

Alternative laseroptische Bauelemente für ultrakurze Pulse

Dissertation

Zur Erlangung des akademischen Grades

doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

Vorgelegt dem Rat der Physikalisch-Astronomischen Fakultät
der Friedrich-Schiller-Universität Jena

Dipl.-Phys. Ragnar Bödefeld

Geboren am 03.09.1971 in Schlema

Jena, den 13.06.2002

Gutachter:

1. Prof. R. Sauerbrey, Jena
2. Prof. M. Reif, Cottbus
3. Prof. K. Hehl, Jena

Tag der letzten Rigorosumsprüfung: 01.10.2002

Tag der öffentlichen Verteidigung: 05.11.2002

Inhaltsverzeichnis

1	Einführung	4
1.1	Motivation	4
2	Messung von Zerstörschwellen	6
2.1	Bestimmung der Zerstörschwelle	6
2.2	Bestimmung der Bestrahlungsfluenz	8
2.2.1	Schneidenmethode	9
2.2.2	Ableitung der Schwellfluenz aus dem Durchmesser der zerstör- ten Fläche	9
2.2.3	Charakterisierung des Fokus mittels CCD-Kamera	12
2.2.4	Vergleich der Methoden	13
2.3	Energiemessung und Pulsdauerbestimmung	14
2.3.1	Femtosekunden-Pulse	14
2.3.2	Nanosekunden-Pulse	14
2.4	Vergleichende Experimente	14
2.5	Messanordnungen	15
3	Zerstörschwellen an Metallen	17
3.1	Das Zwei-Temperatur-Modell	17
3.1.1	Die Wärmeleitungsgleichungen	17
3.1.2	Die Elektron-Phonon-Kopplungskonstante g	20
3.1.3	Ballistische Elektronen und deren Auswirkung auf die Film- dickenabhängigkeit der Schwellenfluenz	24
3.2	Absorption in Metallschichten	27
3.3	Messungen	29
3.3.1	Filmdickenabhängigkeit der Zerstörschwelle	29
3.3.2	Pulsdauerabhängigkeit der Zerstörschwelle	30
3.4	Bestimmung der TTM-Parameter	31
3.4.1	Gold	32
3.4.2	Silber, Kupfer und Aluminium	36

3.5	Morphologie	38
3.5.1	Beschreibung der verwendeten Proben	38
3.5.2	Beobachtungen zur Morphologie	39
4	Zerstörschwellen an Dielektrika und Hybriden	48
4.1	Wechselwirkung von Laserstrahlung mit dielektrischen Schichten . . .	48
4.1.1	Einführung	48
4.1.2	Kinetische Gleichung und Ratengleichung	50
4.2	Messungen an dielektrischen Schichten	52
4.3	Messungen an Hybriden	54
4.4	Multischusseexperimente	57
4.5	Referenzmessungen	58
4.5.1	Round-Robin-Experimente	58
4.5.2	Referenzproben	59
5	Gitter- und Kompressortheorie	62
5.1	Daten des Testsystems	62
5.2	CPA-Systeme und Gitterkompressoren	62
5.3	Das CPA-Konzept	63
5.3.1	Aufbau und Strahlenverlauf	63
5.4	Definition der Effizienz von Gittern und Kompressoren	64
5.5	Spektrale Übertragungsfunktion	66
5.6	Spektrales Abschneiden	67
5.6.1	Berechnung der Grenz-Wellenlängen	67
5.6.2	Die Übertragungsfunktion C_S	70
5.7	Effizienzbestimmung	71
5.8	Dispersion höherer Ordnung	73
5.8.1	Dispersion in Strecker und Kompressor	73
6	Aufbau eines dielektrischen Gitterkompressors	74
6.1	Messanordnung	74
6.1.1	Das Lasersystem	74
6.1.2	Die Kompressorgitter	74
6.1.3	Justage des Kompressors	78
6.2	Messungen	78
6.2.1	Autokorrelation	78
6.2.2	Spektrale Übertragungsfunktion	78
6.2.3	Effizienz in Abhängigkeit vom Separationswinkel	81
6.2.4	Zerstörschwellen	86

6.3	Vergleich von dielektrischen, metallischen und Hybridgittern	88
7	Zusammenfassung und Ausblick	91
A	RCWA-Formalismus	101
A.1	Ebene Schichten	101
A.2	Behandlung von RCWA-Schichten	103
A.2.1	Differenzialgleichungen	103
A.2.2	Matrixformulierung	104
A.2.3	Γ -, \mathcal{T} - und \mathcal{P} -Matrizen von RCWA-Slices	105
A.2.4	Matrixkopplung	106
A.2.5	Bemerkung	108
B	Phasendispersion in Strecker und Kompressor	109
B.1	Materialdispersion	111
B.2	Optimierung des Kompressors unter Berücksichtigung der Dispersions- terme höherer Ordnung	112
C	Kompressor-Justage nach Miesak	115

Kapitel 1

Einführung

1.1 Motivation

Die Entwicklung kompakter Lasersysteme, die ultrakurze Pulse unterhalb einer Picosekunde Dauer liefern, ermöglichte in den letzten Jahren vielfältige neue Einsatzgebiete in Medizin, Forschung und Materialbearbeitung. CPA-Systemen (*chirped pulse amplification* [1, 2]) ist es dabei gelungen, sich in Form von leistungsfähigen Tischgeräten auf breiter Front durchzusetzen, insbesondere in der Medizin, Materialbearbeitung und Forschung.

Fokussierte man alle von der Sonne auf der Erde eintreffende Strahlung auf einen Quadratzentimeter, so erreichte man gleichwohl noch nicht die Intensitäten, die mit modernen Lasersystemen realisierbar sind. Ein Hauptproblem bei der Weiterentwicklung solcher Systeme ist damit angedeutet. Sowohl an die Gitter des Kompressors als auch an Laserspiegel und andere optische Komponenten werden durch den wiederholten Beschuss bei höchsten Intensitäten strenge Anforderungen hinsichtlich ihrer Zerstörfestigkeit gestellt.

Zwei verschiedene Ansätze führen zu hochresistiven Laseroptiken im fs-Bereich, die beide jeweils Vor- und Nachteile aufweisen:

- **Edelmetall-Filme:** Die fs-Ablation an Metallen wurde in den letzten Jahren ausführlich untersucht [3–7]. Hinsichtlich vergleichender systematischer Betrachtungen zum Zerstörverhalten verschiedener, unter identischen Bedingungen hergestellter Edelmetallfilme besteht jedoch unter anderem auf dem Gebiet der Schichtdickenabhängigkeit der Zerstörschwelle Nachholebedarf. Insbesondere bei Anwendungen wie der Herstellung von Metallgittern, deren Metallschicht nicht beliebig dick gewählt werden kann, stellt sich die Frage, inwiefern alternative Materialien in die Domäne der goldbeschichteten Optiken eindringen könnten. Metallfilme zeichnen sich durch ihre von der Pulsdauer (unterhalb ei-

niger ps) unabhängige Zerstörschwelle aus, erreichen jedoch, bedingt durch ihre höhere Absorption, nicht die Effizienz dielektrischer Komponenten.

- **Dielektrische Multischicht-Systeme:** Im Kleinsignal-Bereich weisen dielektrische HR-Schichten nahezu keine Verluste durch Absorption auf. Der sich von Metallen wesentlich unterscheidende Ablationsmechanismus [6, 8–13] bedingt jedoch eine Pulsdauerabhängigkeit der Zerstörschwelle bis hinunter in den Ultrakurzpulsbereich [14], wodurch Metalle bei Pulsdauern unterhalb von ca. 50 fs vergleichbare oder sogar bessere Zerstörschwellen aufweisen.

Ein weiteres Kriterium für den Durchsatz optischer Bauelemente ist die Effizienz. Dielektrische Spiegel und Gitter lassen sich für einen beschränkten Spektralbereich auf nahezu 100% Effizienz optimieren. Metalle weisen dagegen im sichtbaren Bereich Verluste von mindestens einem Prozent auf. Handelt es sich um sehr breitbandige (ultrakurze) Laserpulse, können metallische Filme wegen der geringeren Auswirkung der Wellenlängenverstimmung auf die Effizienz durchaus einen höheren Durchsatz liefern als vergleichbare dielektrische Systeme.

Das Ziel dieser Arbeit ist es, möglichst allgemein zutreffende Aussagen über die im fs-Bereich einzusetzenden Laseroptiken zu treffen und anhand von ausgewählten Beispielen in Experiment und Theorie auf ihre Stichhaltigkeit hin zu überprüfen.

Kapitel 2

Messung von Zerstörschwellen

2.1 Bestimmung der Zerstörschwelle

Die Weiterentwicklung von Kurzpuls-Lasersystemen mit Pulsdauern im Femtosekundenbereich hinsichtlich ihrer erreichbaren Leistung ist im Wesentlichen durch die Strahlungsfestigkeit der verwendeten laseroptischen Bauelemente limitiert [6].

Die Charakterisierung des Zerstörverhaltens einer Probe hängt von einer großen Anzahl von Parametern ab, die sich hinsichtlich ihres Wirkens in zwei Gruppen einteilen lassen. Zum einen sind dies laserseitige Parameter; zu ihnen gehören:

- *Gesamtenergie* des Laserpulses
- *Fläche* des fokussierten Laserstrahls auf der Probenoberfläche
- *Fluenzverteilung* auf der Probenoberfläche (räumliches Strahlprofil)
- *Zentralwellenlänge* λ_c . In dieser Arbeit gilt, wenn nicht anders angegeben, $\lambda_c = 795 \text{ nm}$.
- *spektrale Bandbreite* des Pulses, gibt im bandbreitenbegrenzten Fall eine minimale FWHM-Pulsdauer vor.
- *FWHM-Pulsdauer* τ (full width at half maximum = Zeitintervall, in dem die Laserintensität höher ist als die Hälfte der Maximalintensität.)
- *Schussanzahl* N auf eine Stelle der Probe (N-on-1). Solange nicht anders angegeben, wurde in dieser Arbeit jede Probe mit 10.000 Schuss bestrahlt.
- *Repetitionsrate*: Die Repetitionsrate betrug für alle Zerstörschwellenmessungen in dieser Arbeit 1 kHz.

