. a-Achse sowohl für die Transmissions- als auch für die Reflexionsgeomtrie gelten, können die entsprechenden Messdaten als ein gemeinsamer Datensatz betrachtet werden.

2. In der Gleichung (3.100i) für den symmetrischen Einfall mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse gibt es drei Parameter A_1, A_3 und B. Die in 1. erwähnte Tatsache, dass die entsprechenden Messdaten zu einem Datensatz zusammengefasst werden können, gestattet es, alle drei Parameter A_1, A_3 und B frei zu lassen und diese durch eine Anpassung allein an $\Gamma^{\mathrm{sym,c}}$ zu bestimmen. Die Anpassung führt auch bei einer Variation der Startwerte zu einem stabilen Minimum.

3. Im dritten Schritt wird $A_2 \propto r_{42}$ mit der Methode der Kristalldrehung bestimmt. In der entsprechenden Gleichung (3.100v) gibt es vier Parameter A_1, A_2, A_3 und B. Die Parameter A_1, A_3 und B wurden im zweiten Schritt bestimmt. Setzt man diese Werte in Gleichung (3.100v) ein und hält sie fest, so erhält man aus der Anpassung den Parameter A_2.

4. Schließlich können die gesuchten Größen r_{13}, r_{42}, r_{33} N_{eff} gemäß den Gleichungen (3.103), (3.104), (3.105) und (3.106) bestimmt werden.

3.9 Abhängigkeit von Γ von der Temperatur T

Messungen der Temperaturabhängigkeit des holographischen Verstärkungsfaktors Γ gestatten eine holographische Detektion des relaxorartigen Phasenübergangs in SBN. Gemäß den Gleichungen (3.8) und (3.78) bis (3.80) ist Γ direkt proportional zu dem Produkt aus effektivem linearen elektrooptischen Koeffizienten r_{eff} und dem Raumladungsfeld E_{sc}. Für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse und für einen Bragg-Winkel θ von 20 ° gilt in guter Näherung $r_{eff} \approx r_{33}$. Einsetzen der Ausdrücke (3.54) und (3.79) für E_{sc} und r_{33} ergibt:

$$\Gamma(T) = \frac{A_T}{1 + \left(\frac{B_T}{\epsilon_{33}(T) \cdot T}\right)} \cdot P_3(T) \tag{3.107}$$

mit den Konstanten

$$A_T = \frac{4\pi \cdot n_{eff}^3 \cdot e \cdot N_{eff} \cdot g_{33} \cdot \cos(2\theta_i)}{\lambda \cdot K \cdot \cos(\theta_i)} \tag{3.108}$$

$$B_T = \frac{e^2 \cdot N_{eff}}{\epsilon_0 \cdot k_B \cdot K^2}. \tag{3.109}$$

Die Temperaturabhängigkeit sowohl des Brechungsindex als auch die des quadratischen elektrooptischen Koeffizienten g_{33} ist nur schwach [96] und wird daher vernachlässigt. Über die Temperaturabhängigkeit von N_{eff} gibt es keine verlässlichen Angaben in der Literatur, daher wird auch diese hier vernachlässigt.

3.10 Abhängigkeit von Γ und η von einem externen elektrischen Feld E_0

Der Inhalt dieses Kapitels ist im Wesentlichen [48] entnommen.
Es wird beschrieben, in welcher Weise insbesondere das Anlegen eines externen elektrischen Feldes das Schreiben und Auslesen eines Hologramms beeinflusst. Da Experimente mit angelegten externen elektrischen Feldern ausschließlich in einer Transmissionsgeometrie durchgeführt werden, beschränkt sich die Angabe

der relevanten Formeln hierauf. Die Größe E_{0W} bezeichnet im Folgenden das elektrische Feld, das während des Schreibprozesses an die Probe angelegt wird, E_{0L} das elektrische Feld, das während des Auslesens angelegt wird.
Die zentrale Größe ist der sogenannte Detuning-Parameter. Dieser setzt sich wie folgt zusammen:

$$\xi(y) = 2(\xi_{Kog}(\Delta\theta_\rho, \Delta\lambda) + \xi_{EO}(E_{0L}, E_{0W}) + \xi_{Piezo}(E_{0L}, E_{0W})) + \xi_{Pk}(y). \quad (3.110)$$

Die Komponente $\xi_{Kog}(\Delta\theta_\rho, \Delta\lambda)$ beschreibt eine Verletzung der Bragg-Bedingung durch eine Änderung des Winkels, unter dem das Hologramm ausgelesen wird bzw. einer Änderung der Wellenlänge. Hierfür gilt die Gleichung (3.84).
Die Komponente $\xi_{EO}(E_{0L}, E_{0W})$ beschreibt eine Verletzung der Bragg-Bedingung durch den elektrooptischen Effekt und ist gegeben durch:

$$\xi_{EO}^{t,e} = \frac{2\pi \cdot d}{\lambda} \cdot \frac{1}{8} \cdot n_e \cdot (\sin^2(\theta_R) - \sin^2(\theta_S)) \cdot [r_{33}(E_{0L}) \cdot E_{0L} - r_{33}(E_{0W}) \cdot E_{0W}] \quad (3.111)$$

$$\xi_{EO}^{t,o} = \frac{2\pi \cdot d}{\lambda} \cdot \frac{1}{8} \cdot n_o \cdot (\sin^2(\theta_R) - \sin^2(\theta_S)) \cdot [r_{13}(E_{0L}) \cdot E_{0L} - r_{13}(E_{0W}) \cdot E_{0W}] \quad (3.112)$$

Die Komponente $\xi_{Piezo}(E_{0L}, E_{0W})$ beschreibt eine Verletzung der Bragg-Bedingung durch den piezoelektrischen Effekt. Diese ist gegeben durch

$$\xi_{Piezo} = \frac{d}{2} \cdot \Delta K = \frac{d}{2} \cdot d_{33} \cdot (E_{0W} - E_{0L}) \cdot \frac{2\pi}{\Lambda}. \quad (3.113)$$

Dabei ist die Deformation gegeben durch

$$\left|\frac{\Delta K}{K}\right| = \left|\frac{\Delta\Lambda}{\Lambda}\right| = d_{33} \cdot E_{0W,L}. \quad (3.114)$$

Für $d = 1\,mm$, $d_{33} = 204\,pC/N$ (Tab. 5.2 für 0.66 mol% Ce), $E_{0W} = 0$, $E_{0L} = 600\,V/mm$ und $\Lambda = 1\,\mu m$ ergibt sich $|\Delta\Lambda/\Lambda| = 1.22 \cdot 10^{-4}$ und $\xi_{Piezo} = -0.38$.
Die Komponente $\xi_{Pk}(y)$ beschreibt eine Verletzung der Bragg-Bedingung durch die Phasenkopplung (Kapitel 3.1.1). Diese ist allgemein gegeben durch:

$$\xi_{Pk}(y) = d \cdot \frac{d\Psi(y)}{dy} \quad (3.115)$$

und im Fall einer Transmissionsgeometrie:

$$\xi_{Pk}^{t}(y) = -d \cdot B \cdot \tanh\left(\frac{\Gamma y - \ln(\beta_0)}{2}\right). \quad (3.116)$$

Dabei ist d die Kristalldicke und β_0 das Intensitätsverhältnis der einfallenden Strahlen. Die Parameter Γ und B sind durch die Gleichungen (3.15) und (3.16) gegeben. Daraus wird ersichtlich, dass der Beitrag der Phasenkopplung auf einer

Änderung der Phasenverschiebung Φ zwischen der Intensitätsmodulation und der Modulation des Brechungsindex durch ein angelegtes externes elektrisches Feld beim Schreiben eines Hologramms beruht (Abb. 3.6). Wenn das Hologramm also ohne Feld bis zum Erreichen eines Sättigungszustands geschrieben wurde, dann wird Φ beim anschließenden Auslesen mit Feld nicht beeinflusst. Es findet keine Verletzung der Bragg-Bedingung durch die Phasenkopplung statt.
Für $\Delta\theta = 0 = \Delta\lambda$, $\theta_R = \theta_S$ und $E_{0W} = 0$ liefert also nur der piezoelektrische Effekt einen Beitrag zum Detuning-Parameter. Insgesamt folgt aus den obigen Betrachtungen, dass ein Hologramm, das ohne angelegtes externes elektrisches Feld und unter symmetrischem Einfall geschrieben wurde, beim Auslesen mit einem angelegten externen elektrischen Feld nicht signifikant beeinflusst wird. Der Detuning-Parameter geht in die Gleichung für die Berechnung des Beugungswirkungsgrades als additives quadratisches Glied ξ^2 [69] bzw. als Faktor $\sin(\xi)/\xi$ [91] ein (Kap. 3.4). Da für kleine ξ gilt: $\xi^2 < 1$ und $\sin(\xi) \approx \xi$, also $\sin(\xi)/\xi \approx 1$, kann dieser Beitrag vernachlässigt werden. Diese Tatsache ermöglicht es, die ferroelektrische Polarisation, also den Ordnungsparameter des ferroelektrischen Phasenübergangs in SBN, holographisch zu messen, indem man ein eingeschriebenes Hologramm zur Detektion benutzt.
Die externe Spannung beim Auslesen des Hologramms wird, wie in der Abbildung 3.14 dargestellt, parallel zur polaren c-Achse an die Probe angelegt.

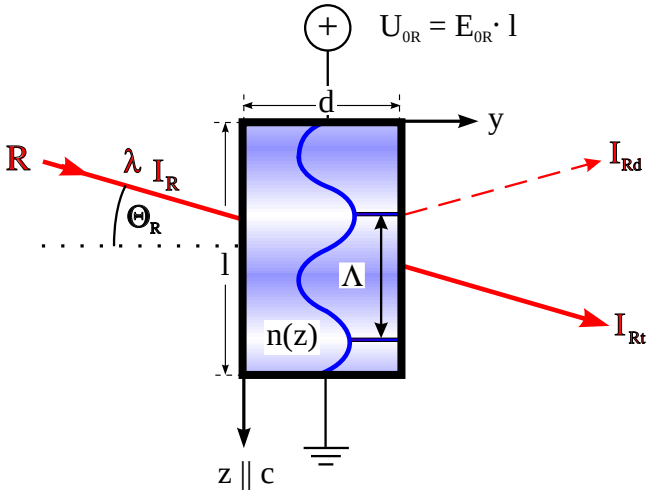


Abbildung 3.14: Anlegen einer externen elektrischen Spannung beim Auslesen des Hologramms.

Kapitel 4

Experimenteller Aufbau

Die Abbildung 4.1 zeigt den typischen experimentellen Aufbau zur Durchführung holographischer Zweistrahlkopplungs-Experimente. Ein großer Teil der Experimente wurde mit dem Helium-Neon-Laser ($\lambda = 632.8$ nm, Ausgangsleistung 17 mW) durchgeführt. Der Laserstrahl passiert eine Strahlaufweitung, die den Strahldurchmesser um den Faktor 2.3 vergrößert. Eine Lochblende mit einem Durchmesser von 20 μm dient zur Raumfrequenzfilterung. Hinter der Strahlaufweitung kann zur Einkopplung weiterer Laserquellen ein zusätzlicher Spiegel SP0 in den Strahlengang gestellt werden. Dadurch steht zwar der Helium-Neon-Laser nicht mehr zur Verfügung, es wird jedoch die Leistung der eingekoppelten Laserquelle optimal ausgenutzt. Daher wurde auf einen fest installierten Strahlteiler verzichtet. Alle in dieser Arbeit verwendeten Laserquellen sind in der Tabelle 4.1 aufgelistet. Der Laserstrahl durchläuft zur Auskopplung eines schwachen Tast-

Bezeichnung	Hersteller/Vertreiber	λ [nm]	P [mW]
Red HeNe	Coherent	632.8	17
Sapphire 488-20		488	20
Compass 315M-150		532	150
LGTC 658-50	Laser Technologies	658	38
LGTC 685-50		685	40
LGTC 785-50		785	< 42

Tabelle 4.1: Bezeichnung, Hersteller bzw. Vertreiber, Wellenlänge und Ausgangsleistung der verwendeten Laserquellen.

strahls eine planparallele Platte PP1 der Dicke 6.3 mm aus Herasil. Der Taststrahl wird mit Hilfe von zwei Spiegeln SP1 und SP2 umgelenkt und anschließend durch eine zweite planparallele Platte PP2 wieder in den Strahlengang eingekoppelt. Zur Einstellung der gewünschten Intensität des Taststrahls können zusätzliche Neutralfilter NF in den Tastarm gestellt werden. Die exakte Kollinearität von Primär- und Taststrahl wird durch die Justage auf Interferenz beider Strahlarme

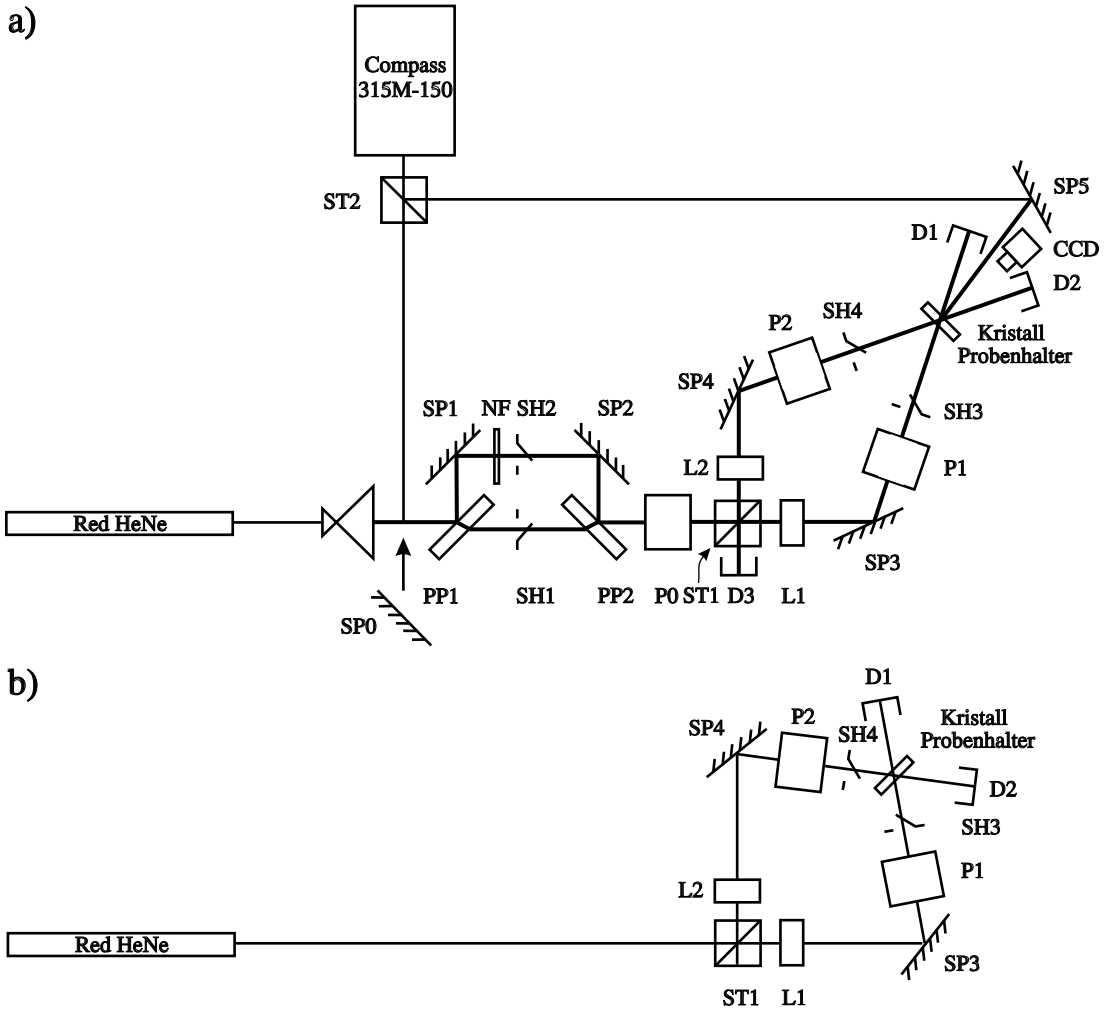


Abbildung 4.1: Schematische Skizze des experimentellen Aufbaus zur Durchführung holographischer Zweistrahlkopplungs-Experimente, a) Transmissionsgeometrie, b) Reflexionsgeometrie.

gewährleistet. Zwei elektronische Verschlüsse SH1 und SH2 dienen zur Auswahl des Primär- bzw. Tastarms. Hinter der planparallelen Platte PP2 befindet sich ein Polarisator P0, so dass im weiteren Strahlengang dieselbe Polarisationsrichtung sowohl des Schreib- als auch des Tastarms gewährleistet ist. Der Strahlteiler ST1 teilt den Laserstrahl symmetrisch in zwei holographische Schreibstrahlen auf, den Signalstrahl und den Referenzstrahl. Diese werden mittels der Spiegel SP3 bzw. SP4 auf die Probe umgelenkt. In jedem der beiden Schreibstrahlen befindet sich ein Polarisator P1 bzw. P2 sowie eine $\lambda/2$-Verzögerungsplatte L1 bzw. L2 zur Einstellung der Lichtpolarisation bzw. der Lichtintensität und des Intensitätsverhältnisses. Mit Hilfe der elektronischen Verschlüsse SH3 bzw. SH4 können die beiden Schreibstrahlen einzeln freigegeben oder abgeblockt werden. Der Kristall

ist auf einem Probenhalter befestigt, der einen mechanischen Drehkranz als Basis hat. Darauf ist ein zweiachsiger Verkipptisch TTN-80 von Newport montiert. Diese beiden Einheiten gestatten die exakte Positionierung der Probe im Strahlengang. Auf dem Verkipptisch befindet sich ein mit Silberleitlack befestigtes Peltier-Element, so dass temperaturabhängige Messungen durchgeführt werden können. Die Art der Fixierung des Kristalls auf dem Peltier-Element hängt davon ab, welcher Parameter im Experiment variiert wird. Die entsprechenden Elemente zum Fixieren der Probe sind in der Abbildung 4.2 dargestellt. Im Fall der tempe-

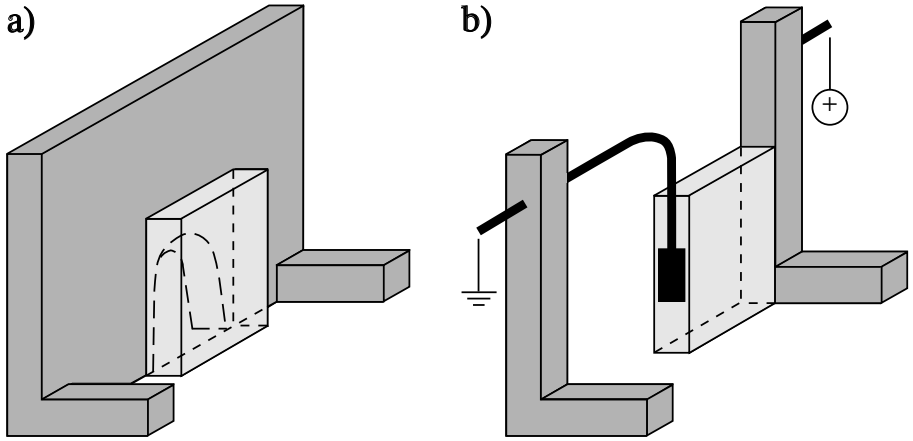


Abbildung 4.2: Elemente, die zur Fixierung des Kristalls auf dem Probenhalter dienen, a) für dynamische und temperaturabhängige Messungen, b) für Messungen in Abhängigkeit eines externen elektrischen Feldes und für winkelabhängige Messungen.

raturabhängigen Messungen wurde ein L-Halter aus Aluminium mit Silberleitlack auf das Peltier-Element aufgeklebt (Abb. 4.2a)). Der Halter besitzt ein Loch mit einem ausreichend großen Durchmesser, so dass die Schreibstrahlen unter einem externen Bragg-Winkel von etwa 20° auf die Kristalloberfläche einfallen können. Im Fall der Messungen in Abhängigkeit von einem externen elektrischen Feld und der winkelabhängigen Messungen wurden zwei schmale L-Halter aus Kupfer räumlich getrennt im Abstand von etwa 1 cm auf das Peltier-Element aufgeklebt, an die mittels zweier Krokodilklemmen Seele und Abschirmung (Masse) des Hochspannungskabels befestigt wurden (Abb. 4.2b)). Die Überlagerung der beiden Schreibstrahlen kann mit einer CCD-Kamera mit einem vorgeschalteten Objektiv geeigneter Brennweite kontrolliert und optimiert werden. Aufgrund der typischen Kristalldicken von etwa 1 mm und aufgrund des gegebenen Strahldurchmessers am Ort der Probe kann man davon ausgehen, dass die gesamte Kristallbreite (typisch etwa 5 mm) homogen ausgeleuchtet wird. Die transmittierten Intensitäten der Schreibstrahlen werden schließlich mit zwei Si-Photodioden detektiert, indem die Intensitäten in einen proportionalen Strom umgewandelt, verstärkt, und zum Einlesen in entsprechende Dateien an den Messrechner übermittelt wer-

den. Vor den Dioden wurden jeweils zwei Blenden mit einem Durchmesser von 400 μm installiert, so dass nur der Bereich des Maximums der GAUSSschen Intensitätsverteilung der Laserstrahlen detektiert wird. Auf diese Weise wird der Einfluss der gesamten inhomogenen Intensitätsverteilung insbesondere auf die Schreib- und Löschzeiten beseitigt. Die Steuerung der Messabläufe wird ebenfalls vom Rechner übernommen. Im Fall hoher Schreibgeschwindigkeiten, das ist insbesondere für kleine Dotierungskonzentrationen der Fall, wurde zur Aufnahme der Messdaten wegen der besseren Zeitauflösung statt des Rechners ein digitales Oszilloskop TDS220 von Tektronix verwendet. In diesem Fall wurde nur die Steuerung der Verschlüsse vom Rechner übernommen und damit das Oszilloskop synchronisiert. Die Verwendung des Oszilloskops beschränkte sich zudem auf die Fälle, in denen der Verstärkungsbereich der Messdioden aufgrund eines geringen holographischen Verstärkungseffektes nicht geändert werden musste. Da bei den meisten in dieser Arbeit untersuchten Kristallen eine hohe Schreibgeschwindigkeit in der Regel mit einem geringen Verstärkungseffekt einherging, stellte eine Änderung des Verstärkungsbereichs der Messdioden hier kein Problem dar.

Im Folgenden werden die Abläufe von Messungen der holographischen Zweistrahlkopplung detailliert erläutert.

4.1 Vorbereitung der Proben und Einstellung der Optik

4.1.1 Polung

Zuerst wird der Kristall gepolt, d.h. in einen eindomänigen Zustand überführt. Dazu wird er mit einer Hochspannungsquelle kontaktiert und vollständig in Silikonöl eingetaucht. Das Öl wird auf etwa 150 °C erhitzt, dann ein elektrisches Feld von etwa 350 V/mm an den Kristall angelegt. Der Kristall wird unter dem angelegten Feld schließlich wieder auf Raumtemperatur abgekühlt. Dieser Vorgang dauert typischerweise 2 Stunden. Anschließend wird der Kristall gereinigt und in den Probenhalter eingebaut. Hierbei ist zu bemerken, dass für eine Ce-Dotierung von 2.07 mol% und Cr-Dotierungen $\geq$ 1.0 mol% der Phasenübergangsbereich bei Raumtemperatur liegt und daher eine Polung dieser Kristalle problematisch ist. Die Sättigungswerte insbesondere des Verstärkungsfaktors sind dann stark abhängig von der Durchfürung der Polung, insbesondere von der Größe des angelegten elektrischen Feldes. Eindeutige physikalische Schlussfolgerungen aus den Messungen sind dadurch schwer zu treffen. Aus diesem Grund sind die genannten Dotierungen in vielen Messserien nicht berücksichtigt worden.

4.1.2 Einbau in den Kristallhalter

Im Fall des massiven Probenhalters mit kreisförmiger Aussparung (Abb. 4.2a)) wird der Kristall auf seine Unterkante gestellt und seine Vorderfläche mit der Rückseite des Halters durch Leitsilber kontaktiert. Auf diese Weise hat der Kristall einen ausreichenden thermischen Kontakt zum Peltier-Element und ist kurzgeschlossen, so dass durch den pyroelektrischen Effekt auftretende Oberflächenladungen abgeführt werden können. Die polare c-Achse des Kristalls liegt dabei stets parallel zur Tischebene. Im Fall des hochspannungstauglichen Halters (Abb. 4.2b)) wird der Kristall auf seine Unterkante gestellt und mit einer Seitenfläche direkt mit Leitsilber mit einem der L-Stücke verbunden. Der Kontakt zu dem anderen L-Stück erfolgt durch einen Draht, der vorsichtig an die andere Seitenfläche des Kristalls herangeführt wird, um den mechanischen Druck zu minimieren. Auf diese Weise ist eine ungeklemmte Randbedingung weitgehend erfüllt. Dieser Halter wurde auch für die winkelabhängigen Messungen verwendet.

4.1.3 Einstellung der Polarisation und der Lichtintensität

Mit Hilfe der $\lambda/2$-Verzögerungsplatten können in jedem Schreibstrahl die Polarisationsrichtungen eingestellt werden. Die Laserquellen sind stets so einjustiert, dass die ausgehende Lichtwelle senkrecht polarisiert ist. D.h. im Falle von Messungen mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse braucht die Lichtpolarisation des Lasers nicht gedreht zu werden, die Verzögerungsplatten befinden sich in senkrechter Stellung. Im Fall von Messungen mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse wird die ausgehende Lichtpolarisation um $90\,^\circ$ gedreht, die Verzögerungsplatten befinden sich jetzt in Diagonalstellung. Anschließend werden die beiden Polarisatoren in den Strahlengang gestellt, um die durch die Verzögerungsplatten voreingestellten Lichtpolarisationen zu parallelisieren. Jetzt können die Verzögerungsplatten dazu verwendet werden, das Lichtintensitätsverhältnis zwischen Pump- und Signalstrahl einzustellen. Dieses beträgt typischerweise 1000:1, hierbei findet eine Verstärkung des Signalstrahls ohne nennenswerten Intensitätsverlust des Pumpstrahls, eine Kleinsignalverstärkung, statt.

4.2 Schreiben und Löschen von Hologrammen

Zur Aufnahme der Dynamik des Schreibens und Löschens von Hologrammen wird ein bereits in den Kristall eingeschriebenes Hologramm vor jeder neuen Messung durch homogene Beleuchtung gelöscht, um für alle Messungen denselben Ausgangszustand zu haben. Dies geschieht mit einer Kaltlichtlampe, deren weißes und inkohärentes Licht mit einem Lichtleiter und einer geeigneten Optik auf den Kristall gelenkt wird. Auf diese Weise ist auch das Löschen vorhandener

Streugitter gewährleistet. Jede Messung beginnt mit der Aufnahme der transmittierten Intensitäten und des Streulichts, das die Schreibarme auf den Messdioden verursachen. Diese Werte werden bei der Berechnung des Verstärkungsfaktors bzw. des Beugungswirkungsgrades zur Normierung (transmittierte Intensitäten) und zur Korrektur (Streulicht) benötigt. Dies geschieht folgendermaßen: Die Verschlüsse SH3 und SH4 sind zunächst geschlossen. Dann wird Verschluss SH3 geöffnet und die auf die Photodioden treffenden Intensitäten aufgenommen und eingelesen. Diode D1 registriert jetzt die transmittierte Intensität des Signalstrahls und Diode D2 das Streulicht, das der Signalstrahl auf der Diode D2 verursacht. Verschluss SH3 wird wieder geschlossen und Verschluss SH4 geöffnet. Jetzt registriert Diode D2 die transmittierte Intensität des Pumpstrahls und Diode D1 das Streulicht, das der Pumpstrahl auf der Diode D1 verursacht. Anschließend wird Verschluss SH3 wieder geöffnet, so dass jetzt beide Verschlüsse gleichzeitig geöffnet sind und der Schreibvorgang beginnt. Typische Öffnungszeiten für die Verschlüsse sind 100 ms. Die Intensitäten werden solange aufgenommen, bis ein Sättigungszustand erreicht ist, d.h. der Verlauf der Intensität des Signalstrahls in Abhängigkeit von der Zeit annähernd horizontal ist. Wenn die Aufnahme des Schreibprozesses beendet ist, werden alle elektronischen Verschlüsse geschlossen. Wird zusätzlich der Löschvorgang aufgenommen, so wird nach dem Schreiben des Hologramms nur der Verschluss SH3 geschlossen, d.h. der Signalstrahl abgeblockt. Durch die homogene Beleuchtung des Kristalls allein mit dem intensiven Pumpstrahl wird das Hologramm jetzt gelöscht, und zwar in der Bragg-Bedingung. Dieser Vorgang wird im Weiteren als In-Bragg-Löschvorgang bezeichnet. Diode D2 detektiert in diesem Fall die transmittierte Intensität des Pumpstrahls und Diode D1 die abgebeugte Intensität des Pumpstrahls. Die Intensität, mit der das Hologramm gelöscht wird, entspricht hier der Intensität des Pumpstrahls. Eine Variation der Löschintensität ist möglich, indem man vor den Strahlteiler ST1 einen entsprechenden Abschwächer stellt. Werden sowohl Schreib- als auch Löschvorgang durch eine einzige, hintereinander ablaufende Messung aufgenommen, wird der Abschwächer vor Beginn der Schreibmessung in den Strahlengang gestellt. Aufgrund des großen Intensitätsverhältnisses zwischen Pump- und Signalstrahl von 1000:1 entspricht die gesamte Schreibintensität in guter Näherung der Intensität des Pumpstrahls und damit der Löschintensität. Wird das Hauptaugenmerk auf den Löschvorgang gelegt, so wird zuerst bei der maximal möglichen Pumpintensität geschrieben, um die Messzeit zu minimieren, dann beide Schreibstrahlen abgeblockt, der Abschwächer in den Strahlengang gestellt und schließlich in einer zweiten Messung allein der Pumpstrahl freigegeben. Die Totzeit zwischen dem Schreib- und Löschvorgang, während der das eingeschriebene Hologramm im Dunkeln verbleibt, stellt aufgrund der geringen Dunkelleitfähigkeit von dotiertem, kongruent schmelzendem SBN kein Problem bzgl. eines möglichen Löschvorgangs im Dunkeln dar. In der Regel wird der Löschvorgang jedoch durch Auskopplung eines externen Löschstrahls aus dem Schreiblaser durchgeführt. Eine solche Messung wurde zu Vergleichszwecken für

$\lambda = 532\,\mathrm{nm}$ gemacht, da die hohe Ausgangsleistung des Compass-Lasers eine solche Auskopplung gestattet, ohne die Schreibintensität zu stark zu minimieren, so dass die Schreibzeit nicht zu lang wird. Für diese Messung wurde der Strahl des Compass-Lasers mit Hilfe eines Strahlteilers ST2 in einen Schreib- und einen Löschstrahl aufgeteilt (Abb. 4.1). Der Schreibstrahl wurde in das Interferometer eingekoppelt, der Löschstrahl wurde mittels des Spiegels SP5 so auf die Rückseite des Kristalls gelenkt, dass er nahezu senkrecht einfällt. Wichtig hierbei ist, dass das Hologramm mit derselben Wellenlänge gelöscht wird, mit der es geschrieben wurde. Der Ablauf einer solchen Off-Bragg-Löschmessung sieht folgendermaßen aus: Zunächst wird ein Hologramm bis in Sättigung geschrieben wie oben bereits dargestellt. Dann wird der Verschluss SH4 geschlossen. Der schwache Signalstrahl, der hier anstelle des ausgekoppelten Tastarms verwendet wird, bleibt permanent auf der Probe und wird als Taststrahl zum Auslesen des Beugungswirkungsgrades verwendet. Die Bragg-Bedingung wird damit automatisch erfüllt. Gleichzeitig wird das Hologramm durch den freigegebenen Löschstrahl gelöscht. Um zu vermeiden, dass Tast- und Löschstrahl ein weiteres Hologramm in den Kristall schreiben, wurden ihre Lichtpolarisationen orthogonal zueinander gewählt. D.h. bei einer Schreibmessung mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse (horizontal) wurde die Lichtpolarisation des Löschstrahls parallel zur kristallographischen a-Achse (vertikal) eingestellt. Um den Einfluss des Streulichts des Löschstrahls auf den Photodioden zu minimieren, wurden diese mit jeweils einem Polarisator versehen, der nur die horizontalen Anteile der Polarisation durchlässt.

4.3 Messungen von Γ in Abhängigkeit des Bragg-Winkels

Im Fall der winkelabhängigen Messungen wurden alle Optiken und der Kristallhalter mittels Reitern auf optische Bänke montiert. Ein bestimmter Bragg-Winkel wurde durch die relative Position der beiden Spiegel SP3 und SP4 (Abb. 4.1) sowie des Kristallhalters voreingestellt und folgendermaßen gemessen: Zunächst wurden der Referenz- und Signalstrahl exakt auf der Probe überlagert. Dann wurde der Kristall mittels des mechanischen Drehkranzes so gedreht, dass der Reflex des Referenzstrahls exakt in den einfallenden Strahl zurückfällt. Die entsprechende Winkelposition relativ zu der Referenzmarkierung auf dem Drehkranz wurde notiert. Dann wurde der Kristall in die entgegengesetzte Richtung gedreht, so dass der Reflex des Signalstrahls exakt in den einfallenden Strahl zurückfällt. Die entsprechende Winkelposition wurde ebenfalls notiert. Die Differenz der gemessenen Winkelpositionen ergibt dann den doppelten Bragg-Winkel, also den Winkel, den die beiden Schreibstrahlen miteinander einschließen. Berücksichtigt man die Geometrie des Strahlprofils der Reflexe und die Ablesegenauigkeit auf dem Dreh-

kranz, so konnten die Winkel auf etwa 0.5° genau eingestellt werden. Um die Einstellung von doppelten Bragg-Winkeln zwischen 0 und 90° zu gewährleisten, wurde der in der Abbildung 4.2b) dargestellte Probenhalter verwendet. Für einen wie oben beschrieben eingestellten Bragg-Winkel wurde dann der Sättigungswert des Verstärkungsfaktors wie in 4.2 erläutert, bestimmt.

4.4 Messungen von Γ in Abhängigkeit von der Temperatur

Für die temperaturabhängigen Messungen stand ein Temperaturregelungsgerät zur Verfügung, das nach dem PID-Prinzip arbeitet. Die entsprechenden Parameter wurden speziell für die verwendete Kombination aus Kristallhalter und Peltier-Element optimiert. Im Fall der hier durchgeführten Messungen wurde das Gerät nicht vom Rechner gesteuert, sondern im manuellen Modus betrieben. Um eine Langzeit-Temperaturstabilität von $< 1\,^{\circ}\mathrm{C}$ zu gewährleisten, wurde das Peltier-Element auf einen Kühlblock, der an einen Wasserkreislauf angeschlossen war, aufgesetzt. Als Temperaturfühler diente ein temperaturabhängiger Platin-Widerstand PT1000, der so nah wie möglich an der Probe mit Silberleitlack befestigt wurde.
Der Ablauf einer Messung gestaltete sich wie folgt: Zunächst wurde eine Temperatur in der Nähe der Raumtemperatur eingestellt, typischerweise 24°. Dann wurde ein Gitter in Sättigung geschrieben, der Verstärkungsfaktor bestimmt und schließlich eine andere Temperatur eingestellt. Während dieser Prozedur befanden sich beide Schreibstrahlen stets auf der Probe. Da jede Einstellung einer anderen Temperatur eine Störung des bereits eingeschriebenen Gitters darstellt, kann davon ausgegangen werden, dass das Gitter dabei jedesmal nachgeschrieben wurde. Um zu überprüfen, ob dies Auswirkungen auf den Sättigungswert des Verstärkungsfaktors hat, wurde die Messung wie folgt variiert: Es wurde eine Temperatur eingestellt und ein Gitter in Sättigung geschrieben. Dieses Gitter wurde bei der entsprechenden Temperatur erst gelöscht, dann die nächste Temperatur eingestellt und ein weiteres Gitter in Sättigung geschrieben. Da die Ergebnisse beider Methoden gut übereinstimmten und die erste Methode weniger Aufwand erfordert, wurde diese Methode für die Messungen verwendet.

4.5 Messungen von Γ und η in Abhängigkeit von einem externen elektrischen Feld

Für die Messungen in Abhängigkeit externer elektrischer Felder stand ein rechnersteuerbarer Hochspannungsverstärker des Typs HCV 14-3500 der Firma FuG zur Verfügung. Die Messungen konzentrierten sich hauptsächlich auf die holographi-

sche Aufnahme ferroelektrischer Hysteresen. Eine solche Hysteresemessung läuft wie folgt ab: Zunächst wird, wie oben beschrieben, ein Hologramm in Sättigung geschrieben. Dann werden die Schreibstrahlen geblockt und der ausgekoppelte Tastarm freigegeben. In Abständen von typischerweise 5 s wurde dann das eingeschriebene Hologramm ausgelesen, zunächst mit einem der Schreibstrahlen allein, dann mit beiden Schreibstrahlen simultan. Gleichzeitig wurde in denselben Zeitabständen das externe elektrische Feld variiert, in Schritten von 20 V/mm entgegen der ursprünglichen Polungsrichtung bis etwa -460 V/mm, über 0 V/mm nach +460 V/mm, schließlich wieder zurück nach 0 V/mm. Ein solcher Zyklus wurde in der Regel zehn mal durchlaufen. Aus den gemessenen Werten kann sowohl der Beugungswirkungsgrad berechnet als auch ein Wert für den Verstärkungsfaktor angegeben werden. Daraus wird jeweils der Wert für die Brechungsindexänderung berechnet und gegen das externe Feld aufgetragen. Auf diese Weise ist eine gegenseitige Kontrolle der Werte, die aus Messungen des Beugungswirkungsgrades und aus Messungen des Verstärkungsfaktors hervorgehen, möglich. Die Verwendung eines externen Tastarms zum Auslesen der Hologramme ist hier im Gegensatz zu den Löschmessungen nötig, da das Einbringen eines zusätzlichen Abschwächers in den Strahlengang nach dem Schreiben des Hologramms problematisch ist. Dies hängt damit zusammen, dass neben dem Beugungswirkungsgrad auch der Verstärkungsfaktor getastet wird. Eine externe Störung wie etwa das Einbringen des Abschwächers beeinflusst die Phasenverschiebung zwischen den beiden Taststrahlen und somit die durch das Schreiben des Hologramms festgelegte Phasenverschiebung zwischen Lichtinterferenzmuster und Brechungsindexgitter. Dies kann zu einer beträchtlichen Reduktion des Wertes für den Verstärkungsfaktor beim Auslesen gegenüber dem Sättigungswert beim Einschreiben des Hologramms führen. Eine signifikante Beeinflussung des Hologramms durch das angelegte externe elektrische Feld gibt es dagegen nicht (Kap. 3.10).
Es wurden auch Hysteresekurven während des Schreibvorgangs aufgenommen. In diesem Fall wird das einmal geschriebene Hologramm durch das angelegte externe elektrische Feld beeinflusst. Daher wurde das Hologramm bei jedem Einstellen einer anderen Feldstärke bis in einen Sättigungszustand nachgeschrieben. Löschen des Hologramms vor dem Einstellen einer anderen Feldstärke und anschließendes Neuschreiben liefert dasselbe Ergebnis. Aus praktischen Gründen wurde das Nachschreiben gegenüber dem Neuschreiben bevorzugt.

Kapitel 5

Experimentelle Ergebnisse

5.1 Einbau von Chrom in den Kristall

Im Folgenden werden beispielhaft für SBN61:Cr die Messverfahren der Neutronenaktivierungs- (INAA) und der Röntgenfluoreszenzanalyse (XRF) erläutert. Anschließend werden die mittels der beiden Verfahren bestimmten Konzentrationen der Elemente Sr, Ba, Nb und des Dotierungselementes Cr sowie von Spurenelementen, die mit den genannten Elementen oder während des Züchtungsprozesses in den Kristall eingebaut werden, vorgestellt.

Alle Kristalle, die für die XRF-Messungen verwendet wurden, hatten ein Gewicht von etwa 400 mg. Als Normsubstanzen wurden $SrCO_3$, $BaCO_3$ und Nb_2O_5 verwendet, alle mit einer Reinheit von 99.995 %. Die Dotierungselemente wurden entsprechend zu den Normsubstanzen hinzugefügt. Jede Probe wurde mit 3.6 g $Li_2B_4O_7$ vermischt, an der Luft auf die Schmelztemperatur von 920 °C erhitzt und anschließend in eine homogene Scheibe der Dicke 3 mm und mit einem Durchmesser von 32 mm gegossen. Dabei kann die Scheibe für die Strahlung der verwendeten Fluoreszenzlinien (K_α für Cr und L_α für Sr, Ba und Nb) als unendlich dick betrachtet werden. Auf diese Weise wurde eine Reihe von zwanzig synthetischen Normsubstanzen hergestellt, die sich in der eingewogenen Quantität eines bestimmten Elementes unterschieden. Daher können Matrix-Effekte verringert und die Konzentrationen eines bestimmten Elementes durch diese lineare Eichung bestimmt werden. Die Fehlerquellen für die Angabe der gemittelten Sr- und Ba-Konzentrationen setzen sich zusammen aus der zertifizierten Ungenauigkeit der analytischen Substanzen, der geschätzten Ungenauigkeit der gravi- und volumetrischen Operationen, der gemessenen Ungenauigkeit des Verlustes durch den Glühfaktor und schließlich der Poisson-Statistik der Ereignisse.