Die zweite Kategorie umfasst probenseitige Parameter:

- *Materialzusammensetzung* der Probe
- *Topographie* der Probe: Dicke und räumliche Abfolge der einzelnen Schichten
- *Probenpräparation*: Reinheit der verwendeten Materialien, Oberflächenrauigkeit und -verschmutzung, Volumenpackung.
- Aus den vorherigen drei Punkten lassen sich thermische, optische und mechanische Eigenschaften des Gesamtsystems schlussfolgern, z. B. Reflektivität und Effizienz, Wärmeleitfähigkeit und Wärmekapazität.
- *Zerstörungskriterien*: Es gilt, festzulegen, welche Art von Zerstörung gemessen werden soll. Laser-Ablation soll im Kontext dieser Arbeit als makroskopischer, laser-induzierter Materialabtrag von einer Probe verstanden werden. In vielen Fällen finden irreversible Modifikationen (*Inkubation*) der Probe bereits unterhalb der Ablations-Schwellfluenz statt, die thermische, optische und mechanische Eigenschaften der Probe verändern, ohne jedoch Material abzutragen. Die Ursachen dieser Veränderungen sind entweder chemischer Art (z. B. Oxydation) oder liegen in der Veränderung der Materialeigenschaften (Farbzentrenbildung, Kristallumordnung, mechanische Verspannung, Oberflächenrauigkeit).

Im Zusammenhang mit Mehrfachschuss-Experimenten lassen sich die Auswirkungen der Inkubation auf die Zerstörschwelle untersuchen. Latente Veränderungen der Probe haben im allgemeinen eine Verringerung der für Ablationsprozesse benötigten Fluenz zur Folge. Bedingt wird dies durch höhere Absorption des Laserlichts in der Probe oder Speicherung eines Teils der applizierten Laserenergie in Form von Wärme (dynamischer Prozess!) und mechanischer Verspannung.

Unter gewissen Voraussetzungen lässt sich die Zerstörfluenz durch Mehrfachschüsse steigern, wie in den Fällen der Verringerung der Oberflächenrauigkeit durch teilweises Aufschmelzen der Probe oder des Abdampfens von Oberflächenverunreinigungen. Derartige Prozesse werden unter dem Begriff der Laserkonditionierung zusammengefasst.

Nicht zuletzt stellt sich die Frage, wie das Einsetzen von irreversiblen Veränderungen zu erfassen ist. Es lässt sich dazu eine Vielzahl von Verfahren anführen, die nach ihrer Art in zwei Hauptklassen einzuteilen sind: Verfahren, die nach der Bestrahlung angewendet werden und solche, die während der Laserbestrahlung zum Einsatz kommen. Zur ersten Gruppe gehören Mikroskopieverfahren wie optische Mikroskopie, Elektronenmikroskopie (SEM), atomare Kraftmikroskope (AFM, STM) und Weißlichtinterferometrie (WLI), die chemische Analyse (Ramanstreuung, Strukturanalyse mittels chemischer Nachweisverfahren) sowie Elektronenstreuverfahren. Diesen Me-

thoden haftet der Nachteil an, dass die Dynamik der laserinduzierten Zerstörung mit ihnen nicht beobachtet werden kann.

Zu den *in situ*-Messverfahren gehören zeitaufgelöste Reflexions-/ Transmissions-/ Absorptionsmessungen (RTA-Analyse), photothermische Messverfahren (thermal lensing [15, 16], probe beam refraction [17, 18]) und zeitaufgelöste Massenspektroskopie. Mit ihrer Hilfe lassen sich bestimmte Materialparameter zu jedem gewünschten Zeitpunkt der Messung registrieren (z.B. Elektronentemperatur an Metalloberflächen), aus denen indirekt auf andere Parameter geschlossen werden kann (z.B. auf die Eindringtiefe hoch angeregter, nicht thermalisierter Elektronen unmittelbar nach dem Laserbeschuss [19]).

Allen Methoden ist gemeinsam, dass sie das Einsetzen irreversibler Schäden im Rahmen ihres Messregimes definieren, weshalb sich auf unterschiedliche Weise ermittelte Zerstörschwellen nur bedingt miteinander vergleichen lassen. Zum Beispiel finden sich in der Literatur sowohl Angaben über Zerstörschwellen, die auf optischer Mikroskopie beruhen [20], als auch solche, die auf Veränderungen der Reflektivität der Probe während der Bestrahlung basieren [21].

Die Industrie-Norm ISO 11254 legt Messmethoden und deren zulässige Abweichungen für das ns-Regime fest, während eine vergleichbare Norm für fs-Messungen noch nicht existiert. Im Laufe dieser Arbeit werden bis auf eine Ausnahme (Round-Robin-Experimente) die Zerstörfluenzen auf der Oberfläche der Probe angegeben. Diese unterscheidet sich durch den Faktor $\cos \theta_i$ von der Fluenz im Laserstrahl, wobei θ_i der Einfallswinkel ist.

2.2 Bestimmung der Bestrahlungsfluenz

Für eine anschauliche Beschreibung der Bestrahlungsfluenz gehen wir einführend, ohne Beachtung der Allgemeinheit, von einem Zylinder-Profil (*top hat*) mit konstanter Fluenz über den Strahlquerschnitt aus. Steigert man die Energie des Strahls bis zu derjenigen Energie E_{th} , bei der das Material erste Anzeichen von irreversiblen Veränderungen aufweist, ergibt sich die Laserinduzierte Zerstörschwelle (LIDT - *Laser Induced Damage Threshold*) aus

$$F_{th} = E_{th}/A, \quad (2.1)$$

wobei A die Fläche des Zylinder-Profiles ist. Die Genauigkeit bei der Bestimmung von Fläche und Schwellenenergie wirkt sich direkt auf die Zuverlässigkeit und die Reproduzierbarkeit der gemessenen Zerstörschwellen aus, sie ist jedoch kein ausschließliches Kriterium. In den meisten Fällen steht kein Zylinder-Profil zur Verfügung: die Fluenz hängt von den räumlichen Koordinaten x und y auf der Probenoberfläche ab. Von

großer Wichtigkeit ist daher die genaue Charakterisierung des Strahlprofils.

Auch der zeitliche Verlauf des Pulses darf nicht vernachlässigt werden, insbesondere für Messungen an dielektrischen Schichten, bei denen sich die Form der Flanken auf die Anzahl der Seed-Elektronen im Leitungsband auswirkt, welche wiederum die registrierte Zerstörfluenz wesentlich beeinflusst.

Im folgenden werden diejenigen drei Verfahren vorgestellt, die bei der Bestimmung der Fluenzverteilung auf der Probenoberfläche angewandt wurden.

2.2.1 Schneidenmethode

Bei diesem Verfahren werden die Abmessungen des Fokuses durch eine bewegliche Schneide ermittelt, die einen Teil des Strahls verdeckt [22] und dadurch die gemessene Energie nach der Schneide verändert. Voraussetzung für die Anwendbarkeit der Schneidenmethode ist, dass die Fluenzfunktion $F(x, y)$ separabel ist, d. h. $F(x, y)$ ist das Produkt zweier Faktoren, von denen der eine nur von x und der andere nur von y abhängt. Ist dies nicht der Fall, lässt sich das Strahlprofil nicht eindeutig bestimmen (vgl. Abb. 2.1). Für Gaußsche Strahlprofile ergibt sich ein Zusammenhang zwischen dem Strahlradius w_0 ($F(w_0) = 1/e^2 F_{max}$) und der Distanz d zwischen den Punkten, an denen die gemessene Energie 20% bzw. 80% der Gesamtenergie des Strahls erreicht [23]:

$$w_0 = 1.188 d. \quad (2.2)$$

Bei der Vermessung elliptisch-gaußförmiger Profile ist darauf zu achten, dass die Verschieberichtungen der Schneide mit den Hauptachsen der Ellipse übereinstimmen.

2.2.2 Ableitung der Schwellfluenz aus dem Durchmesser der zerstörten Fläche

Bei Lasern, die zur Bestimmung von Zerstörschwellen genutzt werden, hängt die Fluenz häufig von den räumlichen Koordinaten in der Ebene des Strahlquerschnitts ab. Materialmodifizierende Effekte wie Farbzentrenbildung und Ablation treten bei Erreichen einer bestimmten Energie zuerst in den Gebieten des Strahlprofils auf, die die höchste Fluenz aufweisen. Wird die Fluenz weiter erhöht, vergrößern sich diese Gebiete. Bei rein optischen Effekten werden Veränderungen registriert, wenn die Schwellenbedingung $F(x, y) > F_{th}$ erfüllt ist. Thermische und mechanische Effekte beeinflussen darüberhinaus Nachbargebiete, in denen die Schwellenbedingung nicht erfüllt ist.

Dies wird durch den Begriff der Einflusszone beschrieben, die idealisiert bestimmt wird, indem man eine Probe mit einem Zylinderprofil bei einer Fluenz, die größer als

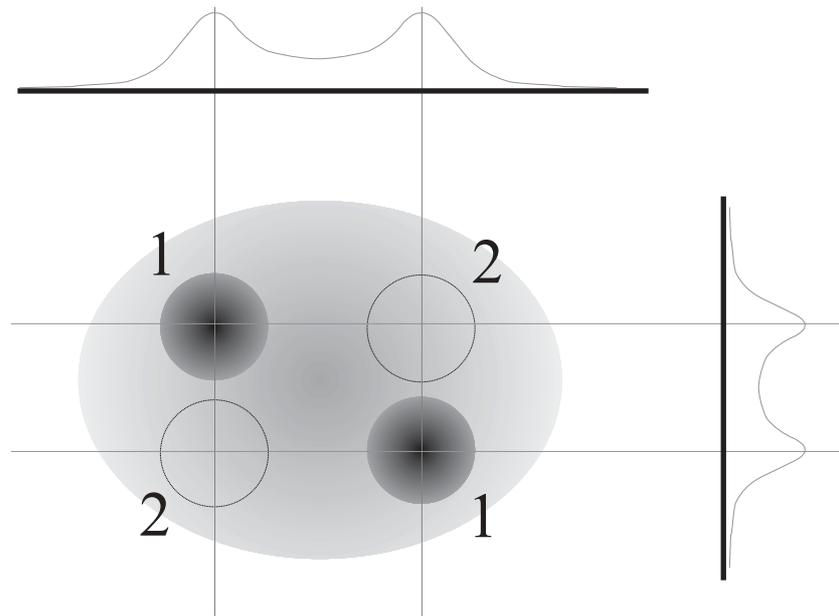


Abbildung 2.1: Existieren im Fokus lokale Intensitätsmaxima, die so verteilt sind, dass die Fluenz nicht separabel ist, dann ist das Strahlprofil nicht eindeutig aus zwei orthogonalen Abtastungen bestimmbar. Die im Bild eingetragenen und abgeleiteten Kurven ergeben sich jeweils, wenn sich die Punkte höchster Intensität entweder an der Positionen 1 oder 2 befinden.

die Schwellenfluenz ist, bestrahlt und die Abmessungen der modifizierten Zone mit denen des Profils vergleicht. Im Zusammenhang mit Schmelz- und Ablationsprozessen wird häufig von der Wärmeeinflusszone gesprochen, welche die Ausdehnung der Wärme front im Material nach Applikation des Laserpulses beschreibt [24].

Trägt man die Fläche der veränderten Gebiete über dem Logarithmus der Energie auf, lassen sich Rückschlüsse auf die Schwellenfluenz ziehen, vorausgesetzt, dass das Strahlprofil bekannt und die Einflusszone klein gegenüber den Abmessungen des modifizierten Gebietes ist [24]. Sowohl in Metallen als auch in Dielektrika umfasst die Wärmeeinflusszone bei fs-Bestrahlung deutlich weniger als 500 nm (siehe spätere Kapitel), was bei Strahldurchmessern von mehr als 10 μm vernachlässigt werden kann. Die Vergrößerung des modifizierten Gebietes mit steigender Energie kann mit Hilfe von Abbildung 2.3 veranschaulicht werden. Die Schwellenfluenz entspricht hier einer horizontalen Ebene, durch die das Profil-Gebirge je nach applizierter Energie mehr oder weniger hindurchstößt. Die oben beschriebene modifizierte Fläche erhält man aus dem Schnitt des Profils mit der Ebene.

Im Falle eines kreisförmigen räumlichen Gaussprofils ist die Fläche $A = \pi/4 D^2$ in

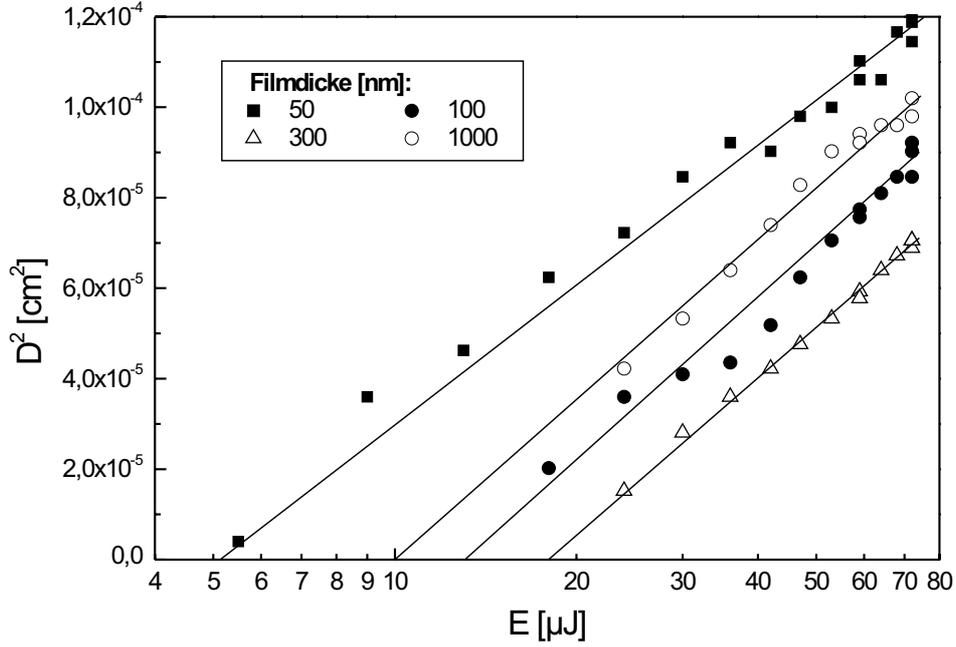


Abbildung 2.2: Bestimmung des Gaussschen Strahlradius w_0 (eigene Messung an Silberspiegeln verschiedener Filmdicke): Das Quadrat des Durchmessers wird über dem Logarithmus der Pulsenergie aufgetragen. Der Anstieg des linearen Fits bestimmt w_0 .

Abhängigkeit von der Maximalfluenz F_0 definiert durch [25]

$$A = \frac{\pi}{2} w_0^2 \ln \left(\frac{F_0}{F_{th}} \right), \quad (2.3)$$

wobei w_0 der gaussische Strahlradius bei $1/e^2 I_{max}$ und F_{th} die Schwellenfluenz der Materialmodifikation ist. F_0 ist bestimmt durch die Pulsenergie E_{Puls} zu [26]

$$F_0 = \frac{2E_{Puls}}{\pi w_0^2}. \quad (2.4)$$

Ist der Gauss-Strahl elliptisch, nimmt w_0 in den Hauptachsen den Maximal-/Minimalwert an. Ein elliptisches Profil kann für die Anwendung in den Gleichungen 2.3 und 2.4 in ein kreisförmiges überführt werden durch $w_0 = (w_0^{max} w_0^{min})^{1/2}$.

Den Wert von w_0 erhält man, indem $D^2 = ab$ (a, b sind die Hauptachsen der Ellipse) über dem Logarithmus der Pulsenergie aufgetragen wird (Abb. 2.2) [24]. Aus dem linearen Fit der Form

$$D^2 = A + B \log E \quad (2.5)$$

und $D^2 = 2w_0^2 \ln(E/E_{th})$ folgt:

$$w_0 = \sqrt{\frac{B}{2 \ln 10}} \quad (2.6)$$

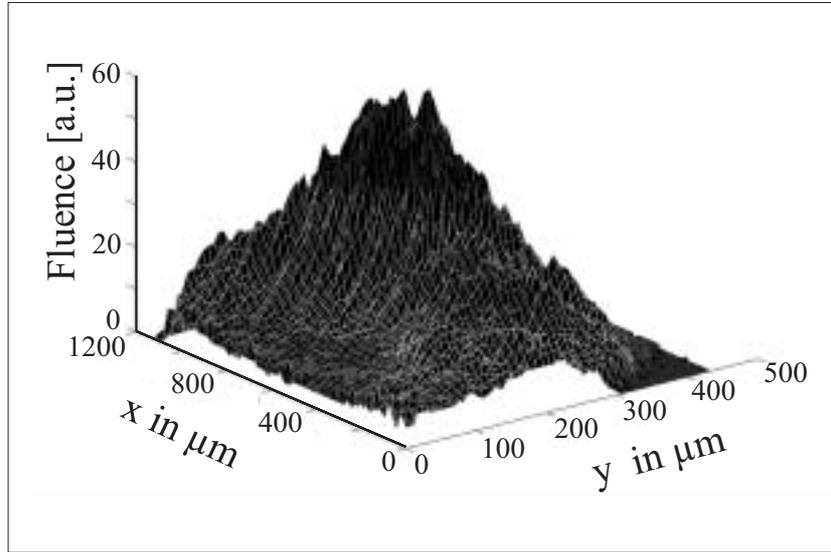


Abbildung 2.3: Im Streulicht aufgenommener Fokus am Jenaer kHz-Ti:Sa-Laser.

Der Umrechnungsfaktor $2 \ln 10$ ergibt sich dadurch, dass Diagramme wie Abbildung 2.2 in der Praxis in zehnerlogarithmischer Teilung vorliegen. Setzt man die Gleichungen 2.3-2.6 ineinander ein, ergibt sich für die Schwellenfluenz

$$F_{th} = \frac{2 \ln 10}{\pi B} \exp[-A/B]. \quad (2.7)$$

2.2.3 Charakterisierung des Fokus mittels CCD-Kamera

Eine weitere Möglichkeit der Charakterisierung des Fokus besteht in der Fotografie des von der Probenoberfläche stammenden Streulichts mittels CCD-Kamera (Sony XC-55, Progressive Scan). Abbildung 2.4 zeigt die Anordnung des Messaufbaus, in dem die Kamera gleichzeitig zur Überwachung der Proben hinsichtlich laserinduzierter Veränderungen genutzt wurde. Kalibriert wurde der Beamprofiler anhand von Mikrometermaßstäben, die in der Ebene der Probenoberfläche angebracht wurden.

In Abbildung 2.3 ist ein am Jenaer kHz-Ti:Sa-Lasersystem aufgenommener Fokus dargestellt. Im allgemeinen ließen sich die Foki durch elliptische Gauss-Profile annähern. Mit Hilfe von Gleichung 2.4 lassen sich dann die Maximalfluenzen ableiten. Mitunter wies der Fokus ein stark welliges Profil auf. In diesen Fällen wurde wie bei fotometrischen CCD-Messungen in der Astronomie vorgegangen [27].

Nach Abzug des Hintergrundes wird das Bild numerisch integriert und der resultierende Wert P_G mit der Pulsenergie E_{Puls} gleichgesetzt. Die Fluenzwerte des Pixels

$\{i,j\}$ ergeben sich aus

$$F_{\{i,j\}} = \frac{P_{\{i,j\}} E_{Puls}}{P_G d_i d_j}, \quad (2.8)$$

wobei die $P_{\{i,j\}}$ den Pixelwert von $\{i,j\}$ und (d_i, d_j) die Pixelabmessungen darstellen. Wenn der Fokus im Streulicht fotografiert wird, sind hochreflektive Schichten wegen ihres geringen Streukoeffizienten ungeeignet. Eine Erhöhung des gestreuten Anteils durch rauhere Oberflächen zieht aber gleichzeitig eine Verstärkung der Absorption in der Probe nach sich (vgl. Abschnitt 3.2), wodurch die Schwellfluenz sinkt.

Die verwendeten Streuproben waren metallisch und streuten einen Anteil von ca. 40% des einfallenden Lichts. Wie in Abschnitt 3.3.2 ausführlich erläutert wird, weisen metallische Filme im fs-Bereich von der Pulsdauer unabhängige Zerstörschwellen auf. Im Experiment erreichten die Streuproben eine maximale Belastbarkeit von ca. 0.14 J/cm^2 im Multischussbetrieb, während die Messungen bei Fluenzen von $(0.05-0.9) \text{ J/cm}^2$ durchgeführt wurden.