Im Fall der INAA-Messungen hatten alle Proben ein Gewicht zwischen 20 und 30 mg. Die Proben wurden zusammen mit einer Nb-Folie mit 99.999 % Nb und Zr-Fluss-Normsubstanzen für 6 Stunden im zentralen Kern des TRIGA-Reaktors des Instituts für Kernchemie der Universität Mainz bestrahlt. Der thermische Neu-

tronenfluss betrug $4.2{\cdot}10^{12}\,\mathrm{n\,cm^{-2}s^{-1}}$, der schnelle Neutronenfluss betrug $2{\cdot}10^{12}$ $\mathrm{n\,cm^{-2}s^{-1}}$. Dieses Verhältnis wurde durch das Verhältnis von ^{54}Mn zu ^{59}Fe der eingebauten Normsubstanzen bestimmt. Die große Anzahl schneller Neutronen gestattet die Aktivierung von Niob durch die (n,2n)-Reaktion von ^{93}Nb nach ^{94}Nb mit einer Halbwertzeit von 10.15 Tagen. Für die INAA-Messungen wurden die folgenden γ-Linien verwendet: ^{85}Sr (514 keV), ^{131}Ba (496 keV), ^{94}Nb (934 keV) und ^{51}Cr (320 keV). Außerdem ist immer eine geringe Menge Ta vorhanden, so dass die ^{128}Ta-Linien über das ganze Spektrum für die Selbstabsorptionskorrektur verwendet werden konnten. Der Messfehler lag hier bei allen durchgeführten Messungen maximal bei etwa 3%.
Zunächst stellt man fest, dass das Verhältnis von Sr zu Ba in allen untersuchten Proben stets gleich bleibt, man erhält Mittelwerte für den Sr-Gehalt von 0.611(5) [Atome/Formeleinheit] (XRF) bzw. 0.618(8) [Atome/Formeleinheit] (INAA) und für den Ba-Gehalt von 0.393(5) [Atome/Formeleinheit] (XRF) bzw. 0.395(5) [Atome/Formeleinheit] (INAA) [66]. Daraus kann man schließen, dass alle Kristalle tatsächlich die kongruente Schmelzzusammensetzung $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$ besitzen, so dass die Nb-Konzentration für den undotierten Kristall Nb_2 ist.

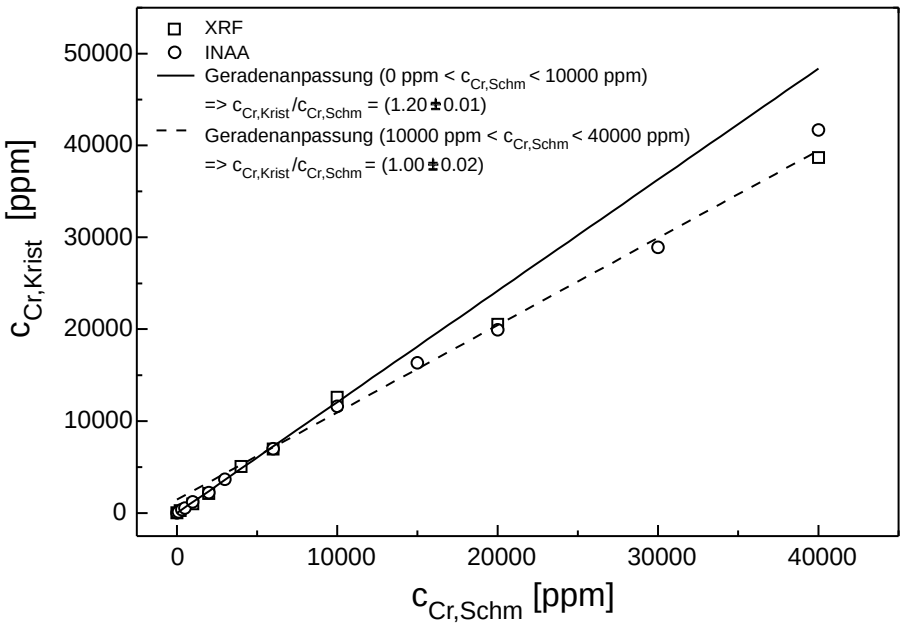


Abbildung 5.1: Cr-Konzentration im Kristall gegen Cr-Konzentration in der Schmelze. Die Messpunkte sowohl aus den XRF- als auch den INAA-Messungen sind getrennt voneinander dargestellt. Die Messpunkte können bis $c_{Cr,Schm} = 10000$ bzw. ab $c_{Cr,Schm} = 10000$ jeweils mit einer Geraden angepasst werden.

In der Abbildung 5.1 sind die gemessenen Cr-Dotierungskonzentrationen im Kristall gegen die Konzentrationen in der Schmelze aufgetragen. Dargestellt sind die Ergebnisse sowohl für XRF- (Quadrate) als auch für INAA-Messungen (Krei-

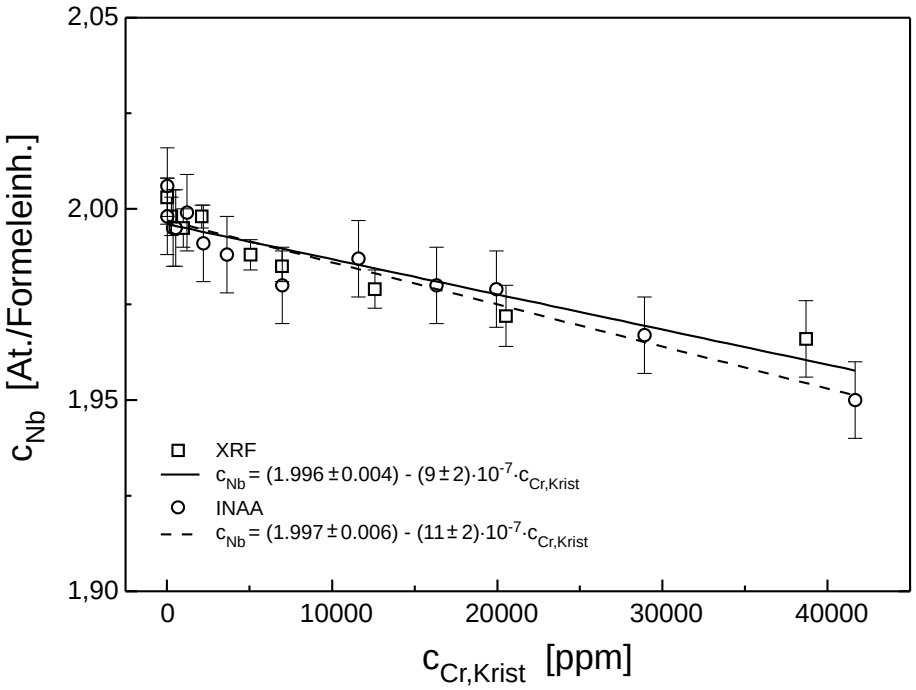


Abbildung 5.2: Nb-Konzentration gegen Cr-Konzentration im Kristall. Sowohl die XRF- als auch die INAA-Daten können jeweils mit einer Geraden angepasst werden. Beide Messverfahren zeigen, dass mit dem zunehmenden Einbau von Cr in den Kristall die Nb-Konzentration linear abnimmt.

se). Die Einheit [Atome/10^6 Formeleinheiten] wird im Folgenden durch [ppm] abgekürzt. An die Daten können zwei Geraden angepasst werden, eine Gerade zwischen $c_{Cr,Schm} = 0$ und 10000 ppm, und eine Gerade zwischen $c_{Cr,Schm} = 10000$ und 40000 ppm. Der relevante Parameter bei der Geradenanpassung ist hier die Steigung, sie entspricht dem Einbaukoeffizienten von Chrom in den Kristall. Die Anpassung an die Messpunkte bis $c_{Cr,Schm} = 10000$ ppm liefert einen Wert von 1.21(1), die Anpassung an die Messpunkte ab $c_{Cr,Schm} = 10000$ ppm ergibt 0.95(5). Im Rahmen des Messfehlers ist also der Einbaukoeffizient für die Dotierungen mit $c_{Cr,Schm} > 10000$ ppm gleich 1, so dass man davon ausgehen kann, dass die Konzentrationen, die in die Schmelze gegeben wurden, auch in den Kristall eingebaut werden. Der undotierte Kristall enthält bereits 15 ppm Cr, die im Ausgangsmaterial oder der Züchtungsapparatur selbst enthalten gewesen sein können. Da der Wert des Einbaukoeffizienten für Konzentrationen bis $c_{Cr,Schm} = 10000$ ppm größer ist als 1, enthalten offensichtlich alle Kristalle mit Konzentrationen in dem genannten Bereich bereits einen leichten Überschuss an Chrom.
In der Abbildung 5.2 ist die Nb-Konzentration gegen die Cr-Konzentration im Kristall aufgetragen. Sowohl an die mit XRF als auch an die mit INAA aufgenommenen Messwerte kann jeweils eine Gerade angepasst werden. In beiden Fällen erhält man Werte für die Achsenabschnitte von 1.996(4) [Atome/Formeleinheit]

(XRF) bzw. 1.997(6) [Atome/Formeleinheit] (INAA), d.h. die Nb-Konzentration für den undotierten Kristall ist Nb_2, wie oben bereits erwähnt. Mit zunehmender Erhöhung der Cr-Konzentration nimmt die Nb-Konzentration linear ab bei gleichbleibendem Verhältnis zwischen der Sr- und der Ba-Konzentration (s. oben). Das ist ein klarer Hinweis darauf, dass Chrom auf einem Nb-Gitterplatz eingebaut wird. Die Ergebnisse aus beiden Methoden stimmen zudem im Rahmen der Messfehler überein. Zur Überprüfung kann die Summe der Nb- und der Cr-Konzentrationen für alle untersuchten Proben gebildet werden, sie beträgt im Mittel über alle Konzentrationen 1.997 [Atome/Formeleinheit] (XRF) bzw. 1.996 [Atome/Formeleinheit] (INAA) [66] und stimmt damit sehr gut mit dem erwarteten Wert von 2 [Atome/Formeleinheit] überein. Auch die Summe der Sr-, Ba-, Nb- und Cr-Konzentrationen ergibt den erwarteten Wert von 3 [Atome/Formeleinheit], man erhält hier im Mittel über alle Konzentrationen 3.001 [Atome/Formeleinheit] (XRF) bzw. 3.009 [Atome/Formeleinheit] (INAA) [66].
Mit INAA wurden außerdem die folgenden Verunreinigungen gefunden: Fe (25 ppm), Na (18 ppm), K (18 ppm), Ag (3 ppm), Rb (1 ppm) und Mn (0.3 ppm). Alle anderen Elemente, die gefunden wurden, hatten Konzentrationen im Bereich von [ppb]. Erwähnenswert ist noch, dass die Ta-Konzentration von 30 ppm auf 13 ppm abfällt mit steigender Cr-Konzentration bis 40000 ppm in der Schmelze.

5.2 Materialparameter

5.2.1 Dichte

Die Dichte wurde mit der Auftriebsmethode bestimmt. Gegenstand der Untersuchung waren ausschließlich Ce-dotierte Kristalle. Ein Quarz-Kristall mit der bekannten Dichte von $\rho = 2.6481(3)\ \mathrm{g/cm^3}$ wurde zur Kalibration der Messflüssigkeiten verwendet. Diese waren Paraffinöl, reines Wasser sowie eine Zinkbromid-Lösung. Die kristallographischen Gitterkonstanten des undotierten Kristalls wurden durch eine Strukturanalyse mittels Röntgenbeugung bestimmt [63]. Die Messergebnisse sind in der Tabelle 5.1 dargestellt. Man findet eine klare Abhängig-

c_{Ce} [mol%]	ρ [g/cm^3]
0	$5.2914 \pm 4 \cdot 10^{-4}$
0.66	$5.2943 \pm 20 \cdot 10^{-4}$
1.13	$5.2998 \pm 9 \cdot 10^{-4}$
2.07	$5.3048 \pm 12 \cdot 10^{-4}$

Tabelle 5.1: Werte für die Dichte für SBN61:Ce.

keit der Werte von der Dotierungskonzentration. Erwartungsgemäß steigen die Werte für ρ linear an, eine lineare Anpassung liefert $\rho = (5.2914 + 0.0067 \cdot c_{Ce})$

g/cm^3. Dies gestattet prinzipiell eine hinreichend genaue Bestimmung der im Kristall vorliegenden Dotierungskonzentration einer unbekannten Probe von Ce-dotiertem SBN61 bis zu einer Dotierungskonzentration von 2.07 mol%. Das Anwachsen kann dadurch erklärt werden, dass mit dem Einbau von Cer in den Kristall die schweren Ce-Atome den Platz der vergleichsweise leichten Sr-Atome in der Kristallstruktur einnehmen [32] oder geänderte Gitterkonstanten vorliegen. Die Werte für die Dichte können jetzt gemäß folgender Methode dazu verwendet werden, um die Existenz von Punktdefekten, insbesondere von Sauerstoff-Fehlstellen, zu untersuchen. Die Dichte der einzelnen Proben kann aus den kristallographischen Gitterkonstanten bestimmt werden, die aus Messungen der Röntgenbeugung bekannt sind: $\rho = (\mathrm{M} \cdot \mathrm{Z})/(\mathrm{V} \cdot \mathrm{N})$. Dabei ist M das Molekulargewicht, Z die Anzahl der Moleküle pro Einheitszelle, V das Volumen der Einheitszelle und N die Avogadro-Konstante. Die Längen $\mathrm{c} = 3.935$ Å und $\mathrm{a} = 12.452$ Å für undotierte Kristalle sind bekannt, daraus ergibt sich das Volumen der Einheitszelle zu (610.1 ± 0.2) Å^3. Außerdem ist die Komposition sehr genau bekannt, jede Formeleinheit besteht aus (0.611 ± 0.002) Sr-Atomen, (0.388 ± 0.001) Ba-Atomen und (2.003 ± 0.003) Nb-Atomen. Die Anzahl der Sauerstoff-Atome ist nicht genau bekannt, sie wird angenommen zu 6-x. Der Parameter x ist die Anzahl der Sauerstoff-Fehlstellen pro Formeleinheit. Mit den Atommassen von Strontium (87.62 g/mol), Barium (137.327 g/mol), Niob (92.90638 g/mol) und Sauerstoff (15.9994 g/mol), erhält man ein Molekulargewicht von $(388.9 - 15.9994 \cdot \mathrm{x} \pm 1.7)$ g/mol. In SBN kommen auf jede Einheitszelle fünf Formeleinheiten, daher kann die Dichte zu $\rho = (5.292 - 0.21772 \cdot \mathrm{x} \pm 0.023)$ g/cm^3 berechnet werden. Vergleicht man diesen Wert mit demjenigen, der aus der Dichte bestimmt wurde, kann daraus $\mathrm{x} = (2.756 \pm 0.013) \cdot 10^{-3}$ berechnet werden. Dies zeigt, dass die Annahme von sechs Sauerstoff-Atomen pro Einheitszelle gerechtfertigt ist, da nur in einer von 73 Einheitszellen ein Sauerstoff-Atom fehlt. Es gibt demnach in SBN keine Sauerstoff-Fehlstellen auf einer großen Längenskala.

5.2.2 Piezoelektrische Koeffizienten

Der piezoelektrische Effekt beschreibt eine Änderung der elektrischen Polarisation, die durch eine mechanische Spannung hervorgerufen wird [97]:

$$\Delta \mathrm{P_i} = \mathrm{d_{ijk}} \cdot \sigma_{\mathrm{jk}} + \mathrm{d_{ijklm}} \cdot \sigma_{\mathrm{jk}} \cdot \sigma_{\mathrm{lm}} + ... \tag{5.1}$$

mit den Komponenten des Spannungstensors σ_{ij}, des linearen piezoelektrischen Effektes $\mathrm{d_{ijk}}$ und des quadratischen piezoelektrischen Effektes $\mathrm{d_{ijklm}}$. Die Komponenten des linearen piezoelektrischen Effektes sind in der zweiten und dritten Indexposition symmetrisch, d.h. $\mathrm{d_{ijk}} = \mathrm{d_{ikj}}$. Dadurch werden die unabhängigen Komponenten des Tensors dritter Stufe von 27 auf 18 reduziert. In der Punktsymmetriegruppe 4mm verbleiben schließlich noch 3 unabhängige Komponenten: $\mathrm{d_{113}} = \mathrm{d_{223}}$, $\mathrm{d_{311}} = \mathrm{d_{322}}$ und $\mathrm{d_{333}}$.

c_{Ce} [mol%]	d_{333} [pC/N]	d_{311} [pC/N]
0	145±5	-23±3
0.66	204±6	-43±3
1.13	300±10	-59±8
2.07	88.1±8.1	-

Tabelle 5.2: Werte für die piezoelektrischen Koeffizienten d_{333} und d_{311} für SBN61:Ce.

Die piezoelektrischen Koeffizienten d_{333} und d_{311} wurden bei Raumtemperatur gemessen, indem die Änderung der Oberflächenladung bei verschiedenen statischen uniaxialen Drücken mit einem Kistler-Elektrometer detektiert wurde. Als Proben wurden Würfel von SBN61:Ce mit den Abmessungen $6\times6\times6\,mm^3$ verwendet. Die auf den Kristall ausgeübten Kräfte betrugen zwischen 1 und 10 N. Die Messungen erfolgten ausschließlich an gepolten Kristallen, da ungepolte Kristalle keine Piezoelektrizität zeigen. Die Tabelle 5.2 zeigt die Werte für d_{333} und d_{311} in Abhängigkeit von der Dotierungskonzentration. Ausgehend vom undotierten Kristall steigen die Werte für beide Koeffizienten an, mit einem signifikanten Abfall für den mit 2.07 mol% am stärksten dotierten Kristall. Der Messfehler ist für diesen Kristall mit 10 % vergleichsweise groß, da die Änderungen der Oberflächenladung aufgrund von pyroelektrischen Strömen stark sind verglichen mit den Änderungen, die durch den piezoelektrischen Effekt verursacht werden. Eine Messung von d_{311} war deswegen unmöglich. Das Ansteigen der d_{ijk} kann durch die lineare Abnahme der Phasenübergangstemperatur mit Erhöhung der Dotierung erklärt werden [98]. Darauf wird im Rahmen dieser Arbeit in den Kapiteln 5.7 bzw. 6.5 noch ausführlich eingegangen. Für die mit 2.07 mol% Ce am stärksten dotierte Probe liegt der Phasenübergang im Bereich der Raumtemperatur. Dies führt einerseits dazu, dass der piezoelektrische Koeffizient stark abfällt, jedoch nicht komplett verschwindet. Andererseits kann der Kristall nicht mehr gut gepolt werden. Dies führt zu dem o.g. großen Messfehler bzw. dazu, dass der Koeffizient d_{311} nicht bestimmt werden konnte. Die Messung zeigt auf jeden Fall, dass auch im paraelektrischen Bereich, in dem der Kristall eine zentrosymmetrische Symmetrie besitzt, noch azentrische Bereiche vorliegen, die ausreichen, um ein piezolektrisches Verhalten zu beobachten.

In der Literatur findet man folgende Werte für undotierte SBN61-Kristalle [99]: $d_{33} = 130\,pC/N$, $d_{31} = -30\,pC/N$ und $d_{15} = 31\,pC/N$. Man beachte, dass $d_{113} = (1/2) \cdot d_{51}$ gilt. Die Werte für $d_{333} = d_{33}$ und $d_{311} = d_{31}$ für undotierte Kristalle in der Tabelle 5.2 stimmen mit den Literaturwerten gut überein.

Dotierung	ϵ_{33}	ϵ_{11}
undotiert	880	470
0.40 mol% Ce	1500	800
0.66 mol% Ce	1700	900
1.13 mol% Ce	3100	1650
2.07 mol% Ce	10000	5300
0.51 mol% Cr	2000	-

Tabelle 5.3: Werte für die Dielektrizitätskonstanten ϵ_{33} und ϵ_{11}. Die Werte für undotierte Kristalle sind [101] entnommen.

5.2.3 Dielektrizitätskonstanten

Die Tabelle 5.3 enthält die Dielektrizitätskonstanten ϵ_{33} und ϵ_{11} für einige der untersuchten Ce- und Cr-dotierten Kristalle. Diese wurden an gepolten Kristallen bei $\nu = 10\,\mathrm{Hz}$ und $\mathrm{T} = 22\,^{\circ}\mathrm{C}$ gemessen. Die Messungen für die Ce-dotierten Kristalle wurden in Zusammenarbeit mit R. Pelster am II. Physikalischen Institut der Universität zu Köln durchgeführt. Der Wert für den mit 0.51 mol% Cr dotierten Kristall wurde aus Messungen der ferroelektrischen Hysterese abgeschätzt [100]. Die Werte für undotierte Kristalle sind [101] entnommen. Für alle Werte unterhalb einer Dotierung mit 0.22 mol% sind die Werte für undotierte Kristalle verwendet worden. Für den mit 0.69 mol% Tm_2O_3 dotierten Kristall wurde von T. Volk (Russ. Akademie der Wissenschaften, Moskau) eine Messung am ungepolten Kristall durchgeführt, mit dem Ergebnis $\epsilon_{33} = 3000$ bei $\nu = 1\,\mathrm{kHz}$ und $\mathrm{T} = 24\,^{\circ}\mathrm{C}$.

5.2.4 Brechungsindizes

Die Messung der Brechwerte erfolgte an einem Prismenpräparat von undotiertem SBN61 mit einem Prismenwinkel von $\Theta = 14.7863(3)\,^{\circ}$. Die Beleuchtung erfolgte mittels der charakteristischen Spektrallinien verschiedener Gaslampen (Hg, Cd, Cs, He). Die Brechungsindizes wurden aus den gemessenen Winkelabweichungen Φ_i gemäß

$$\mathrm{n_i} = \mathrm{n_{Luft}} \cdot \frac{\sin(\Theta + \Phi_\mathrm{i})}{\sin(\Phi_\mathrm{i})} \tag{5.2}$$

bestimmt. Der Brechungsindex von Luft beträgt $\mathrm{n_{Luft}} = 1.00027$. Die Messfehler betrugen $\pm 10^{-5}\,\mu$m (Wellenlänge) bzw. $\leq 10^{-4}$ (Brechungsindizes). Die tabellarische Übersicht über die gemessenen Werte sowie die graphische Darstellung der Wellenlängenabhängigkeit einschließlich einer Anpassung mit einer Sellmeier-Funktion findet man bei Woike et al. [102]. Daraus resultiert, dass sowohl der ausserordentliche als auch der ordentliche Brechungsindex für die ungepolte Probe größer ist als für die gepolte, die Differenz beträgt etwa 10^{-3}. Generell ist der

λ	ungepolt		gepolt	
[nm]	n_e^{up}	n_o^{up}	n_e^{gp}	n_o^{gp}
488	2.3519	2.3888	2.3504	2.3883
532	2.3229	2.3571	2.3217	2.3569
632.8	2.2819	2.3125	2.2809	2.3125
658	2.2750	2.3049	2.2739	2.3049
685	2.2684	2.2978	2.2674	2.2978
785	2.2503	2.2781	2.2492	2.2781

Tabelle 5.4: Ausserordentliche (e) und ordentliche (o) Brechungsindizes von SBN61 für undotierte Kristalle. Der Index "up" bezeichnet die Ergebnisse für ungepolte, der Index "gp" diejenigen für gepolte Kristalle. Die Tabelle beinhaltet die Werte für die in dieser Arbeit verwendeten Laser-Wellenlängen.

ordentliche Brechungsindex größer als der ausserordentliche, d.h. der Kristall ist bei Raumtemperatur optisch einachsig negativ. Da die Verläufe $n_e(\lambda)$ und $n_o(\lambda)$ im sichtbaren Spektralbereich und bei Raumtemperatur keine Schnittpunkte aufweisen, ist hier eine Phasenanpassung nicht möglich.
Aus den Daten der Anpassung mit einer Sellmeier-Funktion wurden die Werte für die Brechungsindizes für die in dieser Arbeit verwendeten Laser-Wellenlängen entnommen. Diese sind in Tabelle 5.4 zusammengestellt.

5.2.5 Optische Absorption

Die optische Absorption wurde für Ce-dotiertes SBN von Buse et al. [38] für beide Lichtpolarisationen und für Cr-dotiertes SBN von Gao [103] für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse gemessen. Die für die Auswertung der Messergebnisse in dieser Arbeit relevanten optischen Absorptionskoeffizienten wurden für Ce-dotiertes SBN und $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$ der Arbeit von Buse et al. [38] entnommen und in der Tabelle 5.5 zusammengestellt. Die Absorptionsspektren

Dotierung [mol%] Ce	α_e [cm^{-1}]	α_o [cm^{-1}]
0.022	0.1	0.05
0.40	2.0	1.0
0.66	4.0	3.0
1.13	8.0	6.0
2.07	12.0	9.0

Tabelle 5.5: Optische Absorptionskoeffizienten α_e und α_o für $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$. Die Werte sind Referenz [38] entnommen.

für Cr-dotiertes SBN sind in Zusammenarbeit mit D. Berben vom Physikalischen Institut der Universität Bonn für eine Auswahl der in dieser Arbeit untersuchten Kristalle für eine Lichtpolarisation sowohl parallel zur kristallographischen c- als auch parallel zur kristallographischen a-Achse gemessen worden. Die Ergebnisse sind in der Abbildung 5.3 dargestellt. Alle Absorptionspektren zeigen das Maxi-

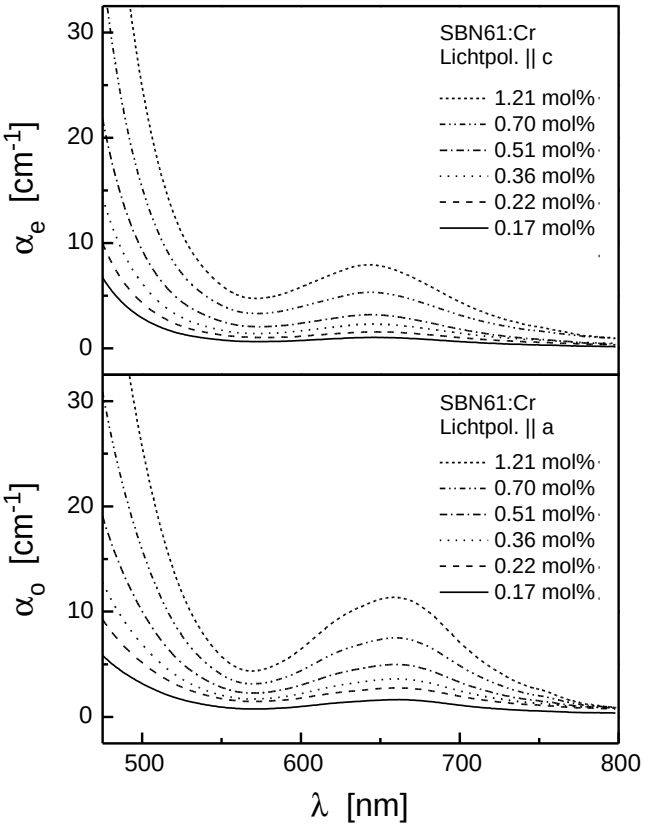


Abbildung 5.3: Absorptionsspektren einer Auswahl der in dieser Arbeit untersuchten Cr-dotierten SBN-Kristalle für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse (oberes Bild) und parallel zur kristallographischen a-Achse (unteres Bild).

mum der Cr-Absorption bei etwa 650 nm. Zudem sind die Werte von α für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse in dem hier betrachteten Spektralbereich größer als die Werte für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse.

5.3 Photoleitfähigkeit

Die Intensitäts- und Wellenlängenabhängigkeit der Photoleitfähigkeit für Ce-dotiertes SBN wurde für eine Reihe von Dotierungskonzentrationen zwischen

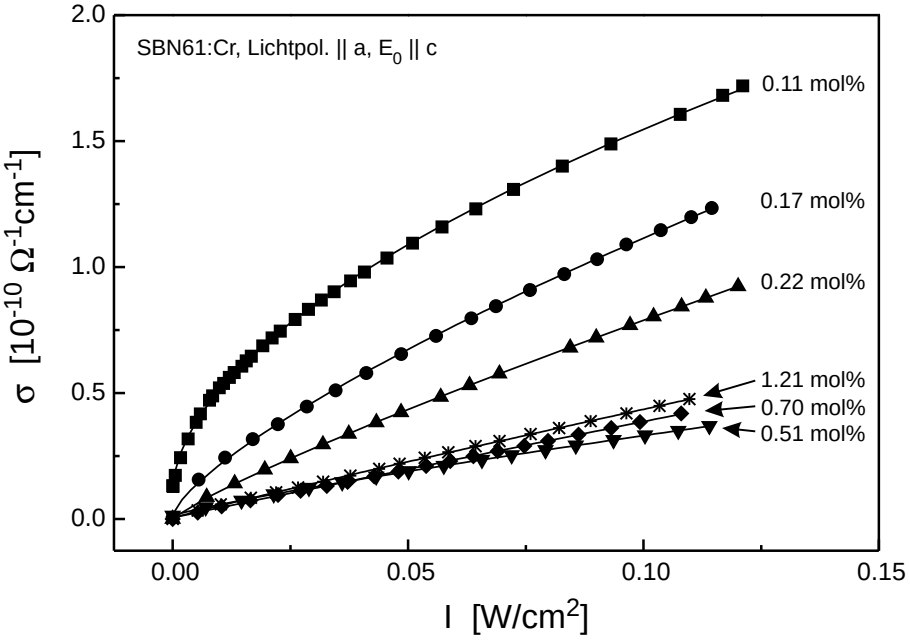


Abbildung 5.4: Intensitätsabhängigkeit der Leitfähigkeit für SBN-Kristalle mit unterschiedlichen Cr-Dotierungen für $\lambda = 532\,\mathrm{nm}$ und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse. Anpassungen mit sublinearen Funktionen an die gemessenen Daten gemäß der Gleichung (3.94) sind ebenfalls in die Abbildung eingetragen. Die spezifischen Photoleitfähigkeiten ergeben sich aus dem Parameter B_σ der angepassten Kurven, die Dunkelleitfähigkeiten aus der Messung ohne Lichtbestrahlung.

0.025 und 1.6 Gew.% CeO_2 in der Schmelze (0.056 und 2.07 mol% Ce im Kristall [32]) von Buse et al. gemessen [38] mit folgenden Resultaten: Zunächst zeigen alle Proben für Intensitäten oberhalb von $100\,\mathrm{mW/cm^2}$ eine lineare Abhängigkeit der Photoleitfähigkeit von der Intensität. Kristalle mit schwachen Ce-Konzentrationen (0.056 und 0.22 mol%) zeigen eine ausgeprägte Nichtlinearität, für Kristalle mit einer Ce-Konzentration größer als 0.22 mol% ist die Photoleitfähigkeit unabhängig von der Konzentration und die Intensitätsabhängigkeit nähert sich dem linearen Verlauf an. Der Exponent x zeigt für den mit 0.056 mol% am schwächsten dotierten Kristall eine Wellenlängenabhängigkeit, er beträgt etwa 0.5 für $\lambda < 500\,\mathrm{nm}$ und ist etwa 1 für $\lambda > 650\,\mathrm{nm}$. Für alle anderen Proben ist x nahezu unabhängig von der Wellenlänge und wächst mit Erhöhung der Dotierung an. Der Kristall mit der schwächsten Ce-Konzentration hat zudem die größte spezifische Photoleitfähigkeit. Die Spektren ähneln denjenigen der Absorptionsspektren. Sowohl x als auch $\sigma_{\mathrm{ph}}/\mathrm{I}^{\mathrm{x}}$ sind im Rahmen der Messgenauigkeit unabhängig von der Lichtpolarisation. Der Kristall mit 0.056 mol% Ce zeigt im Vergleich zu allen anderen Dotierungen eine um vier Größenordnungen größere Dunkelleitfähigkeit. Die Messung der Photoleitfähigkeit für SBN61:Cr wird im Folgenden vorgestellt.

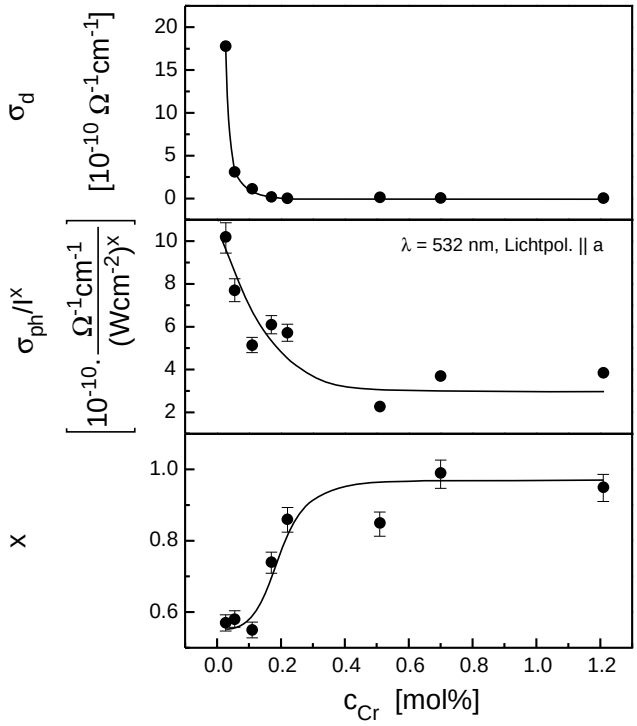


Abbildung 5.5: Dunkelleitfähigkeiten, spezifische Photoleitfähigkeiten und Exponenten x aus der Anpassung sublinearer Funktionen in Abhängigkeit von der Cr-Konzentration für $\lambda = 532\,\mathrm{nm}$. Die in die Abbildung eingezeichneten Linien dienen der Augenführung.

In der Abbildung 5.4 ist die Intensitätsabhängigkeit der Leitfähigkeit für eine Reihe von Cr-dotierten Kristallen für $\lambda = 532\,\mathrm{nm}$ und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse dargestellt. Das elektrische Feld wurde parallel zur kristallographischen c-Achse angelegt.
Aus der Anpassung einer sublinearen Funktion an die gemessenen Daten gemäß der Gleichung (3.94) erhält man die spezifischen Photoleitfähigkeiten aus dem Parameter B_σ der angepassten Kurven, die Dunkelleitfähigkeiten σ_d resultieren aus der Messung ohne Lichtbestrahlung. Diese Größen sowie der Exponent x sind in der Abbildung 5.5 gegen die Cr-Konzentration aufgetragen. Der Abbildung entnimmt man folgende Resultate: Sowohl die Dunkelleitfähigkeiten als auch die spezifischen Photoleitfähigkeiten nehmen mit Erhöhung der Cr-Konzentration ab. Der Exponent x dagegen wächst mit Erhöhung der Cr-Konzentration an und erreicht Werte von ≈ 1 für 0.70 und 1.21 mol% Cr. Dies zeigt, dass für diese Cr-Konzentrationen die Abhängigkeit der Leitfähigkeit von der Lichtintensität linear ist.
Aus den Werten der spezifischen Photoleitfähigkeit wurde gemäß der Gleichung (3.89) und mittels der optischen Absorption (Kapitel 5.2.5) das Produkt aus Mobilität und Rekombinationszeit der Ladungsträger $\mu \cdot \tau_\mathrm{R}$ bestimmt. Die Ergebnis-

Dotierung [mol%] Cr	$\mu \cdot \tau_R$ $\left[\frac{10^{-11}\cdot W}{(W/cm^2)^x \cdot V}\right]$
0.055	360±10
0.11	188±1
0.17	103±2
0.22	55±1
0.51	12.5±0.1
0.70	13.6±0.4
1.21	9.4±0.2

Tabelle 5.6: Werte für das Produkt aus Beweglichkeit und Rekombinationszeit der Elektronen, berechnet mit der optischen Absorption (Kap. 5.2.5) und der spezifischen Photoleitfähigkeit (Abb. 5.5) gemäß Gleichung (3.89).

se sind in der Tabelle 5.6 zusammengestellt. Analog zum Verlauf der spezifischen Photoleitfähigkeit fallen die Werte mit Erhöhung der Dotierungskonzentration ab.
Ein Vergleich zu Literaturwerten ist unter Vorbehalt möglich. Vazquez et al. finden mittels einer holographischen Messung für $\lambda = 514.5\,\text{nm}$ und für eine schwache Dotierungskonzentration zwischen 0.015 und 0.025 Gew.% Cr (0.038 und 0.064 mol% Cr_2O_3) im Gegensatz zu den hier vorgestellten Ergebnissen eine lineare Abhängigkeit der Leitfähigkeit von der Intensität [41]. Daraus wird ein Wert von $\mu \cdot \tau_R = 53.6 \cdot 10^{-10}\,\text{cm}^2/\text{V}$ bestimmt. Dieser ist um einen Faktor 1.5 größer als der hier für den mit 0.055 mol% Cr dotierten Kristall bestimmte Wert. Die Dunkelleitfähigkeit von $5.51 \cdot 10^{-10}\,\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ ist um einen Faktor 2 größer als der hier bestimmte Wert. Tomita und Suzuki bestimmen für einen mit 0.02 Gew.% Cr (0.051 mol% Cr_2O_3) dotierten Kristall aus holographischen Messungen Werte von $\mu \cdot \tau_R = 7.2 \cdot 10^{-13}\,\text{cm}^2/\text{V}$ für $\lambda = 514.5\,\text{nm}$ und $12.6 \cdot 10^{-13}\,\text{cm}^2/\text{V}$ für $\lambda = 632.8\,\text{nm}$. Diese Werte sind um mehr als drei Größenordnungen kleiner als die hier und als die von Vazquez et al. bestimmten Werte. Die Dunkelleitfähigkeiten liegen mit $9.0 \cdot 10^{-10}\,\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ (bestimmt aus einer Geradenanpassung an die Daten für $\lambda = 514.5\,\text{nm}$) und $4.7 \cdot 10^{-10}\,\Omega^{-1}\text{cm}^{-1}$ (bestimmt aus einer Geradenanpassung an die Daten für $\lambda = 632.8\,\text{nm}$) in der Größenordnung der oben genannten Werte.

5.4 Abhängigkeit von Γ von der Bestrahlung Q

In diesem Kapitel wird die Dynamik des Schreibens und Löschens von Hologrammen in SBN untersucht. Die Präsentation der Ergebnisse konzentriert sich wegen der größeren praktischen Bedeutung auf die Dynamik des Schreibens. Der Einfluss des Dotierungselements und dessen Konzentration stehen dabei im Vor-

dergrund. Es wurden Messungen bei den Wellenlängen 488, 532, 632.8, 658, 685 und 785 nm durchgeführt. Die Lichtpolarisation war entweder parallel zur kristallographischen c- oder zur kristallographischen a-Achse orientiert. Alle Messungen wurden bei einem konstanten Bragg-Winkel $\theta = 20\,^\circ$ ($\theta_i = 8.6\,^\circ$) und bei Raumtemperatur T = 24 °C durchgeführt. Die Werte für die gesamte einfallende Intensität variierten je nach verwendetem Lasersystem und je nachdem, ob der Rechner oder das Oszilloskop zur Datenaufnahme verwendet wurde. Generell wurde die maximal mögliche einfallende Intensität des Pumpstrahls gewählt, um die Messzeit zu minimieren. In einigen Fällen, in denen die Datenaufnahme mit dem Rechner erfolgte und wegen des großen holographischen Verstärkungsfaktors eine Umschaltung der Messbereiche nötig war, musste aufgrund der begrenzten Zeitauflösung des Rechners die Intensität abgeschwächt werden. Die Pumpintensitäten variierten zwischen $I \approx 4\,mW/cm^2$ und $I \approx 600\,mW/cm^2$. Um einen Vergleich der dynamischen Prozesse zwischen Messungen mit unterschiedlichen Dotierungskonzentrationen oder bei verschiedenen Wellenlängen durchführen zu können, ist es also notwendig, anstelle einer Zeitkonstanten τ eine Konstante für die Bestrahlung $Q_0 = I \cdot \tau$ anzugeben. Das ist der Wert von Q, bei welchem der $(1\text{-}e^{-1})$-te Teil des Sättigungswertes von Γ, d.h. des Verlaufs des Verstärkungsfaktors in Abhängigkeit von der Bestrahlung, erreicht ist. Dabei war der Sättigungswert von Γ für den oben genannten Intensitätsbereich nicht von der Intensität abhängig.

Eine Schreibmessung besteht in der Aufnahme des holographischen Verstärkungsfaktors Γ in Abhängigkeit von der Bestrahlung Q, dem Produkt aus gesamter einfallender Intensität I und der Zeit t. Alle Γ-Messungen werden für die Kleinsignalverstärkung durchgeführt. Das Intensitätsverhältnis β_0 zwischen Pump- und Signalstrahl wird dabei so groß eingestellt, dass die Verstärkung des Signalstrahls ohne nennenswerten Intensitätsverlust des Pumpstrahls erfolgt. Für die untersuchten Proben ist dies gegeben für $\beta_0 \approx 1000$, das entspricht einer Lichtmodulation m = 0.063. In diesem Fall können Sättigungswerte von Γ aus der analytischen Lösung der gekoppelten Wellengleichungen gemäß Formel (3.21) bestimmt werden. Um die Verstärkungseigenschaften der untersuchten Kristalle quantifizieren und miteinander vergleichen zu können, werden diese Sättigungswerte Γ_{sat} für verschiedene Dotierungselemente gegen die Dotierungskonzentration aufgetragen. Zur Charakterisierung der Dynamik des Schreibens von Hologrammen wird an jede Einzelkurve Γ(Q) eine gestreckte Exponentialfunktion (KWW-Funktion) angepasst (Gl. (3.95)). Als Resultate erhält man die Parameter Q_0 und β, also die charakteristische Konstante für die Bestrahlung und den Streckexponenten, der die Abweichung vom monoexponentiellen Fall mit $\beta = 1$ beschreibt. Es sei daran erinnert, dass sich aus der Abweichung vom Wert 1 Rückschlüsse auf das zu Grunde liegende Ladungstransportmodell ziehen lassen (Ein-Zentren-, Zwei-Zentren-Modell, Drei-Valenzen-Modell, s. Kap. 3.2). Dabei ist zu beachten, dass ein Vergleich zwischen verschiedenen Werten von Q_0, die z.B. aus Messungen mit unterschiedlichen Dotierungskonzentrationen oder bei verschiedenen

Wellenlängen hervorgehen, nur sinnvoll ist, wenn β vergleichbare Werte zeigt. Die Abbildung 5.6 zeigt als repräsentatives Beispiel den Verlauf von Γ in Abhängigkeit von Q mit einer logarithmisch gestreckten Q-Skalierung für die mit 0.17 mol% bzw. 0.51 mol% Cr dotierten SBN-Kristalle und für $\lambda = 632.8$ nm. Anpassungen

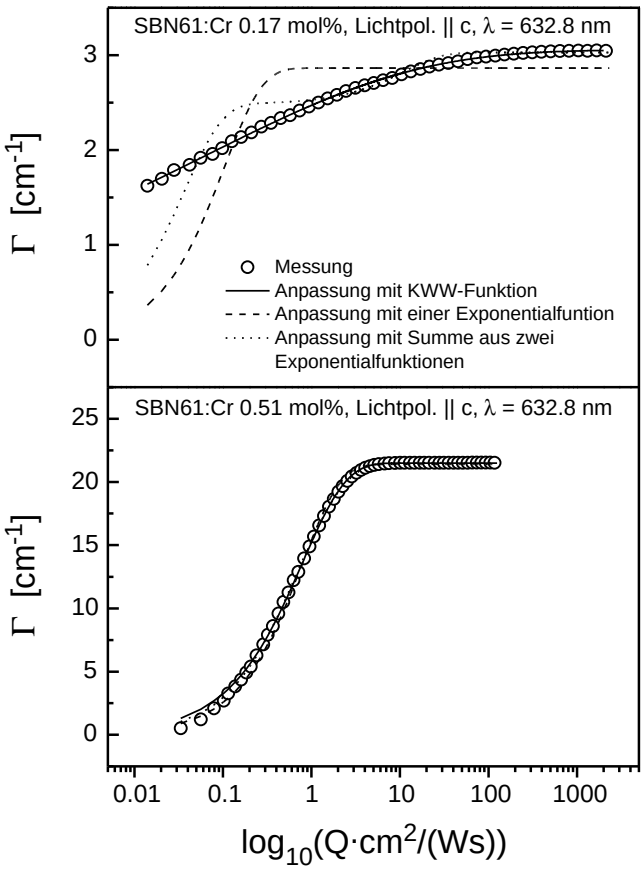


Abbildung 5.6: Verlauf Γ(Q) für SBN61:Cr 0.17 mol% (oberes Bild) und SBN61:Cr 0.51 mol% (unteres Bild) mit logarithmisch gestreckter Q-Skalierung. Für die schwache Dotierung liefert nur die Anpassung mit der KWW-Funktion eine gute Beschreibung der Messdaten über fünf Größenordnungen. Für die starke Dotierung erkennt man die Annäherung an eine monoexponentielle Beschreibung.

mit einer Exponentialfunktion, mit der Summe aus zwei Exponentialfunktionen sowie mit der KWW-Funktion sind ebenfalls in die Abbildung eingetragen. Es ist eindeutig ersichtlich, dass die KWW-Funktion für die schwache Dotierung eine gute Beschreibung der gemessenen Daten über fünf Größenordnungen gestattet. Insbesondere eine monoexponentielle Beschreibung gelingt hier offensichtlich nicht. Für die starke Dotierung dagegen sind die Unterschiede zwischen den angepassten Kurven nicht signifikant, die beste Beschreibung gelingt mit einer Summe aus zwei Exponentialfunktionen. Die Annäherung an die monoexponentielle Beschreibung der Messkurven mit Erhöhung der Dotierung ist klar ersichtlich.