2.2.4 Vergleich der Methoden

Sowohl bei der Schneidenmethode als auch bei der Abbildung des Fokus-Streulichtes auf CCD wird der zerstörende Strahl direkt vermessen. Im fs-Regime werden im Zusammenhang mit laserinduzierter Zerstörung im fokussierten Strahl Intensitäten erreicht, die nichtlineare Effekte in der Luft zur Folge haben. Infolgedessen kommt es zu Veränderungen des Strahls (Selbstfokussierung, Selbstphasenmodulation, geringere Intensität durch Pulsverlängerung) und der im Strahl transportierten Energie (Absorption in Luftdurchbrüchen). Um die Verfälschung der ermittelten Fluenzwerte durch nichtlineare Effekte zu minimieren, sind folgende Punkte bei jeder Messung zu beachten:

- Die Position des Fokuses ist hinter die Probenoberfläche zu verlagern. Erreicht der Strahl seine minimale Ausdehnung in x- und y-Richtung an zwei verschiedenen Stellen (dieser Effekt tritt bei unterschiedlichen Divergenzen in den geometrischen Hauptachsen des Strahls auf), ist der vordere Fokus der maßgebende. Diese Vorgehensweise minimiert Verfälschungen des Strahlprofils, da die Maximalintensität an jedem Ort vor der Probe kleiner ist als auf der Probenoberfläche.
- Das Strahlprofil wird bei Fluenzen bzw. Intensitäten ermittelt, die möglichst im Bereich der Zerstörschwellen der Proben liegen.

Bestimmt man Zerstörschwellen bei kurzen Pulsen, ist die Ableitung der Schwellfluenz aus dem Durchmesser der zerstörten Fläche den anderen Methoden vorzuziehen, solange die Wärmeeinflusszone gegenüber den Fokusabmessungen vernachlässigbar

klein ist. Von Vorteil ist bei diesem Vorgehen, dass sich nichtlineare Effekte und Absorption in Luft in systematischen Abweichungen der $D^2/\ln E$ -Kurve vom linearen Anstieg zeigen. Für Pulsdauern im ns-Bereich kommen wegen der großen Wärmeeinflusszone nur Schneidenmethode und CCD-Photometrie in Frage. Bei kurzen Pulsen und hohen Fluenzen sind diese beiden Methoden jedoch nur im Einzelschussbetrieb einsetzbar.

Alle drei vorgestellten Methoden liefern für einen identischen Versuchsaufbau ähnliche Resultate mit einer Übereinstimmung von ca. $\pm 15\%$, wobei die Schneidenmethode mit Schwankungen von ca. 25% bei aufeinanderfolgenden Messungen vergleichsweise ungenaue Ergebnisse lieferte.

2.3 Energiemessung und Pulsdauerbestimmung

2.3.1 Femtosekunden-Pulse

Die Leistung des Jenaer kHz-Systems wurde mit einem Leistungsmessgerät der Firma Gentec bestimmt. Das Gerät gab die Durchschnittsleistung mit $\pm 1\%$ Genauigkeit an, woraus unter Berücksichtigung der Wiederholrate die applizierte Energie pro Schuss ermittelt wurde.

Die Pulsdauer wurde mit einem SHG-Autokorrelator (PulseScope, Firma APE, Berlin) ermittelt.

2.3.2 Nanosekunden-Pulse

Die Pulsdauern lassen sich hier mit Hilfe einer schnellen Photodiode bestimmen. Verwendet wurde am NdYAG-Laser eine FND 100-Photodiode (EG&G, jetzt Perkin Elmer) mit einer Impulsantwortzeit von ca. 200 ps. Bei der Energiemessung kam ein Energiemesskopf ED 500 (Gentec) zur Anwendung, dessen Sensibilität bei ca. 3 V/J lag.

2.4 Vergleichende Experimente

Experimentell ermittelte Zerstörschwellen sind gleichermaßen statistischen Schwankungen und systematischen Fehlern unterworfen.

Es bietet sich daher an, bei jeder Messung eine gewisse Anzahl von Referenzobjekten zu vermessen, um erstens den Umfang der Schwankungen abzuschätzen und zweitens die Ergebnisse des entsprechenden Messtages hinsichtlich der Ergebnisse der Referenzproben zu korrigieren. Systematische Fehler eines isolierten Messaufbaus lassen sich auf diese Weise jedoch nicht vollständig eliminieren.

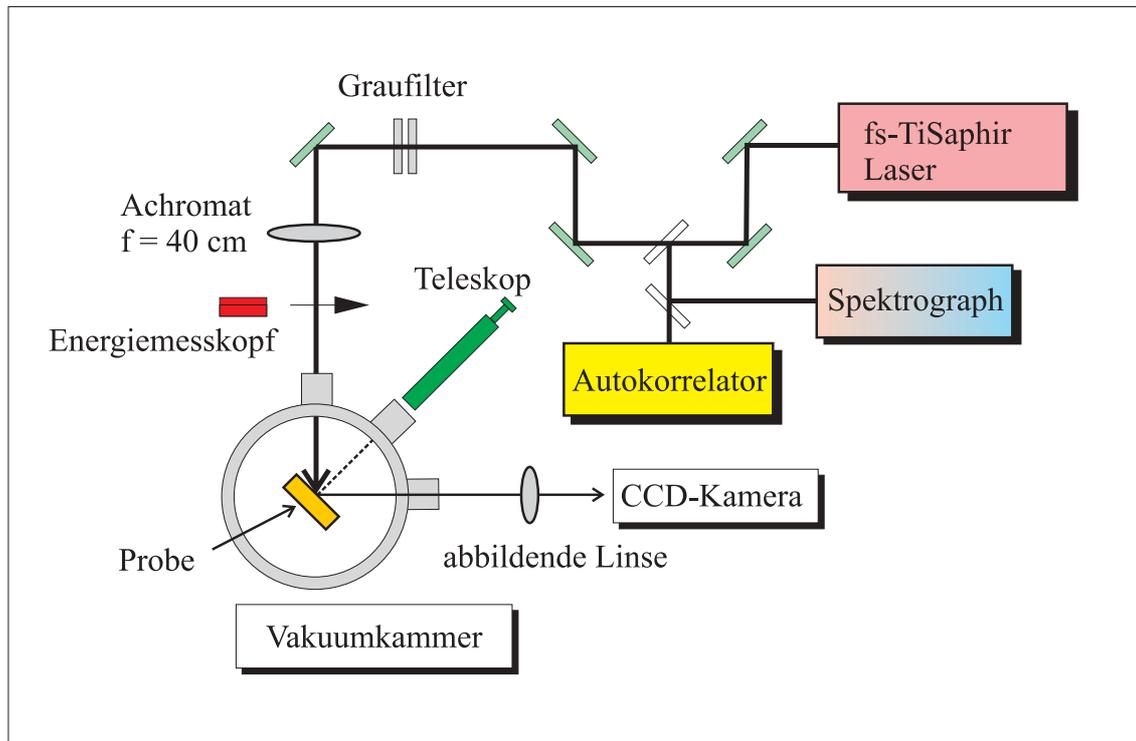


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung der Messanordnung zur Bestimmung der fs-Zerstörschwellen am kHz-System der FSU Jena.

Dazu bedarf es verschiedener Messungen identischer Proben oder von Proben der gleichen Produktionsreihe, die von unabhängigen Beobachtern an verschiedenen Lasersystemen durchgeführt werden sollten. Diese sogenannte *Round-Robin-Methode* der Messung identischer Proben an verschiedenen Zerstörmessplätzen liefert eine gute Abschätzung systematischer Fehler, die umso aussagekräftiger ausfällt, je mehr Institute an den Messungen beteiligt sind und je besser die zeitliche Abstimmung der Experimente ist (Probenalterung).

Ergebnisse sowohl von Referenzmessungen als auch Round-Robin-Experimenten sind in Abschnitt 4.5 zu finden.

2.5 Messanordnungen

Im Verlauf dieser Arbeit wurden Messungen an fünf verschiedenen Lasersystemen durchgeführt:

500 fs-Farbstofflasersystem FAMP, FSU Jena ([28, 29]):

- Zentralwellenlänge: 497 nm bzw. 532 nm

- Pulsdauer: (550-700) fs
- Energie: (200 – 250) μJ
- Wiederholfrequenz: (0.5-3) Hz
- Stabilität: $\pm 25\%$ rms

kHz-Ti:Sa-Lasersystem, FSU Jena ([30]):

- Zentralwellenlänge: 803 nm
- Pulsdauer: (50-600) fs, über Kompressorseparation regelbar
- Energie: (1.0 – 1.1) mJ
- Wiederholfrequenz: 1 kHz
- Stabilität: $\pm 3\%$ rms

kHz-Ti:Sa-Lasersystem, BAM Berlin:

- Zentralwellenlänge: 795 nm
- Pulsdauer: 120 fs
- Energie: 600 μJ
- Wiederholfrequenz: 1 kHz
- Stabilität: $\pm 3\%$ rms

Ti:Sa-Lasersystem, FSU Jena:

- Zentralwellenlänge: (790-800) nm
- Pulsdauer: 130 fs
- Energie: (250 – 400) μJ
- Wiederholfrequenz: 9.7 Hz oder 20 Hz
- Stabilität: $\pm 10\%$ rms

NdYAG-Lasersystem, FSU Jena:

- Zentralwellenlänge: 532 nm (SHG)
- Pulsdauer: 6 ns
- Energie: 15 mJ
- Wiederholfrequenz: Einzelschussbetrieb bis 10 Hz
- Stabilität: $\pm 5\%$ rms

Der weitaus größte Teil der Ergebnisse stammt vom Jenaer kHz-Ti:Saphir-Laser, Abbildung 2.4 zeigt den Messaufbau an diesem System. Fast alle Messungen wurden in Luft durchgeführt. Während schadensmorphologischer Untersuchungen wurde im Vakuum und in reinen Gasatmosphären gemessen. Dies wird an den entsprechenden Stellen der Arbeit explizit erwähnt.

Kapitel 3

Zerstörschwellen an Metallen

Das Anliegen dieses Kapitels ist es, die Mechanismen der fs-Ablation von Metallen ausgehend von Zerstörschwellenmessungen zu klären, auf die Morphologie der laserinduzierten Zerstörung einzugehen und verschiedene Materialien hinsichtlich ihrer Eignung für laseroptische Bauelemente zu prüfen.

Ausgehend von den optischen und thermischen Eigenschaften der Proben-Metalle werden mittels RTA-Analyse (Reflexion, Transmission und Absorption) und TTM (Zwei-Temperatur-Modell) die zu erwartenden Zerstörschwellen von Metallfilmen auf dielektrischem Substrat vorhergesagt und mit den Messungen verglichen. Hinsichtlich der Morphologie laserinduzierter Zerstörung wird versucht, verschiedene beobachtete Phänomene durch Einbeziehung physikalischer Prozesse zu erklären.