Dies äussert sich auch in dem qualitativen Verlauf der Kurven. Für die schwache Dotierung ist der Schreibvorgang zu Beginn der Messung schnell, der Wert von Γ erreicht sprungartig $\approx 1.5\,\mathrm{cm}^{-1}$. Das Erreichen eines Sättigungszustandes erfordert trotzdem eine Messung über fünf Größenordnungen in Q. Hier deutet sich die Überlagerung von Prozessen mit unterschiedlichen Zeitkonstanten an, was bei der Anpassung mit der KWW-Funktion zu einem kleinen Wert des Exponenten β von etwa 0.2 führt. Für die starke Dotierung erkennt man bei gleicher Zeitauflösung schon zu Beginn der Messung ein kontinuierliches Anwachsen von Γ, der Sättigungszustand wird für einen Wert von Q erreicht, der etwa eine Größenordnung kleiner ist im Vergleich zu der schwachen Dotierung. Die Dynamik des Schreibprozesses kann annähernd durch eine Zeitkonstante beschrieben werden. Dies spiegelt sich in dem vergleichsweise großen Wert des Exponenten von $\beta \approx 0.9$ wider. Eine Aussage darüber, in welchem der unterschiedlich stark dotierten Kristalle der Schreibvorgang schneller abläuft, ist aus diesem Grund schwer zu treffen. Der Vergleich von Zeitkonstanten, die aus einer Anpassung mit der KWW-Funktion für stark voneinander abweichende Exponenten gewonnen wurden, ist nicht möglich, da die Größe τ dann nicht mehr eindeutig definiert ist. Die zu Grunde liegenden Prozesse sind von verschiedener Natur.
In der Abbildung 5.7 sind die Sättigungswerte Γ_{sat} von Γ sowie die Parameter Q_0 und β aus den Anpassungen mit der Gleichung (3.95) gegen die Cr-Dotierungskonzentration (linkes Bild) sowie gegen die Ce-Dotierungskonzentration (rechtes Bild) beispielhaft für $\lambda = 532\,\mathrm{nm}$ ($\Lambda = 0.78\,\mu\mathrm{m}$) aufgetragen. Messungen für $\lambda = 488\,\mathrm{nm}$ ($\Lambda = 0.71\,\mu\mathrm{m}$) sowie für $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$ ($\Lambda = 0.93\,\mu\mathrm{m}$) führen qualitativ zu denselben Ergebnissen und sind daher nicht dargestellt. Insgesamt stellt man Folgendes fest: Sowohl für die Cr- als auch für die Ce-Dotierungen steigen die Werte von Γ_{sat}, Q_0 und β bei einer Erhöhung der Dotierungskonzentration an. Eine Ausnahme bildet hier der undotierte Kristall, der größere Werte für Q_0, also kleinere Schreibgeschwindigkeiten zeigt als die dotierten Kristalle. Außerdem gibt es im Fall der Cr-Dotierungen einen sprungartigen Anstieg der Parameter zwichen 0.36 und 0.51 mol% Cr mit einem leichten Abfall bis 0.70 mol% Cr. Im Fall von Γ_{sat} und Q_0 sind die Werte für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse stets größer als diejenigen für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse. Das liegt bei Γ_{sat} an dem Verhältnis der linearen elektrooptischen Koeffizienten r_{33} und r_{13}, das etwa 5 bis 6 beträgt. Der Parameter β zeigt keine erkennbare Abhängigkeit von der Lichtpolarisation. Die quantitativen Ergebnisse der Messungen bei verschiedenen Wellenlängen werden im Folgenden für die mit 0.51 und 0.70 mol% Cr dotierten Kristalle sowie für die mit 0.66 mol% vergleichbare Ce-Dotierung und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse vorgestellt. Für die genannten Cr-Dotierungen wächst Γ_{sat} von etwa $20\,\mathrm{cm}^{-1}$ im roten Spektralbereich auf Werte zwischen 30 und $40\,\mathrm{cm}^{-1}$ im blau-grünen Spektralbereich an. Die Werte für Q_0 liegen für $\lambda = 632.8$ und 532 nm zwischen $0.2\,\mathrm{Ws/cm}^2$ und $1\,\mathrm{Ws/cm}^2$. Für $\lambda = 488\,\mathrm{nm}$ ist Q_0 mit etwa $0.1\,\mathrm{Ws/cm}^2$ bis zu einer Größenordnung kleiner, die Schreibgeschwindigkeit ent-

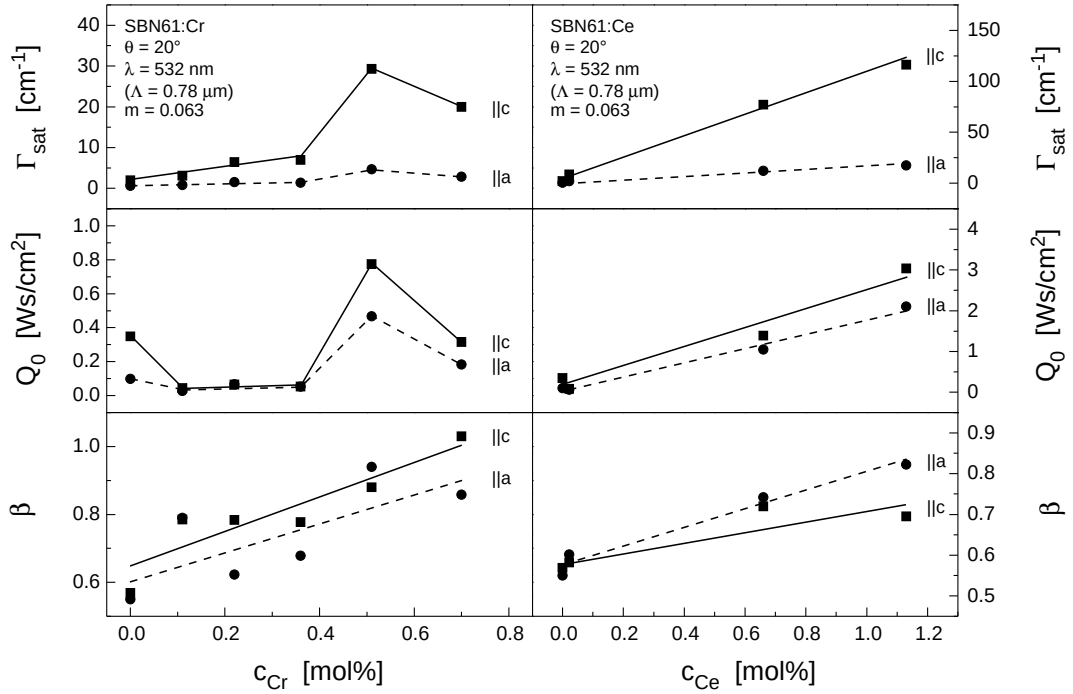


Abbildung 5.7: Sättigungswerte Γ_{sat} und Parameter Q_0 und β aus den Kurvenanpassungen in Abhängigkeit von der Cr-Dotierungskonzentration (linkes Bild) und der Ce-Dotierungskonzentration (rechtes Bild) für $\lambda = 532\,\mathrm{nm}$. Die Linien dienen der Augenführung.

sprechend höher. Die Werte von β liegen zwischen 0.85 und 1.0. Dies kommt einer monoexponentiellen Beschreibung der Verläufe $\Gamma(Q)$ nahe. Für den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall wächst Γ_{sat} von etwa $40\,\mathrm{cm}^{-1}$ im roten Spektralbereich auf Werte um $80\,\mathrm{cm}^{-1}$ im blau-grünen Spektralbereich an. Diese Werte sind etwa doppelt so groß wie diejenigen für die vergleichbaren Cr-Dotierungen. Die Werte von Q_0 fallen dabei von etwa $2\,\mathrm{Ws/cm}^2$ auf $1\,\mathrm{Ws/cm}^2$ ab, d.h. die Schreibgeschwindigkeit ist im blau-grünen Spektralbereich etwa doppelt so hoch wie im roten Spektralbereich. Die Werte von β liegen im Mittel bei 0.7, ein Vergleich der Schreibgeschwindigkeiten zu den mit 0.51 und 0.70 mol% Cr dotierten Kristallen ist daher nicht sinnvoll. Bemerkenswert ist der mit $142\,\mathrm{cm}^{-1}$ sehr große Wert für den holographischen Verstärkungsfaktor für $\lambda = 488\,\mathrm{nm}$ und eine Dotierung mit 1.13 mol% Ce.

Ebenfalls bemerkenswert ist, dass der mit 12000 ppm Rh/Nb dotierte Kristall im blau-grünen Spektralbereich kleine Werte von Q_0 zeigt. Diese liegen je nach eingestellter Lichtpolarisation zwischen $6 \cdot 10^{-3}$ und $4 \cdot 10^{-2}\,\mathrm{Ws/cm}^2$ bei Werten von β um 0.7. Die Werte für den Verstärkungsfaktor betragen $2.5\,\mathrm{cm}^{-1}$ (Lichtpol.$\|$c) bzw. $0.5\,\mathrm{cm}^{-1}$ (Lichtpol.$\|$a).

Intensitätsabhängige Messungen des Löschprozesses gestatten eine Bestimmung

der Photoleitfähigkeit gemäß den Gleichungen (3.87) und (3.90). Daraus kann gemäß der Gleichung (3.89) das Produkt aus Beweglichkeit und Rekombinationszeit der Elektronen, $\mu \cdot \tau_R$, bestimmt werden. Hier erfolgt die Anpassung der theoretischen Funktionen an die Verläufe der an einem in Sättigung geschriebenen Gitter abgebeugten Intensität I_d in Abhängigkeit von der Bestrahlung Q, $I_d(Q)$ (Gl. (3.96)). Der Einfluss holographischer Streuung ist massiv für die Ce-dotierten Proben. Der durch die Streuung verursachte Einbruch in der transmittierten Intensität des Pump- bzw. des Löschstrahls kann von dem Einbruch der Intensität, der allein durch den Löschprozess verursacht wird, nicht getrennt werden. Daher konnte hier keine sinnvolle Bestimmung von $\mu \cdot \tau_R$ aus Löschmessungen durchgeführt werden. Dagegen ist der Einfluss holographischer Streuung bei allen untersuchten Cr-dotierten Proben vernachlässigbar. Eine Bestrahlung der Kristalle nur mit dem intensiven Pumpstrahl liefert einen Einbruch in der transmittierten Intensität < 3 %. Das Schreiben des Primärgitters wird also nicht signifikant durch einen holographischen Streuuntergrund beeinflusst. Dadurch ist das Löschen der eingeschriebenen Hologramme mit dem Pumpstrahl möglich, ein Löschvorgang mit einem zusätzlichen Off-Bragg-Strahl ist nicht nötig. Der Vergleich zwischen einer In-Bragg- und einer Off-Bragg-Löschmessung ist als Beispiel für $\lambda = 532\,\text{nm}$ durchgeführt worden. Für diese Wellenlänge konnte ein großer Variationsbereich für die Intensität des Löschstrahls bis $\approx 3\,\text{W/cm}^2$ abgedeckt werden. Generell wurden für die Bestimmung von $\mu \cdot \tau_R$ lineare Funktionen an die Messdaten angepasst, die zusammen mit den Messdaten in die Abbildungen 5.8 bis 5.11 eingetragen sind. Um die Abweichungen vom linearen Verhalten quantifizieren und mit den Ergebnissen der konventionellen Bestimmung der Photoleitfähigkeit vergleichen zu können, wurden auch sublineare Funktionen angepasst. Der hieraus resultierende Exponent x wurde in die Tabelle 5.7 eingetragen. Zuerst erfolgte eine Bestimmung von $\mu \cdot \tau_R$ für SBN61:Cr als Vergleich zwischen den Dotierungskonzentrationen 0.51 mol% Cr und 0.70 mol% Cr für $\lambda = 632.8$ nm. Alle Hologramme wurden mit einer Lichtpolarisation $\parallel$ c geschrieben. Der Modulationsgrad betrug $m = 0.062$, alle Messungen wurden bei Raumtemperatur $T = 298\,\text{K}$ durchgeführt. Die Messergebnisse mit den Kurvenanpassungen sind in der Abbildung 5.8 dargestellt. Zunächst fällt auf, dass σ_d nicht genau genug bestimmt werden kann. Wegen der kleinen Größenordnung des Wertes von σ_d liegt der Achsenabschnitt bei der Geradenanpassung sehr nahe bei Null und kann daher bei der Anpassungsprozedur stark variieren. D.h. Anpassungen, deren Werte für die Achsenabschnitte z.B. um eine Größenordnung variieren, liefern vergleichbare Werte für die Steigungen, d.h. die spezifischen Photoleitfähigkeiten. Der Exponent x beträgt (0.92 ± 0.05) für den mit 0.51 mol% Cr dotierten Kristall und (1.00 ± 0.03) für den mit 0.70 mol% dotierten Kristall. Die Messpunkte für beide Dotierungen liegen sehr gut auf einer Geraden, die Gültigkeit eines Ein-Zentren-Modells für höhere Cr-Dotierungen wird bestätigt. Das Produkt $\mu \cdot \tau_R$ beträgt $(1.8 \pm 0.1) \cdot 10^{-11}\ \text{cm}^2\text{V}^{-1}$ für den mit 0.51 mol% Cr dotierten Kristall und $(1.9 \pm 0.1) \cdot 10^{-11}\ \text{cm}^2\text{V}^{-1}$ für den mit 0.70 mol% Cr dotierten Kristall. Die Werte

λ [nm]	c_{Cr} [mol%]	Modus	$\mu \cdot \tau_R$ [$10^{-11} \cdot cm^2/V$]	x
632.8	0.51	Löschen	1.8 ± 0.1	0.92 ± 0.05
	0.70		1.9 ± 0.1	1.00 ± 0.03
658	0.51	Schreiben	1.2 ± 0.1	1.08 ± 0.04
		Löschen	1.7 ± 0.1	1.07 ± 0.03
532		Schreiben	1.1 ± 0.1	0.93 ± 0.04
		Löschen	1.2 ± 0.1	0.86 ± 0.03
		Löschen (Off-Bragg)	3.0 ± 0.1	0.99 ± 0.04

Tabelle 5.7: Werte für $\mu \cdot \tau_R$ und den Exponenten x in Abhängigkeit von der Dotierungskonzentration und der Wellenlänge, gemessen im Schreib- und Löschmodus. Die Werte für $\mu \cdot \tau_R$ wurden durch Geradenanpassungen bestimmt (Abb. 5.8 bis 5.11). Zusätzlich wurden Anpassungen mit sublinearen Funktionen durchgeführt (ohne Abb.), um ein Maß für die Abweichung von der Linearität zu haben.

stimmen also im Rahmen des Messfehlers überein.
Die zweite Messung ist ein Vergleich zwischen $\mu \cdot \tau_R$ aus einer Schreib- und einer Löschmessung für den mit 0.51 mol% Cr dotierten Kristall bei 658 nm. Hier konnte eine etwas höhere Löschintensität gegenüber 632.8 nm erreicht werden bei einer nur geringfügigen Änderung der holographischen Gitterkonstante (0.96 μm gegenüber 0.93 μm). Die Ergebnisse sieht man in der Abbildung 5.9. Sowohl die Anpassung an die Messwerte, die aus dem Schreibprozess gewonnen wurden, als auch die Anpassung an die Messwerte, die aus dem Löschprozess gewonnen wurden, liefern Werte für den Exponenten x, die im Rahmen des Fehlers 1 betragen. D.h sowohl durch den Schreib- als auch durch den Löschprozess wird auch hier die Gültigkeit des Ein-Zentren-Modells bestätigt. Die Werte von $\mu \cdot \tau_R$ betragen $(1.2 \pm 0.1) \cdot 10^{-11}$ cm^2V^{-1} für den Schreibprozess und $(1.7 \pm 0.1) \cdot 10^{-11}$ cm^2V^{-1} für den Löschprozess. Der aus dem Löschprozess bestimmte Wert ist also um einen Faktor 1.4 größer als derjenige, der aus dem Schreibprozess gewonnen wurde. Vergleicht man den für $\lambda = 658$ nm aus dem Löschprozess bestimmten Wert mit dem Wert, der für $\lambda = 632.8$ nm aus dem Löschprozess bestimmt wurde (Abbildung 5.8), so stimmen beide Werte im Rahmen des Messfehlers überein.
Ebenfalls ein Vergleich zwischen Schreib- und Löschmessung konnte für 532 nm ($\Lambda = 0.78$ μm) durchgeführt werden. Die Ergebnisse sind in der Abbildung 5.10 dargestellt. Der Wert des Exponenten x beträgt für diese Wellenlänge (0.93 ± 0.04) für den Schreibprozess und (0.86 ± 0.03) für den Löschprozess. Im Fall des Schreibprozesses gelingt im Rahmen des Fehlers wie schon im roten Spektralbereich eine gute lineare Beschreibung der Messdaten, was die Gültigkeit eines Ein-Zentren-Modells abermals bestätigt. Lediglich der Wert für den Löschprozess weicht im Vergleich zu allen anderen Messungen leicht ab. Dies wurde durch eine weitere, im Off-Bragg-Modus durchgeführte Messung überprüft, die im Anschluss noch

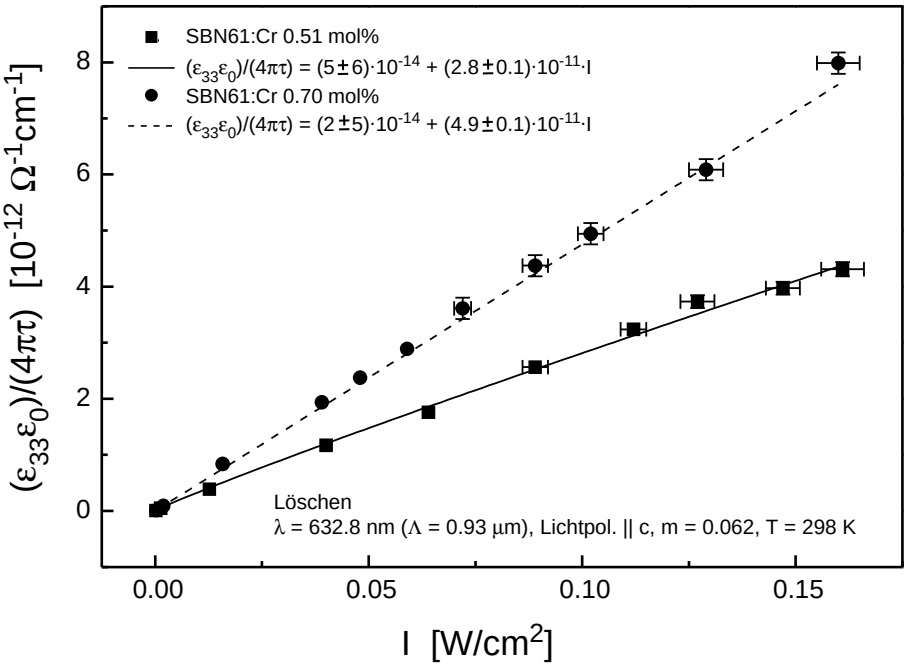


Abbildung 5.8: Holographisch bestimmte Photoleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Intensität beim Löschen für $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$, Vergleich zwischen SBN61:Cr 0.51 mol% und SBN61:Cr 0.70 mol%.

dargestellt wird. Die Werte für $\mu \cdot \tau_\mathrm{R}$ betragen $(1.1\pm0.1)\cdot10^{-11}$ cm^{2}V^{-1} für den Schreibprozess und $(1.2\pm0.1)\cdot10^{-11}$ cm^{2}V^{-1} für den Löschprozess. Beide Werte stimmen im Rahmen des Messfehlers überein. Der für $\lambda = 532\,\mathrm{nm}$ für den Schreibprozess gemessene Wert von $\mu \cdot \tau_\mathrm{R}$ stimmt mit den Werten im roten Spektralbereich überein. Lediglich der Wert für den Löschprozess ist für $\lambda = 532\,\mathrm{nm}$ etwa um einen Faktor 1.5 kleiner.

Wie bereits erwähnt, wurde die In-Bragg-Löschmessung für 532 nm durch eine Off-Bragg-Löschmessung überprüft. Das Ergebnis ist in der Abbildung 5.11 dargestellt. Die Linearität der Leitfähigkeit bzgl. der Intensität des Löschstrahls konnte hier im Gegensatz zu den anderen Messungen über einen großen Intensitätsbereich bis etwa $3\,\mathrm{W/cm^2}$ überprüft werden. Die Anpassung mit einer sublinearen Funktion ergibt einen Wert des Exponenten von (0.99 ± 0.04), so dass hier im Gegensatz zu der Löschmessung im In-Bragg-Modus die Gültigkeit des Ein-Zentren-Modells klar bestätigt wird. Der Wert für $\mu \cdot \tau_\mathrm{R}$ dagegen ist mit $(3.0 \pm 0.1) \cdot 10^{-11}\,\mathrm{cm^2V^{-1}}$ um einen Faktor 2.5 größer als der Wert, der aus den Messungen im In-Bragg-Modus (Abbildung 5.10) bestimmt wurde.

Zusammenfassend kann man feststellen, dass für die SBN61-Kristalle mit Dotierungskonzentrationen von 0.51 und 0.70 mol% Cr, die die größten Verstärkungseigenschaften von allen untersuchten Cr-dotierten Kristallen zeigten, ein Ein-Zentren-Modell für den Ladungstransport angenommen werden kann. Für schwä-

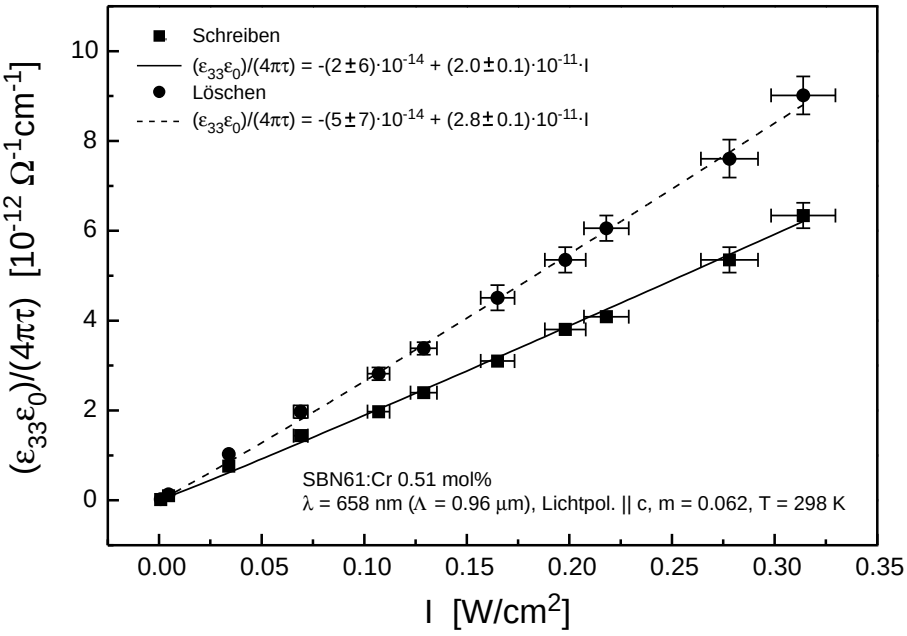


Abbildung 5.9: Holographisch bestimmte Photoleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Intensität für $\lambda = 658$ nm, Vergleich zwischen Schreib- und Löschprozess für SBN61:Cr 0.51 mol%.

chere Dotierungen liegt ein Mehr-Zentren oder Mehr-Valenzen Modell oder ein Hopping-Transport vor.

5.5 Abhängigkeit von Γ von der Wellenlänge λ

5.5.1 Wellenlängenabhängigkeit der Gitterdynamik

In der Abbildung 5.12 ist die spezifische Photoleitfähigkeit beispielhaft für den mit 0.22 mol% Cr dotierten Kristall und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse dargestellt. Die Messung erfolgte hier nach der konventionellen Methode, also über das Ohmsche Gesetz bei einer Beleuchtung mit unterschiedlichen Lichtintensitäten (Abb. 5.4). Die intensitätsabhängigen Messungen wurde bei verschiedenen Wellenlängen zwischen 450 und 760 nm und in Schritten von 10 nm durchgeführt. Man beachte, dass die Verläufe σ(I) für die untersuchte Dotierung nur mit einer sublinearen Funktion angepasst werden konnten: $\sigma \propto I^x$ mit $x = 0.86 < 1$. Die Wellenlängenabhängigkeit der spezifischen Photoleitfähigkeit folgt klar dem Verlauf der optischen Absorption für die untersuchte Dotierung. Insbesondere spiegelt sie das Maximum der Cr-Absorption bei $\lambda \approx 650$ nm wider.
Für den mit 0.51 mol% Cr dotierten Kristall wurden holographische Messungen im Schreib- und Löschmodus bei den Wellenlängen 488, 532, 632.8, 658, 685 und

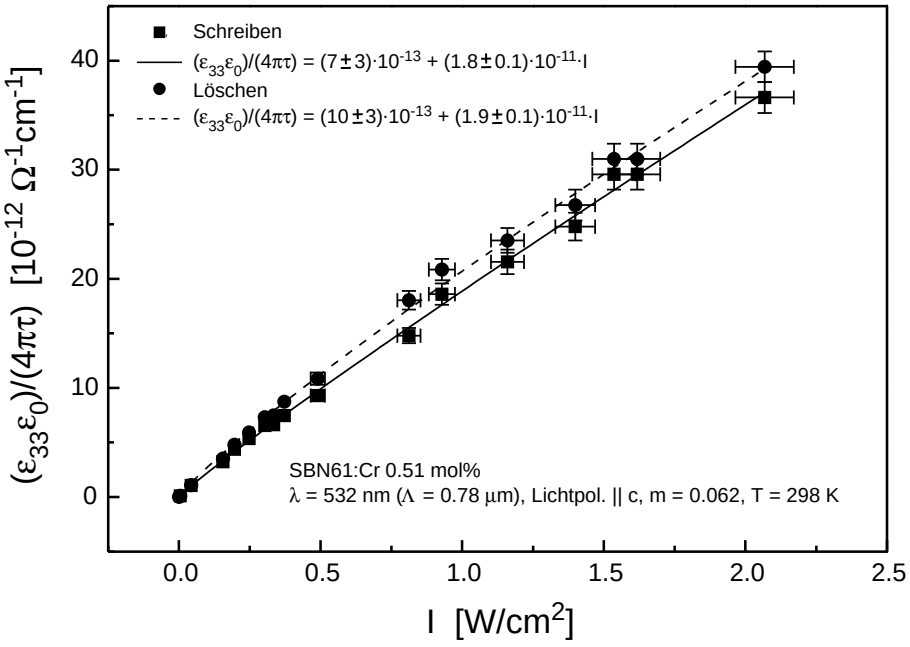


Abbildung 5.10: Holographisch bestimmte Photoleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Intensität für $\lambda = 532$ nm, Vergleich zwischen Schreib- und Löschprozess für SBN61:Cr 0.51 mol%.

785 nm durchgeführt. Für diese Dotierungskonzentration konnte die Dynamik des Aufbaus und Zerfalls holographischer Gitter monoexponentiell beschrieben werden. Diese Bedingung ist die Vorraussetzung für eine holographische Messung der Photoleitfähigkeit (Kap. 3.5). Aus der Anpassung einer Exponentialfunktion an die Messdaten resultierten die charakteristischen Konstanten Q_0 für die Bestrahlung, aus denen gemäß der Gleichung (3.91) die Wellenlängenabhängigkeit der spezifischen Photoleitfähigkeit bestimmt wurde. Man erhält für eine bestimmte Wellenlänge insgesamt vier Werte für Q_0, zwei für das Schreiben der Hologramme mit einer Lichtpolarisation sowohl parallel zur kristallographischen c-Achse als auch parallel zur kristallographischen a-Achse und entsprechend zwei Werte für das Löschen der Hologramme. Um die Abweichung vom monoexponentiellen Fall zu quantifizieren, wurden an die Messdaten auch gestreckte Exponentialfunktionen angepasst (Gl. (3.95) bzw. (3.96)). Mittelwerte des Exponenten β, der aus den Anpassungen resultiert, betragen 0.92 bzw. 1.02 für den Schreibprozess mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- bzw. a-Achse und 0.95 bzw. 0.92 für den Löschprozess mit beiden Lichtpolarisationen. Die niedrigsten Werte und damit die größten Abweichungen vom monoexponentiellen Fall betrugen $\beta = 0.87$ (Schreiben bei $\lambda = 658$ nm, Lichtpol. $\parallel$ c) und $\beta = 0.81$ (Löschen bei $\lambda = 488$ nm, Lichtpol $\parallel$ a). Die Werte für die spezifische Photoleitfähigkeit sind in der Abbildung 5.13 dargestellt. Wie bereits im Fall der konventionellen Messung für den mit 0.22 mol% Cr dotierten Kristall beobachtet, spiegeln alle

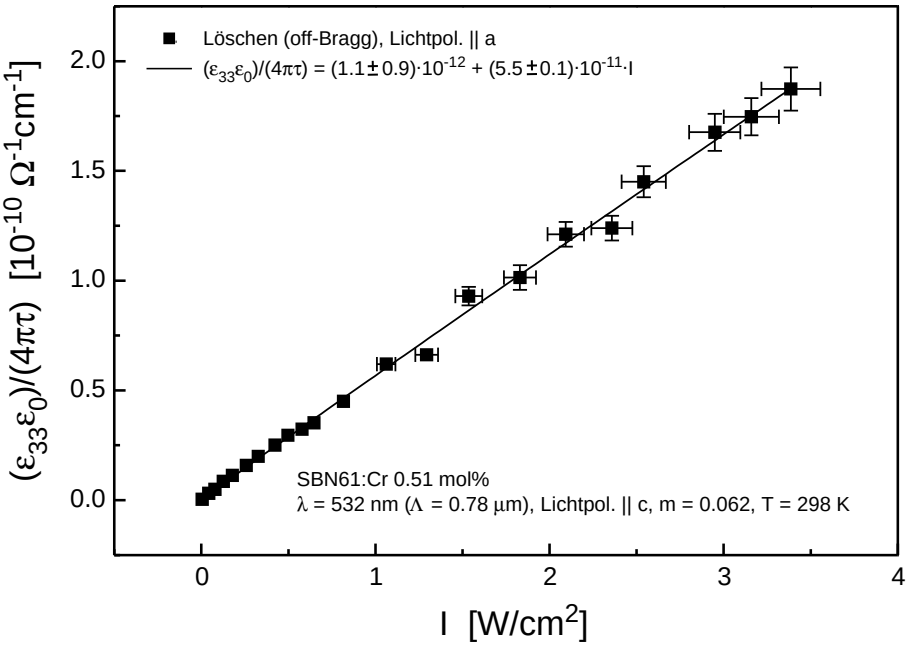


Abbildung 5.11: Holographisch bestimmte Photoleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Löschintensität für $\lambda = 532$ nm für SBN61:Cr 0.51 mol%. Im Gegensatz zu der in der Abbildung 5.10 dargestellten Messung wurde hier der Löschprozess off-Bragg und mit einer ordentlichen Lichtpolarisation durchgeführt.

vier Verläufe qualitativ den Verlauf der optischen Absorption wider (Kap. 5.2.5). Die Werte für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse sind größer als diejenigen für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse. Hier spiegelt sich die Beziehung $\alpha_o > \alpha_e$ wider. Zudem sind die Werte für die Schreibmessungen stets kleiner als diejenigen für die Löschmessungen. Für $\lambda = 532\,\mathrm{nm}$ erhält man $(\epsilon\epsilon_0/(4\pi Q_0)) = (\sigma_{ph}/I) = 6.2 \cdot 10^{-11}\,\mathrm{cm/V^2}$ im Fall einer Löschmessung mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse. Der Exponent β aus der Anpassung mit der KWW Funktion betrug 0.92. Aus der konventionellen Messung resultierte für dieselbe Wellenlänge und Lichtpolarisation ein Wert von $(\sigma_{ph}/I^x) = 2.3 \cdot 10^{-10}\,(\Omega^{-1}\mathrm{cm}^{-1})/(\mathrm{Wcm}^{-2})^x$ mit $x = 0.85$ (Abb. 5.5). Abgesehen davon, dass die Intensitätsabhängigkeit der Leitfähigkeit im Fall der konventionellen Messung für den mit 0.51 mol% Cr dotierten Kristall sublinear verläuft, unterscheiden sich die Werte etwa um einen Faktor 4.

5.5.2 Wellenlängenabhängigkeit des Sättigungswertes von Γ

Messungen des Verstärkungsfaktors Γ in Abhängigkeit von der Wellenlänge können durch die in Kapitel 3.7 dargestellte Theorie beschrieben werden. Dabei wur-

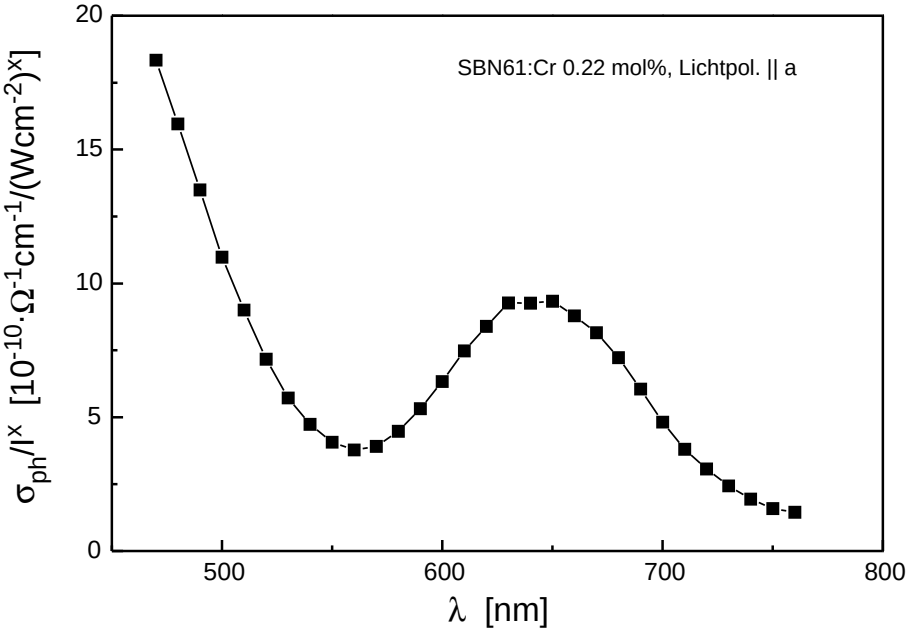


Abbildung 5.12: Spezifische Photoleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Wellenlänge für den mit 0.22 mol% Cr dotierten Kristall und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse.

de der Bragg-Winkel für alle Messungen bei verschiedenen Wellenlängen auf den Wert $\theta = 20\,^\circ$ festgelegt. Die Änderung der Wellenlänge entspricht daher wegen der Bragg-Bedingung einer Änderung der Periode des holographischen Gitters, bewirkt also dasselbe wie eine Änderung des Bragg-Winkels bei einer festen Wellenlänge (Kap. 3.8, 5.6). Der Unterschied besteht allein darin, dass mit der Variation des Bragg-Winkels ein deutlich größerer Variationsbereich der Gitterkonstanten abgedeckt wird als mit der Variation der Wellenlänge. Einer Änderung des externen Bragg-Winkels zwischen $3\,^\circ$ und $45\,^\circ$ bei $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$ entspricht z.B. eine Änderung der Gitterkonstanten zwischen $6.0\,\mu\mathrm{m}$ und $0.45\,\mu\mathrm{m}$. Einer Änderung der Wellenlänge zwischen 488 nm und 785 nm bei $\theta = 20\,^\circ$ entspricht nur eine Änderung der Gitterkonstanten zwischen $0.71\,\mu\mathrm{m}$ und $1.15\,\mu\mathrm{m}$.

Die Wellenlängenabhängigkeit des Brechungsindex [102] (Kap. 5.2.4) wurde hier berücksichtigt, die Wellenlängenabhängigkeit von r_{eff} und N_{eff} aufgrund des Mangels an verlässlichen Daten dagegen nicht. Die Abbildung 5.14 zeigt die gemessenen Daten für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- bzw. a-Achse einschließlich der Anpassungen von Gleichung (3.97) an die Messpunkte. Außerdem wurde das Verhältnis $(n_o^3/(n_e^3 \cdot \cos(2\theta_i))) \cdot (\Gamma_e/\Gamma_o)$ in die Abbildung eingetragen. Dieser Ausdruck entspricht nach den Gleichungen (3.76), (3.77), (3.78), (3.79), (3.100) und (3.101) gerade dem Verhältnis $r_{33}/r_{13} = g_{33}/g_{13}$, wobei für einen symmetrischen Einfall unter $\theta = 20\,^\circ$ in einer Transmissionsgeometrie $r_{\mathrm{eff}}^{t,c} \approx r_{33}$, $r_{\mathrm{eff}}^{t,a} = r_{13}$ und $n_{\mathrm{eff}} \approx n_e$ gesetzt wurde.

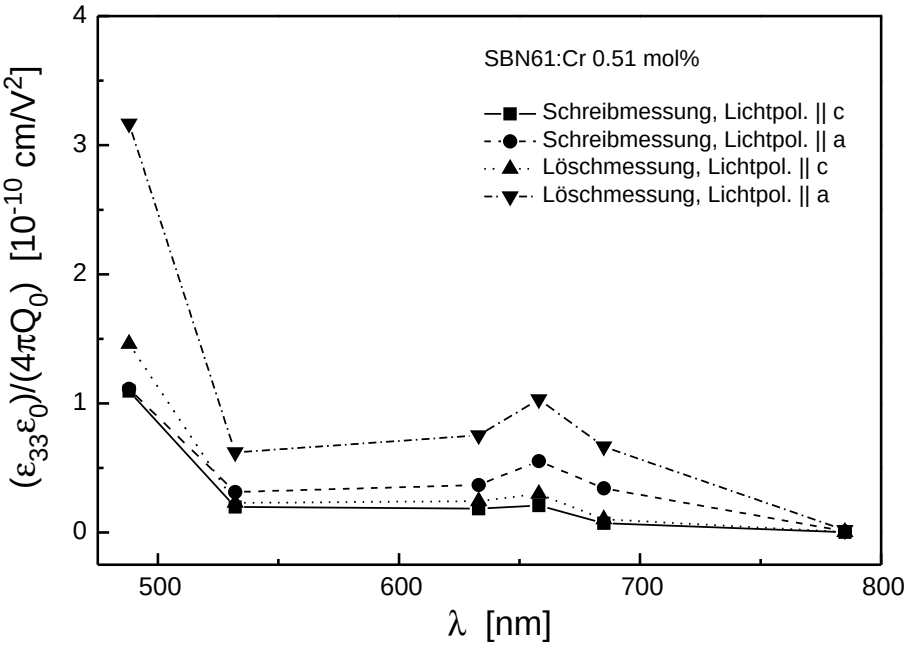


Abbildung 5.13: Spezifische Photoleitfähigkeit in Abhängigkeit von der Wellenlänge für den mit 0.51 mol% Cr dotierten Kristall. Die dargestellten Messpunkte zeigen die Werte, die aus den holographisch gemessenen Konstanten Q_0 für die Bestrahlung für den Schreib- und Löschprozess mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- und a-Achse bestimmt wurden.

Bei den Anpassungen der theoretischen Funktion an die Messdaten trat dasselbe Problem auf, wie es in [45] beschrieben wird, der Parameter B hat ein negatives Vorzeichen. Wie in [45] durch eine Abschätzung begründet, wird auch hier B gleich Null gesetzt während der Fitprozedur. Als Ergebnis erhält man die Werte $r_{33} = (102 \pm 2)\,\mathrm{pm/V}$ und $r_{13} = (16.9 \pm 0.2)\,\mathrm{pm/V}$, die um einen Faktor 2.3 bzw. 2.2 kleiner sind als die Werte für undotierte Kristalle bei $\lambda = 514.5\,\mathrm{nm}$ und $T = 23\,^\circ\mathrm{C}$ ($r_{33} = (235 \pm 21)\,\mathrm{pm/V}$ und $r_{13} = (47 \pm 5)\,\mathrm{pm/V}$) [43]. Auch im roten Spektralbereich bei 632.8 nm und $T = 21\,^\circ\mathrm{C}$ ($r_{33} = (237 \pm 3)\,\mathrm{pm/V}$ und $r_{13} = (37 \pm 1)\,\mathrm{pm/V}$) [44], sind die hier bestimmten Werte um einen Faktor 2.3 bzw. 2.2 kleiner.

5.6 Abhängigkeit von Γ vom Bragg-Winkel θ

Zunächst wurden Messungen für den symmetrischen Einfall der Schreibstrahlen in Transmissionsgeometrie und für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- und a-Achse durchgeführt. Die Bestimmung von r_{33}, r_{13} und N_{eff} erfolgte dabei über die Theorie, die [16] bzw. [45] entnommen und im Kapitel 3.8 kurz erläutert wurde. Dementsprechend erhält man an Stelle von r_{33} einen

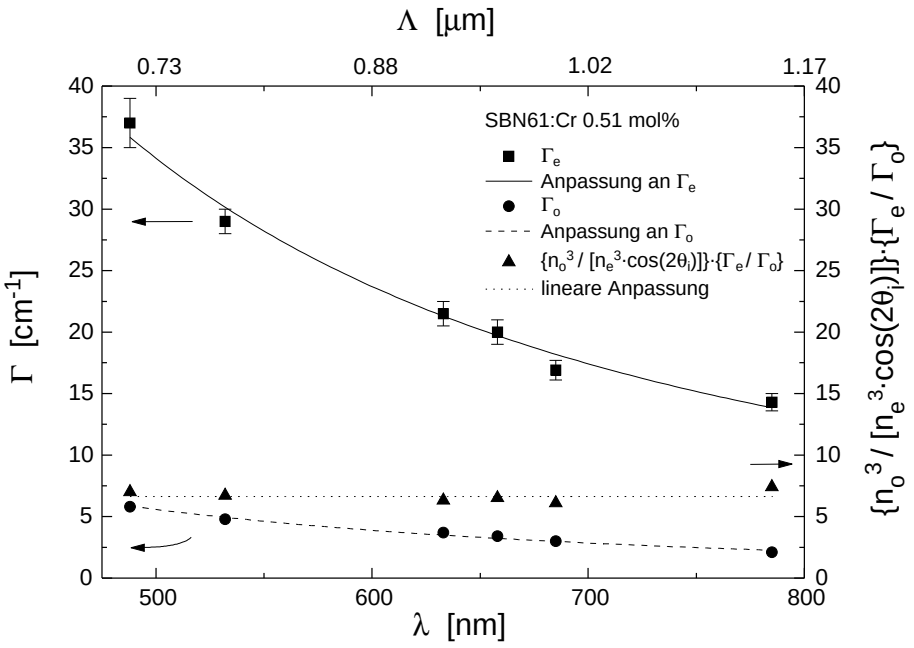


Abbildung 5.14: Wellenlängenabhängigkeit von Γ für SBN61:Cr 0.51 mol% mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- bzw. a-Achse.

effektiven elektrooptischen Koeffizienten r_{eff} der gemäß Gleichung (3.76) Anteile beider Lichtpolarisationen enthält. Wegen der gewählten Bragg-Winkel zwischen $0 < \theta < 45°$ ($0 < \theta_i < 18°$, $\infty > \Lambda > 0.45\mu$m) kann die Winkelabhängigkeit des Brechwertes vernachlässigt werden. Deswegen und wegen der Tatsache, dass r_{13} etwa um einen Faktor 6 kleiner ist als r_{33} kann man in guter Näherung annehmen, dass $r_{eff} \approx r_{33}$. Der Koeffizient r_{13} kann direkt bestimmt werden. Für N_{eff} erhält man zwei Werte, je nachdem, welche Lichtpolarisation gewählt wurde. Alle Messungen wurden mit einem Intensitätsverhältnis der einfallenden Schreibstrahlen von $\beta_0 \approx 1$ durchgeführt. Hierfür liegt zwar die größte Abschwächung des Pumpstrahls vor, Messungen mit einem Verhältnis von $\beta_0 \approx 100$ zeigten jedoch, dass eine Verringerung der Pumpstrahlabschwächung keinen signifikanten Einfluss auf den Sättigungswert von Γ hat. Alle Messungen erfolgten bei $\lambda = 632.8$ nm und bei Raumtemperatur 24 °C. Es wurde eine Reihe Ce-dotierter Kristalle mit den starken Dotierungskonzentrationen 0.40, 0.66, 1.13 und 2.07 mol% sowie ein mit 0.055 mol% Cr, ein mit 0.69 mol% Tm_2O_3 und ein mit 0.0047 mol% Co_2O_3 dotierter Kristall untersucht. Die Messergebnisse sind in den Abbildungen 5.15 und 5.16 dargestellt, in der oberen Bildhälfte für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-, in der unteren Bildhälfte parallel zur kristallographischen a-Achse. Es ist zu bemerken, dass Γ im Rahmen der zugrundeliegenden Theorie gegen den doppelten externen Bragg-Winkel 2θ aufgetragen wird. Für den mit 2.07 mol% Ce dotierten Kristall wurden einige Punkte nachgemessen, nachdem die Oberfläche des Kristalls nachpoliert, also qualitativ

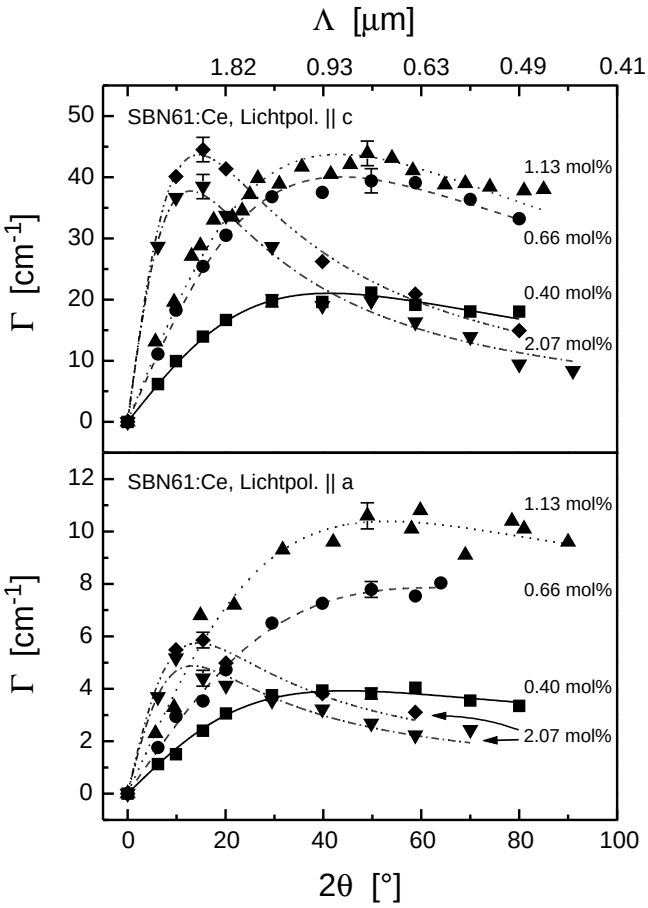


Abbildung 5.15: Winkelabhängigkeit des holographischen Verstärkungsfaktors für eine Reihe mit Ce dotierter Kristalle für $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$ und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse (oberes Bild) bzw. parallel zur kristallographischen a-Achse (unteres Bild). Die Linien entsprechen Anpassungen gemäß Gleichung (3.100).

verbessert wurde. Die Ergebnisse aus den Kurvenanpassungen sind in der Tabelle 5.8 aufgelistet. Für die Ce-dotierten Kristalle erhält man folgende Resultate: Die elektrooptischen Koeffizienten r_{13} und r_{33} wachsen beide mit Erhöhung der Dotierungskonzentration an. Die Werte für N_{eff} wachsen bis zu einer Konzentration von 1.13 mol% zunächst an, für den mit 2.07 mol% Ce am stärksten dotierten Kristall erfolgt ein Einbruch. Eine Verbesserung der Oberflächenqualität erhöht die Sättigungswerte von Γ um 20% (Lichtpol. $\|$ c) bzw. 50% (Lichtpol. $\|$ a) aufgrund der Verringerung der Lichtstreuung an Oberflächendefekten, wirkt sich aber nicht signifikant auf die aus den Anpassungen bestimmten photorefraktiven Parameter aus.

Die linearen elektrooptischen Koeffizienten für die mit Cr, Tm und Co dotierten Kristalle sind im Rahmen des Messfehlers gleich und liegen in der Größenord-

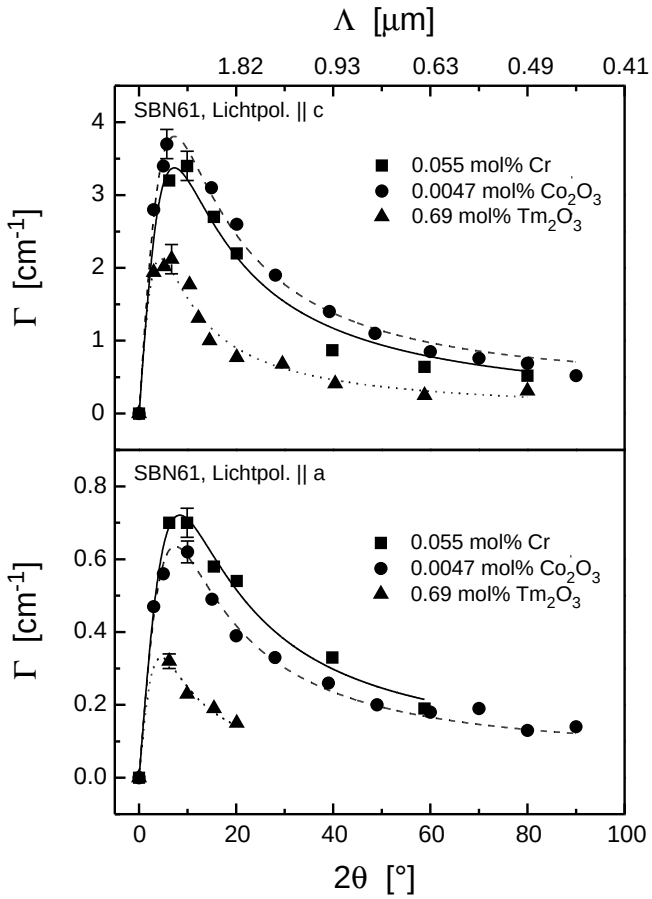


Abbildung 5.16: Winkelabhängigkeit des holographischen Verstärkungsfaktors für Cr-, Co- und Tm-dotierte Kristalle für $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$ und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse (oberes Bild) bzw. parallel zur kristallographischen a-Achse (unteres Bild). Die Linien entsprechen Anpassungen gemäß Gleichung (3.100).

nung der Werte für undotierte Kristalle. Die Werte für N_{eff} sind etwa um ein bis zwei Größenordnungen kleiner als diejenigen für die Ce-dotierten Kristalle. Dieses Resultat ist im Fall des Tm-dotierten Kristalls überraschend, da dieser eine vergleichbar starke Konzentration besitzt wie der mit 0.66 mol% Ce dotierte Kristall.

Zur Überprüfung wurde das Verhältnis Γ_e/Γ_o gebildet und mit dem erwarteten theoretischen Verlauf verglichen. Ein Vergleich zwischen Theorie und Experiment wird hier erleichtert, da durch die Verhältnisbildung die effektive Anzahldichte der photorefraktiven Zentren herausfällt. Die Ergebnisse sind in der Abbildung 5.17 für SBN61:Ce 0.40, 0.66, 1.13 und 2.07 mol% dargestellt. In die Abbildung sind zusätzlich zu den Messpunkten theoretisch berechnete Verläufe eingezeichnet. Die durchgezogene Linie ist mit den Werten für r_{ij} aus [44] berechnet bezüglich der in

Dotierung [mol%]	Methode	r_{13} [pmV^{-1}]	r_{33} [pmV^{-1}]	r_{42} [pmV^{-1}]	N_{eff} [10^{17}cm^{-3}]
undotiert	interferometrisch	37±1	237±3	-	-
undotiert	interferometrisch	47±5	235±20	-	-
Ce, 0.40	$\Gamma^{t,sym,a}(2\theta)$	33±2	-	-	1.5±0.1
	$\Gamma^{t,sym,c}(2\theta)$	-	190±8	-	1.2±0.1
Ce, 0.66	$\Gamma^{t,sym,a}(2\theta)$	50±2	-	-	2.3±0.2
	$\Gamma^{t,sym,c}(2\theta)$	-	343±16	-	1.6±0.1
	$\Gamma^{sym,c}(\theta_i^t)$	56±3	333±23	-	2.2±0.1
	$\Gamma^{r,rot,c}(\alpha_2)$	-	-	38±4	2.2±0.1
Ce, 1.13	$\Gamma^{t,sym,a}(2\theta)$	75±3	-	-	3.2±0.3
	$\Gamma^{t,sym,c}(2\theta)$	-	378±11	-	2.8±0.2
Ce, 2.07	$\Gamma^{t,sym,a}(2\theta)$	135±8	-	-	0.7±0.1
	$\Gamma^{t,sym,c}(2\theta)$	-	1110±71	-	0.72±0.06
Ce, 2.07 (nachpol.)	$\Gamma^{t,sym,a}(2\theta)$	147±11	-	-	0.9±0.1
	$\Gamma^{t,sym,c}(2\theta)$	-	1142±85	-	0.9±0.1
Cr, 0.055	$\Gamma^{t,sym,a}(2\theta)$	32±2	-	-	0.026±0.002
	$\Gamma^{t,sym,c}(2\theta)$	-	176±18	-	0.020±0.003
Tm_2O_3, 0.69	$\Gamma^{t,sym,a}(2\theta)$	27±5	-	-	0.026±0.007
	$\Gamma^{t,sym,c}(2\theta)$	-	181±17	-	0.026±0.004
Co_2O_3, 0.0047	$\Gamma^{t,sym,a}(2\theta)$	31±1	-	-	0.021±0.001
	$\Gamma^{t,sym,c}(2\theta)$	-	199±7	-	0.020±0.001

Tabelle 5.8: Übersicht über die aus den Anpassungen gewonnenen photorefraktiven Parameter. Die ersten beiden Zeilen beinhalten zum Vergleich Literaturwerte für r_{13} und r_{33} für undotierte Kristalle bei $\lambda = 632.8\,\text{nm}$ [44] bzw. 514.5 nm [43].

den Messungen verwendeten Wellenlänge $\lambda = 632.8\,\text{nm}$. Die gestrichelte Linie ist zum Vergleich mit den Werten für r_{ij} aus [43] für $\lambda = 514.5\,\text{nm}$ berechnet worden. Für die mit 0.40 und 0.66 mol% Ce dotierten Kristalle stimmen Experiment und Theorie gut überein. Für den mit 1.13 mol% Ce dotierten Kristall liegen bis auf die ersten beiden bei kleinen Winkeln gemessenen Werte alle Werte zu niedrig. Eine gute Übereinstimmung gibt es jedoch bzgl. der Kurve für 514.5 nm. Die Werte für den mit 2.07 mol% Ce dotierten Kristall liegen bis auf die Werte für $2\theta = 40\,^\circ$ und $2\theta = 70\,^\circ$ generell zu hoch.

Die Theorie wurde erweitert (Kap. 3.8), indem die Winkelabhängigkeit der effektiven Größen r_{eff} und n_{eff} sowie von ϵ_{ij} je nach gewählter Geometrie explizit ausgeschrieben wurde. Dadurch enthalten die Parameter der Funktionen, die an die Messpunkte angepasst werden, ausschließlich Größen, die bzgl. des Bragg-Winkels tatsächlich konstant sind. Eine daraus folgende Messstrategie wurde in Kapitel 3.8 erläutert.

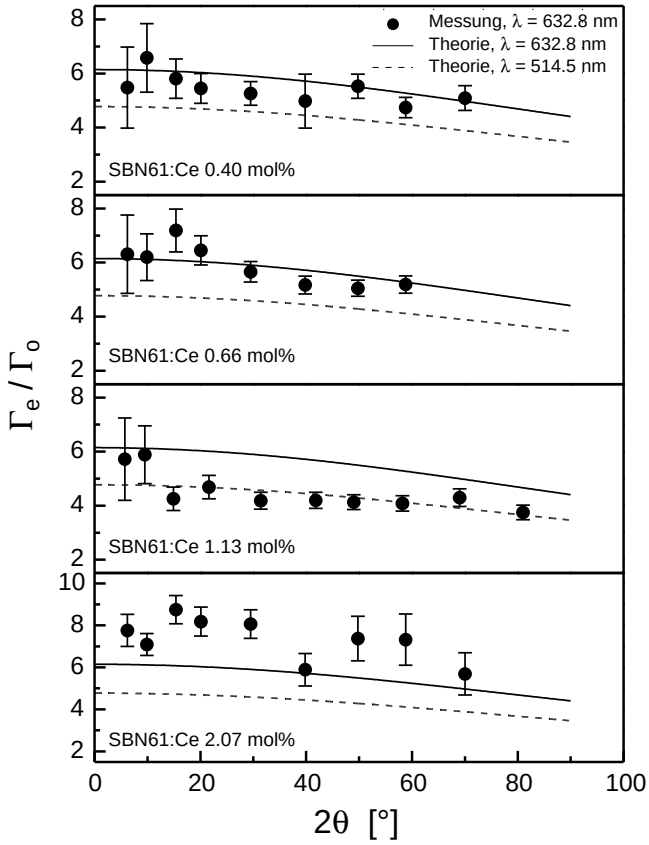


Abbildung 5.17: Verlauf des Quotienten Γ_e/Γ_o in Abhängigkeit vom doppelten externen Bragg-Winkel 2θ für SBN61:Ce 0.40, 0.66, 1.13 und 2.07 mol%. Die durchgezogene Linie ist aus der Theorie berechnet mit Werten für r_{ijk} aus [44] für die in den Messungen verwendete Wellenlänge $\lambda = 632.8\,\text{nm}$, die gestrichelte Linie entsprechend mit Werten aus [43] für $\lambda = 514.5\,\text{nm}$.

Prinzipiell können alle holographischen Messungen, die im Folgenden präsentiert werden, mit einem Kristallpräparat in Form eines Würfels mit ausreichender Kantenlänge zwischen 5 und 10 mm durchgeführt werden. In dicken Kristallen wächst jedoch der Einfluss holographischer Streuung [45]. Um diesen Effekt zu minimieren, wurde für die Messungen in Transmissiongeometrie ein Schnitt parallel, und in Reflexionsgeometrie ein Schnitt senkrecht zur kristallographischen c-Achse verwendet, beide jeweils mit Dicken von etwa 1 mm. Zur Verminderung der Abschwächung des Pumpstrahls wurde ein Verhältnis der beiden Schreibstrahlen von $\beta_0 \approx 100$ eingestellt. Im Fall der Messgeometrien, bei denen beide Schreibstrahlen symmetrisch auf die Kristalloberfläche treffen, wurde der holographische Gittervektor $\vec{K}$ stets parallel zur kristallographischen c-Achse eingestellt. Durch die Aufweitung des HeNe-Lasers um einen Faktor 2.3 wird der Überlapp der Schreibstrahlen im Bereich der Wechselwirkungslänge optimiert.

Im Fall der Messungen in Reflexionsgeometrie wurde der Kristall zur Anpassung des Brechungsindex in Kanadabalsam eingebettet, um die Fresnel-Reflektionen zu minimieren. Der Verstärkungsfaktor wurde aus den gemessenen Lichtintensitäten gemäß der Gleichung (3.21)bestimmt.
Die Abbildungen 5.18 und 5.19 zeigen die gemessenen Daten für $\Gamma^{\mathrm{sym,c}}(\theta_{\mathrm{i}}^{\mathrm{t}})$ und $\Gamma^{\mathrm{r,rot,c}}(\alpha_2)$ einschließlich der angepassten Kurven. Die Wahl der Messgeometri-

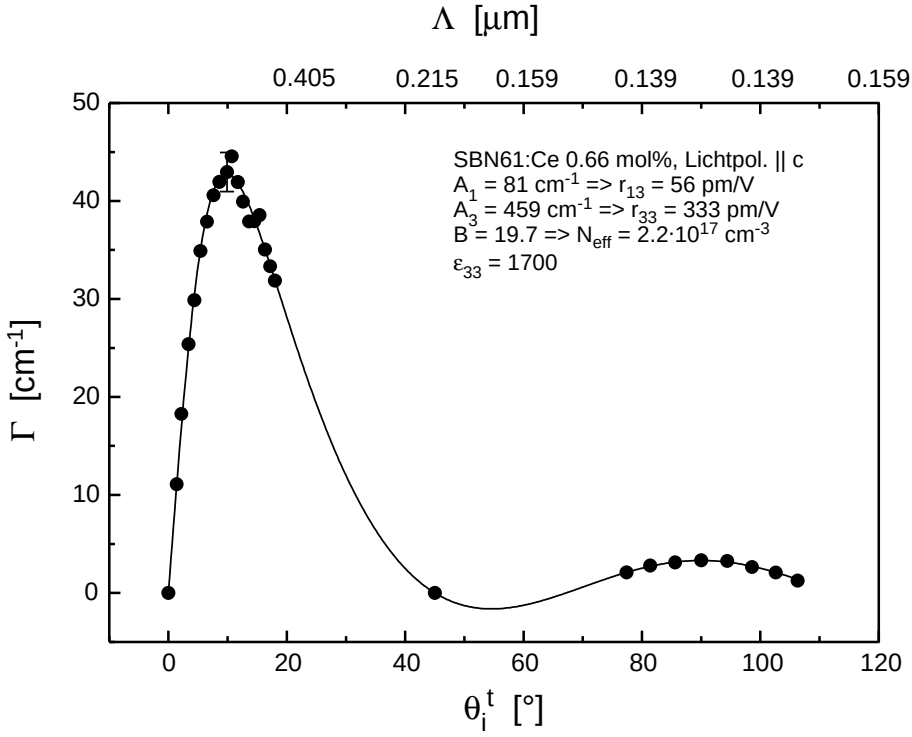


Abbildung 5.18: Winkelabhängigkeit des holographischen Verstärkungsfaktors bei $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$ für den symmetrischen Einfall der Schreibstrahlen mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse.

en wurde bereits im Kapitel 3.8 anhand von theoretisch berechneten Kurven, die auf Literaturwerten für die zu bestimmenden Parameter basieren, begründet. Im Fall des symmetrischen Einfalls mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse wird im Maximum ein hoher Γ-Wert von $\approx 45\,\mathrm{cm}^{-1}$ gemessen, was mit bereits veröffentlichten Daten übereinstimmt [33]. Im Fall der Drehung des Kristalls in Reflexionsgeometrie mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse resultiert ausgehend von einem Wert von $\Gamma^{\mathrm{r,rot,c}}(0) = 3.3\,\mathrm{cm}^{-1}$ eine symmetrische Variation von Γ bis zu einem Wert von $\approx 4.5\,\mathrm{cm}^{-1}$ für $\alpha_2 = +16.3°$ bzw. $\alpha_2 = -16.3°$. Die Ergebnisse der Anpassung sind in die Tabelle 5.8 eingetragen. Die Größen r_{13} und r_{33} wurden durch eine Anpassung an $\Gamma^{\mathrm{sym,c}}(\theta_{\mathrm{i}}^{\mathrm{t}})$ bestimmt, r_{42} bezieht sich auf die Drehung des Kristalls. Der Wert für die effektive Abzahldichte der photorefraktiven Zentren ergibt sich

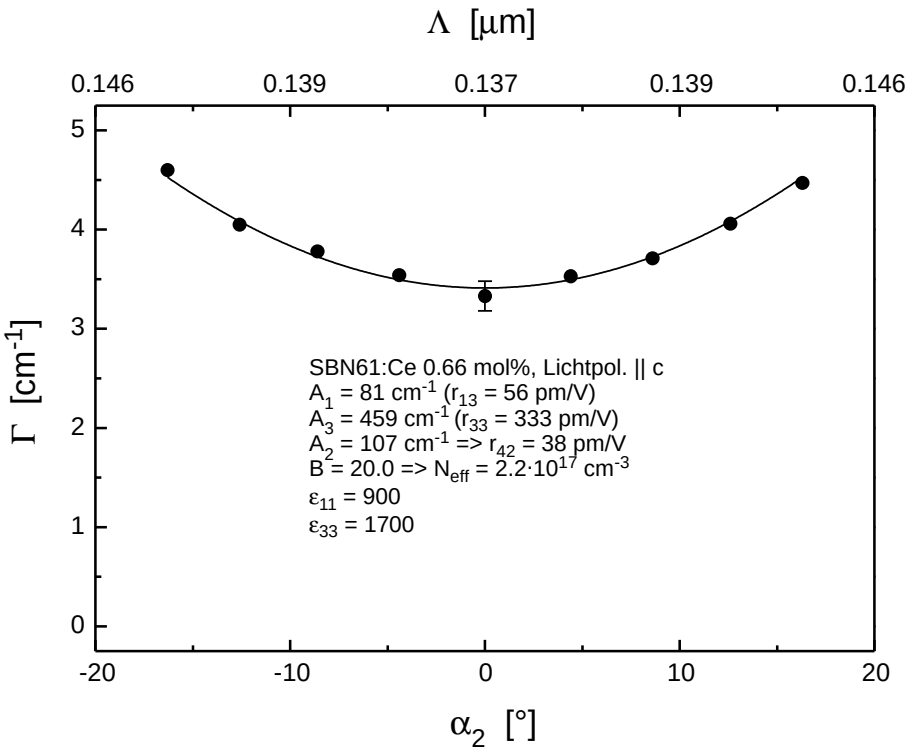


Abbildung 5.19: Winkelabhängigkeit des holographischen Verstärkungsfaktors bei $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$ für die Drehung des Kristalls mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse.

aus beiden Verfahren übereinstimmend zu $N_{eff} = 2.2 \cdot 10^{17}\,\mathrm{cm}^{-3}$.

5.7 Abhängigkeit von Γ von der Temperatur T

Zu Beginn jeder Messung wurde ein Hologramm bei Raumtemperatur bis zum Erreichen eines Sättigungszustandes in den Kristall geschrieben. Dann wurde der Kristall aufgeheizt. Dies kann auf zwei unterschiedliche Arten durchgeführt werden: Zum Einen kann das Hologramm nach dem Löschen bei einer bestimmten Temperatur und dem Einstellen einer anderen Temperatur neu geschrieben werden. Zum Anderen kann der Aufheizvorgang unter permanenter Beleuchtung mit den beiden Schreibstrahlen erfolgen. Da die Einstellung und Regelung der Temperatur das einmal geschriebene Hologramm beeinflusst, wurde in diesem Fall nach jeder Einstellung einer Temperatur gewartet, bis wieder ein Sättigungszustand erreicht war. Das Hologramm wurde also jedes Mal nachgeschrieben, ohne einen vorher durchgeführten, definierten Löschprozess. Beide Verfahren führen jedoch zu demselben quantitativen Ergebnis.
Das erste Verfahren wurde dazu verwendet, um die Dynamik des Schreibprozes-

ses bei verschiedenen Temperaturen zu untersuchen. In der Abbildung 5.20 sind die Verläufe $\Gamma(Q)$ beispielhaft für den mit 0.51 mol% Cr dotierten Kristall bei Raumtemperatur $T = 24\,°C$, bei $T = 50\,°C$ und $T = 60\,°C$ im Bereich des Phasenübergangs und bei $T = 90\,°C$ oberhalb des Phasenübergangs dargestellt. Die

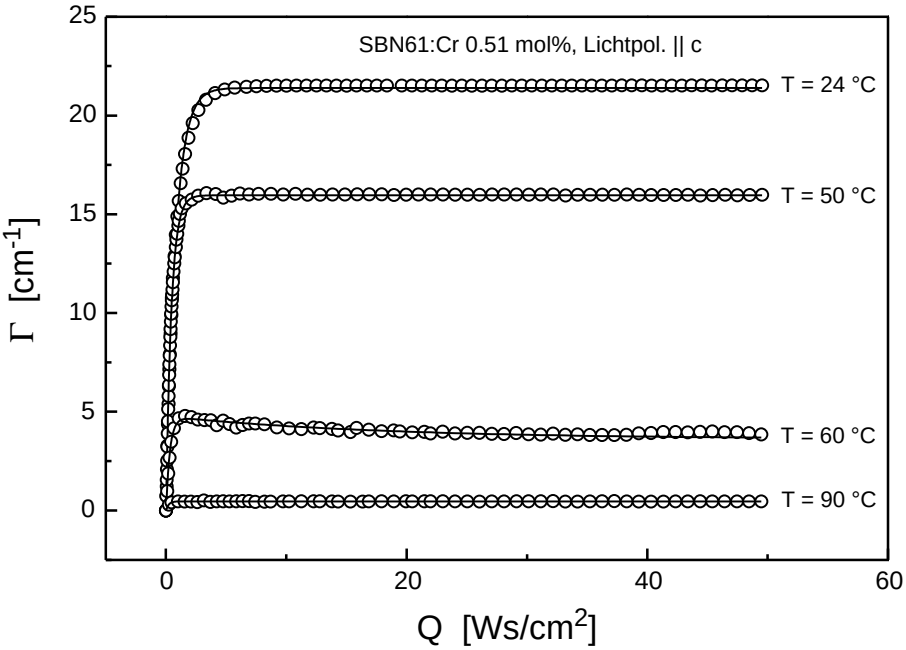


Abbildung 5.20: Abhängigkeit des holographischen Verstärkungsfaktors von der Bestrahlung Q für SBN61:Cr 0.51 mol% bei vier verschiedenen Temperaturen.

Verläufe $\Gamma(Q)$ für $T = 24\,°C$, $T = 50\,°C$ und $T = 90\,°C$ konnten monoexponentiell angepasst werden (Gl. (3.95) mit $\beta = 1$). Für $T = 60\,°C$ fällt der Wert von Γ nach dem Erreichen eines Maximums bis auf einen Sättigungswert leicht ab. Diese Kurve wurde mit einer Summe aus zwei Exponentialfunktionen angepasst:

$$\Gamma(Q) = \Gamma_{max} \cdot \left(1 - \exp\left(\frac{Q}{Q_1}\right)\right) - \Delta\Gamma \cdot \left(1 - \exp\left(\frac{Q}{Q_2}\right)\right) \tag{5.3}$$

Der Sättigungswert ergibt sich dabei aus $\Gamma_{sat} = \Gamma_{max} - \Delta\Gamma$. Die Ergebnisse der Anpassungen sind in die Tabelle 5.9 eingetragen. Man erkennt, dass sowohl die Sättigungswerte als auch die Werte für Q_0 mit einer Erhöhung der Temperatur abnehmen.
Weiterhin wurde der Verlauf der Sättigungswerte des Verstärkungsfaktors in Abhängigkeit von der Temperatur bestimmt. Dazu wurde das zweite der oben beschriebenen Verfahren verwendet, weil damit der Zeit- und Messaufwand minimiert werden konnte. In der Abbildung 5.21 sind die Messwerte beim Aufheizen und anschließenden Wiederabkühlen über den ferroelektrischen Phasenübergang für eine Ce-Dotierung (0.66 mol%) und eine Cr-Dotierung (0.51 mol%) dargestellt.

T [°C]	24	50	60	90
Γ_{sat} [cm^{-1}]	21.39±0.02	15.96±0.01	-	0.461±0.001
Γ_{max} [cm^{-1}]	-	-	4.74±0.02	-
$\Delta\Gamma$ [cm^{-1}]	-	-	1.15±0.02	-
Q_0 [Ws/cm^2]	0.786±0.004	0.449±0.002	-	0.227±0.006
Q_1 [Ws/cm^2]	-	-	0.332±0.005	-
Q_2 [Ws/cm^2]	-	-	17.8±0.8	-

Tabelle 5.9: Ergebnisse der Kurvenanpassungen an die Verläufe Γ(Q) (Abb. 5.20) bei Raumtemperatur T = 24 °C, bei T = 50 °C und T = 60 °C im Bereich des Phasenübergangs und bei T = 90 °C oberhalb des Phasenübergangs. Die Kurve für T = 60 °C wurde mit einer Summe aus zwei Exponentialfunktionen angepasst (Gl. (5.3)), alle anderen Kurven wurden monoexponentiell angepasst (Gl. (3.95) mit $\beta = 1$).

Die durchschnittliche Heizrate betrug $\Delta T/\Delta t \approx 1.7$ im Fall der Ce-Dotierung und $\Delta T/\Delta t \approx 0.6$ im Fall der Cr-Dotierung. Die Lichtpolarisation war parallel zur kristallographischen c-Achse eingestellt. Die Verläufe Γ(T) zeigen für beide Dotierungen ein ähnliches Verhalten, im Bereich des Phasenübergangs kommt es zur Ausbildung eines Wendepunktes. Aufgrund des Vergleichs zu temperaturabhängigen Messungen der Dielektrizitätskonstanten und pyroelektrischen Messungen wird dieser im Folgenden zur Definition einer Phasenübergangstemperatur T_m verwendet. Im Fall der Ce-Dotierung gibt es im Gegensatz zur Cr-Dotierung noch ein Maximum von Γ(T). Man beachte, dass die Kurven Γ(T) aufgrund der direkten Proportionalität von Γ zur Spontanpolarisation P_S (Gl. (3.107)) den Verlauf des Ordnungsparameters in Abhängigkeit von der Temperatur widerspiegeln, überlagert durch die Temperaturabhängigkeit der Dielektrizitätskonstanten. Der Phasenübergang verläuft nicht kritisch, es kommt vielmehr zu einem Ausschmieren der Kurven in den paraelektrischen Bereich hinein. Da hier ein holographischer Verstärkungseffekt gemessen wird, liegen noch azentrische Bereiche mit einem nicht verschwinden linearen elektrooptischen Koeffizienten vor. Das Aufheizen der Kristalle bis etwa 150 °C führt schließlich zu einem Verschwinden des Verstärkungseffektes. Beim anschließenden Abkühlen baut sich bei Temperaturen deutlich unterhalb der Phasenübergangstemperatur wieder ein Verstärkungseffekt auf, mit positiven Werten von Γ. Bei Raumtemperatur wird im Fall der Ce-Dotierung etwa 10 %, im Fall der Cr-Dotierung sogar etwa 40 % des Ausgangswertes erreicht.

In der Abbildung 5.22 (oberes Bild) sind die Temperaturverläufe Γ(T) beim Aufheizen für verschiedene Ce-Dotierungen, in der Abbildung 5.23 (oberes Bild) entsprechend für verschiedene Cr-Dotierungen dargestellt. In den unteren Bildern sieht man jeweils die Abhängigkeit der aus den Wendepunkten der Γ(T)-

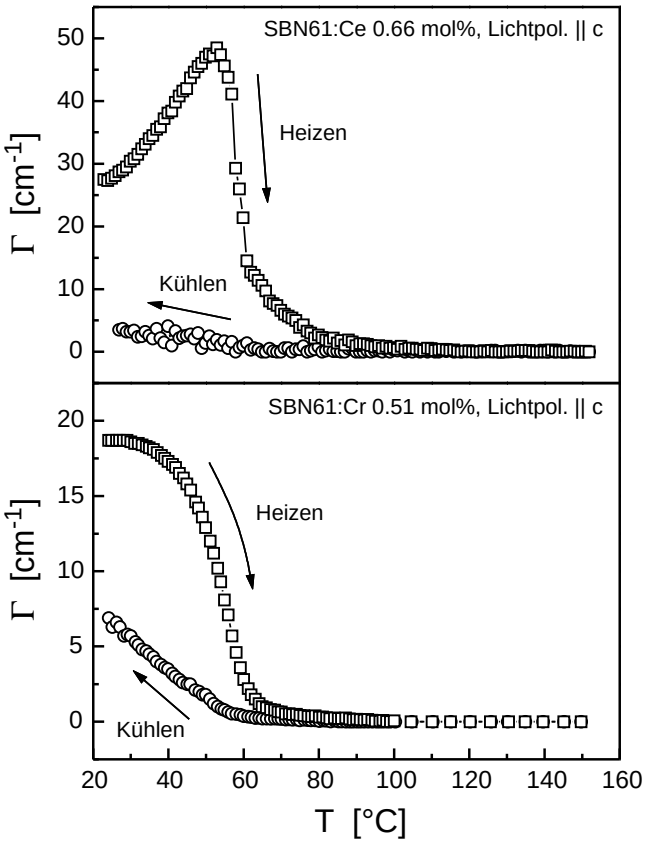


Abbildung 5.21: Temperaturverläufe des holographischen Verstärkungsfaktors für eine Ce-Dotierung (0.66 mol%, oberes Bild) und eine Cr-Dotierung (0.51 mol%, unteres Bild). Dargestellt sind jeweils der Heiz- und der Kühlprozess.

Kurven bestimmten Phasenübergangstemperaturen T_m von der Dotierungskonzentration. Die Ergebnisse pyroelektrischer Messungen sind zum Vergleich ebenfalls in die Abbildungen eingetragen. Die bereits in der Abbildung 5.21 beobachtete Ausbildung von Wendepunkten der Verläufe $\Gamma(T)$ zeigt sich ausnahmslos für alle der untersuchten Ce- und Cr-Dotierungen, so dass die Festlegung einer Phasenübergangstemperatur T_m möglich ist. Mit zunehmender Dotierungskonzentration verschiebt sich T_m zu kleineren Temperaturen. Trägt man T_m gegenüber der Dotierungskonzentration auf, so ergibt sich in guter Näherung ein linearer Zusammenhang. Durch eine Dotierung mit Konzentrationen von 2.07 mol% Ce bzw. 1.0 mol% Cr fällt T_m bis auf 26 °C ab. Der Wert für Cr-dotierte Kristalle ist aus der Geradenanpassung extrapoliert. Im Fall der pyroelektrischen Messungen findet man zwei lineare Verläufe, einen horizontalen Verlauf für $c_{Cr} < 0.22$ mol% und einen linearen Verlauf mit einer nicht verschwindenden Steigung für $c_{Cr} > 0.22$ mol%. Zusätzlich zu den Wendepunkten findet man für alle untersuchten Ce-dotierten Kristalle Maxima in den Verläufen $\Gamma(T)$, wie für

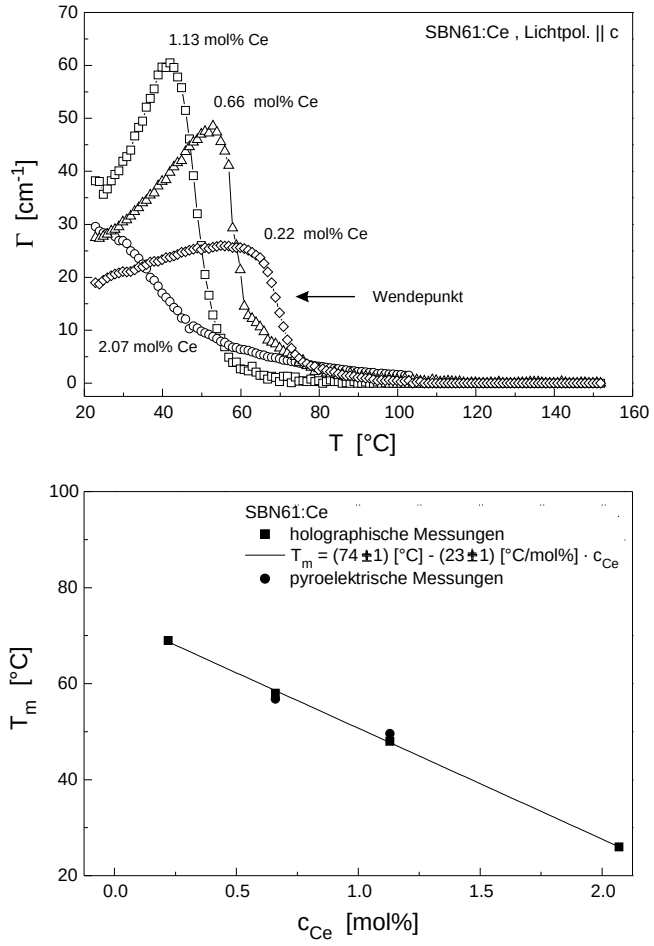


Abbildung 5.22: Verläufe Γ(T) für verschiedene Ce-Dotierungen (oberes Bild) und aus den Wendepunkten bestimmte Phasenübergangstemperaturen in Abhängigkeit von der Ce-Konzentration (unteres Bild). Die Ergebnisse pyroelektrischer Messungen sind zum Vergleich ebenfalls in die Abbildung eingetragen.

den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall bereits in der Abbildung 5.21 gezeigt wurde. Die Ausbildung dieser Maxima könnte mit dem Auftreten einer starken holographischen Streuung in SBN61:Ce zusammenhängen, die in SBN61:Cr nicht signifikant und somit vernachlässigbar ist. Als Einstrahlholographie kann die holographische Streuung neben der hier vorgestellten Zweistrahlholographie auch zur Detektion des Phasenübergangs verwendet werden [104]. Die Methode der Einstrahlholographie ist für Kristalle, die eine starke holographische Streuung zeigen, eine direkte und einfache Methode zur Detektion des Phasenübergangs. Für ein gezielt mittels Zweistrahlholographie in den Kristall hineingeschriebenes Primärhologramm stellt die holographische Streuung allerdings einen störenden Untergrund dar. In diesem Fall gibt es also eine Überlagerung von Streuuntergrund und Primärhologramm.