3.1 Das Zwei-Temperatur-Modell

3.1.1 Die Wärmeleitungsgleichungen

Die Temperaturentwicklung in metallischen Schichten während der ersten zehn ps wird durch das Zwei-Temperatur-Modell (nachfolgend TTM, von *Two Temperature Model*) beschrieben. Erste Andeutungen zu diesem Thema finden sich in [31], in [3] wurde das TTM erstmalig mathematisch formuliert. Vor allem während des letzten Jahrzehnts gab es umfangreiche Studien auf diesem Gebiet [4, 5, 7, 19, 32, 33], deren Ergebnis eine erfolgreiche Beschreibung der thermischen Vorgänge in Metallen bei Anregung unterhalb der Plasmaschwelle, im Zeitbereich von laserinduzierter Anregung bis zur Einkopplung der Energie in das Gitter, ist.

Das TTM unterscheidet Elektronengas und Phononenbad als zwei unterschiedliche Wärmebäder mit verschiedenen Wärmeleitungs- und Wärmekapazitätskoeffizienten, von denen sich jedes für sich im lokalen thermischen Gleichgewicht befindet und der jeweiligen Wärmeleitungsgleichung genügt. Das einfallende Laserlicht regt fast

ausschließlich das Elektronengas an, der vorherrschende Absorptionsmechanismus ist die inverse Bremsstrahlung. In der Wärmeleitungsgleichung für das Elektronengas taucht die aufgenommene Energie in Form eines Quellterms $P(z, t)$ [19]

$$P(z, t) = \frac{AI(z, t)e^{-z/l_s}}{l_s(1 - e^{-d/l_s})}, \quad (3.1)$$

auf, wobei A der absorbierte Anteil der einfallenden Energie für Schichten der Dicke d , l_s die optische Skintiefe ($l_s = \alpha^{-1}$, α - Absorptionskoeffizient) und $I(z, t)$ die Intensität des Pump-Pulses ist. Die absorbierte Energie lässt sich auch über den Anfangswert [34] von $T_e(z)$ definieren:

$$T_e(z, 0) = T_L(0) + \sqrt{\frac{4F_{abs}e^{-z/l_s}}{\pi^2 n_e k_B^2 l_s (1 - e^{-d/l_s})}}. \quad (3.2)$$

F_{abs} ist hier die absorbierte Fluenz, n_e die Elektronendichte und k_B die Boltzmannkonstante. Gibt man eine Anfangsverteilung vor, ist darauf zu achten, dass die Pulsdauer wesentlich kleiner sein muss als die Zeitskala der Diffusion innerhalb des Elektronengases. Dies wurde numerisch für die im Experiment verwendeten Pulsdauern geprüft und bestätigt.

Die hier gewählte eindimensionale Darstellung ist hinreichend genau, da der Durchmesser der bestrahlten Fläche in allen Fällen um mindestens den Faktor 100 größer als die vertikale Eindringtiefe und die horizontale Ausbreitung der deponierten Energie ist.

Durch die Elektron-Phonon-Relaxation wird Energie vom Elektronengas in das Gitter übertragen, die beiden Wärmeleitungsgleichungen werden dadurch gekoppelt: Der Verlustterm in der Wärmeleitungsgleichung des Elektronengases ist Quellterm in der des Gitters. Die Geschwindigkeit der Relaxation findet Ausdruck im Elektron-Phonon-Kopplungskoeffizienten g , der bei hohen Elektronengastemperaturen und für Gittertemperaturen nahe der Debyetemperatur zu einer materialabhängigen Konstanten wird [19]. Das TTM-Gleichungssystem nimmt dann folgende Form an:

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - g \cdot (T_e - T_L) + P(z, t), \quad (3.3)$$

$$C_L(T_L) \frac{\partial T_L}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa_L \frac{\partial T_L}{\partial z} \right) + g \cdot (T_e - T_L). \quad (3.4)$$

Der Index e beschreibt die Eigenschaften des Elektronengases, L die des Gitters. Die C_i sind die Wärmekapazitäten, die κ_i sind die Wärmeleitfähigkeiten.

C_e kann nach der Theorie der Fermi-Flüssigkeiten wie folgt angenähert werden [35,36]:

$$C_e(T_e) = \frac{\pi^2 n_e k_B^2 T_e}{2E_F} \left[1 + \mathcal{O}(T_e^2) \right], \quad (3.5)$$

E_F ist die Fermienergie des behandelten Materials und $\mathcal{O}(T_e^2)$ ist ein quadratischer Restterm. Die Wärmekapazität des Gitters C_L ist nach dem Debye-Modell gegeben durch [37]

$$C_L(T_L) = 9Nk_B \left(\frac{T_L}{T_D} \right)^3 \int_0^{T_D/T_L} \frac{x^4 e^x}{(e^x - 1)^2} dx, \quad (3.6)$$

N ist die Anzahl der Atome in der Probe und T_D die Debye-Temperatur [37],

$$T_D = \frac{\hbar v_s}{k_B} \left(\frac{6\pi^2 N}{V} \right)^{1/3}, \quad (3.7)$$

wobei v_s die Schallgeschwindigkeit im Medium und V das Volumen der Probe ist. Für $T_L \gg T_D$ hängt C_L nicht mehr von der Temperatur ab, der asymptotische Wert für C_L beträgt dann $24.94 J/(Mol K)$ (Dulong-Petitsches Gesetz).

Die Wärmeleitfähigkeit von Metallen setzt sich aus den Beiträgen von Elektronengas und Phononen zusammen. Die Wärmeleitfähigkeit des Phononenbads lässt sich mit folgender Näherung abschätzen [37]:

$$\kappa_L = \frac{1}{3} C_L v_s l_{pp}, \quad (3.8)$$

Hier ist l_{pp} die mittlere freie Weglänge zwischen den Phonon-Phonon-Stößen. Die Wärmeleitfähigkeit des Elektronengases beträgt [19, 37]

$$\kappa_e = \frac{1}{3} C_e v_F l_{ee} = \frac{2C_e E_F}{3m\nu} = \frac{\pi^2 n_e k_B^2 T_e \tau_{ee}}{3m}, \quad (3.9)$$

wobei v_F die Fermi-Geschwindigkeit, ν die mittlere Stoßfrequenz und τ_{ee} die mittlere Stoßzeit der Elektron-Elektron-Streuung ist. Im Falle eines reinen Metalls überwiegt der Beitrag der Elektronen den der Phononen für alle Temperaturen bei weitem, da das Verhältnis von κ_e zu κ_L ca. 10^2 bis 10^3 beträgt.

Der Beitrag des Gitters zur Wärmeleitung κ_L kann vernachlässigt werden. Gleichung 3.3 vereinfacht sich somit zu

$$C_e(T_e) \frac{\partial T_e}{\partial t} = \frac{\partial}{\partial z} \left(\kappa_e \frac{\partial T_e}{\partial z} \right) - g \cdot (T_e - T_L) + P(z, t), \quad (3.10)$$

$$C_L(T_L) \frac{\partial T_L}{\partial t} = g \cdot (T_e - T_L). \quad (3.11)$$

Das Gleichungssystem 3.10-3.11 wurde mittels eines Programmpaketes (Matlab-Addon FEMLAB, Comsol-group) numerisch gelöst. Die Randbedingungen wurden wie in [19] so gewählt, dass kein Energiefluss aus der Probe heraus stattfand. Es muss jedoch beachtet werden, dass diese Voraussetzung nur im oben bereits erwähnten Zeitrahmen des TTM gültig ist. Betrachtet man die Temperaturentwicklung während einer Pulsfolge, muss nach thermischem Gleichgewicht zwischen Elektronengas und Gitter mit der einheitlichen Temperatur T die dreidimensionale Wärmeleitungsgleichung mit Verlusten P_L

$$C(T) \frac{\partial T}{\partial t} = \nabla(\kappa_e \nabla T) - P_L(T) \quad (3.12)$$

bis zum Zeitpunkt des nächsten Laserpulses gelöst werden. Die Anfangsbedingungen erhält man aus dem Ergebnis des TTM nach Einstellung des thermischen Gleichgewichts, wobei die laterale Ausbreitung der Wärme während der Geltungsdauer des TTM vernachlässigbar ist. Setzt man einen zylinderförmigen Laserpuls voraus, kann eine Anfangsverteilung mit den Abmessungen des Laserspots, die nur von z abhängig ist, angenommen werden. $P_L(T)$ wurde in den Berechnungen zur Schussanzahl-Abhängigkeit der Zerstörfluenz durch einen dem Verlust durch Elektron-Phonon-Kopplung ähnlichen linearen Term $P_L(T - T_0)$ angenähert, wobei T_0 die Temperatur des Substrates und des umgebenden Mediums (Luft) ist. In jedem untersuchten Material war die in der Probe nach Verlusten verbliebene Energie nach 1 ms annähernd gleichmäßig im Probenvolumen (\varnothing 25.4mm, Dicke: 6.4mm) verteilt.

Die irreversible Veränderung der Probenoberfläche geht in zwei Stufen vor sich:

1. **Aufschmelzen:** Nach Erreichen der Schmelztemperatur wird die Schmelzenthalpie durch Abkühlen des heißen Elektronengas oder der benachbarten Regionen aufgebracht. Nach der Thermalisierung der beiden Wärmebäder kühlt sich die geschmolzene Region ab und rekristallisiert bei Unterschreiten der Schmelztemperatur. Sämtliche hier vorgestellte TTM-Rechnungen beziehen sich auf das Erreichen dieser Schwelle.
2. **Verdampfen:** Nachdem die gesamte Oberflächenregion geschmolzen ist, wird die Probe bis zur Siedetemperatur erhitzt. Einzelne Atome dampfen bereits ab, nachdem nur ein Bruchteil der spezifischen Siedenthalpie im Volumen entzogen wurde und hinterlassen sichtbaren Ablationsschaden.

3.1.2 Die Elektron-Phonon-Kopplungskonstante g

Wie im vorigen Abschnitt gezeigt wurde, wirkt sich außer dem Wärmeleitkoeffizienten des Elektronengases κ_e auch die Elektron-Phonon-Kopplung g auf die Temperaturverteilung in der Probe nach Erreichen des thermischen Gleichgewichts zwischen Elektronengas und Gitter aus. Im Gleichungssystem 3.10-3.11 sind dies die beiden einzigen Größen, die die Dynamik des Systems bestimmen.