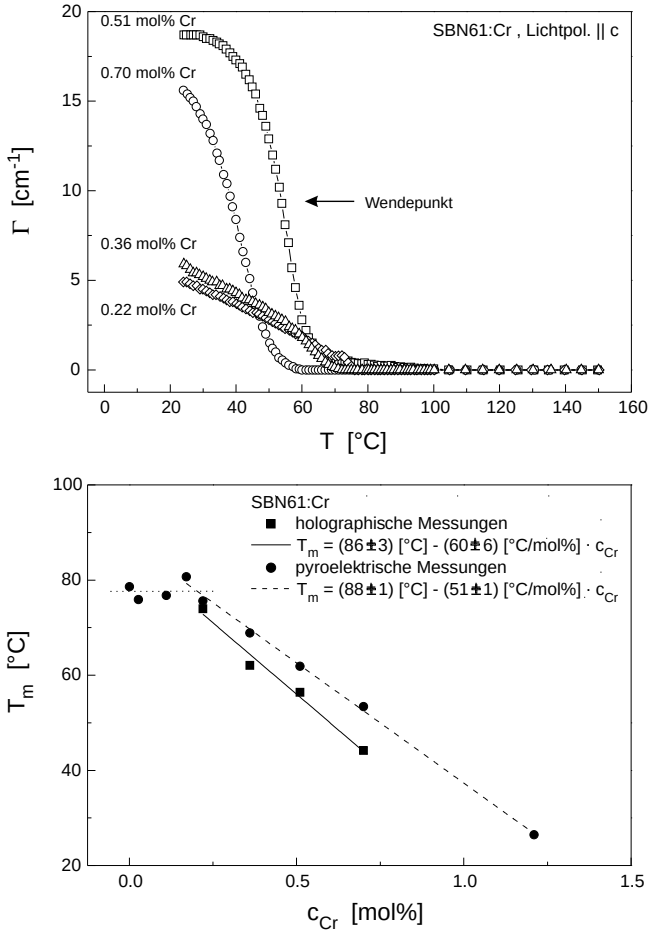


Abbildung 5.23: Verläufe Γ(T) für verschiedene Cr-Dotierungen (oberes Bild) und aus den Wendepunkten bestimmte Phasenübergangstemperaturen in Abhängigkeit von der Cr-Konzentration (unteres Bild). Die Ergebnisse pyroelektrischer Messungen sind zum Vergleich ebenfalls in die Abbildung eingetragen.

Weiterhin erkennt man aus den Abbildungen 5.22 und 5.23, dass der Wert von Γ schon bei Raumtemperatur mit Höhe der Dotierung anwächst, was hauptsächlich verursacht wird durch ein Anwachsen von r_{33} mit Erhöhung der Dotierung. Dieses Anwachsen wird wiederum verursacht durch ein Anwachsen der Dielektrizitätskonstante bei Absinken der Phasenübergangstemperatur [98].

Die Verläufe Γ(T) wurden für die mit 0.51 und 0.70 mol% Cr dotierten Kristalle auch für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse gemessen. Hierbei ergaben sich dieselben qualitativen Ergebnisse wie bei den Messungen mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse. Man kann daraus die Temperaturabhängigkeit des Quotienten Γ_e/Γ_o bestimmen, der die Temperaturabhängigkeit des Verhältnisses der linearen bzw. quadratischen elektrooptischen Koeffizienten widerspiegelt. Der Verlauf $(\Gamma_e/\Gamma_o)(T)$ ist in der

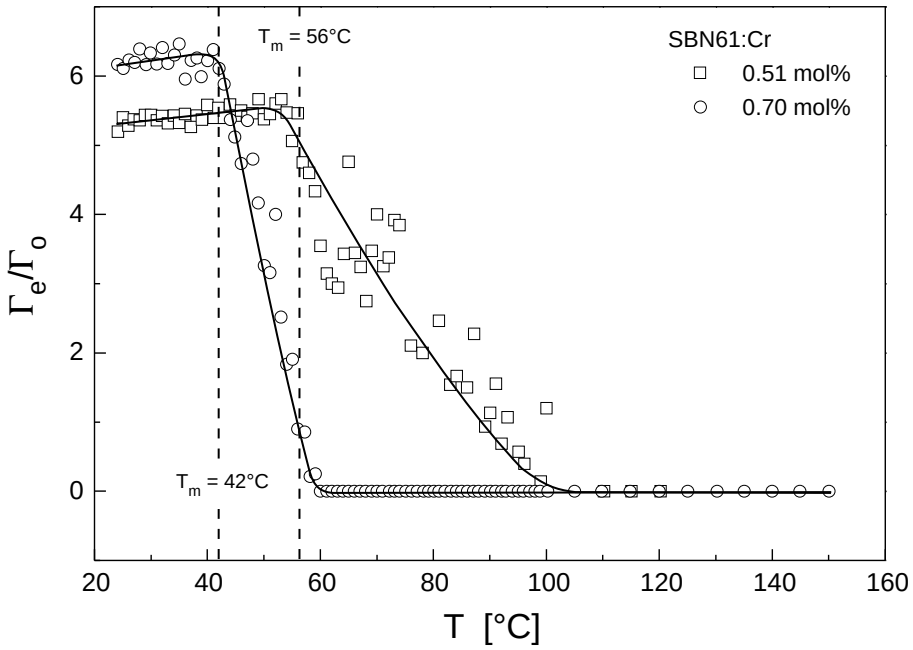


Abbildung 5.24: Temperaturverlauf des Quotienten Γ_e/Γ_o für die mit 0.51 und 0.70 mol% Cr dotierten Kristalle. Wegen der großen Streuung der Messwerte für $T > T_m$ sind für diesen Temperaturbereich nicht alle Messpunkte dargestellt.

Abbildung 5.24 dargestellt. Bei Raumtemperatur ergibt sich für beide Dotierungen der erwartete Wert von ≈ 6. Im Weiteren verläuft der Quotient annähernd horizontal bis jeweils die Phasenübergangstemperatur erreicht wird. Der Bereich ab $T = T_m$ ist nicht exakt definiert, da hier sowohl der Wert für Γ_e als auch der Wert für Γ_o gegen Null strebt. Daher kann es zu einer großen Steuung der Messwerte kommen.

5.8 Abhängigkeit von Γ und η von einem externen elektrischen Feld E_0

Das Anlegen eines externen elektrischen Feldes bei holographischen Messungen an SBN beeinflusst sowohl das Hologramm selbst als auch die ferroelektrische Polarisation des Materials. Über den Effekt eines holographischen Gedächtnisses [105] und über ein hystereseartiges Verhalten des Verstärkungsfaktors Γ bzw. eine optische Bistabilität [106] wurde berichtet. Dabei wurde in [105] eine schwache Dotierung von 0.05 Gew.% CeO_2 (0.11 mol% Ce) verwendet. Die ferroelektrische Polarisation konnte hier nur bei hohen elektrischen Feldstärken von bis zu 1000 V/mm geschaltet werden. Ein Grund hierfür ist die höhere Phasenübergangstemperatur der schwach dotierten gegenüber den stark dotierten Kristallen (Kap. 5.7), woraus eine geringere Beweglichkeit der ferroelektrischen Domänen

bei Raumtemperatur resultiert. Das hystereseartige Verhalten wurde bereits in [106] auf die Proportionalität von Γ zur Spontanpolarisation und die damit verbundene Richtungsabhängigkeit des holographischen Verstärkungsprozesses von der Orientierung der polaren Achse zurückgeführt. Gemäß der Theorie der Zweistrahlkopplung (Kap. 3.1.1) wird zunächst ein Anstieg von Γ bei Erhöhung der Stärke des externen elektrischen Feldes, das in Richtung der polaren c-Achse angelegt wird, beobachtet [47, 107]. In [47] wird dieses Anwachsen sowohl für eine schwach mit Cr dotierte Probe (0.01 Gew.%, entsprechend 0.026 mol% Cr_2O_3) als auch für eine stark mit Cr dotierte Probe (1.016 Gew.%, entsprechend 2.60 mol% Cr_2O_3) beobachtet. Gegenstand der Untersuchung in [107] ist eine schwach mit Ce dotierte Probe (0.02 Gew.%, entsprechend 0.045 mol%). Orlowski beobachtet in $LiNbO_3$:Fe und $LiTaO_3$:Fe für beide Polaritäten des externen elektrischen Feldes ein Anwachsen der Amplitude der Brechungsindexänderung Δn [108]. Da Δn hier aus dem Beugungswirkungsgrad η bestimmt wurde und Δn und η gemäß der Gleichung (3.82) quadratisch zusammenhängen, geht die Information über das Vorzeichen von Δn allerdings verloren.
Stark dotierte SBN-Kristalle zeigen eine signifikante Erniedrigung der Phasenübergangstemperatur mit Erhöhung der Dotierungskonzentration (Kap. 5.7). Daher sollte man die ferroelektrische Polarisation schon bei Raumtemperatur mit kleinen elektrischen Feldstärken schalten können. Aus diesem Grund wurden Messungen von Γ insbesondere an den stark mit Ce dotierten Kristallen durchgeführt. Alle Messungen wurden bei dem Bragg-Winkel, bei dem der maximale Wert von Γ für $E_{0W} = 0$ vorliegt (Kap. 5.6), und bei Raumtemperatur durchgeführt. Die Lichtintensitäten der beiden Schreibstrahlen wurden gleich gewählt (d.h. Modulationsgrad m = 1), da je nach Polarität des externen elektrischen Feldes einmal der Signal- und einmal der Referenzstrahl verstärkt wird. Zunächst wurde ein Gitter bis in die Sättigung geschrieben, dann schrittweise das elektrische Feld angelegt. Die Abbildung 5.25 zeigt das Ergebnis der Prozedur für den mit 1.13 mol% Ce dotierten Kristall für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse (oberes Bild) und parallel zur kristallographischen a-Achse (unteres Bild). Die Abbildung 5.26 zeigt das Ergebnis für den mit 0.69 mol% Tm_2O_3 dotierten Kristall und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse.
Ausgehend von $E_{0W} = 0$ wurde das externe Feld entgegengesetzt zur ursprünglichen Polungsrichtung angelegt (negatives Vorzeichen von E_{0W}) und dann im Zyklus einer Hysterese durchfahren. Die Inserts in der Abbildung 5.25 verdeutlichen den Zusammenhang zwischen der Orientierung der kristallographischen c-Achse, der Polarität der extern angelegten Spannung und der Richtung, in die die Verstärkung eines der beiden Schreibstrahlen erfolgt. Für den mit 1.13 mol% Ce dotierten Kristall wechselt Γ bei $E_c^- = -196\,V/mm$ und $E_c^+ = 101\,V/mm$ (Lichtpol. $\parallel$ c) bzw. $E_c^- = -196\,V/mm$ und $E_c^+ = 142\,V/mm$ (Lichtpol. $\parallel$ a) das Vorzeichen, die Verstärkungsrichtung kehrt sich um. Für den mit 0.69 mol% Tm_2O_3 dotierten Kristall ist das bei $E_c^- = -199\,V/mm$ und $E_c^+ = 76\,V/mm$ der Fall. Die Feldstärken $E_c^{+,-}$ werden im Folgenden in Analogie zu den reinen ferroelektri-

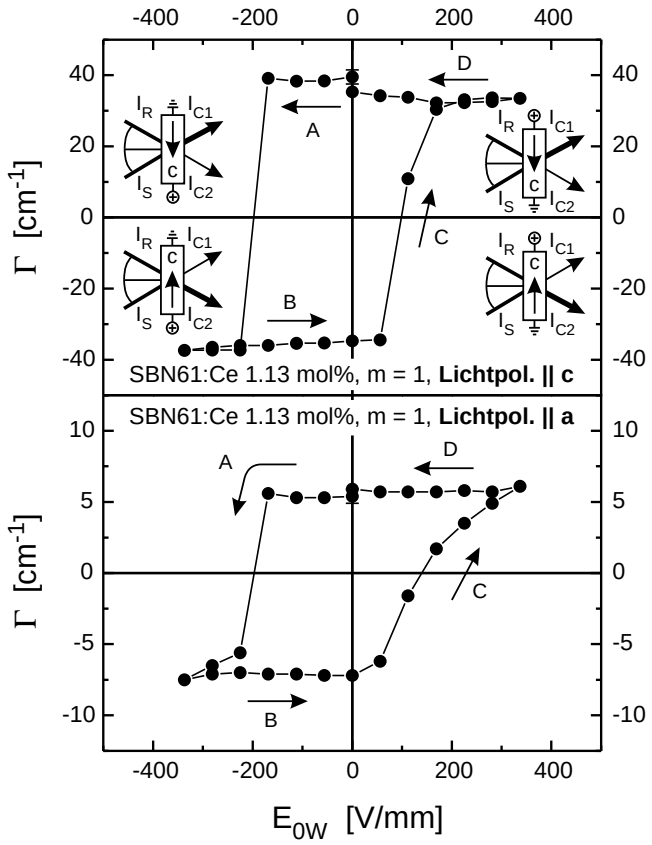


Abbildung 5.25: Hystereseverhalten des holographischen Verstärkungsfaktors für SBN61:Ce 1.13 mol% für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse (oberes Bild) und parallel zur kristallographischen a-Achse (unteres Bild). Das Hologramm wurde nach jeder neuen Einstellung einer Feldstärke bis in einen Sättigungszustand nachgeschrieben.

schen Hysteresekurven als Koerzitivfeldstärken bezeichnet. Es fällt auf, dass der Betrag der positiven und negativen Werte von Γ gleich ist, d.h. die Umkehrung der Verstärkungsrichtung ist symmetrisch bzgl. $\Gamma = 0$. Die Hysteresekurven sind dagegen nicht symmetrisch bzgl. der Feldstärke $E_{0W} = 0$. Für das Umkehren der Verstärkungsrichtung entgegengesetzt zur ursprünglichen Polungsrichtung wird eine um einen Faktor 1.4 bis 2.6 höhere Feldstärke benötigt als für den Rückpolungsprozess. Gemäß der Erwartung sind dabei die Koerzitivfeldstärken im Rahmen des Messfehlers unabhängig von der Lichtpolarisation. Dieses Hystereseverhalten ist charakteristisch für die mit 0.66 und 1.13 mol% Ce dotierten Kristalle sowie für den mit 0.69 mol% Tm_2O_3 dotierten Kristall. Der mit 0.40 mol% Ce dotierte Kristall zeigt keine Umkehrung der Verstärkungsrichtung, man erhält hier ein parabelförmiges Verhalten von Γ in Abhängigkeit vom externen Feld. Der mit 2.07 mol% Ce am stärksten dotierte Kristall zeigt qualitativ ein hystereseartiges Verhalten, jedoch ohne Vorzeichenwechsel. Die Phasenübergangstemperatur liegt

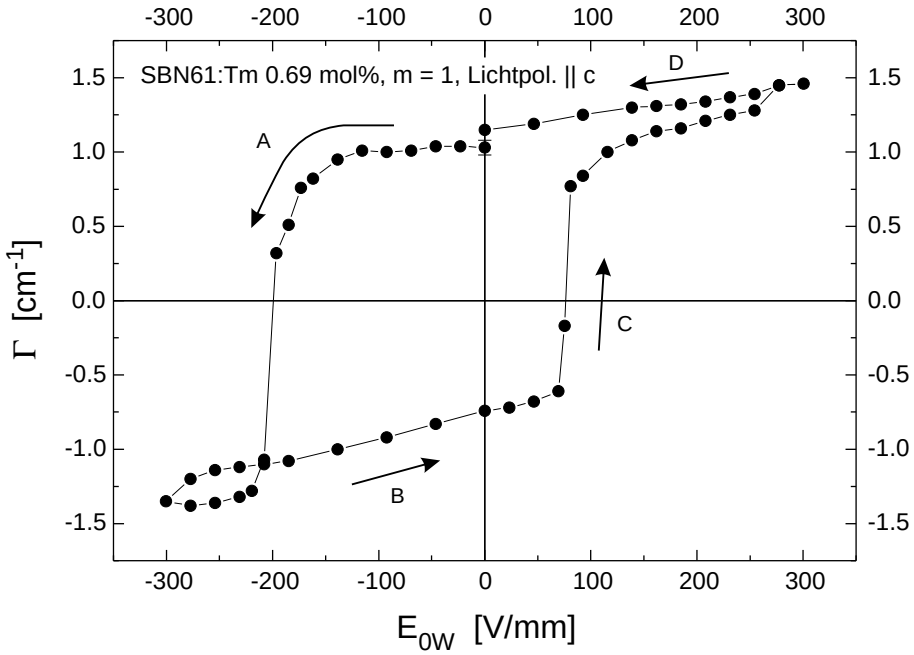


Abbildung 5.26: Hystereseverhalten des holographischen Verstärkungsfaktors für SBN61:Tm 0.69 mol% für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse.

hier bei Raumtemperatur T = 22 °C, so dass eine Umpolung keine stabile Konfiguration darstellt. Das Vorzeichen von Γ bleibt während des oben beschriebenen Zyklus immer positiv.
Da die beiden Schreibstrahlen den Kristall während der gesamten Prozedur beleuchten, kann man gemäß der im Kapitel 3.10 dargestellten Theorie davon ausgehen, dass das Hologramm selbst durch das externe Feld beeinflusst wird. Dies wurde auch beobachtet, nach jeder neuen Einstellung einer Feldstärke fällt der Wert von Γ ab, dieser Abfall ist im Bereich der Koerzitivfeldstärke am größten. Daher wurde nach jeder neuen Einstellung einer Feldstärke so lange gewartet, bis sich ein entsprechender Sättigungszustand eingestellt hat, d.h das Hologramm bei der eingestellten Feldstärke nachgeschrieben wurde. Dieser Nachschreibvorgang nahm für Ce-dotierte Kristalle typischerweise einen Zeitraum von einigen Minuten bis zu einer Stunde in Anspruch. Aufgrund der Optimierung der Messzeit wurde daher das Feld in großen Schritten von etwa 50 V/mm angelegt.
Im Gegensatz zu den oben beschriebenen Messungen kann der Einfluss des externen elektrischen Feldes auf das Hologramm beim Auslesen des Beugungswirkungsgrades η vernachlässigt werden, wenn das Hologramm ohne angelegtes Feld unter symmetrischem Einfall der beiden Schreibstrahlen geschrieben wurde [48] (Kap. 3.10). Um dennoch von der direkten Proportionalität des Verstärkungsfaktors zur ferroelektrischen Polarisation profitieren und die ferroelektrische Polarisation *im gesamten Kristallvolumen* direkt messen zu können, sieht die Messstra-

tegie wie folgt aus: Zunächst wird ein Hologramm unter symmetrischem Einfall der beiden Schreibstrahlen ohne angelegtes externes elektrisches Feld bis in Sättigung geschrieben. Durch Einkoppeln eines schwachen Tastarms (Kap. 4.5) wird dann das Hologramm mit einem angelegten elektrischen Feld ausgelesen. Dabei wird neben dem Beugungswirkungsgrad auch der Verstärkungsfaktor getastet, d.h. das Hologramm wird sowohl mit dem Referenz- als auch mit dem Signalstrahl des Tastarms simultan ausgelesen. Aus diesem Grunde wurden die Lichtintensitäten des Referenz- und des Signalstrahls sowohl für den Schreib- als auch für den Tastarm gleich groß gewählt (Modulationsgrad $m = 1$). Aus den gemessenen Werten von Γ und η wird dann wegen der Möglichkeit des Vergleichs die Amplitude der Brechungsindexänderung Δn berechnet und jeweils $\Delta n(E_{0L})$ aufgetragen. Auf diese Weise wurden die in der Abb. 5.27 dargestellten, mit einer Frequenz von $2 \cdot 10^{-3}$ Hz nacheinander durchlaufenen Hysteresekurven gemessen. Da das Hologramm, wie oben erwähnt, mit einem Modulationsgrad von $m = 1$ geschrieben wurde, stand die maximale Intensität der einfallenden Strahlen von $I_0 = I_R + I_S = 247\,mW/cm^2$ zur Verfügung. Nach dem Durchlaufen der ersten Schleife wird der Startwert von Δn nicht mehr erreicht, er verkleinert sich. Diese Verkleinerung setzt sich in den weiteren Zyklen fort und erreicht einen Sättigungszustand bei etwa der zehnten Hysterese, die eine geschlossene Kurve darstellt. Dabei flachen die Kurven zunehmend ab und verrunden, d.h. es liegt eine Alterung im gesamten Volumen des Materials vor. Für eine Quantifizierung dieses Prozesses wird die Abnahme $\mathcal{A}$ der Größe

$$\delta := \frac{\Delta n^{max} - \Delta n^{min}}{2} \tag{5.4}$$

zwischen der ersten (δ^i) und der ausgealterten (δ^f) Hysteresekurve betrachtet:

$$\mathcal{A}\,[\%] := \left(1 - \frac{\delta^f}{\delta^i}\right) \cdot 100. \tag{5.5}$$

Die Größen Δn^{max} bzw. Δn^{min} sind die Werte von Δn für $E_{0L} = 0$ auf dem positiven bzw. negativen Abschnitt der Ordinate. Die Abnahme des Wertes von Δn für die in der Abbildung 5.27 dargestellte Messung beträgt demnach etwa 30-40%. Dabei ist sowohl der mit Γ als auch der mit η gemessene erste Durchlauf bzgl. $\Delta n = 0$ symmetrisch und die Absolutwerte von Δn stimmen sehr gut überein. Für $E_{0L} = 0$ betragen diese etwa $1.5 \cdot 10^{-4}$.
Qualitativ dasselbe Verhalten zeigen auch die in der Abbildung 5.28 dargestellten mehrmals nacheinander durchlaufenen Hysteresekurven mit dem Unterschied, dass die Abnahme von Δn etwa 60 % beträgt, also deutlich größer ist. Bei dieser Messung wurde das Hologramm mit einem Intensitätsverhältnis der beiden Schreibstrahlen von 1:500, entsprechend einem Modulationsgrad von $m = 0.089$, und einer Intensität von $I_0 \approx I_R = 47\,mW/cm^2$ geschrieben. Hier wurde der abgeschwächte Signalstrahl zum Auslesen des Hologramms bei angelegtem elektri-

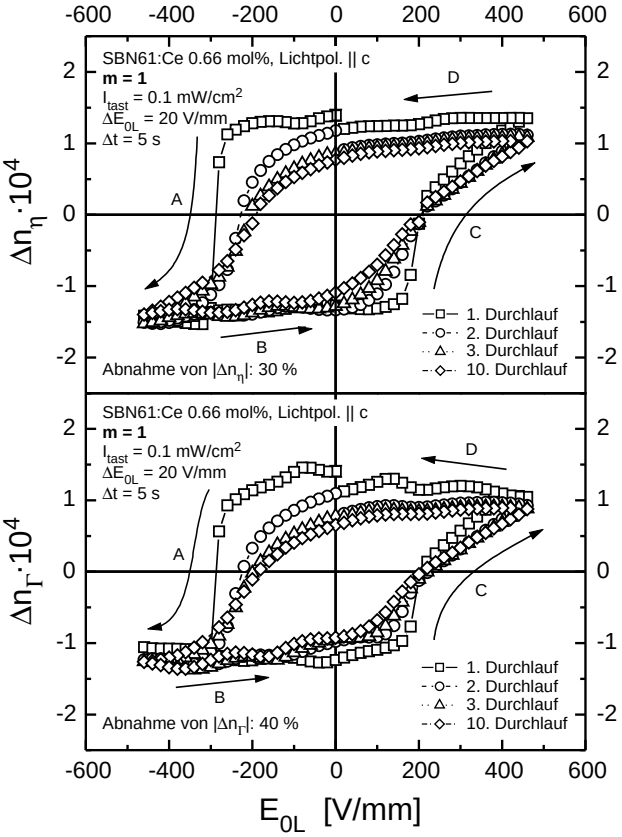


Abbildung 5.27: Hystereseverhalten der Amplitude Δn der Brechungsindexmodulation, berechnet aus η (oberes Bild) und Γ (unteres Bild). Die Werte für Γ wurden aus einem gleichzeitigen Auslesen mit dem Referenz- und Signalstrahl bestimmt. Das Hologramm wurde mit $\beta_0 = 1$ (m = 1) geschrieben. Die mehrmals nacheinander durchlaufenen Hysteresekurven stimmen für beide Messgrößen sehr gut überein und zeigen eine Alterung.

schen Feld verwendet. Dabei ist zu beachten, dass aufgrund des kleineren Modulationsgrades die Absolutwerte von Δn kleiner sind, sie betragen etwa $0.3 \cdot 10^{-4}$ für $E_{0L} = 0$. Der erste Durchlauf ist symmetrisch bzgl. $\Delta n = 0$.
Der Alterungsprozess ist offensichtlich vom Intensitätsverhältnis, also dem Modulationsgrad m, und der Intensität I_0 der einfallenden Strahlen beim *Schreiben* des Hologramms abhängig. Für eine genauere Untersuchung wurden Hologramme mit gleichen einfallenden Intensitäten, aber unterschiedlichen Intensitätsverhältnissen bis zum Erreichen eines Sättigungszustandes geschrieben. Aus den anschließenden Messungen der Hysterese wurde, wie oben beschrieben, die Abnahme $\mathcal{A}$ von Δn bestimmt. Dabei wurde der Kristall vor jeder Messung neu gepolt. Die Ergebnisse sind in der Tabelle 5.10 aufgelistet.
Für die mit 1.13 mol% Ce und 0.51 mol% Cr dotierten Kristalle findet man ebenfalls eine Alterung. Für einen Wert von m = 1 beim Schreiben des Hologramms

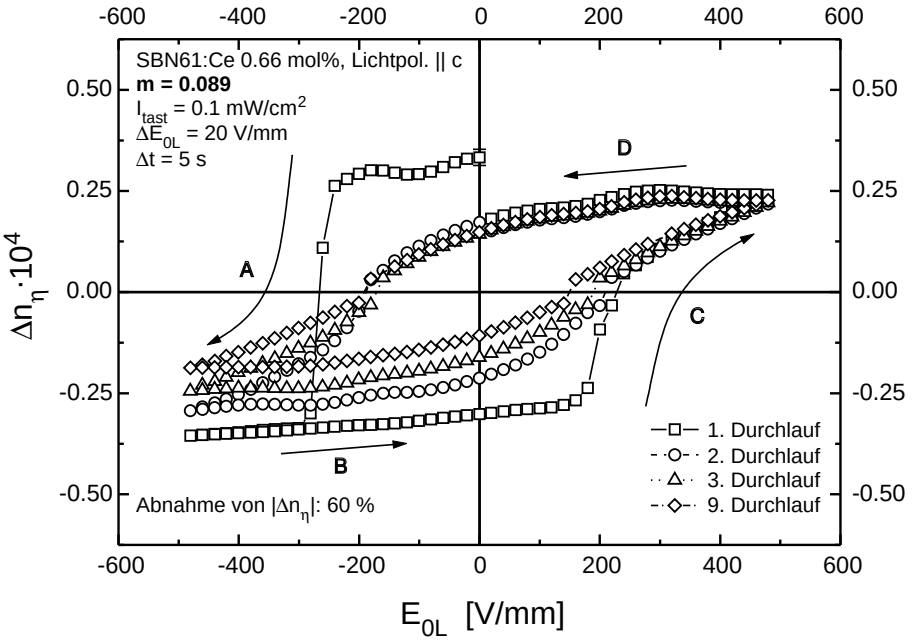


Abbildung 5.28: Hystereseverhalten der Amplitude Δn der Brechungsindexmodulation, berechnet aus η. Das Hologramm wurde mit $\beta_0 = 500$ (m = 0.089) geschrieben. Die mehrmals nacheinander durchlaufenen Hysteresekurven zeigen eine deutliche Alterung.

beträgt die Abnahme von Δn in beiden Fällen 43 %. Dies stimmt gut mit Wert von 37 % für den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall überein. Allerdings werden für das Erreichen des ausgealterten Zustands im Fall des mit 1.13 mol% Ce dotierten Kristalls 15 statt 10 Zyklen benötigt.
Zusätzlich zu der beobachteten Alterung weist die Lage der Koerzitivfeldstärken eine Asymmetrie auf. Diese wurde bereits bei den Hysteresekurven beobachtet, die für die mit 1.13 mol% Ce und 0.69 mol% Tm_2O_3 dotierten Kristalle während des Schreibprozesses aufgenommen wurden (Abb. 5.25 und 5.26). Die Abbildung 5.29 zeigt die Abhängigkeit des Betrages der Koerzitivfeldstärken vom Betrag des Raumladungsfeldes, das aus den Werten für den Modulationsgrad m (Tab. 5.10)

m	1	0.49	0.087	0.062
$\mathcal{A}$ [%]	37	58	59	56
I_0 [mW/cm^2]	54	47	47	42

Tabelle 5.10: Abnahme $\mathcal{A}$ von Δn beim mehrmaligen Durchlaufen von Hysteresekurven in Abhängigkeit vom Modulationsgrad m der eingeschriebenen Hologramme bei gleicher einfallender Intensität. Die Größe $\mathcal{A}$ ist durch die Gleichung 5.5 definiert.

gemäß der Gleichung (3.54) berechnet wurde. Im oberen Bild ist das Ergebnis für die ersten, im unteren Bild für die neunten Durchläufe, also die ausgealterten Hysteresekurven, dargestellt. Im Rahmen des Messfehlers von $\pm 15\,\mathrm{V/mm}$ sind die

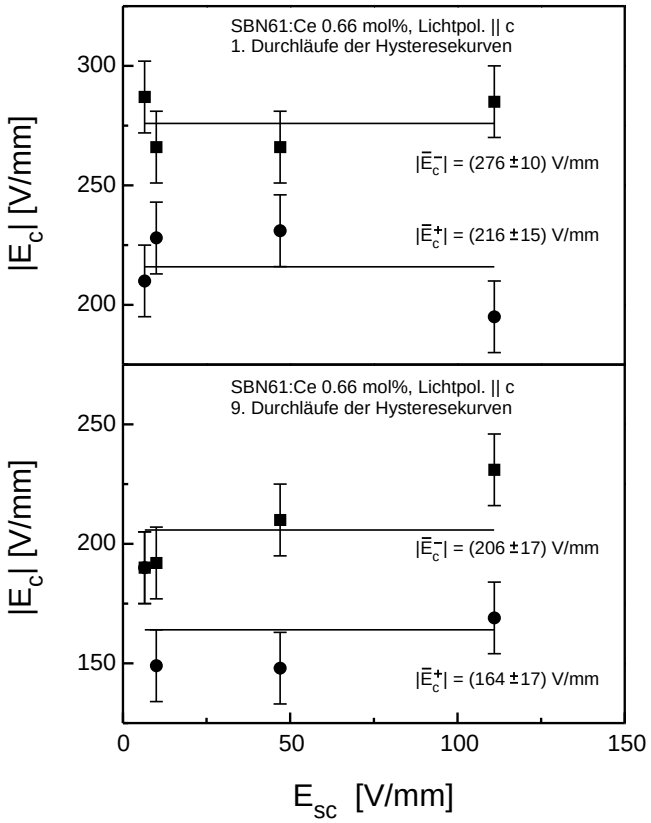


Abbildung 5.29: Abhängigkeit des Betrages der Koerzitivfeldstärken vom Betrag des Raumladungsfeldes für die 1. Durchläufe (oberes Bild) und die 9. Durchläufe (unteres Bild) der Hysteresekurven.

Koerzitivfeldstärken vom Betrag des Raumladungsfeldes unabhängig. Mittelwerte ergeben $|\bar{E}_c^-| = (276 \pm 10)\,\mathrm{V/mm}$ und $|\bar{E}_c^+| = (216 \pm 15)\,\mathrm{V/mm}$ für die ersten Durchläufe sowie $|\bar{E}_c^-| = (206 \pm 17)\,\mathrm{V/mm}$ und $|\bar{E}_c^+| = (164 \pm 17)\,\mathrm{V/mm}$ für die neunten Durchläufe. Im Fall einer Polarität des externen Feldes entgegengesetzt zur ursprünglichen Polungsrichtung sind die Koerzitivfeldstärken um einen Faktor 1.3 größer als im Fall einer Polarität in Richtung der ursprünglichen Polung. Sowohl $|\bar{E}_c^-|$ als auch $|\bar{E}_c^+|$ nehmen vom ersten bis zum neunten Durchlauf der Hysteresekurven um einen Faktor 1.3 ab.

5.8.1 Rockingkurven

Die Aufnahme einer Rockingkurve besteht in der Messung des Beugungswirkungsgrades η während einer Variation der Bragg-Bedingung, die durch eine

Änderung des Bragg-Winkels θ_B oder der Wellenlänge erreicht werden kann. Die Variation der Bragg-Bedingung wird durch den Parameter ξ_{Kog} (Gl. (3.84)) beschrieben, und η ist dann durch die Gleichungen (3.85) oder (3.86) gegeben. Im Rahmen dieser Untersuchung wurde der Bragg-Winkel durch eine Drehung des Kristalls um eine zur Tischebene senkrechte Achse geändert. Der Drehwinkel entspricht dabei der Abweichung $\Delta\theta_B$ vom Bragg-Winkel. Die Rockingkurven wurden bei verschieden hohen externen elektrischen Feldern mit einer Orientierung in Richtung und entgegengesetzt zur Richtung der ursprünglichen Polung aufgenommen. So kann der Einfluss eines externen elektrischen Feldes auf ein einmal geschriebenes Hologramm untersucht werden. Aus den im Kapitel 3.10 durchgeführten theoretischen Betrachtungen erwartet man, dass ein Hologramm, das unter symmetrischem Einfall der beiden Schreibstrahlen und ohne ein angelegtes externes elektrisches Feld geschrieben wurde, beim Auslesen unter einem angelegten externen elektrischen Feld nicht signifikant beeinflusst wird.
Vor der Aufnahme der Rockingkurven wurde die Abhängigkeit des Beugungswirkungsgrades von einem externen elektrischen Feld beim Auslesen unter der Bragg-Bedingung geprüft. Die Untersuchungen wurden beispielhaft für den mit 1.13 mol% Ce dotierten Kristall und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse durchgeführt. Man erhält die in der Abbildung 5.30 dargestellte Butterfly-Kurve. Das externe elektrische Feld wurde zuerst, analog zu den im Kapitel 5.8 gezeigten Hysteresekurven, entgegengesetzt zur Richtung der ursprünglichen Polung eingestellt. Die Feldstärke wurde mit einer Schrittweite von 56 V/mm erhöht (Pfad A). Bei etwa -200 V/mm durchläuft η die Null und steigt bis -337 V/mm auf 5.9 % an. Eine Verringerung der Feldstärke führt zu einem Abfall von η bis auf 1.6 % für $\mathrm{E_{0L}} = 0$ V/mm (Pfad B). Bei der anschließenden Erhöhung der Feldstärke mit einer Polarität in Richtung zur ursprünglichen Polung fällt η weiter ab, durchläuft bei etwa $+85$ V/mm abermals die Null und steigt bis $+337$ V/mm auf 5.2 % an (Pfad C). Eine Verringerung der Feldstärke führt zu einem Abfall von η auf 2.6 % für $\mathrm{E_{0L}} = 0$ V/mm (Pfad D). Hier findet man wieder eine Alterung, der Startwert von 4 % wird nicht mehr erreicht. Den Pfad D' erhält man, wenn man die Feldstärke direkt mit einer Polarität in Richtung der ursprünglichen Polung erhöht, d.h. ohne vorher die gesamte Butterfly-Kurve durchlaufen zu haben. Die Form der Butterfly-Kurve liegt darin begründet, dass η gemäß der Gleichung (3.82) mit der Amplitude der Brechungsindexänderung Δn quadratisch zusammenhängt. Da Δn gemäß den Gleichungen (3.8) und (3.79) direkt proportional zur ferroelektrischen Polarisation ist, beinhaltet die Größe Δn die Information über das Vorzeichen von der Polarisation, η dagegen nicht. Berücksichtigt man, dass ein Nulldurchgang von η einer Vorzeichenumkehr von Δn entspricht, dann können die Hysteresekurven $\Delta\mathrm{n}(\mathrm{E_{0L}})$ aus den zugehörigen Butterfly-Kurven $\eta(\mathrm{E_{0L}})$ berechnet werden, wie im Kapitel 5.8 gezeigt wurde. Die Feldstärken, bei denen ein Nulldurchgang stattfindet (s. oben) stimmen mit den Feldstärken, bei denen der Verstärkungsfaktor $\Gamma \propto \Delta$n sein Vorzeichen wechselt (Abb. 5.25), im Rahmen des Messfehlers überein.

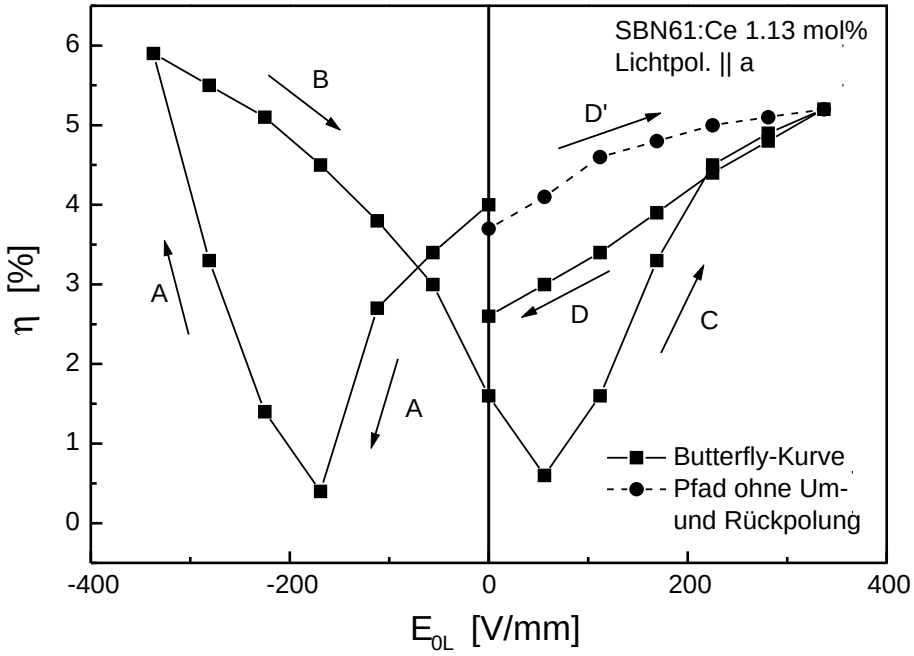


Abbildung 5.30: Butterfly-Kurve für SBN61:Ce, 1.13 mol% und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse. Das externe elektrische Feld ist zunächst entgegengesetzt zur Richtung der ursprünglichen Polung (Pfad A) und im weiteren Verlauf gemäß der durch die Pfade B bis D vorgegebenen Richtung eingestellt worden. Den Pfad D' erhält man, wenn man die Feldstärke ohne einen vorhergehenden Um- und Rückpolungszyklus in Richtung der ursprünglichen Polung anlegt.