Die Temperatur an der Probenoberfläche zum Zeitpunkt des Erreichens des Gleichgewichts wird von den beiden genannten Koeffizienten in gegensätzlicher Weise beeinflusst. Eine Steigerung der Wärmediffusivität im Elektronengas bewirkt einen schnelleren Abtransport der in der Skinschicht deponierten Energie ins Probeninnere und damit eine geringere Oberflächentemperatur (höhere Zerstörschwelle) zum Zeitpunkt des Gleichgewichts, während eine erhöhte Einkopplungsrate der Verteilung der deponierten Energie ins Probeninnere entgegenwirkt.

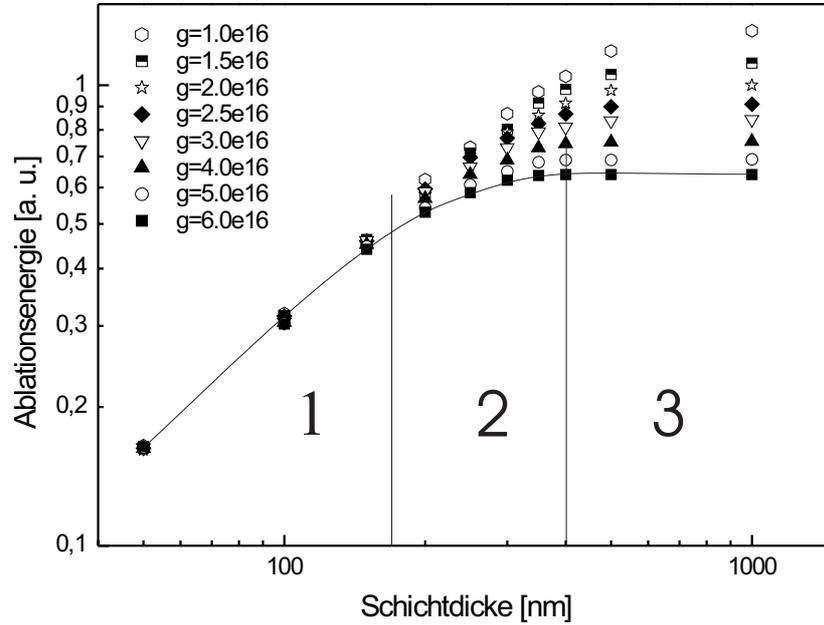


Abbildung 3.1: Mittels TTM wurde die Oberflächentemperatur von Goldschichten verschiedener Dicken nach fs-Laserbestrahlung unter Variation der Elektron-Phonon-Kopplung g ermittelt. Unter Berücksichtigung der Schmelzenthalpie wurden dann die Verdampfungsenergien ermittelt; diese wurden auf den Wert für $g = 2.0 \cdot 10^{16} \text{ W/m}^3 \text{ K}$ und dicke Schichten ($d > 1000 \text{ nm}$) normiert.

Abbildung 3.1 zeigt eine vergleichende Beispielrechnung anhand von idealen Goldschichten. Die verwendeten thermischen Parameter sind in Tabelle 3.1 in Abschnitt 3.3 aufgelistet. Die Elektron-Phonon-Kopplungskonstante g wurde im Bereich von $1 \cdot 10^{16} \text{ W/m}^3 \text{ K}$ bis $6 \cdot 10^{16} \text{ W/m}^3 \text{ K}$ variiert, die Literaturwerte schwanken zwischen $1.8 \cdot 10^{16} \text{ W/m}^3 \text{ K}$ und $3 \cdot 10^{16} \text{ W/m}^3 \text{ K}$ (vgl. dazu Abschnitt 3.4.1).

Es wird deutlich, dass alle Kurven einen ähnlichen Verlauf haben. Eine steigende Wärmeleitfähigkeit bei konstantem g führt dazu, dass die Grenzsichtdicke d_G , ab der die Zerstörfluenz nicht mehr von d abhängt, bei höheren Werten erreicht wird. Eine genaue Analyse der Grenzsichtdicken in Abhängigkeit von den Materialparametern findet man in Abschnitt 3.4.2. Erhöht man den Wert von g bzw. verringert κ_e , sinkt d_G .

Die Abbildung 3.1 lässt sich in drei Abschnitte unterteilen:

1. Linearer Anstieg: Die Temperatur nach Einkopplung der Energie ins Elektrogenas und darauf folgender Thermalisierung der beiden Wärmebäder ($t = t_{eph}$)

- hängt nicht von z ab, die aufgenommene Energie steigt linear mit dem durchdrungenen Volumen an.
2. Asymptotischer Anstieg: Die Temperatur hängt zum Zeitpunkt t_{eph} von z ab. Die Temperaturen an den Übergängen Probe-Substrat und Probe-Superstrat hängen jeweils von der Filmdicke ab.
 3. Konstante Zerstörschwelle: Die Temperaturen im gesamten Probenvolumen sind nicht mehr von der Filmdicke abhängig, da die Wärmefront die Rückseite der Probe nicht erreicht und das durchdrungene Volumen konstant bleibt.

Da sich die Zerstörschwelle mit wachsender Filmdicke asymptotisch der maximalen Fluenz F_{th}^{max} (bei $d > d_G$) nähert, empfiehlt sich die Festlegung von Referenzpunkten auf den Kurven, bei denen ein bestimmter Anteil der Maximalfluenz erreicht wird. In dieser Arbeit wurden Referenzpunkte bei $0.5 \cdot F_{th}^{max}$, $0.75 \cdot F_{th}^{max}$ und $0.9 \cdot F_{th}^{max}$ gewählt. Für die Materialien Gold, Silber, Kupfer und Aluminium sowie verschiedene g wurden Kurvenverläufe analog zu Abbildung 3.1 numerisch berechnet und die Referenzpunkte $d_{0.5}$, $d_{0.75}$ und $d_{0.9}$ bestimmt. Für jedes Material wurde dann g ermittelt, indem die Referenzpunkte aus den experimentellen Kurven in die Fit-Gleichungen der numerisch ermittelten Referenzkurven in Abbildung 3.2 eingesetzt und nach g umgestellt wurden. Abbildung 3.2 veranschaulicht dieses Vorgehen. Aus den Messkurven (Abb. 3.6 und 3.7 in Abschnitt 3.3) werden die Referenzpunkte d_i bestimmt, an deren Ort F_{th} auf das i -fache des Maximalwertes (dieser entspricht dem Plateau für dicke Schichten mit $d > d_G$) abgefallen ist, ebenso geschieht das für alle theoretischen Kurven entsprechend Abbildung 3.1. Die Theorie-Werte der Referenzpunkte werden über g aufgetragen. Der gemessene Referenzpunkt bestimmt dann denjenigen Wert von g , für den die Maximalfluenz sowie der Wert d_i aus Theorie und Experiment übereinstimmen.

Der beliebigen Erhöhung der Genauigkeit der Bestimmung von g durch die Wahl einer größeren Anzahl von Referenzpunkten und damit verbundener Statistik setzt die gleichzeitige Abhängigkeit des Kurvenverlaufs von der thermischen Diffusion im Elektronengas eine Grenze, die stark von der Beschaffenheit der Probe abhängt. Die Zuverlässigkeit der auf diese Art ermittelten g ist für alle drei Referenzpunkte vergleichbar, nimmt jedoch mit sinkender Referenzschwelle ab. Die $d_{0.9}$ -Kurve zeigt im Vergleich mit $d_{0.5}$ einen steileren Abfall mit wachsendem g , dies wird durch das größere Fehlerintervall bei der Bestimmung der Referenzpunkte aus dem Experiment nicht ganz ausgeglichen. In Abschnitt 3.4 wird auf die erreichbare Genauigkeit näher eingegangen.

Wie in [19] ausführlich besprochen, kann die Verteilung der absorbierten Energie im Probenvolumen in verschiedene Phasen unterteilt werden:

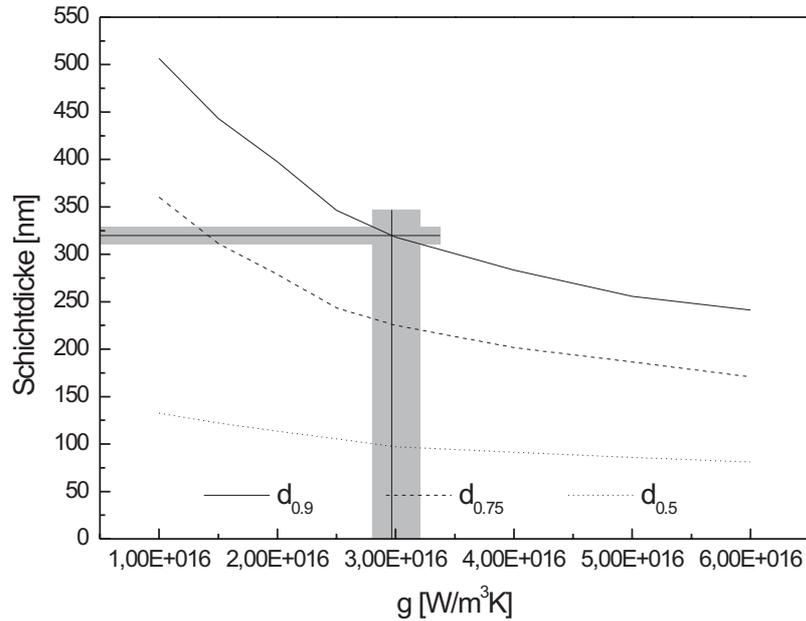


Abbildung 3.2: Bestimmung von g aus den numerisch ermittelten Werten der Referenzpunkte bei Variation von g für Gold, hier für den Referenzpunkt $d_{0,9}$. Der experimentell ermittelte Referenzwert (321 nm) wird bei einem g von $2.95 \cdot 10^{16} \text{ W/m}^3\text{K}$ erreicht. Der Fehlerbereich (hier $\pm 10 \text{ nm}$ in der Bestimmung von $d_{0,9}$) wird durch den grauen Balken bestimmt.