Die Rockingkurven wurden in zwei unabhängigen Messungen entlang der Pfade D' in Richtung zur und A entgegengesetzt zur ursprünglichen Polung aufgenommen. Nach dem Schreiben eines Hologramms bis in Sättigung wurde zunächst eine Rockingkurve bei $E_{0L} = 0\,V/mm$ aufgenommen. Dann wurde das externe elektrische Feld angelegt und in fünf Schritten mit einer Schrittweite von $56\,V/mm$ bis auf $+337\,V/mm$ (entsprechend Pfad D') bzw. $-337\,V/mm$ (entsprechend Pfad A) eingestellt. Bei jedem Schritt wurde eine Rockingkurve aufgenommen. Die Drehung erfolgte mit Hilfe eines motorisierten Drehverstellers DV-40 von Micos, der mit einem 2-Phasen Schrittmotor ausgestattet ist und vom Rechner gesteuert wurde. Ein Schritt entspricht $0.0087°$, die Rockingkurven wurden im Bereich zwischen $-0.87°$ und $+0.87°$ aufgenommen. Das Ergebnis ist in der Abbildung 5.31 dargestellt. Der Beugungswirkungsgrad η ist hier gegen den *internen* Drehwinkel im Bereich zwischen $-0.125°$ und $+0.125°$ aufgetragen. Aus der Abbildung ist ersichtlich, dass die Werte von η für $\Delta\theta = 0°$ erwartungsgemäß auf den Spuren der Pfade D' bzw. A der Butterfly-Kurve liegen. Mit der Erhöhung der Feldstärke verschiebt sich das Maximum um höchstens $0.0075°$ ($0.0174°$ extern), entspre-

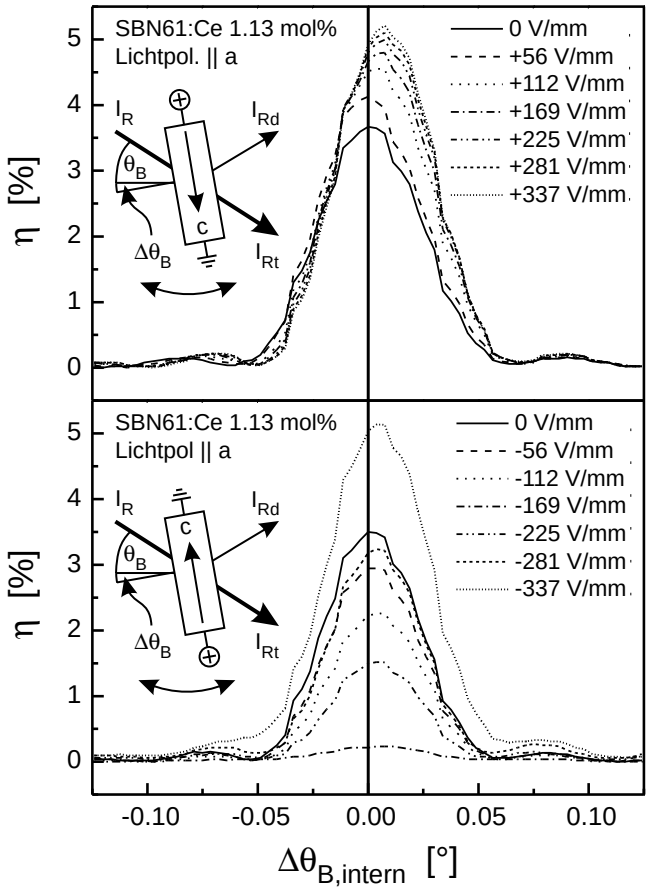


Abbildung 5.31: Rockingkurven für SBN61:Ce 1.13 mol% und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse. Das externe elektrische Feld wurde sowohl in Richtung (oberes Bild) als auch entgegengesetzt zur Richtung der ursprünglichen Polung (unteres Bild) angelegt. Die entsprechenden Konfigurationen werden durch die beiden Inserts veranschaulicht. Das Insert im oberen Bild spiegelt die Polungskonfiguration wider.

chend zwei Schritten des Motors. Diese Verschiebung ist nicht signifikant, da sie im Bereich des Messfehlers liegt. In der Abbildung erkennt man weiterhin die Ausbildung von Nebenmaxima der Beugung 1. Ordnung. Zur Auswertung der Rockingkurven mittels der Anpassung einer theoretischen Funktion wurden diese auf den größten Wert von η, η_0, normiert. Der Ausdruck η/η_0 ist von der Amplitude der Brechungsindexmodulation unabhängig. Eine normierte Kurve ist beispielhaft für $E_{0L} = 0\,V/mm$ in der Abbildung 5.32 dargestellt. An die Rockingkurven wurde die Funktion $\eta(\Delta\theta_{B,i})/\eta_0$ mit

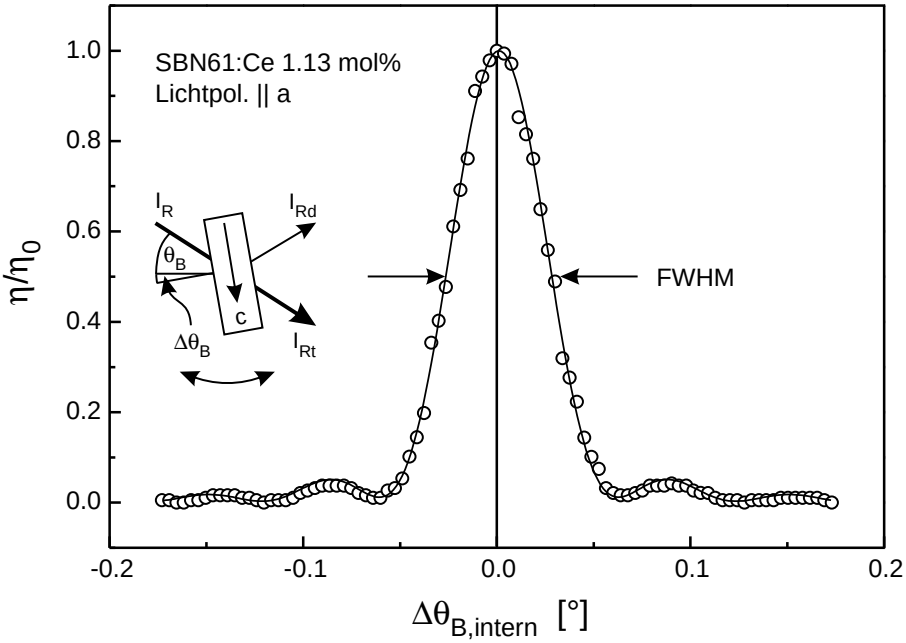


Abbildung 5.32: Rockingkurve für SBN61:Ce 1.13 mol% und eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse bei $E_{0L} = 0\,V/mm$. Die gemessen Werte von η sind auf ihren Maximalwert, der hier bei $\Delta\theta_{B,i} = 0°$ vorliegt, normiert worden. Eine Anpassung gemäß der Gleichung (5.6) ist ebenfalls in die Abbildung eingetragen.

$$\begin{aligned} \eta(\Delta\theta_{B,i}) &= \frac{\kappa_0\kappa_0^*}{\cos^2(\theta_{B,i}+\Delta\theta_{B,i})} \cdot L^2 \cdot \exp\left(-\left[\alpha_g + \frac{2\cdot\alpha}{\cos(\theta_{B,i}+\Delta\theta_{B,i})}\right]\cdot L\right) \\ &\quad \times \frac{\sinh^2\left(\frac{\alpha_g\cdot L}{2}\right) + \sin^2\left(\frac{\Delta k\cdot L}{2}\right)}{\left(\frac{\alpha_g\cdot L}{2}\right)^2 + \left(\frac{\Delta k\cdot L}{2}\right)^2}, \\ \Delta k &= K\cdot\cos(\pi/2 + \Delta\theta_{B,i}) \end{aligned} \tag{5.6}$$

und $\eta_0 = \eta(\Delta\theta_{B,i} = 0)$ angepasst [109, 110]. Dabei ist κ_0 die komplexe Kopplungskonstante, L die Hologrammdicke und α_g der Abschwächungskoeffizient. Die Gleichung (5.6) wurde aus der allgemeinen Gleichung für die hier vorliegende Bedingung, dass der Gittervektor des Hologramms $\vec{K}$ parallel zur kristallographischen c-Achse orientiert ist, abgeleitet. Man beachte, dass der Ausdruck $(\kappa_0\kappa_0^*/\cos^2(\theta_{B,i}+\Delta\theta_{B,i}))\cdot L^2$ für η bzw. $(\kappa_0\kappa_0^*/\cos^2(\theta_{B,i}))\cdot L^2$ für η_0 bei der Bildung des Quotienten den Ausdruck $\cos^2(\theta_{B,i})/\cos^2(\theta_{B,i}+\Delta\theta_{B,i})$ ergibt.
Die Ergebnisse der Anpassungen einschließlich der Halbwertbreiten der Rockingkurven (FWHM, Abb. 5.32) sind in der Tabelle 5.11 aufgelistet. Aus der Hologrammdicke L kann abgeschätzt werden, ob es sich um Volumenphasenhologramme handelt. Generell liegen die Werte von L in der Größenordnung der

E_{0L} [V/mm]	L [cm]	α_g [cm^{-1}]	FWHM [°]
0	0.08685±0.0004	8.0±0.8	0.0549
+56	0.08770±0.0005	8.2±1.0	0.0543
+112	0.08668±0.0005	7.3±1.0	0.0548
+169	0.08785±0.0004	7.5±0.9	0.0542
+225	0.08906±0.0004	7.3±0.8	0.0534
+281	0.09057±0.0004	7.5±0.8	0.0527
+337	0.09219±0.0004	7.8±0.7	0.0518
0	0.09461±0.0004	7.0±0.8	0.0504
-56	0.09590±0.0004	6.8±0.8	0.0496
-112	0.09759±0.0005	7.3±0.7	0.0487
-169	0.110±0.005	27.2±1.0	0.0548
-225	0.107±0.001	14.9±0.6	0.0475
-281	0.1039±0.0007	13.9±0.4	0.0481
-337	0.09497±0.0006	17.2±0.3	0.0536

Tabelle 5.11: Hologrammdicke L und Abschwächungskoeffizient α_g aus den Anpassungen an die Rockingkurven (Abb. 5.31, 5.32) mit der Gleichung (5.6). Die Halbwertsbreiten sind ebenfalls in die Tabelle eingetragen.

Dicke d = 0.0965 cm der verwendeten Probe. Durch die Gleichung (3.9) sind zwei Bedingungen für das Vorliegen eines Volumenphasenhologramms gegeben. Mit $\Lambda = 0.925\,\mu$m, $\lambda = 632.8$ nm und $n_0 = n_o = 2.3125$ (Tabelle 5.4) und den Hologrammdicken L aus Tabelle 5.11 erhält man für Q Werte zwischen 1741 und 2210. Die erste Bedingung ist also stets erfüllt. Die Werte von Δn variieren zwischen $1.00 \cdot 10^{-5}$ und $4.75 \cdot 10^{-5}$. Entsprechend erhält man Werte für ρ zwischen 20238 und 4261. Die zweite Bedingung ist also ebenfalls stets erfüllt. Für jede Feldstärke liegt also ein Volumenphasenhologramm vor.
Die Abschwächungkoeffizienten α_g sind für die Messungen mit einer Polarität des externen elektrischen Feldes in Richtung zur ursprünglichen Polung alle vergleichbar, sie betragen im Mittel 7.7 cm^{-1}. Damit liegen sie in der Größenordnung des Absorptionkoeffizienten $\alpha_o = 6\,cm^{-1}$. Im Fall der Messungen mit einer Polarität entgegengesetzt zur ursprünglichen Polung findet man bis zum Koerzitivbereich Werte um 7.1. Im Koerzitivbereich steigt α_g stark an auf etwa 28 cm^{-1} und beträgt danach im Mittel 15.5 cm^{-1}.
Die Änderung der Halbwertbreite in Abhängigkeit von der Feldstärke ist nicht signifikant, man erhält im Mittel einen Wert von 0.0521 ° (intern) bzw. 0.121 ° (extern).

Kapitel 6

Diskussion

6.1 Photoleitfähigkeit

Bei der Anpassung sublinearer Funktionen an den Verlauf der Leitfähigkeit in Abhängigkeit von der Intensität ergab sich eine Abhängigkeit des Exponenten x von der Cr-Dotierungskonzentration. Ein linearer Verlauf ergab sich für starke Dotierungen mit 0.70 und 1.21 mol% Cr. Das ist ein guter Hinweis darauf, dass für Konzentrationen ab 0.70 mol% Cr ein Ein-Zentren Modell für den lichtinduzierten Ladungstransport angenommen werden darf. Für schwächere Konzentrationen liegt entsprechend ein Zwei-Zentren oder Drei-Valenzen Modell vor, der Exponent x bewegt sich zwischen 0.5 und 1. Im Fall von Ce-dotiertem SBN wurde gefunden, dass für schwache Ce-Konzentrationen < 0.22 mol% ein Ein-Zentren Modell vorliegt, für stärkere Konzentrationen dagegen ein Zwei-Zentren oder Drei-Valenzen Modell. Dies konnte nur durch zusätzliche Messungen der lichtinduzierten Absorption verifiziert werden [38]. Hier zeigten gerade die schwach dotierten Kristalle eine ausgeprägte lichtinduzierte Absorption, wobei die Abhängigkeit der Leitfähigkeit von der Lichtintensität klar sublinear verläuft. Da Messungen der lichtinduzierten Absorption ein stärkeres Unterscheidungsmerkmal zwischen einem Ein-Zentren und einem Zwei-Zentren oder Drei-Valenzen Modell sind, wurden die Messergebnisse dahingehend interpretiert. Die Auswertung der Verläufe $\Gamma(Q)$ durch die Anpassung mit KWW-Funktionen im Rahmen dieser Arbeit unterstützt das von Buse et al. gefundene Ergebnis. Danach liegt für die starken Ce-Dotierungskonzentrationen ein Zwei-Zentren oder Zwei-Valenzen Modell vor. Im Fall von SBN61:Cr gibt es keine verlässlichen Literaturdaten über die lichtinduzierte Absorption. Die Messungen von Gao beschränken sich auf tiefe Temperaturen < 240 K und schwache Cr-Dotierungen < 0.22 mol% [103]. In diesem Fall findet man eine ausgeprägte lichtinduzierte Absorption, was die Ergebnisse der hier durchgeführten Messungen der Photoleitfähigkeit untermauert.

Aus den Werten der spezifischen Photoleitfähigkeit konnte das Produkt aus der Beweglichkeit und der Rekombinationszeit der Elektronen bestimmt werden. Ent-

sprechend den Werten für die Dunkel- und Photoleitfähigkeit erhält man für die schwachen Dotierungen vergleichsweise große Werte von $\mu \cdot \tau_R$. Literaturwerte aus holographischen Messungen weisen eine starke Streuung auf. Tomita und Suzuki messen für $\lambda = 514.5\,\mathrm{nm}$ und eine Dotierung mit 0.02 Gew% Cr (0.051 mol% Cr_2O_3) einen Wert von $7.2 \cdot 10^{-13}\,\mathrm{cm^2/V}$ [39]. Dieser Wert ist über drei Größenordnungen kleiner als der hier bestimmte für die vergleichbare Konzentration von 0.055 mol%. Vazquez et al. messen bei derselben Wellenlänge und Konzentrationen zwischen 0.015 und 0.025 Gew.% (0.038 und 0.064 mol% Cr_2O_3) einen Wert von $53.6 \cdot 10^{-10}\,\mathrm{cm^2/V}$. Dieser Wert ist um etwa einen Faktor 1.5 größer als der hier für eine Konzentration von 0.055 mol% Cr gemessene. Beide Werte sind also von vergleichbarer Größenordnung.
Die gefundenen Ergebnisse werden im Folgenden mit den Ergebnissen holographischer Messungen verglichen und diskutiert.

6.2 Abhängigkeit von Γ von der Bestrahlung Q

Die Messungen des holographischen Verstärkungsfaktors in Abhängigkeit von der Bestrahlung werden unter folgenden Gesichtspunkten diskutiert: Zunächst erfolgt ein Vergleich der Größenordnung des Verstärkungseffektes und der Zeit, die zum Schreiben eines Hologramms benötigt wird, zwischen unterschiedlichen Dotierungselementen und -konzentrationen. Die Materialien können so in Bezug auf ihre Eignung für Anwendungen charakterisiert werden. Weiterhin geben zeit- und intensitätsabhängige Messungen Aufschluss über das vorliegende Ladungstransportmodell. Aus holographischen Messungen kann die Photoleitfähigkeit bestimmt werden und daraus das Produkt aus der Beweglichkeit und der Rekombinationszeit der Elektronen, was den Vergleich zu den konventionellen Messungen (Kap. 5.3) ermöglicht.
Im Fall der Ce-dotierten Kristalle ist die Frage nach dem Ladungstransportmechanismus ausführlich untersucht worden [31, 38]. Ein Ein-Zentren Modell liegt für schwache Ce-Konzentrationen < 0.22 mol% vor, für stärkere Konzentrationen findet man ein Zwei-Zentren oder Drei-Valenzen Modell. In [31] findet man eine ausführliche Beschreibung des während des Ladungstransportes stattfindenden Szenarios. Dabei ist noch ungeklärt, welches der beiden Modelle tatsächlich vorliegt. Die Identifikation des zweiten Zentrums oder des dritten Valenzzustandes ist ebenfalls nicht geklärt. Die hier an Ce-dotiertem SBN durchgeführten Messungen bestätigen die genannten Ergebnisse für die starken Dotierungen. Die Streckungsexponenten β aus der Anpassung mit der KWW-Funktion schwanken für alle Wellenlängen um einen Wert von 0.7, was der Beschreibung mit einer Summe aus zwei Exponentialfunktionen nahe kommt. Das Vorliegen nur eines Zentrums für schwache Konzentrationen wird hier nicht bestätigt, der Wert von β bleibt hier nahezu konstant bzw. fällt sogar leicht ab. Dies kann in Analogie zu den Messungen der Photoleitfähigkeit gesehen werden, die für schwache Kon-

zentrationen eine klare Sublinearität zeigten, entgegen den Beobachtungen aus Messungen der lichtinduzierten Absorption [38]. Bemerkenswert sind bei dem Ce-dotierten Material vor allem die sehr großen Werte für den Verstärkungsfaktor bei $\lambda = 488\,\mathrm{nm}$ von $83\,\mathrm{cm}^{-1}$ für 0.66 mol% Ce und $142\,\mathrm{cm}^{-1}$ für 1.13 mol% Ce. Eine holographische Bestimmung der Photoleitfähigkeit und damit die Bestimmung des Produktes $\mu \cdot \tau_{\mathrm{R}}$ gelingt hier nicht, da die Verläufe $\Gamma(\mathrm{Q})$ und auch die entsprechenden Löschkurven nicht monoexponentiell angepasst werden konnten, was die Vorraussetzung dafür ist (Kap. 3.5).
Für die Cr-dotierten Kristalle ergab sich ein Anwachsen der Parameter Γ_{sat}, Q_0 und β aus der Anpassung mit der KWW-Funktion mit Erhöhung der Dotierungskonzentration. Die Werte wurden bei einer Konzentration von 0.51 mol% maximal mit einem schwachen Abfall zu stärkeren Konzentrationen. Dieses Verhalten kann mit dem Abfall der Übergangstemperatur des ferroelektrischen Phasenübergangs mit Erhöhung der Cr-Konzentration erklärt werden. Damit verbunden ist eine signifikante Erhöhung der Dielektrizitätskonstanten ϵ_{33}, was zu einer entsprechenden Vergrößerung des Wertes von Γ schon bei Raumtemperatur führt.
Im Folgenden wird das oben erwähnte Verhalten des Streckungsexponenten β im Hinblick auf das in SBN61:Cr vorliegende Ladungstransportmodell diskutiert. Ein photorefraktives Zentrum ist mit Sicherheit $\mathrm{Cr}^{3+}/\mathrm{Cr}^{4+}$, wie aus spektroskopischen Untersuchungen bekannt ist [103] (Kap. 5.2.5). Für die starken Dotierungen kann man davon ausgehen, dass nur dieses Zentrum vorliegt, d.h. der Ladungstransport wird durch ein Ein-Zentren Modell beschrieben. Für schwache Dotierungen $< 0.51\,\mathrm{mol\%}$ gab es eine starke Abweichung von β vom Wert 1. Man beachte, dass mit der KWW-Funktion üblicherweise Relaxationsprozesse beschrieben werden. In diesem Fall wurde die KWW-Funktion zur Beschreibung des umgekehrten Prozesses, des Aufbaus eines holographischen Gitters verwendet. Daher muss die Bedeutung der Funktion auf den Generationsprozess übertragen werden, d.h. durch Q_0 ist die charakteristische Zeitkonstante τ für den Aufbau des Gitters gegeben, der Fall $0 \leq \beta < 1$ beschreibt die Erzeugung des Gitters mit einer Überlagerung von Prozessen mit unterschiedlichen Zeitkonstanten. D.h. für die schwachen Cr-Dotierungen können mehrere Zentren oder Valenzen vorliegen. Eine weitere Erklärungsmöglichkeit kann das Vorliegen eines Hopping-Prozesses sein, wie er von Buse et al. in SBN61:Ce gefunden wurde [74]. Die Überlagerung von Übergängen zwischen mehreren Zentren oder Valenzen oder stufenartige Prozesse wie der Hopping-Transport können durch die Beschreibung mit der KWW-Funktion phänomenologisch sehr gut erfasst werden, so dass das Vorliegen solcher Prozesse für die schwachen Cr-Dotierungen möglich ist. Dabei ist zu beachten, dass der Fall $\beta < 1$ für eine gegebene Zeitkonstante τ einen Aufbauprozess beschreibt, der für Zeiten t mit $0 < \mathrm{t} < \tau$ langsamer und für Zeiten $\mathrm{t} > \tau$ schneller verläuft als ein einzelner stufenartiger Prozess oder ein einzelner Übergang zwischen unterschiedlichen Zentren oder Valenzen.
Ein Vergleich zwischen der holographisch bestimmten (Abb. 5.8 bis 5.11 und Tab. 5.7) und der konventionell gemessenen Photoleitfähigkeit (Abb. 5.4) bestätigt die

oben diskutierten Ergebnisse wenigstens qualitativ. Eine lineare Beschreibung der Leitfähigkeit in Abhängigkeit von der Intensität gelingt im Fall konventioneller Messungen für starke Cr-Dotierungen $\geq 0.70\,\mathrm{mol\%}$, im Fall holographischer Messungen für Dotierungen $\geq 0.51\,\mathrm{mol\%}$. Die Tendenz zu einer linearen Beschreibung der Daten und damit zum Vorliegen eines Ein-Zentren Modells wird durch beide Methoden bestätigt. Die Dotierungkonzentration, die eine Grenze dafür darstellt, kann nicht eindeutig bestimmt werden. Berücksichtigt man beide Methoden, so liegt diese Grenze bei etwa $0.6\,\mathrm{mol\%}$. Starke Abweichungen gibt es bei der Größenordnung der gemessenen Werte für die Leitfähigkeiten, die spezifischen Photoleitfähigkeiten und die daraus berechneten Werte des Produktes $\mu \cdot \tau_\mathrm{R}$. Im Fall der holographischen Messungen sind die Werte für alle Größen etwa um einen Faktor 4 bis 5 kleiner als im Fall der konventionellen Messungen. Für diese Unterschiede gibt es unterschiedliche Erklärungen [81, 85, 80, 111]. Dabei ist zu bedenken, dass die Werte, die man in der Literatur findet, ebenfalls stark differieren (Kap. 6.1).
Abschließend werden die holographisch bestimmten Werte für $\mu \cdot \tau_\mathrm{R}$ diskutiert (Tab. 5.7). Die Messungen wurden in-Bragg und mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse durchgeführt. Nur bei einer Messung wurde das Hologramm mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse geschrieben und mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse off-Bragg gelöscht. Das Produkt $\mu \cdot \tau_\mathrm{R}$ variiert schwach mit den betrachteten Wellenlängen, alle Werte liegen im Bereich zwischen $1 \cdot 10^{-11}\,\mathrm{cm^2/V}$ und $2 \cdot 10^{-11}\,\mathrm{cm^2/V}$. Eine Ausnahme bildet der durch die Off-Bragg-Messung bestimmte Wert. Dieser ist um einen Faktor 2.5 größer als der durch die entsprechende In-Bragg-Messung bestimmte. Das könnte daran liegen, dass der Wert für die Beweglichkeit für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse um einen entsprechenden Faktor größer ist als der Wert für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse. Dies wurde für Ce-dotiertes SBN für dieselbe Wellenlänge $\lambda = 532\,\mathrm{nm}$ gefunden [112], hier ergab sich allerdings $\mu_{||\mathrm{c}} = 2.4 \cdot \mu_{||\mathrm{a}}$, also genau das umgekehrte Verhältnis.

6.3 Abhängigkeit von Γ von der Wellenlänge λ

6.3.1 Wellenlängenabhängigkeit der Gitterdynamik

Im Kapitel 5.5.1 wurde die Wellenlängenabhängigkeit der spezifischen Photoleitfähigkeit für den mit $0.51\,\mathrm{mol\%}$ Cr dotierten Kristall holographisch bestimmt. Dies war möglich für vier verschiedene Fälle: Zum Einen für das Schreiben holographischer Gitter mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- und a-Achse, zum Anderen für das Löschen der Gitter ebenfalls für beide Einstellungen der Lichtpolarisation. Vergleicht man die gemessenen Verläufe für die genannte Dotierung mit denjenigen der optischen Absorption (Kap. 5.2.5),

so stimmen diese qualitativ überein. Daraus kann man schließen, dass sowohl die Photoleitfähigkeit als auch die optische Absorption von demselben photorefraktiven Zentrum stammen. Die spezifische Photoleitfähigkeit hängt gemäß der Gleichung (3.87) von der optischen Absorption ab. Diese spiegelt offensichtlich die folgenden charakteristischen Eigenschaften der Absorptionsspektren von SBN wider: Erstens ist die optische Absorption für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse stets größer als diejenige mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse. Zweitens wächst die optische Absorption für alle Wellenlängen im sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereich mit Erhöhung der Cr-Dotierungskonzentration an. Außerdem hängt die spezifische Photoleitfähigkeit noch von dem Produkt $\mu \cdot \tau_R$ ab. Die Wellenlängenabhängigkeit dieser Größe ist entweder nicht signifikant oder folgt ebenfalls dem Verlauf der optischen Absorption, da sowohl $\mu \cdot \tau_R$ als auch die optische Absorption direkt proportional zur spezifischen Photoleitfähigkeit sind.

6.3.2 Wellenlängenabhängigkeit des Sättigungswertes von Γ

Bei der Wellenlängenabhängigkeit des Verstärkungsfaktors Γ für den mit 0.51 mol% Cr dotierten SBN-Kristall tauchte das Problem auf, dass die effektive Anzahldichte der photorefraktiven Zentren nicht durch die in Kapitel 3.7 beschriebene Fitprozedur bestimmt werden konnte. Außerdem waren die für r_{33} und r_{13} bestimmten Werte um einen Faktor 2.3 bzw. 2.2 kleiner als die Literaturwerte für undotierte Kristalle. Hier würde man erwarten, dass die Werte für den dotierten Kristall größer sind als diejenigen für undotierte Kristalle, da die Dotierung von SBN61 sowohl mit Ce als auch mit Cr bei Erhöhung der Dotierungskonzentration die Phasenübergangstemperatur in den Bereich der Raumtemperatur hinein verschiebt (Kap. 5.7). Dies hat wegen des Verhaltens der Dielektrizitätskonstanten im Bereich des Phasenübergangs eine deutliche Erhöhung von r_{eff} zur Folge. Ein Grund für die zu kleinen Werte könnte sein, dass die Wellenlängenabhängigkeiten von r_{eff} und N_{eff}, wie in der Theorie angenommen, nicht vernachlässigt werden können. Es besteht die Möglichkeit, jeweils einen der Parameter, z.B. r_{eff}, punktweise, d.h. für jede gemessene Wellenlänge einzeln, auszurechnen, wenn man den jeweils anderen Parameter kennt. Für eine Abschätzung wird der Wert $N_{eff} = 2.2 \cdot 10^{17}\,cm^{-3}$ genommen, der durch winkelabhängige Messungen für eine vergleichbare Ce-Dotierung von 0.66 mol% bei $\lambda = 632.8\,nm$ bestimmt wurde [113] (Kap. 5.6). Es gibt Literaturwerte für N_{eff} für Cr-dotierte SBN61-Kristalle, z.B. in [39], allerdings für eine kleinere Cr-Konzentration von 0.02 Gew.% Cr (0.051 mol% Cr_2O_3). Nimmt man also den oben erwähnten Wert für N_{eff} und die in Kapitel 5.5.2 bei 632.8 nm gemessenen Γ-Werte für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- bzw. a-Achse, erhält man $r_{33} = 172\,pm/V$ und $r_{13} = 28.3\,pm/V$. Diese Werte sind immer noch kleiner als die Werte für

undotierte Kristalle, jedoch nur noch um einen Faktor 1.4 bzw. 1.3 verglichen mit den Werten in [44]. Ein genereller Vergleich zwischen den Literaturwerten von r_{ij} für undotierte Kristalle, die im grünen [43] bzw. roten [44] Spektralbereich gemessen wurden, zeigt keinen signifikanten Unterschied. Daher gibt es offensichtlich keine signifikante Wellenlängenabhängigkeit von r_{ij}. Also scheint die Wellenlängenabhängigkeit von N_{eff} mehr ins Gewicht zu fallen.
Einen Ausweg würde hier die interferometrische Messung der linearen elektrooptischen Koeffizienten bei verschiedenen Wellenlängen bieten. Für entsprechende Wellenlängen könnte dann aus den interferometrisch gemessenen Werten für r_{ij} und den holographisch gemessenen Werten von Γ die Wellenlängenabhängigkeit von N_{eff} bestimmt werden.
Aus den gemessen Werten von Γ sowohl für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- als auch zur kristallographischen a-Achse, kann das Verhältnis $(n_o^3/(n_e^3 \cdot \cos(2\theta_i)))\cdot(\Gamma_e/\Gamma_o)$ bestimmt werden, das gerade dem Verhältnis der linearen bzw. quadratischen elektrooptischen Koeffizienten $r_{33}/r_{13} = g_{33}/g_{13}$ entspricht. Die Messpunkte konnten gut durch einen linearen Verlauf angepasst werden mit einer sehr kleinen Steigung (Abb. 5.14). Daraus kann man schließen, dass es keine Wellenlänge gibt, bei der sich die Werte von r_{33} bzw. r_{13} überschneiden.

6.4 Abhängigkeit von Γ vom Bragg-Winkel θ

Aus der Messung des holographischen Verstärkungsfaktors in Abhängigkeit vom Bragg-Winkel der einfallenden Schreibstrahlen wurden zum Einen der lineare elektrooptische Koeffizient r_{13} bzw. der effektive lineare elektrooptische Koeffizient $r_{eff} \approx r_{33}$ von SBN (PSG 4mm) und zum Anderen die effektive Anzahldichte der photorefraktiven Zentren N_{eff} bestimmt. Zunächst erfolgte die Bestimmung der genannten Parameter in Abhängigkeit von der Ce-Konzentration einer Reihe stark dotierter SBN-Kristalle mit $c_{Ce} \geq 0.40\,\text{mol\%}$. Dazu wurde die im Kapitel 3.8 dargestellte Theorie verwendet, die der Literatur entnommen wurde [16, 45]. Die Theorie wurde im Rahmen dieser Arbeit erweitert und beispielhaft für den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall angewendet. Dies ermöglichte die Bestimmung aller nicht-verschwindender linearer elektrooptischer Koeffizienten r_{13}, r_{33} und r_{42} mit Betrag und Vorzeichen und die Bestimmung der effektiven Anzahldichte der photorefraktiven Zentren.
Zuerst werden die Messergebnisse für r_{13}, r_{eff} und N_{eff} in Abhängigkeit von der Dotierungskonzentration diskutiert. Die Werte für r_{eff} steigen, ausgehend vom undotierten Kristall, mit Erhöhung der Dotierung bis auf 2.07 mol% Ce um einen Faktor 5 an. Wie erwartet, steigen die Werte für N_{eff} mit Erhöhung der Dotierung bis 1.13 mol% ebenfalls an. Eine weitere Erhöhung bis auf 2.07 mol% Ce führt jedoch zu einem drastischen Einbruch von N_{eff}. Beide Beobachtungen lassen sich auf das Verhalten der Dielektrizitätskonstanten beim ferroelektrischen Phasenübergang zurückführen. Wie im Kapitel 5.7 dargestellt, wird durch den

zunehmenden Einbau von Cer in den Kristall die Phasenübergangstemperatur bis in den Bereich der Raumtemperatur hinein verschoben. Dies ist mit einem signifikanten Anwachsen der Dieleketrizitätskonstanten verbunden. Die Ausdrücke für die Komponenten r_{ij} sind dabei direkt proportional zu ϵ_{ij} (Gl. (3.78)-(3.80)). Weiterhin geht ϵ_{ij} neben N_{eff} über die Debye-Abschirmlänge in den Ausdruck für das Raumladungsfeld ein (Gl. (3.54) und (3.56)). Beide Größen konkurrieren hier, da sie in der Gleichung reziprok zueinander erscheinen. Die Verschiebung der Phasenübergangstemperatur bei Einbau von Dotierungselementen wird noch ausführlich im Kapitel 6.5 diskutiert.
Die Ergebnisse, die aus der Anwendung der erweiterten Theorie auf die Messungen für den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall resultieren, werden auf der Basis eines Vergleichs zu Literaturdaten für SBN61:Ce 0.05 mol% [32, 31, 67] diskutiert. Für diese Dotierungskonzentration beträgt die gesamte Ce-Konzentration im Kristall $N_{ges} = N_{Ce^{3+}} + N_{Ce^{4+}} = 4.7 \cdot 10^{18}\,cm^{-3}$. Der Wert für N_{eff}, der in guter Näherung der Ce^{4+}-Konzentration entspricht, beträgt $1.7 \cdot 10^{16}\,cm^{-3}$ [31]. Daraus kann das Verhältnis $N_{Ce^{3+}}/N_{Ce^{4+}}$ berechnet werden, es beträgt etwa 270. Für den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall wurde die gesamte Ce-Konzentration N_{ges} in [32] abgeschätzt, damit erhält man $N_{Ce^{3+}} = 0.5 \cdot 10^{20}\,cm^{-3}$. Unter der Annahme, dass das Verhältnis $N_{Ce^{3+}}/N_{Ce^{4+}}$ dasselbe ist wie bei dem schwach dotierten Kristall, erhält man $N_{eff} \approx N_{Ce^{4+}} = 1.8 \cdot 10^{17}\,cm^{-3}$, in guter Übereinstimmung mit dem Ergebnis der holographischen Messungen ($N_{eff} = 2.2 \cdot 10^{17}\,cm^{-3}$).
Da es keine Literaturangaben über Messungen der linearen elektrooptischen Koeffizienten an stark dotiertem SBN61 gibt, wird hier die Diskussion auf der Grundlage der Werte für undotierte Kristalle [43, 44] geführt. Wie bereits oben erwähnt, erhöht die Dotierung mit Cer die Koeffizienten r_{13} und r_{33} signifikant. Dabei stimmen die Werte der r_{ij}, die mit Hilfe der aus der Literatur übernommenen bzw. der erweiterten Messprozedur bestimmt wurden, im Rahmen des Messfehlers gut überein (Tabelle 5.8). Eine Grundlage zur Erklärung dieses Anwachsens bietet die Theorie des linearen elektrooptischen Effekts in Ferroelektrika mit verknüpften Niob-Sauerstoff-Oktaedern [114], die in [90] speziell für Kristalle der Punktsymmetriegruppe 4mm entwickelt wurde. Gemäß dieser Theorie können die nicht-verschwindenden Komponenten des linearen elektrooptischen Tensors r_{ij} durch die Komponenten g_{kl} des quadratischen elektrooptischen Tensors der entsprechenden zentrosymmetrischen (paraelektrischen) Phase ausgedrückt werden (Gl. (3.78)-(3.80)). Dabei variieren die Werte der g_{kl} nur schwach mit der Zusammensetzung des Kristalls, sie werden hauptsächlich beeinflusst durch die Nb-O-Oktaeder [114]. Dementsprechend sind die Spontanpolarisation P_S und die Komponenten des Dielektrizitätstensors ϵ_{ij} die Größen, die die Abhängigkeit der r_{ij} von der Dotierung bestimmen. Für den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall verringert sich die Phasenübergangstemperatur ausgehend von 87 °C für den undotierten Kristall auf 56-57 °C [33] (Kap. 5.7). Entsprechend vergrößert sich ϵ_{33} von 880 für den undotierten Kristall auf 1700 für den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall. Der Wert für P_S beträgt etwa $20\,\mu Ccm^{-2}$ bei Raumtemperatur und ist

damit kleiner als der Wert für den undotierten Kristall ($P_S = 28\mu/Ccm^2$) [115]. Aufgrund dieser Beziehungen zwischen ϵ_{33} und P_S in undotierten und Ce-dotierten Kristallen kann man eine Erhöhung von r_{13} und r_{33} um einen Faktor 1.4 bis 1.5 vorhersagen. Dabei ist zu beachten, dass die Literaturwerte für r_{ij} eine beachtenswerte Streuung haben (Tabelle 5.8). Im Fall von r_{33} stimmen die beiden zitierten Werte überein. Für r_{33} kann so ein Wert von 330 pm/V abgeschätzt werden, in guter Übereinstimmung mit dem in dieser Arbeit gewonnenen Resultat $r_{33} = 333$ pm/V. Die Werte für r_{13} unterscheiden sich um einen Faktor 1.3, dementsprechend erhält man unterschiedliche Werte aus der Abschätzung, $r_{13} = 65$ pm/V (aus [43]) und $r_{13} = 50$ pm/V (aus [44]). Das zweite Ergebnis ist in guter Übereinstimmung mit dem in dieser Arbeit bestimmten Wert von 56 pm/V. Dabei ist zu betonen, dass die Messung in [43] bei $\lambda = 514.5$ nm erfolgte, die in [44] bei $\lambda = 632.8$ nm, also derselben Wellenlänge, die in dieser Arbeit verwendet wurde. Berücksichtigt man diese Tatsache, so stimmen die gemessenen mit den abgeschätzten Werten gut überein. Die Wellenlängenabhängigkeit der r_{ij} ist dabei offensichtlich nur schwach. Eine Bewertung der Messergebnisse erlaubt auch der Quotient r_{33}/r_{13}, der gemäß der allgemeinen phänomenologischen Beschränkungen in [114] einen Wert zwischen 4 und 5 annehmen sollte. Dieses Verhältnis wird von den in [43] gemessenen r_{ij} erfüllt, die Werte in [44] und die in dieser Arbeit für SBN61:Ce gemessenen sind mit $r_{33}/r_{13} \approx 6$ etwas größer.
Da es keine Veröffentlichungen mit Messwerten für den Koeffizienten r_{42} für undotierte Kristalle der kongruenten Zusammensetzung (SBN61) gibt, basiert auch die folgende Diskussion auf der Bildung von Verhältnissen zwischen verschiedenen r_{ij}, die aus allgemeinen Betrachtungen folgen [114], z.B. $r_{33}/r_{42} = 2\epsilon_{33}g_{11}/\epsilon_{11}g_{44}$ und $r_{13}/r_{42} = 2\epsilon_{33}g_{12}/\epsilon_{11}g_{44}$ mit $g_{11} = 0.17$, $g_{12} = 0.04$ und $g_{44} = 0.12\,m^4/C^2$. Setzt man in diese Beziehungen die gemessenen Werte für r_{13} und r_{33} für den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall ein, so erhält man für r_{42} mit $r_{33} = 333$ pm/V den Wert 55 pm/V und mit $r_{13} = 56$ pm/V den Wert 40 pm/V. Der in dieser Arbeit gemessene Wert 38 pm/V stimmt mit dem aus r_{13} berechneten sehr gut überein, im Vergleich zu dem mit r_{33} berechneten Wert findet man eine Abweichung von etwa 30 %, die im Rahmen des Messfehlers akzeptabel ist. Die Bestimmung von r_{42} ist aus folgenden Gründen ungenauer als die Bestimmung von r_{13} bzw. r_{33}: Die Winkelabhängigkeit der Absolutwerte von Γ in photorefraktiven Ferroelektrika mit einer nicht zu großen optischen Absorption wird stark beeinflusst von einer anisotropen optischen Absorption. Dieser Effekt wurde bei den hier durchgeführten Berechnungen vernachlässigt, obwohl sie im Fall eines asymmetrischen Einfalls der Schreibstrahlen relevant sind. Der mit 0.66 mol% Ce dotierte Kristall zeigt ein anisotrope optische Absorption ($\alpha_o = 3\,cm^{-1}$, $\alpha_e = 4\,cm^{-1}$ für $\lambda = 632.8$ nm). Dies kann einen kleineren Wert von r_{42} bei einem asymmetrischem Einfall verursachen.
Die piezoelektrischen und elastischen Beiträge werden durch die folgende Gleichung beschrieben [116]:

$$r^T_{ijk} = r^S_{ijk} + p^E_{ijrs}d_{krs}. \tag{6.1}$$

Dabei sind r^{T}_{ijk} die Komponenten des linearen elektrooptischen Tensors bei konstanter Spannung und r^{S}_{ijk} diejenigen bei konstanter Deformation. Die Größen p^{E}_{ijrs} sind die Komponenten des elastooptischen Tensors. Die nicht-verschwindenden Komponenten für die Punktsymmetriegruppe 4mm sind p_{11}, p_{12}, p_{13}, p_{31}, p_{33}, p_{44} und p_{66} (in der verkürzten Notation) [117]. Man beachte, dass diese dimensionslos sind. Bis auf p_{44} und p_{66} sind die Komponenten zwar für $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$, allerdings nur für undotierte SBN50- und SBN75-Kristalle bestimmt worden [118]. Die Größen d_{krs} sind die Komponenten des piezoelektrischen Tensors. Die Werte für d_{333} und d_{311} für verschiedene Ce-Dotierungen findet man in der Tabelle 5.2. Da die Kristalle annähernd spannungsfrei in den Halter eingebaut wurden (Kap. 4.3), entsprechen die im Rahmen dieser Arbeit bestimmten Werte für die linearen elektrooptischen Koeffizienten den Komponenten r^{T}_{ijk}. Das periodisch modulierte interne Raumladungsfeld erzeugt eine Welligkeit auf der Kristalloberfläche [119], so dass die Randbedingung einer konstanten Deformation nicht gegeben ist. Mittels der Gleichung (6.1) können die Komponenten r^{S}_{ijk} bei konstanter Deformation abgeschätzt werden. Eine solche Abschätzung erscheint hier nicht sinnvoll, da weder für Kristalle mit einer Zusammensetzung mit $x = 0.61$ noch für Ce-dotierte Kristalle Literaturwerte für die Komponenten des elastooptischen Tensors gefunden wurden.

6.5 Abhängigkeit von Γ von der Temperatur T

Die Ergebnisse der temperaturabhängigen Messungen des holographischen Verstärkungsfaktors zeigen klar, dass sich die holographische Messmethode zur Detektion des relaxorartigen ferroelektrischen Phasenübergangs in SBN eignet. Die in der Abbildung 5.21 dargestellten Heiz- und Kühlkurven entsprechen qualitativ den mit pyroelektrischen Messungen aufgenommenen Verläufen der ferroelektrischen Polarisation in Abhängigkeit von der Temperatur [120]. Dabei gibt es zwei wesentliche Unterschiede: In dem Verlauf Γ(T) für SBN61:Ce gibt es im Gegensatz zu dem Verlauf P(T) ein Maximum. Weiterhin erhält man nach dem Abkühlen bei Raumtemperatur zwar einen nicht verschwindenden Wert von Γ, dieser entspricht quantitativ jedoch nicht annähernd dem Ausgangswert, sondern beträgt etwa 10 % (SBN61:Ce) bzw. etwa 40 % (SBN61:Cr) des Ausgangswertes.
Die Ausbildung des Maximums kann darauf zurückgeführt werden, dass Γ(T) eine Überlagerung der Temperaturverläufe der ferroelektrischen Polarisation $P_3(T)$ und der Dielektrizitätskonstanten $\epsilon_{33}(T)$ ist (Gl. (3.107)). Um dies zu zeigen, wurde Γ(T) mit $P_3(T)$ aus pyroelektrischen Messungen [120] und $\epsilon_{33}(T)$ gemäß Gleichung (3.107) berechnet. Die Temperaturabhängigkeit der Dielektrizitätskonstanten findet man bei Dec et al. [121]. Das Ergebnis ist in der Abbildung 6.1 dargestellt. Daraus ist klar ersichtlich, dass die Ausbildung des Maximums aus einer Überlagerung der beiden genannten Größen hervorgeht. Dabei wurden folgende Werte für die physikalischen Parameter verwendet: $n_{eff} = 2.2811$,

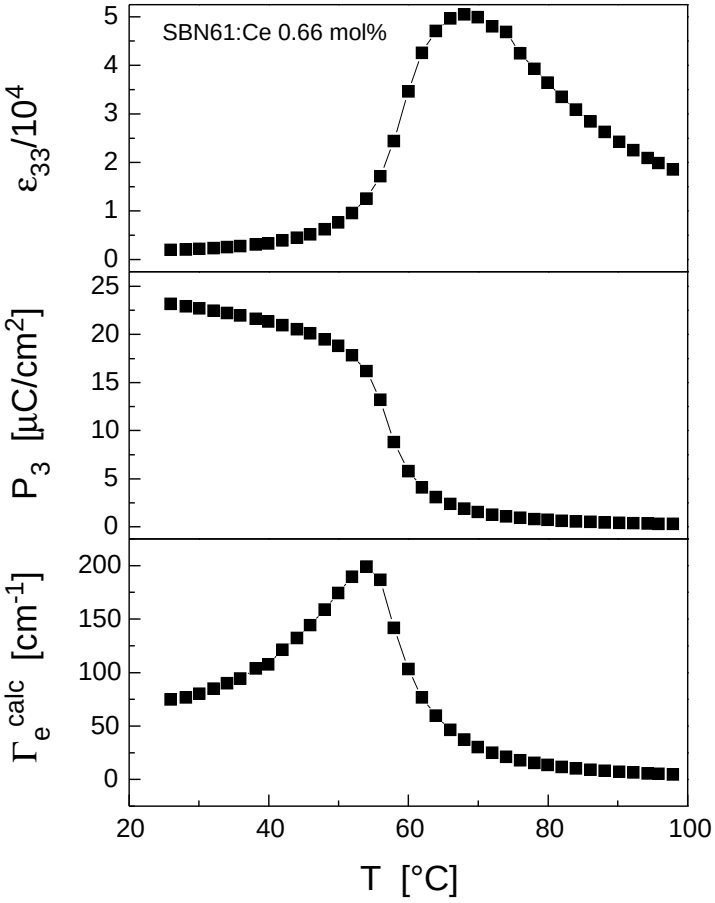


Abbildung 6.1: Berechnung von $\Gamma(\mathrm{T})$ aus $\mathrm{P_3(T)}$ und $\epsilon_{33}(\mathrm{T})$ gemäß Gleichung (3.107).

$N_{eff} = 2.2 \cdot 10^{17}\,\mathrm{cm}^{-3}$ (aus $\Gamma(\theta)$, Kap. 5.6), $g_{33} = 0.10\,\mathrm{m}^4/\mathrm{C}^2$ [96, 114], $\theta = 10\,^\circ$ ($\theta_\mathrm{i} = 4.4\,^\circ$, $\mathrm{K} = 34523\,\mathrm{cm}^{-1}$) und $\lambda = 632.8\,\mathrm{nm}$. Die Temperaturabhängigkeit von n_{eff} ist nicht signifikant und wurde daher vernachlässigt. Die Temperaturabhängigkeit von N_{eff} und g_{33} wurde ebenfalls vernachlässigt. Hierzu gibt es keine verlässlichen Daten in der Literatur. Die berechneten Werte von Γ sind im gesamten Temperaturbereich zwischen der Raumtemperatur und der Phasenübergangstemperatur etwa 3 bis 4 mal größer als die durch die holographische Messung bestimmten (Abb. 5.21). Der Grund hierfür muss also ein konstanter Faktor sein. Da alle physikalischen Parameter bis auf g_{33} gemessen wurden, ist dieser offenbar für die Differenz der Absolutwerte verantwortlich. Verlässliche Daten zu dem Wert von g_{33} gibt es in der Literatur nicht, der Koeffizient konnte nur abgeschätzt werden. Der qualitative Verlauf zwischen berechneter und gemessener Kurve stimmt auf jeden Fall überein, d.h. das Maximum entsteht tatsächlich durch eine Überlagerung. Für die Cr-dotierten SBN-Kristalle konnte dies nicht geprüft werden, da hierfür keine temperaturabhängigen Messungen der Dielektrizitätskonstanten

vorliegen. Da das Maximum hier aber nicht auftritt, wird der Verlauf von Γ(T) offenbar durch P_3(T) dominiert. Daher muss ϵ_{33}(T) im Anstieg bis zur Phasenübergangstemperatur entsprechend flacher verlaufen als bei den Ce-dotierten Kristallen.
Der von Null verschiedene Wert von Γ bei Raumtemperatur nach dem Aufheizen der Proben über den Phasenübergang und dem anschließenden Abkühlen kann mit dem Random-Field Ising-Modell erklärt werden [34, 35]. Dabei ist die Vorbehandlung der Kristalle entscheidend [120]. Wenn der Kristall bei Raumtemperatur durch das Anlegen eines elektrischen Feldes gepolt wird, dann wird der Ausgangswert der elektrischen Polarisation bei pyroelektrischen Messungen nicht mehr erreicht. Wird der Kristall dagegen über den Phasenübergang geheizt und das elektrische Feld während des Abkühlens auf Raumtemperatur angelegt, dann wird der Ausgangswert fast vollständig erreicht. Bei diesem Feldkühlungsprozess werden die Domänen, also die Bereiche mit einer einheitlichen elektrischen Polarisation, gemäß der Orientierung des externen Feldes ausgerichtet. Dabei lagern sich Kompensationsladungen an die Domänenwände an, die bei Raumtemperatur unbeweglich sind und damit eine Vorzugsrichtung für die Orientierung der Domänen vorgeben. Es kommt zu einem Pinning-Effekt. Wird der Kristall bei einer pyroelektrischen oder temperaturabhängigen holographischen Messung geheizt, zerfallen die Domänen, die Kompensationsladungen bleiben jedoch liegen. Das liegt daran, dass die Ladungen bei hohen Temperaturen zwar beweglich sind, jedoch keine antreibende Kraft existiert, die sie wegbewegt. Die gegenseitige Beeinflussung der Kompensationsladungen ist aufgrund ihrer geringen Reichweite vernachlässigbar. Wird der Kristall jetzt wieder auf Raumtemperatur abgekühlt, richten sich die Domänen nach der vorgegebenen Orientierung der durch die Kompensationsladungen erzeugten Felder aus. Da Γ, abgesehen von der Überlagerung mit der Dielektrizitätskonstanten, proportional zur ferroelektrischen Polarisation ist, spiegelt der Verlauf von Γ(T) im Wesentlichen den Verlauf von P_3(T) wider. Man erwartet also, dass im Fall holographischer Messungen der Ausgangswert von Γ bei Raumtemperatur wieder erreicht wird. Das ist offensichtlich nicht der Fall. Eine Erklärung hierfür ist die Tatsache, dass der Kristall im Fall holographischer Messungen im Gegensatz zu den elektrischen Messungen beleuchtet wird. In diesem Fall konnte für Messungen der ferroelektrischen Hysterese unter Beleuchtung gezeigt werden, dass der Pinning-Effekt durch die Beleuchtung aufgehoben werden kann [122]. Während der holographischen Messung wird der Kristall permanent durch die beiden Schreibstrahlen beleuchtet. Im Kristall liegen also bewegliche Ladungen vor. Durch den Diffusionsstrom, der den lichtinduzierten Ladungstransport bewirkt, können diese Ladungen lokal bewegt werden, und der Pinning-Effekt wird teilweise aufgehoben. Im Fall der Hysteresemessungen unter Beleuchtung geschieht dies durch das extern angelegte elektrische Feld.
Temperaturabhängige Messungen von Γ für eine Reihe von Ce- und Cr-dotierten Kristallen gestatteten die Bestimmung von Phasenübergangstemperaturen T_m aus den Wendepunkten der Verläufe Γ(T) (Abb. 5.22 und 5.23). Für beide Do-

tierungen ergab sich eine Erniedrigung von T_m mit Erhöhung der Dotierungskonzentration. Der Zusammenhang kann empirisch durch einen linearen Verlauf beschrieben werden. Für zwei der Ce-dotierten Kristalle wurden die holographisch gemessenen Werte mit pyroelektrischen Messungen sehr gut bestätigt. Die holographische Methode ist also nicht nur dazu geeignet, den relaxorartigen Verlauf des Ordnungsparameters beim Phasenübergang qualitativ zu reproduzieren, sondern gestattet auch die quantitative Bestimmung von Größen, die den Phasenübergang charakterisieren. Im Fall der Cr-dotierten Kristalle wurde der Phasenübergang wie bei den holographischen Messungen an einer Reihe von unterschiedlich stark dotierten Kristallen durchgeführt. Die lineare Abnahme von T_m mit Erhöhung der Dotierungskonzentration bestätigt sich auch hier. Die Steigung der angepassten Geraden ist allerdings um 15 % kleiner als bei den holographischen Messungen. Für Cr-Konzentationen $< 0.22\,\mathrm{mol\%}$ hat man einen horizontalen Verlauf. Das liegt möglicherweise an der großen Leitfähigkeit, die in den schwach dotierten Kristallen gefunden wurde, und die eine Messung der Oberflächenladung beeinträchtigt. Die Achsenabschnitte stimmen für beide Methoden gut überein, man erhält hier als Extrapolation einen Mittelwert von 87 °C für undotierte Kristalle. Für den mit 2.07 mol% Ce dotierten Kristall liegt die Phasenübergangstemperatur mit 26 °C im Bereich der Raumtemperatur. Dieser Wert wird im Fall der Cr-dotierten Kristalle für eine halb so starke Dotierungkonzentration von 1.0 mol% erreicht. D.h. andererseits, dass für dieselben Ce- bzw. Cr-Dotierungskonzentrationen die Phasenübergangstemperatur für die Cr-Dotierung niedriger liegt als für die Ce-Dotierung. Dieses Verhalten kann erklärt werden, wenn man berücksichtigt, dass Ce^{3+} off-center auf einem Sr^{2+}-Platz und Cr^{3+} auf einem Nb^{5+}-Platz eingebaut wird (Kap. 2.1). Im Fall der Ce-Dotierung muss also eine überschüssige positive Ladung, im Fall der Cr-Dotierung müssen zwei überschüssige negative Ladungen ausgeglichen werden. Letzteres kann z.B. durch eine O^{2-}-Fehlstelle erfolgen. Der Einbau von Cr erzeugt also stärkere Störungen im Kristall als der Einbau von Ce. In diesem Fall wird die Korrelationslänge zwischen den Domänen, also den Bereichen mit einer einheitlichen Orientierung der ferroelektrischen Polarisation, reduziert. Dies hat zur Folge, dass die makroskopische Polarisation bei niedrigeren Temperaturen verschwindet als im Fall einer größeren Korrelationslänge.
Aus den Temperaturverläufen von Γ und ϵ_{33} kann der lineare elektrooptische Koeffizient r_{33} in Abhängigkeit von der Temperatur bestimmt werden. Dieser ist in der Abbildung 6.2 dargestellt. Es ist klar zu erkennen, dass r_{33} mit Erhöhung der Temperatur bis auf einen Wert von etwa 1000 pm/V im Bereich des Phasenübergangs stark anwächst. Dieser Wert ist um einen Faktor 3 größer als derjenige bei Raumtemperatur. Dieses Verhalten erklärt auch das Anwachsen der Werte von Γ bei Raumtemperatur für einen bestimmten Bragg-Winkel bei einer Erhöhung der Dotierungskonzentration. Wie oben bereits erwähnt, fällt die Phasenübergangstemperatur mit Erhöhung der Dotierung bis auf den Wert der Raumtemperatur ab (Abb. 5.22 und 5.23). Das hat zur Folge, dass für stärker dotierte Kristalle der

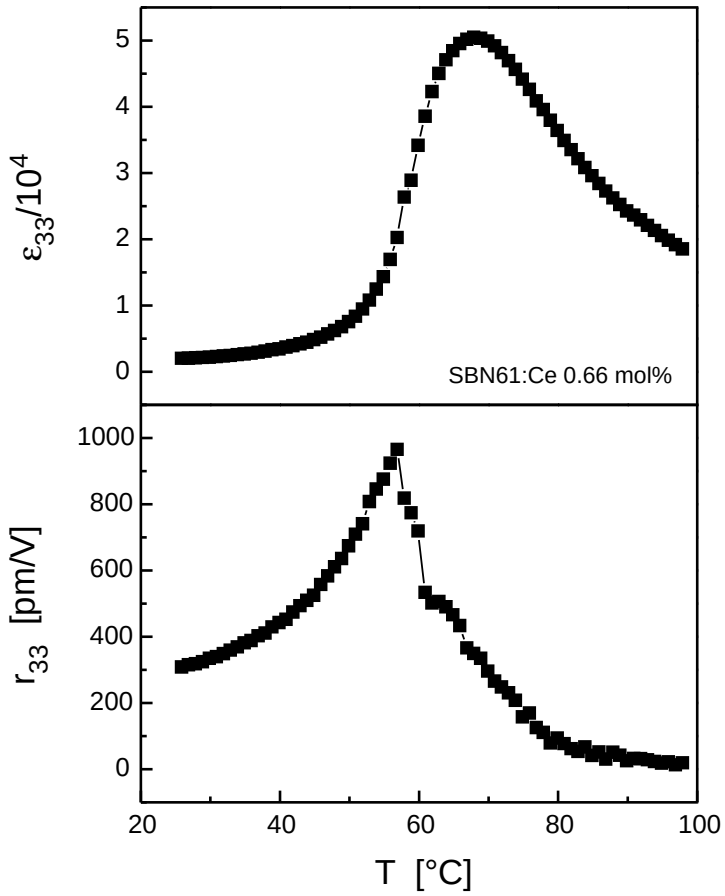


Abbildung 6.2: Temperaturverlauf des linearen elektrooptischen Koeffizienten r_{33}, bestimmt aus Γ(T) und ϵ_{33}(T) für den mit 0.66 mol% Ce dotierten Kristall.

lineare elektrooptische Koeffizient ebenfalls zunimmt und damit gemäß den Gleichungen (3.8) und (3.15) auch der Wert von Γ. Bei einer bestimmten Dotierung, für SBN61:Ce z.B. für 2.07 mol% wird ein weiteres Anwachsen durch die Raumladungsfeldbegrenzung verhindert, die immer größer werdende Dielektrizitätskonstante (ϵ_{33} = 10000 für SBN61:Ce 2.07 mol%) beeinflusst die Bestimmung der Anzahldichte der photorefraktiven Zentren (Kap. 6.4).

Die temperaturabhängigen Messungen von Γ sowohl für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c- als auch zur kristallographischen a-Achse gestatteten die Bestimmung des Verhältnisses (Γ_e/Γ_o)(T), das die Verhältnisse r_{33}/r_{13} bzw. g_{33}/g_{13} widerspiegelt. Aus den entsprechenden Verläufen kann man schließen, dass das Verhältnis der linearen bzw. quadratischen elektrooptischen Koeffizienten in Abhängigkeit von der Temperatur nahezu konstant bleibt, also dem Wert von etwa 6 bei Raumtemperatur entspricht (Abb. 5.24). Da sich r_{33} mit Erhöhung der Temperatur signifikant erhöht, muss dies für r_{13} auch der Fall sein.

6.6 Abhängigkeit von Γ und η von einem externen elektrischen Feld E_0

Für die Abhängigkeit des holographischen Verstärkungsfaktors Γ von einem externen elektrischen Feld können unterschiedliche Erklärungen gefunden werden. Beispielsweise konnte das Anwachsen von Γ in SBN61:Cr bei einem angelegtem Feld auf eine Erhöhung des Raumladungsfeldes zurückgeführt werden [47]. Eine simultane Elektronen- und Löcherleitung, die über den Ausdruck für das Raumladungsfeld in die Gleichung (3.8) eingeht, erklärt den Vorzeichenwechsel von Γ in Abhängigkeit von einem externen Feld bei bestimmten, festen Gitterkonstanten in dem Material $KTa_{1-x}Nb_xO_3$ (KTN) [123].

Die in dieser Arbeit gefundene Abhängigkeit von Γ von einem externen elektrischen Feld (Abb. 5.25) zeigt klar die Gestalt einer für ferroelektrische Kristalle charakteristischen Hysterese [33, 124, 125]. Die Ursache für den beobachteten Vorzeichenwechsel von Γ ist also das Umschalten der ferroelektrischen Polarisation, das mit Hilfe der Gleichungen (3.8), (3.15), (3.54) und (3.78) bis (3.80) verstanden werden kann. Daraus kann man schließen, dass die Spontanpolarisation P_S und die Komponenten des Dielektrizitätstensors ϵ_{ij} das Verhalten von Γ bei einem angelegten Feld bestimmen. Bei den hier vorgestellten Messungen wurde der Bragg-Winkel fest gewählt, bei dem der maximale Wert von Γ vorliegt (Abb. 5.15). Da bei diesem Winkel $K = K_0$ gilt, trägt die Abhängigkeit des Raumladungsfeldes von der Dielektrizitätskonstanten gemäß Gleichung (3.54) nicht zu dem Verhalten von Γ bei. Die Hysteresekurve $\Gamma(E_{0W})$ spiegelt also den Verlauf der ferroelektrischen Hysterese P(E) wider. Ein qualitativer Vergleich beider Kurven zeigt folgende Gemeinsamkeiten [33]: die Abhängigkeit $\Gamma(E_{0W})$ ist symmetrisch bzgl. $\Gamma = 0$, so wie P(E) bzgl. $P = 0$. Der durch das Umschalten der ferroelektrischen Polarisation bedingte Vorzeichenwechsel von Γ geschieht also bei Werten von E_{0W}, die den Koerzitivfeldstärken entsprechen. Man erhält demnach Koerzitivfeldstärken von $E_c^- = -196\,V/mm$ und $E_c^- = +101\,V/mm$ für eine Dotierung mit 1.13 mol% Ce (Abb. 5.25) sowie $E_c^- = -199\,V/mm$ und $E_c^- = +76\,V/mm$ für eine Dotierung mit 0.69 mol% Tm_2O_3 (Abb. 5.26). Man findet weiterhin eine Verschiebung der Kurven bzgl. $E_{0W} = 0$. Diese kann durch die erstmalige Polung (Kap. 4.1.1) der Kristalle erklärt werden. Durch das während des erstmaligen Polungsvorgangs angelegte externe elektrische Feld resultiert im Kristall eine Vorzugsrichtung der ferroelektrischen Domänen. Legt man das elektrische Feld während der Messung entgegengesetzt zu dieser Vorzugsrichtung an, so ist für den Umpolungsprozess eine größere Feldstärke nötig als für den anschließenden Rückpolungsprozess. Wegen der niedrigen Phasenübergangstemperaturen, die für die betrachteten Dotierungskonzentrationen gefunden wurden (Kap. 5.7), sind die Werte für die Koerzitivfeldstärken vergleichsweise niedrig. Sie entsprechen den Werten, die für undotierte Kristalle bei Temperaturen um 45 °C gefunden wurden [126]. Für schwache Ce-Dotierungen vergrößern sich die Werte für die

Koerzitivfeldstärken. Das könnte der Grund dafür sein, dass Ma et al. einen hystereseartigen Verlauf von Γ ohne Umkehrung des Vorzeichens in einem teilweise entpolten Kristall beobachteten [106], und Knyaz'kov et al. eine Nichtlinearität in der Abhängigkeit von Γ von einem externen elektrischen Feld ohne Hysterese [105].
Eine Ausnahme bildet im Rahmen dieser Arbeit der mit 2.07 mol% am stärksten dotierte Kristall. Hier wurde eine Nichtlinearität und ein qualitatives hystereseartiges Verhalten von Γ in Abhängigkeit von einem externen elektrischen Feld beobachtet, jedoch ohne Vorzeichenumkehr. Dieses Verhalten kann im Rahmen des Random-Field Ising-Modells für den relaxorartigen Phasenübergang in SBN interpretiert werden [34, 35]: Beim erstmaligen Polen des Kristalls richten sich die Domänen während des Abkühlens bei einem angelegten externen elektrischen Feld gemäß der durch das Feld vorgegebenen Orientierung aus. Dabei lagern sich Kompensationsladungen an die Domänenwände an. Diese Kompensationsladungen sind bei Raumtemperatur unbeweglich und geben damit eine Vorzugsrichtung für die Orientierung der Domänen vor. Außerhalb des Phasenübergangsbereiches liegen entsprechend große Domänen im Bereich von [μm] vor, die relativ unbeweglich sind. Wird die Polarisation durch ein externes elektrisches Feld mit einer Feldstärke oberhalb der Koerzitivfeldstärke entgegengesetzt zur ursprünglichen Polungsrichtung umgeklappt (Abb 5.25, Pfad A), so können diese Domänen eine stabile Konfiguration einnehmen, auch wenn das externe Feld wieder auf den Wert $E_0 = 0$ zurückgefahren wird (Abb. 5.25, Pfad B). Für den mit 2.07 mol% Ce dotierten Kristall liegt die Phasenübergangstemperatur bei Raumtemperatur. Dementsprechend liegen schon bei Raumtemperatur kleine Domänen im Bereich von [nm] mit einer großen Beweglichkeit vor. Bei den gegebenen Stärken der Felder, die durch die Kompensationsladungen erzeugt werden und des externen Feldes ist es jetzt möglich, dass diese beiden Felder miteinander konkurrieren. Das externe Feld bewirkt ein Umklappen der Domänen engegengesetzt zur ursprünglichen Polungsrichtung. Die Felder der Kompensationsladungen halten die Domänen in Richtung der ursprünglichen Polung fest. Dies ist hier möglich, weil die Domänen trotz der geringen Reichweite der Kompensationsladungen aufgrund der relativ kleinen Größe der Domänenbereiche direkt beeinflusst werden können. Die Abhängigkeit von Γ von einem externen elektrischen Feld zeigt dann qualitativ ein hystereseartiges Verhalten, es kommt allerdings nicht zu einer Umkehrung des Vorzeichens, d.h. einem Umklappen der ferroelektrischen Polarisation. Dieselbe Beobachtung wurde von Ma et al., wie oben erwähnt, in schwach mit Ce dotiertem Material gefunden. Da die schwache Dotierung mit einer entsprechend hohen Phasenübergangstemperatur verbunden ist (Kap. 5.7), kann diese Beobachtung nicht im Rahmen des Modells erklärt werden. Der Grund hierfür ist vor allem die erhöhte Koerzitivfeldstärke der schwach dotierten gegenüber den stark dotierten Kristallen.
Einen direkten Hinweis auf Kompensationsladungen, die im gesamten Kristallvolumen vorliegen, erhält man durch die Messung von mehrfach nacheinander

durchlaufenen Hysteresekurven (Abb. 5.27, 5.28). Hier wurde eine signifikante Alterung beobachtet, die im Rahmen des Random-Field Ising-Modells durch einen Pinning-Effekt erklärt werden kann. Im Gegensatz zu dem zuvor beschriebenen Phänomen, dass die unbeweglichen Kompensationsladungen eine Vorzugsrichtung für die Orientierung der Domänen vorgeben, muss der Pinning-Effekt als *lokaler* Effekt angesehen werden. Das Umklappen einer Domäne geschieht durch eine Bewegung der Domänenwand, die sich, ausgehend von einem Kernbereich an einer Elektrode, durch den Kristall bewegt [127, 128]. Kommt die Domänenwand dabei in die Reichweite einer Kompensationsladung, so wird sie dadurch gepinnt, d.h. ihre weitere Fortbewegung teilweise verhindert. Die Reichweite konnte zu $\approx 0.5\,\mathrm{nm}$, die resultierende Feldstärke zu $\approx 10^4\,\mathrm{V/mm}$ abgeschätzt werden [122]. Auf diese Weise kann auch die Modulationsabhängigkeit erklärt werden. Wurde das Hologramm vor dem Durchfahren der Hysteresen mit einem Modulationsgrad $\mathrm{m} = 1$ geschrieben, ergab sich ein kleiner Pinning-Effekt (Abb. 5.27), mit einem kleineren Modulationsgrad $\mathrm{m} = 0.089$ war der Effekt signifikant. Eine Möglichkeit der Erklärung ist, dass das interne Raumladungsfeld die Pinning-Ladungen abschirmt, da dessen Feldstärke vom Modulationsgrad abhängt. Es beträgt $\approx 10\,\mathrm{V/mm}$ für $\mathrm{m} = 0.089$ und $\approx 100\,\mathrm{V/mm}$ für $\mathrm{m} = 1$. Das maximal mögliche Raumladungsfeld ($\mathrm{m} = 1$) ist aber immer noch deutlich kleiner als das Feld, das die Pinning-Ladungen erzeugen. Eine weitere Erklärungsmöglichkeit ist daher eine lokale Kompensation der Pinning-Ladungen. Da deren Reichweite mit $\approx 0.5\,\mathrm{nm}$ sehr kurz ist, muss es einen Stromfluss geben. Dieser könnte durch die beweglichen, freien Ladungen entstehen, die beim Schreiben des Hologramm im Leitungsband vorliegen. Der Transport erfolgt durch die Diffusion: $j_{\mathrm{Diff}} = k_B T\,\mu_e(dN_e/dz)$. Dadurch können die Pinning-Ladungen räumlich kompensiert werden. Ein großes m entspricht dabei einem großen Diffusionsstrom, entsprechend findet eine starke Kompensation statt und der Pinning-Effekt ist schwächer.
Bei der Hysterese mit Nachschreiben des Hologramms findet man diesen Effekt offenbar nicht, nach dem Durchlauf eines Zyklus wird der Ausgangswert von Γ wieder erreicht. Das ist auf die intensive Bestrahlung mit Licht zurückzuführen, die den Pinning-Effekt verhindert.

6.6.1 Rockingkurven

Die Messung der Rockingkurven bestätigt klar die auf theoretischen Betrachtungen basierende Erwartung (Kap. 3.10): Ein ohne ein angelegtes externes elektrisches Feld und unter symmetrischem Einfall der Schreibstrahlen geschriebenes Hologramm wird beim Auslesen mit einem externen Feld nicht signifikant beeinflusst. Dies ist für eine Polarität des externen elektrischen Feldes sowohl in Richtung als auch entgegengesetzt zur Richtung der ursprünglichen Polung der Fall. Die beobachtete Verschiebung des Maximums von η liegt im Rahmen des Messfehlers. Aus den Hologrammdicken L wurde mittels der Kriterien von

Gaylord und Manoharan abgeschätzt, dass es sich bei den eingeschriebenen Hologrammen um Volumenphasenhologramme handelt. Hiermit wird experimentell bestätigt, dass die im Kapitel 5.8 verwendete Messmethode geeignet ist, um die ferroelektrischen Eigenschaften, insbesondere die ferroelektrische Hysterese im gesamten Kristallvolumen zu untersuchen. Der Verzögerungskoeffizient α_g beschreibt eine exponentielle Abnahme des Hologramms mit der Kristalltiefe und ist von der optischen Absorption des Materials zu unterscheiden. Er liegt im Mittel bei $7.7\,\mathrm{cm}^{-1}$ (Polarität des externen elektrischen Feldes in Richtung zur ursprünglichen Polung) bzw. $7.1\,\mathrm{cm}^{-1}$ (Polarität des externen elektrischen Feldes entgegengesetzt zur Richtung der ursprünglichen Polung, $E_{0L} < |E_c^-|$) und damit in der Größenordnung des optischen Absorptionskoeffizienten von $\alpha_o = 6\,\mathrm{cm}^{-1}$. Eine Abnahme der Brechungsindexmodulation mit der Tiefe etwa durch lichtinduzierte Absorptionsänderungen oder holographische Streuung ist damit ausgeschlossen. Im Koerzitivbereich steigt α_g allerdings stark an auf $28\,\mathrm{cm}^{-1}$ und beträgt danach im Mittel $15.5\,\mathrm{cm}^{-1}$. Diese Werte sind um einen Faktor 4.7 bzw. 2.6 größer als der optische Absorptionskoeffizient. D.h. es findet ein Abnahme der Brechungsindexmodulation statt, die nicht auf die optische Absorption allein zurückzuführen ist. Es ist naheliegend, dass hierfür die Wanderung von Domänenwänden durch den Kristall, durch die der Umklapp der Domänen vollzogen wird, verantwortlich ist. Aus den gemessenen Halbwertsbreiten geht hervor, dass in SBN61:Ce 1.13 mol% etwa alle $0.2\,^\circ$ Hologramme ohne ein Übersprechen zwischen den einzelnen Hologrammen eingeschrieben werden können.

Anhang A

Abhängigkeit von Γ vom Bragg-Winkel θ

A.1 Der lineare elektrooptische Koeffizient

Der effektive lineare elektrooptische Koeffizient kann folgendermaßen berechnet werden [129]:

$$\mathrm{r_{eff}} = \vec{\mathrm{e}}_1 \cdot \hat{\epsilon} \cdot (\hat{\mathrm{r}} \cdot \vec{\mathrm{K}}) \cdot \hat{\epsilon} \cdot \vec{\mathrm{e}}_2 \cdot \frac{1}{\mathrm{K} \cdot \mathrm{n}_{\mathrm{eff}}^4} \tag{A.1}$$

mit den folgenden Größen: Für die Punktsymmetriegruppe 4mm haben der lineare elektrooptische und der dielektrische Tensor folgende Gestalt:

$$\hat{\mathrm{r}} = \begin{pmatrix} 0 & 0 & \mathrm{r}_{113} \\ 0 & 0 & \mathrm{r}_{223} \\ 0 & 0 & \mathrm{r}_{333} \\ 0 & \mathrm{r}_{322} & 0 \\ \mathrm{r}_{311} & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 \end{pmatrix} \tag{A.2}$$

$$\hat{\epsilon} = \begin{pmatrix} \epsilon_{11} & 0 & 0 \\ 0 & \epsilon_{11} & 0 \\ 0 & 0 & \epsilon_{33} \end{pmatrix}. \tag{A.3}$$

Für eine gegebene Geometrie des holographischen Aufbaus (Abb. 3.11) erhält man für die Transformation des holographischen Gittervektors und der Vektoren, die die Lichtpolarisation festlegen, vom kartesischen System (x,y,z) in das Kristallsystem (a,b,c)

$$\vec{\mathrm{K}} = \begin{pmatrix} 0 \\ -\mathrm{K} \cdot \sin(\beta) \\ \mathrm{K} \cdot \cos(\beta) \end{pmatrix} \tag{A.4}$$

$$\vec{e}_1^{\,t,c} = \begin{pmatrix} 0 \\ -\cos(\alpha_1) \\ \sin(\alpha_1) \end{pmatrix} = \vec{e}_1^{\,r,c} \tag{A.5}$$

$$\vec{e}_2^{\,t,c} = \begin{pmatrix} 0 \\ -\cos(\alpha_2) \\ \sin(\alpha_2) \end{pmatrix} = -\vec{e}_2^{\,r,c} \tag{A.6}$$

im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse und

$$\vec{e}_1^{\,t,a} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} = \vec{e}_1^{\,r,a} \tag{A.7}$$

$$\vec{e}_2^{\,t,a} = \begin{pmatrix} 1 \\ 0 \\ 0 \end{pmatrix} = \vec{e}_2^{\,r,a} \tag{A.8}$$

im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse. Dabei ist β der interne Winkel zwischen dem holographischen Gittervektor und der c-Achse des Kristalls, und α_1, α_2 sind die internen Winkel zwischen dem Signalstrahl und der positiven c-Achse bzw. zwischen dem Referenzstrahl und der positiven c-Achse. Die Indizes t und r beziehen sich dabei auf die Transmissions- bzw. Reflexionsgeometrie.
Wertet man die Gleichung (A.1) für r_{eff} mit $\beta = \pi/2 - (\alpha_1 + \alpha_2)/2$ und $r_{113} = r_{223} = r_{13}$, $r_{131} = r_{311} = r_{232} = r_{322} = r_{42}$ und $r_{333} = r_{33}$ aus, so erhält man im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse die Gleichung (3.76) und analog im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse die Gleichung (3.77).

A.2 Symmetrischer Einfall in Transmissionsgeometrie

Der Zusammenhang zwischen dem Verstärkungsfaktor und der Amplitude der Brechungsindexmodulation wird hier wie in der Referenz [130] ausgedrückt:

$$\Gamma = -\frac{4\pi}{m \cdot \lambda} \cdot \Delta n. \tag{A.9}$$

Der fehlende Ausdruck $\cos(\theta_i)$ im Nenner der Gleichung (3.15) wird durch eine effektive Dicke $d_b/\cos(\theta_i^t)$ bei der Berechnung von Γ aus den gemessenen Intensitäten berücksichtigt (Gl. (3.21)). Auf diese Weise erhält man

$$\Gamma = \frac{\cos(\theta_i^t)}{d_b} \cdot \ln\left(\frac{I_{C1}}{I_{St}} \cdot \frac{I_{Rt}}{I_{C2}}\right). \tag{A.10}$$

Dabei ist d_b die Dicke entlang der b-Achse (Abb. 2.2). Die Winkel θ_i^t, α_1 und α_2 hängen folgendermaßen zusammen (Abb. 3.11 a)):

$$\theta_i^t = \frac{\alpha_1 - \alpha_2}{2} \tag{A.11}$$

und im Fall von symmetrisch auf den Kristall einfallenden Schreibstrahlen

$$\alpha_1 = \pi - \alpha_2. \tag{A.12}$$

Die Wellenlänge des holographischen Gitters ist

$$\Lambda^t = \frac{\lambda}{2 \cdot n_{eff} \cdot \sin(\theta_i^t)}. \tag{A.13}$$

Außerdem muss die Winkelabhängigkeit des Brechungsindex beachtet werden:

$$n_{eff}(\theta_i^t) = \frac{n_e \cdot n_o}{\sqrt{n_e^2 \cdot \sin^2(\theta_i^t) + n_o^2 \cdot \cos^2(\theta_i^t)}}. \tag{A.14}$$

Die wirksame Komponente des Dielektrizitätstensors hängt dabei allein vom Gittervektor $\vec{K}$ des Hologramms ab. In allen Fällen, in denen die Schreibstrahlen symmetrisch auf den Kristall treffen, d.h. der Gittervektor des Hologramms und die kristallographische c-Achse kollinear zueinander verlaufen, ist stets ϵ_{33} wirksam. Setzt man die entsprechenden Größen in die Gleichung (A.9) ein, so erhält man für den holographischen Verstärkungsfaktor die Gleichung (3.100i) für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse und die Gleichung (3.100ii) für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse mit den Konstanten A_1, A_3 und B gemäß den Gleichungen (3.103), (3.105) und (3.106).

A.3 Symmetrischer Einfall in Reflexionsgeometrie

In Analogie zur Transmissionsgeometrie berechnet sich Γ für die Reflexionsgeometrie (Abb. 3.11 b)) gemäß

$$\Gamma = \frac{\cos(\alpha_2)}{d_c} \cdot \ln\left(\frac{I_{C1}}{I_{St}} \cdot \frac{I_{Rt}}{I_{C2}}\right), \tag{A.15}$$

wobei d_c die Kristalldicke entlang der c-Achse ist (Abb. 2.2). Die Winkel θ_i^r, α_1 und α_2 genügen folgender Beziehung:

$$\theta_i^r = \frac{\pi}{2} - \frac{\alpha_1 - \alpha_2}{2} = \frac{\pi}{2} - \theta_i^t, \tag{A.16}$$

und im Fall von symmetrisch einfallenden Schreibstrahlen hat man entsprechend

$$\alpha_1 = \pi - \alpha_2, \text{ d.h. } \theta_i^r = \alpha_2. \tag{A.17}$$

Die Wellenlänge des holographischen Gitters ist

$$\Lambda^{\mathrm{r}} = \frac{\lambda}{2 \cdot \mathrm{n_{eff}} \cdot \cos(\theta_{\mathrm{i}}^{\mathrm{r}})}. \tag{A.18}$$

Für den effektiven Brechungsindex erhält man

$$\mathrm{n_{eff}}(\alpha_2) = \frac{\mathrm{n_e} \cdot \mathrm{n_o}}{\sqrt{\mathrm{n_e^2} \cdot \cos^2(\alpha_2) + \mathrm{n_o^2} \cdot \sin^2(\alpha_2)}}. \tag{A.19}$$

Der holographische Verstärkungsfaktor kann im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse als

$$\Gamma^{\mathrm{r,sym,c}}(\alpha_2) = -[-\mathrm{A}_1 \cdot \cos^2(\alpha_2) + \mathrm{A}_3 \cdot \sin^2(\alpha_2)] \cdot \frac{\cos(\alpha_2) \cdot \cos(2\alpha_2)}{\left[1 + \left(\frac{\cos(\alpha_2)}{\mathrm{B}}\right)^2 \cdot \mathrm{n_{eff}^2}(\alpha_2) \cdot \epsilon_{33}\right]} \tag{A.20}$$

geschrieben werden. Verwendet man die Gleichungen (A.16) und (A.17), so kann man α_2 durch $\theta_{\mathrm{i}}^{\mathrm{t}}$ ersetzen und findet, dass der symmetrische Einfall der Schreibstrahlen sowohl für die Transmissions- als auch für die Reflexionsgeometrie für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse durch dieselbe Gleichung beschrieben wird. Diese hängt nur vom internen Bragg-Winkel $\theta_{\mathrm{i}}^{\mathrm{t}}$ ab.

A.4 Asymmetrischer Einfall in Reflexionsgeometrie

Die einfallenden Strahlen können asymmetrisch variiert werden (Abb. 3.11 c)). In diesem Fall hat man

$$\alpha_1 = \pi, \text{ d.h. } \theta_{\mathrm{i}}^{\mathrm{r}} = \frac{\alpha_2}{2}. \tag{A.21}$$

Im Gegensatz zu den Fällen mit symmetrischem Einfall der Schreibstrahlen ist hier eine effektive Dielektrizitätskonstante wirksam:

$$\epsilon(\alpha_2) = \frac{\epsilon_{33} \cdot \epsilon_{11}}{\sqrt{\epsilon_{33}^2 \cdot \sin^2(\alpha_2) + \epsilon_{11}^2 \cdot \cos^2(\alpha_2)}}. \tag{A.22}$$

Für den holographischen Verstärkungsfaktor resultiert damit die Gleichung (3.100iii) mit A_1, A_2 und B gemäß den Gleichungen (3.103), (3.104) und (3.106).

A.5 Drehung des Kristalls in Reflexionsgeometrie

In einem speziellen Fall der Reflexionsgeometrie, in dem die Strahlen kollinear, aber antiparallel zueinander verlaufen, kann man eine weitere experimentelle Anordnung wählen, bei der der Kristall gedreht wird (Abb. 3.11 d)). In diesem Fall

hat man

$$\alpha_1 = \pi + \alpha_2, \text{ d.h. } \theta_{\mathrm{i}}^{\mathrm{r}} = 0 \tag{A.23}$$

und daher die Gleichung (3.100v) mit A_1, A_2, A_3 und B gemäß den Gleichungen (3.103), (3.104), (3.105) und (3.106).

A.6 Reflexionsgeometrie, Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse

Im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse erhält man einen ähnlichen Satz von Gleichungen wie mit einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse:

$$\Gamma^{\mathrm{r,sym,a}}(\alpha_2) = \mathrm{A}_1 \cdot \frac{\cos(\alpha_2)}{\left[1 + \left(\frac{\cos(\alpha_2)}{\mathrm{B}}\right)^2 \cdot \mathrm{n}_{\mathrm{o}}^2 \cdot \epsilon_{33}\right]} \tag{A.24}$$

für den symmetrischen Einfall sowie die Gleichungen (3.100iv) für den asymmetrischen Einfall und (3.100vi) für das Drehen des Kristalls mit A_1 und B gemäß den Gleichungen (3.103) und (3.106). In Analogie zum symmetrischen Einfall für eine Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen c-Achse sieht man, wenn man wieder α_2 durch $\theta_{\mathrm{i}}^{\mathrm{t}}$ ersetzt, dass der symmetrische Einfall im Fall einer Lichtpolarisation parallel zur kristallographischen a-Achse durch eine Gleichung beschrieben werden kann, die nur vom internen Bragg-Winkel θ_i^t abhängt.

Literaturverzeichnis

[1] Euromonitor, "International marketing data and statistics 1999". Euromonitor PLC, London (1999).

[2] H. Thapar, A. Patel, "A class of partial response systems for increasing storage density in digital magnetic recording". *IEEE Trans. on Magnetics* **23**, 3666 (1987).

[3] T. Parish, "Kristall statt Platte". *c't Magazin* **1**, 54 (1991).

[4] D. Psaltis, F. Mok, "Holographic memories". *Sci. Am.* **9**, 52 (1995).

[5] A. Bell, "Next-generation compact discs". *Sci. Am.* **7**, 28 (1996).

[6] T. Thompson, "When silicon hits its limits, what's next?". *Byte* **11**, 45 (1996).

[7] J. M. Göttert, "Auf einen Schlag". *Wirtschaftswoche* **15**, 96 (1996).

[8] A. Strass, "Holographic memories target terabyte storage". *OLE* **9**, 31 (1996).

[9] N. Yamada, "Ultrahigh-density information-storage materials". *MRS Bulletin* **21**, 48 (1996).

[10] G. Beissmann, "Hat die Festplatte ausgedient? Holographische Speicher bieten mehr Kapazität und Tempo". *Wirtschaftswoche* **11**, 129 (1999).

[11] D. Gabor, "A new microscopic principle". *Nature* **161**, 777 (1948).

[12] J. Bardeen and W. H. Brattain, "The Transistor, A Semi-Conductor Triode". *Phys. Rev.* **74**, 230 (1948).

[13] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein, K. Nassau, "Optically-induced refractive index inhomogeneities in $LiNbO_3$ and $LiTaO_3$". *Appl. Phys. Lett.* **9**, 72 (1966).

[14] F. S. Chen, J. T. LaMacchia, and D. B. Fraser, "Holographic Storage in lithium niobate". *Appl. Phys. Lett.* **13**, 223 (1968).

[15] K. Megumi, H. Kozuka, M. Kobayashi, and Y. Furuhata, "High-sensitive holographic storage in Ce-doped SBN". *Appl. Phys. Lett.* **30**, 631 (1977).

[16] M. D. Ewbank, R. R. Neurgaonkar, W. K. Cory, J. Feinberg, "Photorefractive properties of strontium-barium niobate". *J. Appl. Phys.* **62**, 374 (1987).

[17] B. Fischer, M. Cronin-Golomb, J. O. White, A. Yariv, R. R. Neurgaonkar, "Amplifying continuous wave phase conjugate mirror with strontium barium niobate". *Appl. Phys. Lett.* **40**, 863 (1982).

[18] R. A. Rupp, J. Seglins, U. van Olfen, "Phase Transition of SBN:Ce Studied by Anisotropic Holographic Scattering". *phys. stat. sol. (b)* **168**, 445 (1991).

[19] M. H. Francombe, "The Relation between Structure and Ferroelectricity in Lead Barium and Barium Strontium Niobates". *Acta Cryst.* **13**, 131 (1960).

[20] A. A. Ballman and H. Brown, "The Growth And Properties Of Strontium Barium Metaniobate, $Sr_{1-x}Ba_xNb_2O_6$, A Tungsten Bronze Ferroelectric". *J. Cryst. Growth* **1**, 311 (1967).

[21] J. C. Brice, O. F. Hill, P. A. C. Whiffin and J. A. Wilkinson, "The Czochralski Growth Of Barium Strontium Niobate Crystals". *J. Cryst. Growth* **10**, 133 (1971).

[22] C. Brehm, J.-Y. Boniort and P. Margotin, "Segregation Of Impurities And Striation In Single Crystals Of Double Niobates $Ba_xSr_{1-x}Nb_2O_6$ And $Ba_2NaNb_5O_{15}$". *J. Cryst. Growth* **18**, 191 (1973).