1. Zum Zeitpunkt $t=0$ ist die Energieverteilung innerhalb des Elektronengases durch die mit wachsender Tiefe exponentiell abfallende Verteilung der Intensität des Laserpulses gegeben. Die Eindringtiefe entspricht der optischen Skintiefe.
2. Während der Thermalisierung der Elektronen geschieht ein Energietransport durch Elektronen im Nicht-Gleichgewicht mit der Fermi-Geschwindigkeit v_F . Die Eindringtiefe der Energie wächst linear mit der vergangenen Zeit. Mit einsetzender Thermalisierung des Elektronengases verliert dieser Prozess an Bedeutung. Die mittlere Thermalisierungsdauer beträgt [19]

$$\tau_{th,e^-} = \frac{1.86 \cdot 10^7 \text{ K}^2}{K_{ee} T_{e,max} \text{ eV}^2}, \quad (3.13)$$

wobei K_{ee} die charakteristische Elektron-Elektron-Streuungskonstante (Gold: $0.06 \text{ fs}^{-1} \text{ eV}^{-2}$) und $T_{e,max}$ die maximale Elektronentemperatur nach der Thermalisierung ist. Typische Werte für Gold sind $\tau_{th,e^-}(1000\text{K}) = 300 \text{ fs}$ und $\tau_{th,e^-}(5000\text{K}) = 12 \text{ fs}$.

3. Nach der Thermalisierung der Elektronen basiert die Energieverteilung inner-

halb des Elektronengases auf thermischer Diffusion mit der Diffusivität $D = \kappa_e/C_e$, die Eindringtiefe wächst mit \sqrt{t} .

4. Mit Erreichen des thermischen Gleichgewichts zwischen Elektronengas und Gitter zum Zeitpunkt t_{eph} wird die Diffusion innerhalb des Elektronengases durch Elektron-Phonon-Kopplung behindert. Die Verbreitungsgeschwindigkeit der Energie ist durch die Diffusivität $D = \kappa_e/(C_e + C_L)$ charakterisiert und deutlich geringer als für alle vorangegangenen Zeitpunkte. Abhängig von der Dauer des Ablationsprozesses kann der Anteil der Wärmeausbreitung nach t_{eph} dennoch einen gewichtigen Einfluss auf die letztlich gemessene Schwellfluenz haben.

Der Energietransport durch Nicht-Gleichgewichtselektronen (Punkt 2) bedarf besonderer Betrachtung, die im nächsten Abschnitt durchgeführt wird.

3.1.3 Ballistische Elektronen und deren Auswirkung auf die Filmdickenabhängigkeit der Schwellfluenz

Ein zusätzlicher Effekt erschwert die Bestimmung von g mittels TTM (siehe vorheriger Abschnitt) und führt im Allgemeinen zur Abhängigkeit des ermittelten g -Wertes von der Wahl des Referenzpunktes. Die Ursache dafür ist der Energietransport durch nichtthermalisierte Elektronen.

Das Vordringen der hochangeregten, ballistischen Elektronen in die Probe während der Phase der Thermalisierung kann eine wichtige Rolle bei der Verteilung der Energie in der Probe spielen, ist aber im TTM nicht implizit berücksichtigt, da dieses das Elektronengas im Gleichgewicht zur Grundlage hat. Bei hohen Energiedichten nahe der Zerstörschwelle erreicht die Elektronentemperatur nach der Thermalisierung Werte von mehreren 10^4 K, das TTM ist also bereits nach wenigen Femtosekunden anwendbar. Für Kupfer beträgt die berechnete Lebensdauer (Fermi-Flüssigkeit mit Abschirmung nach Thomas-Fermi) der heißen Elektronen ein Sechstel ($E=1$ eV) bis zwei Drittel ($E<2.5$ eV) der experimentell bestimmten Werte [38].

Die Berücksichtigung des Energietransports durch ballistische Elektronen wird durch eine *Verbreiterung der Skintiefe* gewährleistet. Unter der Annahme, dass ballistische Elektronen aus der Skinschicht in die Probe vordringen und eine exponentiell abfallende Verteilung der Energiedichte mit einer mittleren freien Weglänge l_b verursachen [19], kommt es nach Faltung der optischen mit der normierten, ballistischen Energieverteilung

$$f_{ball}(z) = \sqrt{\frac{F_0 e^{-z/l_b}}{l_s(1 - e^{d/l_b})}}. \quad (3.14)$$

zu einer exponentiell abfallenden Umverteilung der Energiedichte mit einer neuen "Skintiefe" von $l'_s \approx l_s + l_b$.

Darüberhinaus sind, besonders für dünne Schichten, die ballistischen Elektronen zu berücksichtigen, die am Übergang Probe/Substrat reflektiert werden. Die Anfangsverteilung $Te(z, 0)$ aus Gleichung 3.2 verändert sich dadurch zu

$$T_e(z, 0) = T_L(0) + \sqrt{\frac{2F_{abs}E_F(e^{\frac{-z}{l_s+l_b}} + e^{\frac{z-2d}{l_s+l_b}})}{\pi^2 n_e k_B^2 l_s (1 - e^{\frac{-2d}{l_s+l_b}})}}. \quad (3.15)$$

Streng genommen ist Gleichung 3.15 nur dann korrekt, wenn ballistische Elektronen sich nur in eine Richtung (parallel zur z -Achse) ausbreiteten. Die inverse Bremsstrahlung als Energieübertragungsmechanismus basiert jedoch auf dem Energieverlust in der Lichtwelle durch statistische Verteilung der Oszillationsenergie der Elektronen im externen Feld in das Elektronengas, die durch Elektron-Ion-Stöße verursacht wird.

Daraus folgt eine nahezu isotrope Richtungsverteilung der ballistischen Elektronen [39]. Somit verteilen sich die ballistischen Elektronen in das gesamte Halbvolumen der Probe. Die nach außerhalb der Probe gerichteten Elektronen werden an der Oberfläche spiegelnd reflektiert.

Für die Verteilung der Energie durch ballistische Elektronen im 1D-Modell des TTM ist nur die z -Komponente der Bewegungsrichtung von Bedeutung, da die bestrahlte Fläche nach wie vor weitaus größer als die erweiterte Einflusszone ist, und ein sich entlang der Oberfläche bewegendes ballistisches Elektron in diesem Sinne nicht zum Energietransport beiträgt. Die wirksame mittlere freie Weglänge $\hat{l}_b = a_z \cdot l_b$ wird verkürzt um den Faktor a_z

$$a_z = \frac{1}{2\pi} \int_0^{2\pi} \int_0^\pi \cos\theta \sin\theta \, d\theta \, d\phi = 0.5. \quad (3.16)$$

Experimente zur Bestimmung der mittleren freien Weglänge ballistischer Elektronen [7, 40, 41] liefern, abhängig von der verwendeten Methode, entweder l_b oder \hat{l}_b . Im Falle von Versuchen, bei denen die Vorderseite der Probe gepumpt und an der Rückseite gemessen wird, erhält man z. B. den perspektivisch nicht verkürzten Wert, da sie das Einsetzen der auf dem Anstieg der Elektronentemperatur basierenden Reflektivitätsänderung an der Rückseite der Probe zum Maßstab machen. Das Einsetzen des Signals wird in dieser Messanordnung durch ballistische Elektronen mit einem geringen Propagationswinkel gegenüber der Oberflächennormalen ausgelöst.

Der Energietransport durch ballistische Elektronen hat einen deutlichen Einfluss auf die Abhängigkeit der Zerstörschwelle von der Filmdicke. Abbildung 3.3 macht deutlich, dass die Zerstörfluenz ansteigt, wenn man die Eindringtiefe der ballistischen Elektronen bei gleichzeitig konstantem g erhöht. Es zeigt sich, dass die Referenzpunkte der beiden herausgehobenen Fälle $l_b = 0 \text{ nm}$ und $l_b = 100 \text{ nm}$ nicht miteinander korrelieren. Während die 50%-Marken dicht beieinanderliegen, unterscheiden sich die 90%-Marken deutlich voneinander.

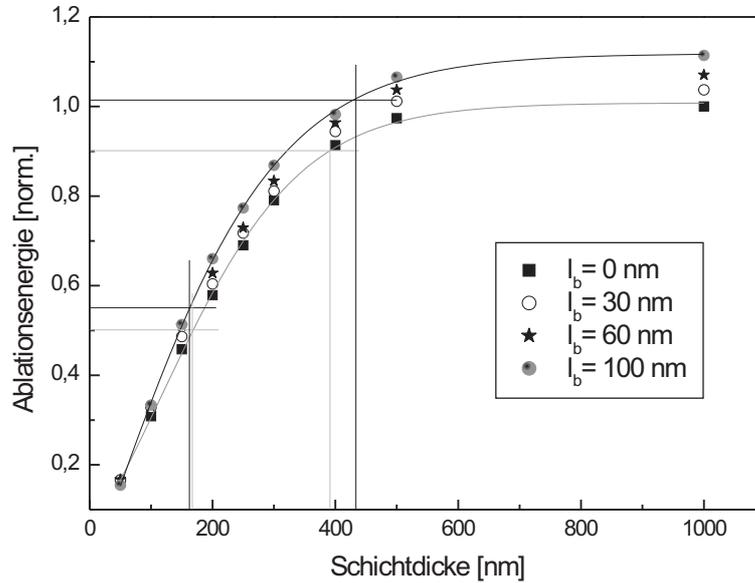


Abbildung 3.3: Berechnete Zerstörschwelle in Abhängigkeit von der Filmdicke für verschiedene mittlere Weglängen \hat{l}_b der ballistischen Elektronen in Gold, g beträgt hier $2 \cdot 10^{16} \text{ W/m}^3 \text{ K}$. Die Ablationsenergie wurde auf $\hat{l}_b = 0$ und dicke Schichten normiert. Die Balken geben die Referenzpunkte $d_{0,5}$ und $d_{0,9}$ für $\hat{l}_b = 0 \text{ nm}$ und $\hat{l}_b = 100 \text{ nm}$ an.

In Abbildung 3.1 werden die Gebietsübergänge $1 \Rightarrow 2$ und $2 \Rightarrow 3$ um etwa den gleichen Betrag nach rechts verschoben, da das von der applizierten Energie durchdrungene Volumen wegen der erhöhten "Absorptionstiefe" l'_s größer ist. Um die Eindringtiefe der Wärme in die Probe wieder zu verringern, muss die Elektron-Phonon-Kopplung g erhöht werden. Dies führt bei der Bestimmung von g aus Zerstörschwelle/Filmdickenmessungen dazu, dass sich die ermittelten g für die verschiedenen Referenzpunkte im Allgemeinen voneinander unterscheiden und sich in einem g - l_b -Diagramm als ein Anwachsen der g mit steigendem \hat{l}_b nachweisen lassen. Die $dg_i/d\hat{l}_b$ ($i=0.5, 0.75, 0.9$) weisen dann unterschiedliche Anstiege auf, dies wird in Abbildung 3.3 demonstriert. Nur bei Benutzung der wahren mittleren Weglänge \hat{l}_s in den Rechnungen sollten die Werte von g übereinstimmen. Da während der Herleitung einige Näherungen gemacht wurden, ist zu erwarten, dass die ermittelten g selbst für die wahre mittlere Weglänge nicht genau übereinstimmen. Eine Abschätzung von \hat{l}_s lässt sich dennoch finden, indem in einem g - \hat{l}_b -Graphen der Punkt gesucht wird, an dem die rms-Abweichung der g am kleinsten wird.