[23] G. Desplanches, J. Y. Barraud and Y. Lazennec, "A New Crystalline Form In The $BaNb_2O_6$-$SrNb_2O_6$ Pseudo-Binary System". *J. Cryst. Growth* **23**, 149 (1974).

[24] Kedar P. Gupta and Franklin F. Y. Wang and Chou H. Li, "Growth Spiral In The Eutectic System $BaNb_2O_6$-$SrNb_2O_6$". *J. Cryst. Growth* **29**, 203 (1975).

[25] J.-Y. Boniort, C. Brehm, G. Desplanches, J.-Y. Barraud and P. Margotin, "Crystal Growth Of Strontium Barium Niobate $Ba_xSr_{1-x}Nb_2O_6$". *J. Cryst. Growth* **30**, 357 (1975).

[26] O. F. Dudnik, Yu. L. Kopylov, and V. B. Kravchenko, "The influence of the conditions of growth on the growth bands in crystals of barium strontium niobate". *Sov. Phys. Crystallogr.* **20**, 621 (1976).

[27] V. V. Voronov, E. V. Zharikov, L. I. Ivleva, Yu. S. Kuzminov, V. V. Osiko, N. M. Polozkov, V. J. Khaimov-Malkov, V. A. Myzina, "Growth and Analysis of Barium-Sodium Niobate Crystals". *Kristall und Technik* **11**, 1113 (1976).

[28] N. A. Abramov, L. I. Ivleva, Yu. S. Kuzminov, V. A. Myzina, N. M. Polozkov, "Growth Defects in Barium-Strontium Niobate Crystals". *Kristall und Technik* **12**, 1157 (1977).

[29] Yu. L. Kopylov, V. B. Kravchenko, V. P. Moiseev, "Optical Defects in Barium-Strontium Niobate Single Crystals". *Kristall und Technik* **14**, 697 (1979).

[30] P. Reiche, R. Schalge, J. Bohm, D. Schultze, "Growth of Defect-free $Sr_{1-x}Ba_xNb_2O_6$ (SBN) Crystals". *Kristall und Technik* **15**, 23 (1980).

[31] K. Buse, A. Gerwens, S. Wevering, E. Krätzig, "Charge-transport parameters of photorefractive strontium-barium niobate crystals doped with cerium". *J. Opt. Soc. Am. B* **15**, 1674 (1998).

[32] Th. Woike, G. Weckwerth, H. Palme, and R. Pankrath, "Instrumental Neutron Activation And Absorption Spectroscopy Of Photorefractive Strontium-Barium Niobate Single Crystals Doped With Cerium". *Solid State Commun.* **102**, 743 (1997).

[33] T. Volk, Th. Woike, U. Dörfler, R. Pankrath, L. Ivleva, M. Wöhlecke, "Ferroelectric Phenomena And Holographic Properties Of Strontium-Barium Niobate Crystals Doped With Rare-Earth Elements". *Ferroelectrics* **203**, 457 (1997).

[34] J. Dec, W. Kleemann, V. Bobnar, Z. Kutnjak, A. Levstik, R. Pirc and R. Pankrath, "Random-field Ising-type transition of pure and doped SBN from the relaxor into the ferroelectric state". *Europhys. Lett.* **55**, 781 (2001).

[35] P. Lehnen, E. Beckers, W. Kleemann, Th. Woike and R. Pankrath, "Ferroelectric Domains in the Uniaxial Relaxor System SBN:Ce, Cr and Co". *Ferroelectrics* **253**, 11 (2001).

[36] W. Kleemann, J. Dec, P. Lehnen, R. Blinc, B. Zalar, R. Pankrath, "Uniaxial relaxor ferroelectrics: the random-field Ising model materialized at last". *Europhys. Lett.* **57**, 14 (2002).

[37] J. Wingbermühle, M. Meyer, O. F. Schirmer, R. Pankrath, A. K. Kremer, "Electron paramagnetic resonance of Ce^{3+} in strontium-barium niobate". *J. Phys.: Condens. Matter* **12**, 4277 (2000).

[38] K. Buse, U. van Stevendaal, R. Pankrath, and E. Krätzig, "Light-induced charge transport properties of $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$ crystals". *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 1461 (1996).

[39] Y. Tomita, A. Suzuki, "Photorefractive properties of Cr-doped strontium-barium niobate at 514.5 nm and 632.8 nm: A comparative study". *Appl. Phys. A* **59**, 579 (1994).

[40] K. Sayano, A. Yariv, R. R. Neurgaonkar, "Photorefractive gain and response time of Cr-doped strontium barium niobate". *Appl. Phys. Lett.* **55**, 328 (1989).

[41] R. A. Vazquez, M. D. Ewbank and R. R. Neurgaonkar, "Photorefractive properties of doped strontium-barium niobate". *Opt. Comm.* **80**, 253 (1991).

[42] D. Mahgerefteh and J. Feinberg, "Explanation of the Apparent Sublinear Photoconductivity of Photorefractive Barium Titanate". *Phys. Rev. Lett.* **64**, 2195 (1990).

[43] S. Ducharme, J. Feinberg, and R. R. Neurgaonkar, "Electrooptic and Piezoelectric Measurements in Photorefractive Barium Titanate and Strontium Barium Niobate". *IEEE J. Quantum Electron.* **QE-23**, 2116 (1987).

[44] H. Y. Zhang, X. H. He, Y. H. Shih, "A new method for measuring the electro-optic coefficients with higher sensitivity and higher accuracy". *Opt. Commun.* **86**, 509 (1991).

[45] R. A. Vazquez, F. R. Vachss, R. R. Neurgaonkar, and M. D. Ewbank, "Large photorefractive coupling coefficient in a thin cerium-doped strontium barium niobate crystal". *J. Opt. Soc. Am. B* **8**, 1932 (1991).

[46] M. Lee, R. S. Feigelson, A. Liu, L. Hesselink, "Photorefractive properties of tungsten bronze ferroelectric lead barium niobate ($Pb_{1-x}Ba_xNb_2O_6$) crystals". *J. Appl. Phys.* **83**, 5967 (1998).

[47] K. Sayano, A. Yariv, R. R. Neurgaonkar, "Enhanced photorefractive gain in Cr-doped strontium barium niobate with an external dc electric field". *J. Appl. Phys.* **67**, 1594 (1990).

[48] R. De Vré, M. Jeganathan, J. P. Wilde, and L. Hesselink, "Effect of applied electric fields on the writing and the readout of photorefractive gratings". *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 600 (1995).

[49] F. Micheron and G. Bismuth, "Electrical Control of Fixation and Erasure of Holographic Patterns in Ferroelectric Materials". *Appl. Phys. Lett.* **20**, 79 (1972).

[50] F. Micheron and G. Bismuth, "Field and time thresholds for the electrical fixation of holograms recorded in $(Sr_{0.75}Ba_{0.25})Nb_2O_6$ crystals". *Appl. Phys. Lett.* **23**, 71 (1973).

[51] Y. Qiao, S. Orlov, D. Psaltis, and R. R. Neurgaonkar, "Electrical fixing of photorefractive holograms in $Sr_{0.75}Ba_{0.25}Nb_2O_6$". *Opt. Lett.* **18**, 1004 (1993).

[52] S. S. Sarvestani, A. Siahmakoun, G. Duree, K. Johnson, "High diffraction efficiency in SBN with applied fields near the coercive field". *Appl. Phys. B* **72**, 711 (2001).

[53] F. Kahmann, "Neue holographische Methoden zur Untersuchung photorefraktiver Materialien am Beispiel von SBN und $Cd_{13}P_4S_{22}I_2$". Dissertation, Osnabrück (1993).

[54] Y. Y. Zhu, J. S. Fu, R. F. Xiao, and G. K. L. Wong, "Second harmonic generation in periodically domain-inverted $Sr_{0.6}Ba_{0.4}Nb_2O_6$ crystal plate". *Appl. Phys. Lett.* **70**, 1793 (1997).

[55] H. Bach und J. Liebertz, "Kristallchemie der tetragonalen Bronzen". *Fortschr. Miner.* **55**, 59 (1977).

[56] P. B. Jamieson and S. C. Abrahams, "Re-examination of the crystal structure of ferroelectric tetragonal bronze-type $Ba_6Ti_2Nb_8O_{30}$". *Acta Cryst. B* **24**, 984 (1968).

[57] N. C. Stephenson, "The Crystal Structure of the Tetragonal Bronze $Ba_6Ti_2Nb_8O_{30}$". *Acta Cryst.* **18**, 496 (1965).

[58] R. C. Baetzold, "Calculations of defect properties important in photorefractive $Sr_{0.6}Ba_{0.4}Nb_2O_6$". *Phys. Rev. B* **48**, 5789 (1993).

[59] L. A. Bursill, J. L. Peng, "Incommensurate Superstructures and Phase Transition of Strontium Barium Niobate (SBN)". *Acta Cryst. B* **43**, 49 (1987).

[60] J. Schneck, J. C. Toledano, R. Whatmore, F. W. Ainger, "Incommensurate Phases In Ferroelectric Tetragonal Tungsten Bronzes". *Ferroelectrics* **36**, 327 (1981).

[61] F. Prokert, B. N. Savenko, A. M. Balagurov, "Neutron Diffraction Study Of Phase Transitions In The Mixed Crystal $Sr_{0.7}Ba_{0.3}Nb_2O_6$ Between 20 And 300 K". *Ferroelectrics* **188**, 187 (1996).

[62] D. Schaniel, J. Schefer, V. Petrícek, M. Imlau, T. Granzow, T. Woike, "Superspace approach applied to a neutron-diffraction study of the holographic data storage material $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$". *Appl. Phys. A*, im Druck (2002).

[63] Th. Woike, V. Petrícek, M. Dušek, N. K. Hansen, P. Fertey, C. Lecomte, G. Chapuis, R. Pankrath, "The modulated structure of $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$". *Applied Crystallography*, eingereicht (2002).

[64] T. S. Chang, E. Amzallag, and M. Rokni, "Ferroelectricity Measurements on $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$". *Ferroelectrics* **3**, 57 (1971).

[65] G. Burns and A. W. Smith, "Properties of new and useful Tungsten-Bronze Niobates". *IEEE J. Quant. Electron.* **4**, 584 (1968).

[66] Th. Woike, U. Dörfler, L. Tsankov, G. Weckwerth, D. Wolf, M. Wöhlecke, T. Granzow, R. Pankrath, M. Imlau, "Photorefractive properties of Cr-doped $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$ related to crystal purity and doping concentration". *Appl. Phys. B* **72**, 661 (2001).

[67] R. Niemann, K. Buse, R. Pankrath, M. Neumann, "XPS Study Of Photorefractive $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$:Ce Crystals". *Solid State Commun.* **98**, 209 (1996).

[68] I. McMichael and P. Yeh, "Phase shifts of photorefractive gratings and phase-conjugate waves". *Opt. Lett.* **12**, 48 (1987).

[69] H. Kogelnik, "Coupled Wave Theory for Thick Hologram Gratings". *Bell Syst. Tech. J.* **48**, 2909 (1969).

[70] T. K. Gaylord, M. G. Manoharan, "Thin and thick gratings: terminology clarification". *Appl. Optics* **20**, 3271 (1981).

[71] P. Yeh, "Introduction to Photorefractive Nonlinear Optics". John Wiley and Sons, New York (1993).

[72] Y. H. Ja, "Energy transfer between two beams in writing a reflection volume hologram in a dynamic medium". *Opt. Quantum Electron.* **14**, 547 (1982).

[73] M. D. Ewbank, R. A. Vazquez, R. R. Neurgaonkar, and F. Vachss, "Contradirectional two-beam coupling in absorptive photorefractive materials: application to Rh-doped strontium barium niobate (SBN:60)". *J. Opt. Soc. Am. B* **12**, 87 (1995).

[74] K. Buse, "Light-induced charge transport processes in photorefractive crystals I: Models and experimental methods". *Appl. Phys. B* **64**, 273 (1997).

[75] S. Loheide, "Der lichtinduzierte Ladungstransport in tetragonalen $KTa_{1-x}Nb_xO_3$-Kristallen". Dissertation, Osnabrück (1995).

[76] A. M. Glass, D. von der Linde, T. J. Negran, "High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in $LiNbO_3$". *Appl. Phys. Lett.* **25**, 233 (1974).

[77] V. I. Belinicher, V. K. Malinowskiĭ, B. I. Sturman, "Photogalvanic effect in a crystal with polar axis". *Sov. Phys.: JETP* **46**, 362 (1977).

[78] V. I. Belinicher, B. I. Sturman, "The photogalvanic effect in media lacking a center of symmetry". *Sov. Phys.: Uspekhy* **23**, 199 (1980).

[79] B. I. Sturman, V. M. Fridkin, "The Photovoltaic and Photorefractive Effects in Noncentrosymmetric Materials". Gordon and Breach Science Publishers, Philadelphia (1992).

[80] N. V. Kukhtarev, V. B. Markov, S. G. Odulov, M. S. Soskin, and V. L. Vinetskii, "Holographic Storage In Electrooptic Crystals. I. Steady State". *Ferroelectrics* **22**, 949 (1979).

[81] G. C. Valley, "Simultaneous electron/hole transport in photorefractive materials". *J. Appl. Phys.* **59**, 3363 (1986).

[82] F. P. Strohkendl, J. M. C. Jonathan, and R. W. Hellwarth, "Hole-electron competition in photorefractive gratings". *Opt. Lett.* **11**, 312 (1986).

[83] P. Tayebati and D. Mahgerefteh, "Theory of the photorefractive effect for $Bi_{12}SiO_{20}$ and $BaTiO_3$ with shallow traps". *J. Opt. Soc. Am. B* **8**, 1053 (1991).

[84] I. Biaggio, M. Zgonik and P. Günter, "Build-up And Dark Decay Of Transient Photorefractive Gratings In Reduced $KNbO_3$". *Opt. Commun.* **77**, 312 (1990).

[85] K. Buse, J. Frejlich, G. Kuper, E. Krätzig, "Dark Build-Up of Holograms in $BaTiO_3$ After Recording". *Appl. Phys. A* **57**, 437 (1993).

[86] P. Tayebati, "The effect of shallow traps on the dark storage of photorefractive grating in $Bi_{12}SiO_{20}$". *J. Appl. Phys.* **70**, 4082 (1991).

[87] R. S. Cudney, R. M. Pierce, G. D. Bacher, and J. Feinberg, "Absorption Gratings in photorefractive crystals with multiple levels". *J. Opt. Soc. Am. B* **8**, 1326 (1991).

[88] K. Buse, E. Krätzig, "Three-valence charge-transport model for the explanation of the photorefractive effect". *Appl. Phys. B* **61**, 27 (1995).

[89] K. Buse, S. Loheide, D. Sabbert, and E. Krätzig, "Photorefractive properties of tetragonal $KTa_{0.52}Nb_{0.48}O_3$ crystals and explanation by the three-valence charge-transport model". *J. Opt. Soc. Am. B* **13**, 2644 (1996).

[90] A. J. Fox, "Longitudinal electro-optic effects in barium strontium niobate ($Ba_xSr_{1-x}Nb_2O_6$)". *J. Appl. Phys.* **44**, 254 (1973).

[91] R. A. Rupp, "Material Characterization by Holographic Methods". *Appl. Phys. A* **55**, 2 (1992).

[92] E. Krätzig, F. Welz, R. Orlowski, V. Doormann, M. Rosenkranz, "Holographic Storage Properties of $BaTiO_3$". *Solid State Commun.* **34**, 817 (1980).

[93] S. Ducharme, J. Feinberg, "Speed of the Photorefractive Effect in a $BaTiO_3$ single crystal". *J. Appl. Phys.* **56**, 839 (1984).

[94] R. A. Rupp, A. Maillard, J. Walter, "Impact of the Sublinear Photoconductivity Law on the Interpretation of Holographic Results in $BaTiO_3$". *Appl. Phys. A* **49**, 259 (1989).

[95] R. J. Pressley, editor, "Handbook of Lasers". Chemical Rubber, Cleveland, 452 (1971).

[96] A. S. Bhalla, R. Guo, L. E. Cross, G. Burns, F. H. Dacol, and R. R. Neurgaonkar, "Measurements of strain and the optical indices in the ferroelectric $Ba_{0.4}Sr_{0.6}Nb_2O_6$: Polarization effects". *Phys. Rev. B* **36**, 2030 (1987).

[97] S. Haussühl, "Kristallphysik". Weinheim: Physik-Verlag; Weinheim: Verlag Chemie (Taschentext), 153 (1983).

[98] T. Volk, Th. Woike, U. Dörfler, H. Schmitz, R. Pankrath, M. Wöhlecke, "Ferroelectricity Driven Two-Beam Couplin Gain in Strontium-Barium Niobate Crystals". *OSA TOPS* **27**, 86 (1999).

[99] Landolt Börnstein, "Numerical Data and Functional Relationship in Science and Technology", New Series, Editor in Chief: O. Madelung. Springer-Verlag Berlin-Heidelberg **III/28a**, 150 (1990)

[100] T. Granzow, private Mitteilung.

[101] R. R. Neurgaonkar and W. K. Cory, "Progress in photorefractive tungsten bronze crystals". *J. Opt. Soc. Am. B* **3**, 274 (1986).

[102] Th. Woike, T. Granzow, U. Dörfler, Ch. Poetsch, M. Wöhlecke, and R. Pankrath "Refractive Indices of Congruently Melting $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$". *phys. stat. sol. (a)* **186**, R13 (2001).

[103] Ming Gao, "Optical Investigation of Light-induced Charge Transport in SBN Crystals". Dissertation, Osnabrück (1998).

[104] M. Goulkov, T. Granzow, U. Dörfler, Th. Woike, R. Pankrath, M. Imlau, "Temperature dependence of holographic light-scattering in highly doped $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$ single crystals". *J. Opt. Soc. Am. B*, wird eingereicht.

[105] A. V. Knyaz'kov, N. M. Kozhevnikov, Yu. S. Kuz'minov, N. M. Polozkov, A. S. Saikin, and S. A. Sergushchenko, "Effect of an electric field on dynamic hologram recording in cerium-doped barium-strontium niobate crystals". *Sov. Tech. Phys. Lett.* **9**, 171 (1983).

[106] J. Ma, L. Liu, S. Wu, Z. Wang, L. Xu, and B. Shu, "Electrocontrolled beam coupling and bistable behavior in SBN:Ce crystals". *Appl. Phys. Lett.* **53**, 826 (1988).

[107] J. E. Ford, J. Ma, Y. Fainman, S. H. Lee, Y. Taketomi, D. Bize, R. R. Neurgaonkar, "Multiplex holography in strontium barium niobate with applied field". *J. Opt. Soc. Am. A* **9**, 1183 (1992).

[108] R. Orlowski, "Holographische Untersuchung des photorefraktiven Effekts in elektro-optischen Kristallen". Dissertation, Hamburg (1980).

[109] N. Uchida, "Calculation of diffraction efficiency in hologram gratings attenuated along the direction perpendicular to the grating vector". *J. Opt. Soc. Am* **63**, 280 (1973).

[110] S. Morozumi, "Diffraction Efficiency of Hologram Gratings with Modulation Changing through the Thickness". *Jap. J. Appl. Phys.* **15**, 1929 (1976).

[111] P. Günter and M. Zgonik, "Clamped-Unclamped Electro-optic Coefficient Dilemma in Photorefractive Phenomena". *Opt. Lett.* **16**, 1826 (1991).

[112] N. Korneev, D. Mayorga, S. Stepanov, A. Gerwens, K. Buse, E. Krätzig, "Characterization of photorefractive strontium-barium niobate with non-steady-state holographic photocurrents". *Optics Commun.* **146**, 215 (1998).

[113] U. B. Dörfler, R. Piechatzek, Th. Woike, M. K. Imlau, V. Wirth, L. Bohatý, T. Volk, R. Pankrath, M. Wöhlecke, "A holographic method for the determination of all linear electrooptic coefficients applied to Ce-doped strontium-barium-niobate". *Appl. Phys. B* **68**, 843 (1999).

[114] M. DiDomenico and S. H. Wemple, "Oxygen-Octahedra Ferroelectrics. I. Theory of Electro-optical and Nonlinear optical Effects". *J. Appl. Phys.* **40**, 720 (1969).

[115] J. R. Oliver, R. R. Neurgaonkar, L. E. Cross, "A thermodynamic phenomenology for ferroelectric tungsten bronze $Sr_{0.6}Ba_{0.4}Nb_2O_6$ (SBN:60)". *J. Appl. Phys.* **64**, 37 (1988).

[116] R. J. Pressley, editor, "Handbook of Lasers". Chemical Rubber, Cleveland, 447 (1971).

[117] J. F. Nye, "Physical Properties of Crystals". Oxford Univ. Press, London, Kap. XIII (1967).

[118] E. L. Venturini, E. G. Spencer, and A. A. Ballman, "Elasto-Optic Properties of $Bi_{12}GeO_{20}$, $Bi_{12}GeO_{20}$, and $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$". *J. Appl. Phys.* **40**, 1622 (1969).

[119] Yu-Guo Wang, W. Kleemann, Th. Woike, R. Pankrath, "Atomic force microscopy of domains and volume holograms in $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$:$Ce^{3+}$". *Phys. Rev. B* **61**, 3333 (2000).

[120] T. Granzow, U. Dörfler, Th. Woike, M. Wöhlecke, R. Pankrath, M. Imlau, W. Kleemann, "Local electric-field-driven repoling reflected in the ferroelectric polarization of Ce-doped $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$". *Appl. Phys. Lett.* **80**, 470 (2002).

[121] J. Dec, W. Kleemann, Th. Woike, R. Pankrath, "Phase transitions in $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$:$Ce^{3+}$: I. Susceptibility of clusters and domains". *Eur. Phys. J. B* **14**, 627 (2000).

[122] T. Granzow, U. Dörfler, Th. Woike, M. Wöhlecke, R. Pankrath, M. Imlau and W. Kleemann, "Evidence of random electric fields in the relaxor-ferroelectric $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$". *Europhys. Lett.* **57**, 597 (2002).

[123] S. Loheide, S. Riehemann, E. Krätzig, "Beam-Coupling in Tetragonal Potassium Tantalate-Niobate Crystals". *Appl. Phys. A* **58**, 343 (1994).

[124] T. Granzow, U. Dörfler, Th. Woike, M. Imlau, R. Pankrath, M. Wöhlecke, W. Kleemann, "Influence of Pinning-Effects on the Ferroelectric Hysteresis in Cerium-Doped Strontium-Barium-Niobate". *Phys. Rev. B* **63**, 17401 (2001).

[125] T. Woike, T. Volk, U. Dörfler, R. Pankrath, L. Ivleva, M. Wöhlecke, "Ferroelectric And Optical Hysteresis In SBN Doped With Rare-Earth Elements". *Ferroelectric Lett.* **23**, 127 (1998).

[126] A. S. Kewitsch, T. W. Towe, G. J. Salamo, A. Yariv, Min Zhang, M. Segev, E. J. Sharp, R. R. Neurgaonkar, "Optically induced quasi-phase matching in strontium barium niobate". *Appl. Phys. Lett.* **66**, 1865 (1995).

[127] Y. Ishibashi, Y. Takagi, "Note on Ferroelectric Domain Switching". *J. Phys. Soc. Jap.* **31**, 506 (1971).

[128] L. I. Dontsova, N. A. Tikhomirova, L. A. Shuvalov, "Defects and Their Role in Switching Processes and Formation of Internal Bias Fields in Ferroelectrics". *Crystallography Reports* **39**, 140 (1994).

[129] X. Mu, X. Xu, J. Chen, Z. Shao, M. Jiang, "Energy transfer characteristics of photorefractive contradirectional two-wave mixing". *Opt. Commun.* **141**, 189 (1997).

[130] P. Günter, "Holography, Coherent Light Amplification And Optical Phase Conjugation With Photorefractive Materials". *Physical Reports* **93**, 199 (1982).

Danksagung

Mein Dank gilt:

- Herrn Priv.-Doz. Dr. Th. Woike für die Ermöglichung dieser Arbeit sowie für die Anregungen, die wissenschaftliche Unterstützung und die Diskussionsbereitschaft, die zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.
- Herrn Prof. Dr. W. Rammensee für die freundliche Aufnahme in das Institut für Mineralogie sowie für die Übernahme des Koreferats.
- Herrn Prof. Dr. L. Bohatý für die freundliche Aufnahme in das Institut für Kristallographie sowie für die Aufnahme und die Betreuung im Rahmen des Graduiertenkollegs "Azentrische Kristalle" (GRK 549/1-99).
- Herrn Prof. Dr. R. Schieder für die Bereitstellung von Räumlichkeiten im I. Physikalischen Institut sowie für die Übernahme des Prüfungsvorsitzes.
- Herrn Prof. Dr. E. Krätzig für die Ermöglichung der Kooperation mit dem Fachbereich Physik der Universität Osnabrück.
- Herrn apl. Prof Dr. M. Wöhlecke für die Bereitstellung der Kristalle sowie für die wissenschaftliche Zusammenarbeit und die Unterstützung beim Verfassen von Publikationen.
- Frau Prof. Dr. T. Volk und Frau Dr. L. Ivleva für die wissenschaftliche Unterstützung sowie für die Züchtung und Bereitstellung der Tm- und Co-dotierten SBN-Kristalle.
- Herrn Prof. Dr. K. Buse für die Ermöglichung von Absorptionsmessungen am Physikalischen Institut der Universität Bonn.
- Herrn Prof. Dr. W. Kleemann für die wissenschaftliche Unterstützung auf dem Gebiet der dielektrischen und ferroelektrischen Materialien.
- Den Herren Prof. Dr. G. Nimtz und Priv.-Doz. Dr. R. Pelster für die Ermöglichung der dielektrischen Messungen am II. Physikalischen Institut.
- Den Herren Dr. D. Hesse und Dr. R. Pankrath für die Züchtung der Ce-, Cr- und Rh-dotierten SBN-Kristalle.

- Den Herren Dr. M. Goulkov, Dr. V. Angelov, Dr. L. Tsankov und Dr. P. Popov sowie Herrn Prof. T. Mehdiev für die experimentelle und technische Unterstützung.

- Frau Dr. A. Thöne sowie den Herren Dr. P. Held, Dr. M. Imlau, Dr. W. Klein, Dr. R. Berger, F. Krämer, Dr. H. Siegert, Dr. G. Hoyer, Dr. V. Wirth und Dr. H. Hellwig für die experimentelle und technische Unterstützung.

- Den Herren Dipl.-Phys. T. Granzow, Dipl.-Phys. P. Herth, Dipl.-Phys. I. Ostrowski, cand. phys. M. Werner, Dipl.-Phys. D. Berben, Dipl.-Phys. B. Blecha, Diplom-Betriebswirt J. Kraft, Dipl.-Phys. R. Piechatzek, Dipl.-Phys. D. Schaniel, Dipl.-Min. S. Schmickler, Frau Dipl.-Phys. M. Wesner, Frau Dipl.-Phys. M. Colakoglu und Frau Dr. I. Malkina für die anregenden Diskussionen sowie für das angenehme Arbeitsklima.

- Den Herren Dipl.-Phys. K. Sengebusch und Dipl.-Phys. J. Beckers von der Eureca Messtechnik GmbH für die technische Unterstützung.

- Den Elektronik- und Mechanikwerkstätten des Instituts für Mineralogie und Kristallographie und des I. und II. Physikalischen Instituts für die technische Unterstützung.

- Der DFG für die finanzielle Unterstützung im Rahmen des Drittmittelprojektes “Elektrisches Fixieren von Volumenphasenhologrammen in dotierten $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$-Einkristallen” (Wo 618/2-1) und im Rahmen des Graduiertenkollegs “Azentrische Kristalle” (GRK 549/1-99).

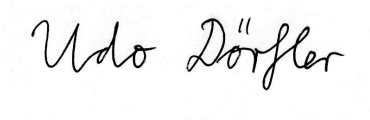
- Den Mitgliedern des Instituts für Mineralogie, des Instituts für Kristallographie sowie des Graduiertenkollegs “Azentrische Kristalle” (GRK 549/1-99) für die gute Zusammenarbeit und das angenehme Arbeitsklima.

- Meinen Freunden und Bekannten für die Unterstützung außerhalb der Universität.

- Meiner Familie und insbesondere meinen Eltern, deren Unterstützung diese Arbeit ermöglicht und stets vorangebracht hat.

Eidesstattliche Erklärung

Ich versichere, daß ich die von mir vorgelegte Dissertation selbständig angefertigt, die benutzten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben und die Stellen der Arbeit - einschließlich Tabellen, Karten und Abbildungen -, die anderen Werken im Wortlaut oder dem Sinn nach entnommen sind, in jedem Einzelfall als Entlehnung kenntlich gemacht habe; daß diese Dissertation noch keiner anderen Fakultät oder Universität zur Prüfung vorgelegen hat; daß sie - abgesehen von unten angegebenen Teilpublikationen - noch nicht veröffentlicht worden ist sowie, daß ich eine solche Veröffentlichung vor Abschluss des Promotionsverfahrens nicht vornehmen werde. Die Bestimmungen dieser Promotionsordnung sind mir bekannt. Die von mir vorgelegte Dissertation ist von Herrn Priv.-Doz. Dr. Theo Woike betreut worden.
Köln, den 21. Mai 2002



Teilpublikationen

1. T. Volk, Th. Woike, U. Dörfler, R. Pankrath, L. Ivleva, M. Wöhlecke, "Ferroelectric Phenomena And Holographic Properties Of Strontium-Barium Niobate Crystals Doped With Rare-Earth Elements". *Ferroelectrics* **203**, 457 (1997).

2. T. Woike, T. Volk, U. Dörfler, R. Pankrath, L. Ivleva, M. Wöhlecke, "Ferroelectric And Optical Hysteresis In SBN Doped With Rare-Earth Elements". *Ferroelectric Lett.* **23**, 127 (1998).

3. U. B. Dörfler, R. Piechatzek, Th. Woike, M. K. Imlau, V. Wirth, L. Bohatý, T. Volk, R. Pankrath, M. Wöhlecke, "A holographic method for the determination of all linear electrooptic coefficients applied to Ce-doped strontium-barium-niobate". *Appl. Phys. B* **68**, 843 (1999).

4. T. Volk, Th. Woike, U. Dörfler, H. Schmitz, R. Pankrath, M. Wöhlecke, "Ferroelectricity Driven Two-Beam Couplin Gain in Strontium-Barium Niobate Crystals". *OSA TOPS* **27**, 86 (1999).

5. Th. Woike, U. Dörfler, L. Tsankov, G. Weckwerth, D. Wolf, M. Wöhlecke, T. Granzow, R. Pankrath, M. Imlau, "Photorefractive properties of Cr-doped $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$ related to crystal purity and doping concentration". *Appl. Phys. B* **72**, 661 (2001).

6. T. Granzow, U. Dörfler, Th. Woike, M. Imlau, R. Pankrath, M. Wöhlecke, W. Kleemann, "Influence of Pinning-Effects on the Ferroelectric Hysteresis in Cerium-Doped Strontium-Barium-Niobate". *Phys. Rev. B* **63**, 17401 (2001).

7. Th. Woike, T. Granzow, U. Dörfler, Ch. Poetsch, M. Wöhlecke, and R. Pankrath "Refractive Indices of Congruently Melting $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$". *phys. stat. sol. (a)* **186**, R13 (2001).

8. T. Granzow, U. Dörfler, Th. Woike, M. Wöhlecke, R. Pankrath, M. Imlau and W. Kleemann, "Evidence of random electric fields in the relaxor-ferroelectric $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$". *Europhys. Lett.* **57**, 597 (2002).

9. T. Granzow, U. Dörfler, Th. Woike, M. Wöhlecke, R. Pankrath, M. Imlau, W. Kleemann, "Local electric-field-driven repoling reflected in the ferroelectric polarization of Ce-doped $Sr_{0.61}Ba_{0.39}Nb_2O_6$". *Appl. Phys. Lett.* **80**, 470 (2002).

Zusammenfassung

Holographische Messungen sind hervorragend geeignet, um die physikalischen Eigenschaften elektrooptischer Kristalle zu untersuchen. Das mit Elementen der Seltenen Erden (z.B. Ce) oder Übergangsmetallen (z.B. Cr) dotierte Relaxor-Ferroelektrikum Strontium-Barium-Niobat (SBN) ist wegen seiner guten optischen Qualität, der großen holographischen Verstärkung, der hohen Schreibgeschwindigkeit, der niedrigen Phasenübergangstemperatur und der niedrigen Koerzitivfeldstärke ein ausgezeichnetes Material sowohl für die Grundlagenforschung als auch für Anwendungen.

Die vorliegende Arbeit gibt einen systematischen Überblick über Messungen der Zweistrahlkopplung und des Beugungswirkungsgrades an einer Serie mit Ce und Cr dotierter SBN-Kristalle und an einzelnen, mit Rh, Tm oder Co dotierten Kristallen. Die Messungen werden im sichtbaren und nahen infraroten Spektralbereich durchgeführt.

Zunächst erfolgt die Bestimmung der Materialparameter Dichte, piezoelektrischer Koeffizient, Dielektrizitätskonstante, Brechungsindex und optischer Absorptionskoeffizient.

Die Größe der Zweistrahlkopplung wird durch Messungen von Sättigungswerten des holographischen Verstärkungsfaktors Γ quantifiziert. Dynamische Messungen geben einen Hinweis auf das vorliegende Ladungstransportmodell (Ein-Zentren, Zwei-Zentren, Drei-Valenzen Modell). Die Abhängigkeit von Γ von der Bestrahlung Q, dem Produkt aus einfallender Lichtintensität und Zeit, kann durch eine modifizierte gestreckte Exponentialfunktion $A \cdot (1 - \exp(-(Q/Q_0)^{\beta}))$ beschrieben werden. Der monoexponentielle Fall, der für $\beta = 1$ vorliegt, ist ein guter Hinweis auf ein Ein-Zentren Modell. In diesem Fall können Zeitkonstanten $\tau = Q_0/I$ für das Schreiben holographischer Gitter bestimmt werden. Der Fall $\beta < 1$ weist auf eine Beschreibung des Ladungstransports mit einem Mehr-Zentren oder Mehr-Valenzen Modell oder einen Hopping-Transport, jeweils mit einer Überlagerung mehrerer Zeitkonstanten, hin. Im Fall des monoexponentiellen Verhaltens kann die Photoleitfähigkeit durch eine intensitätsabhängige Messung der photorefraktiven Response-Zeit beim Löschen von Hologrammen holographisch bestimmt werden. Ein Ein-Zentren Modell liegt im Fall eines linearen Verhaltens von $\sigma(I)$ vor, andernfalls ist das Verhalten sublinear: $\sigma \propto I^x$ mit $x < 1$. Für die Ce-dotierten Proben werden hohe Werte von Γ von bis zu $140\,cm^{-1}$ erreicht. Die Cr-dotierten

Proben zeigen halb so große Werte bei einer um eine Größenordnung höheren Schreibgeschwindigkeit. Für die untersuchten Ce-dotierten Kristalle wird ein Zwei-Zentren oder Drei-Valenzen Modell bestätigt. Für das Cr-dotierte Material findet man, dass ein Ein-Zentren Modell eine gute Beschreibung für stärkere Konzentrationen als 0.6 mol% Cr liefert. Für schwächere Konzentrationen kann man ein Mehr-Zentren oder Mehr-Valenzen Modell annehmen. Diese Resultate werden durch konventionelle Messungen der Photoleitfähigkeit bestätigt.
Winkelabhängige Messungen von Γ gestatten die Bestimmung des Absolutwertes und des Vorzeichens aller nicht-verschwindender elektrooptischer Koeffizienten r_{13}, r_{33} und r_{42} sowie der effektiven Anzahldichte der photorefraktiven Zentren N_{eff}. Man erhält hohe Werte von N_{eff} von bis zu $2.2 \cdot 10^{17}\,cm^{-3}$. Die Größen r_{13} und r_{33}, die beide proportional zu dem Produkt $\epsilon_{33} \cdot P_3$ sind, steigen bei Raumtemperatur mit wachsender Ce-Konzentration an. Dies kann durch das Verhalten von $\epsilon_{33}(T)$ während des Relaxor-Phasenübergangs und das Absinken der Phasenübergangstemperatur bei einer steigenden Ce-Konzentration erklärt werden.
Es wird gezeigt, dass der Relaxor-Phasenübergang mittels temperaturabhängiger holographischer Messungen untersucht werden kann. Die so bestimmten Phasenübergangstemperaturen fallen sowohl bei einer steigenden Ce- als auch bei einer steigenden Cr-Konzentration linear ab. Diese Ergebnisse werden mit den Ergebnissen pyroelektrischer Messungen verglichen. Aus einer Überlagerung von $\Gamma(T)$ und $\epsilon_{33}(T)$ erhält man die Temperaturabhängigkeit von r_{33}.
Es wird gezeigt, dass holographische Messungen in Abhängigkeit von einem externen elektrischen Feld die holographische Detektion ferroelektrischer Eigenschaften gestattet. Bei Hysteresemessungen wird ein starker Pinning-Effekt beobachtet, der eine Erklärung des Relaxor-Verhaltens durch ein Random-Field Ising-Modell unterstützt.

Abstract

Holographic measurements are an ideal way to determine physical properties of electrooptic crystals. The relaxor ferroelectric Strontium-Barium-Niobate (SBN) doped with rare earth elements (e.g. Ce) or transition metals (e.g. Cr) is an excellent material for both basic research and applications because of its good optical quality, large two beam coupling gain, high speed for the formation of holographic gratings, low phase transition temperature and low coercive field.

This work gives a systematic overview of two beam coupling measurements and measurements of the diffraction efficiency on a series of Strontium-Barium-Niobate crystals doped with Ce and Cr as well as on individual crystals doped with Rh, Tm or Co. The measurements are carried out in the visible and near infrared spectral range.

First of all, material parameters as the density, the piecoelectric coefficient, the dielectric constant, the refractive indices and the optical absorption coefficient are determined.

The magnitude of the two beam coupling effect is quantified by measuring saturation values of the two beam coupling gain Γ. Dynamic measurements provide evidence about the applicable charge transport model (one-center model, two-center model, three valence model). The dependence of Γ on the illumination Q, i.e. the product of incident light intensity I and time, can be described by a modified stretched exponential function: $A \cdot (1 - \exp(-(Q/Q_0)^{\beta}))$. The monoexponential case, which is given for $\beta = 1$, is a good hint at a one-center model. In this case, time constants $\tau = Q_0/I$ for the grating formation can be determined. The case $\beta < 1$ indicates a description of the charge transport with more than one center or valence state or a hopping transport, each with a superposition of several time constants. In the case of a monoexponential behavior, the photoconductivity can be determined holographically by measurements of the photorefractive response time in dependence on the intensity during grating erasure. The presence of a one-center model requires a linear behavior of $\sigma(I)$, otherwise the behavior is sublinear: $\sigma \propto I^x$ with $x < 1$. For the Ce-doped samples, high values of Γ up to $140\,cm^{-1}$ are reached. The Cr-doped samples show values which are halve as large, whereas the speed for the grating formation is higher by an order of magnitude. For the examined Ce-doped crystals, the existence of a two-center or a three-valence model is confirmed. For the Cr-doped material it is found that

a one-center model offers a correct description for Cr-concentrations higher than about 0.6 mol%. For lower Cr-concentrations, a description by a model with more than one center or valence state can be applied. This result is in good agreement with conventional measurements of the photoconductivity.
By angle dependent measurements of Γ the absolute value and the sign of all non-vanishing linear electrooptic coefficients r_{13}, r_{33} and r_{42} as well as the effective density of photorefractive centers N_{eff} are determined. High values of N_{eff} up to $2.2 \cdot 10^{17}\,cm^{-3}$ are obtained. At room temperature, the quantities r_{13} and r_{33}, which are both proportional to the product $\epsilon_{33} \cdot P_3$ increase with increasing Ce-concentration. This is attributed to the behavior of $\epsilon_{33}(T)$ during the relaxor phase transition and the lowering of the phase transition temperature with increasing dopant concentration.
It is shown that the relaxor phase transition can be studied by temperature-dependent holographic measurements. The phase transition temperature, which is determined by these measurements, shows a linear decrease with both increasing Ce- and Cr-concentration. The results are compared with pyroelectric measurements. From the superposition of $\Gamma(T)$ and $\epsilon_{33}(T)$ the temperature dependence of r_{33} is obtained.
It is shown that holographic measurements in dependence on an external electric field allow the holographic detection of ferroelectric properties. A strong pinning effect of ferroelectric domains is observed in hysteresis measurements, supporting the random-field Ising-model as an explanation of the relaxor behavior.

Lebenslauf

Vor- und Zuname	Udo Bernd Dörfler
Geburtstag und -ort	30. Juli 1969 in Brühl
Staatsangehörigkeit	deutsch
Anschrift	Franz-von-Kesseler-Str. 9 50321 Brühl
Eltern	Adam Dörfler Hildegard Dörfler, geb. Koziolek
Familienstand	ledig
Grundschule	30. August 1976 - 04. August 1980, Gemeinschafts-Grundschule Melanchthon in Brühl
Gymnasium	04. August 1980 - 22. Mai 1989, Gymnasium Sudetenstraße in Hürth (heute Albert Schweitzer Gymnasium)
Erwerb der allgemeinen Hochschulreife	22. Mai 1989
Immatrikulation an der Universität zu Köln	01. Oktober 1989 im Fach Physik (Diplom)
Diplom-Vorprüfung	07. Juli 1993

Diplomarbeit	April 1996 - April 1997 am Institut für Kristallographie der Universität zu Köln bei Priv.-Doz. Dr. Theo Woike, Titel: "Die holographische Verstärkung in Strontium-Barium-Niobat dotiert mit Ce, Tm, Cr und Co"
Diplomprüfung	03.April 1997
Beginn der Dissertation	02. Mai 1997 am Institut für Kristallographie der Universität zu Köln bei Priv.-Doz. Dr. Theo Woike
wissenschaftliche Tätigkeit	wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Kristallographie vom 02. Mai 1997 bis 31. März 2001
	wissenschaftlicher Mitarbeiter am Institut für Mineralogie ab 01. April 2001
	DFG-Projekt "Elektrisches Fixieren von Volumenphasenhologrammen in dotierten $Sr_xBa_{1-x}Nb_2O_6$-Einkristallen" (Wo 618/2-1) vom 01. März 1998 bis 30. September 1999
	Förderung im Graduiertenkolleg "Azentrische Kristalle" (GRK 549/1-99) vom 01. Oktober 1999 bis 31. Juli 2002