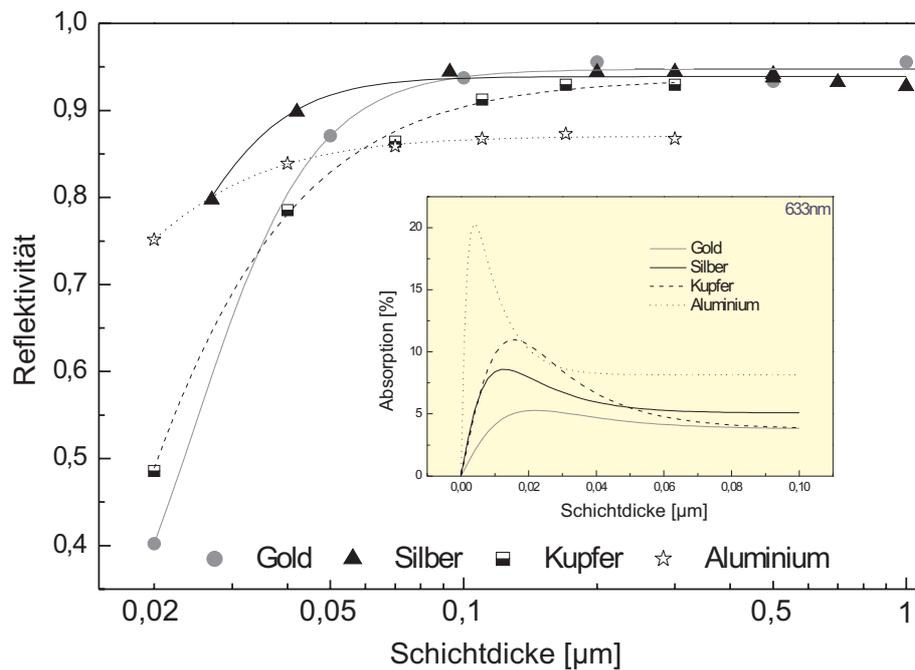


Abbildung 3.4: Gemessene Reflektivität verschiedener Metallfilme in Abhängigkeit von der Filmdicke bei TE-polarisiertem Licht ($\lambda = 633 \text{ nm}$) und einem Einfallswinkel von 45° . Das innere Diagramm zeigt zum Vergleich die berechnete Absorption bei dieser Wellenlänge. Die Fits dienen der besseren Visualisierung der Ergebnisse.

3.2 Absorption in Metallschichten

Sowohl der im TTM vorkommende Quellterm 3.1 als auch der alternative Temperaturanfangswert 3.2 bedarf der genauen Kenntnis des absorbierten Anteils des applizierten Laserstrahls. Es wurden zu diesem Zweck Messungen des Reflexionskoeffizienten von Gold, Silber, Kupfer und Aluminium mit Hilfe eines leistungsstabilisierten HeNe-Laser ($\Delta P = \pm 1\%$) bei 633 nm durchgeführt. Abbildung 3.4 zeigt die Ergebnisse bei 45° Einfallswinkel und TE-Polarisation, zusammen mit dem berechneten Absorptionskoeffizienten (siehe Anhang A).

Ab 200 nm Filmdicke haben alle genannten Metalle ihre maximale Reflektivität erreicht. Die Transmission ist schon ab einer Dicke von 100 nm vernachlässigbar, sodass

$$A + S = 1 - R \quad (3.17)$$

(A - Absorption, R - Reflexion, S - Streuung) gilt. R_{max} betrug für Gold ca. 95%, für Silber knapp 94%, für Kupfer 93% und für Aluminium 87%. Filmdicken bis ca. 50 nm ist eine erhöhte Absorption eigen, die, abhängig von Material und Wellenlänge, bei (2-4) nm (Aluminium) bis (10-20) nm ihr Maximum hat.

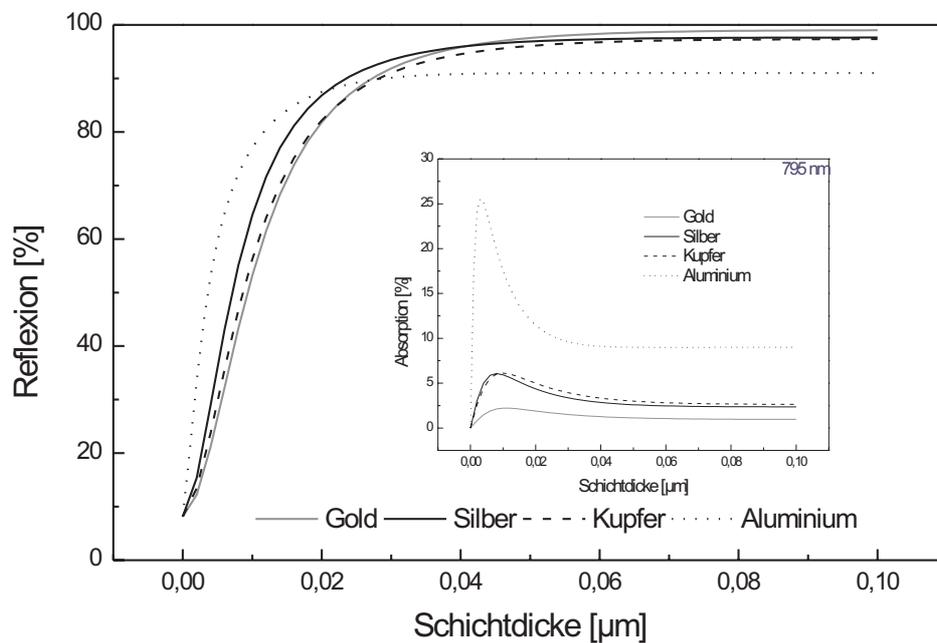


Abbildung 3.5: Berechnete Reflexion und Absorption verschiedener Metallfilme bei $\lambda = 795 \text{ nm}$, TE-Polarisation und 45° Einfallswinkel.

Ideale dicke Silberschichten absorbieren etwas mehr als 6%, nach Gleichung 3.17 ist die Streuung der Silberschichten somit vernachlässigbar. Für Gold und Kupfer bleiben Diskrepanzen von ca. (1.5-2)%, die jedoch nicht ausschließlich Streueffekten zugeordnet werden können, da hochgenaue Streulichtmessungen nicht durchgeführt wurden. Demzufolge kann der absorbierte Anteil bei 633 nm in Gold, Kupfer und auch Aluminium (Diskrepanz: 4%) umso genauer bestimmt werden, je besser die berechnete Reflektivität mit dem Messwert übereinstimmt. Die Differenz zwischen diesen beiden Werten bestimmt im wesentlichen den Fehler bei der Angabe der Werte des absorbierten Anteils. Dies lässt aber trotzdem noch hinreichend genaue Abschätzungen der deponierten Energie zu.

Die Versuche zur Zerstörfestigkeit wurden im Gegensatz zu den Reflexionsmessungen zum Großteil bei $\lambda = 795 \text{ nm}$ durchgeführt. Abbildung 3.5 zeigt berechnete Absorptions- und Reflexionskoeffizienten für diese Wellenlänge, die anderen Strahleigenschaften sind äquivalent zu denen in Abb. 3.4. Die Reflektivitäten von Gold, Silber und Kupfer verbessern sich gegenüber den Werten bei 633 nm um (2-4)%, Aluminium reflektiert um ca. 1% schlechter.

Fasst man die Betrachtungen zu den Abbildungen 3.4 und 3.5 zusammen, lassen sich folgende Absorptionswerte der Proben bei 795 nm abschätzen: Gold (2.0 ± 1.0)%,

Silber (2.4 ± 0.4)%, Kupfer (3.5 ± 1.0)% und Aluminium (12.0 ± 2.4)%.

An den Proben vom Laserzentrum Hannover wurde ein vom obigen Bild abweichendes Reflexionsverhalten festgestellt. Während bis 100 nm Filmdicke kein Unterschied zu anderen Goldproben feststellbar war, erreichten sie ab 220 nm Filmdicke nur (45-50)% Reflektivität. Die Ursache dafür ist in der Beschaffenheit der Proben zu suchen, auf die in Abschnitt 3.5 näher eingegangen wird.

3.3 Messungen

Im folgenden werden die Ergebnisse der Zerstörschwellenmessungen unter Variation der Filmdicke und der Pulsdauer vorgestellt.

3.3.1 Filmdickenabhängigkeit der Zerstörschwelle

Im Verlaufe dieser Arbeit wurden die Zerstörschwellen dreier verschiedener Serien von Goldspiegeln und je einer Serie von Silber-, Kupfer- und Aluminiumspiegeln gemessen. Die Abbildungen 3.6 und 3.7 fassen die wichtigsten Ergebnisse zusammen. Die Messwerte in Abbildung 3.6 sind aus mehreren Einzelmessungen zusammengesetzt, während Abbildung 3.7 auf jeweils einer Einzelmessung basiert.

Der umfangreichste Teil der Messungen widmete sich Goldfilmen. Der Vergleich der drei vermessenen Goldserien zeigt eine gute Übereinstimmung der Zerstörfluenz von Layertec- und FSU-Proben (Layertec: 0.50 J/cm^2 , FSU: 0.44 J/cm^2). Die Regressionsfunktion, die in den Abbildungen für diese beiden Serien benutzt wurde, entstammt TTM-Rechnungen ($g = 3.0 \cdot 10^{16} \text{ W/m}^3 \text{ K}$) und ist identisch.

Das Verhalten der LZH-Serie weicht dagegen stark ab. Die Zerstörschwelle dieser Filme ist nur etwa halb so groß wie die der anderen Serien (0.25 J/cm^2 bei 45°). Darüberhinaus wird die maximale Zerstörschwelle bereits bei einer Dicke von 200 nm erreicht, für dickere Proben fällt F_{th} wieder ab. Diese Probenserie zeigt jedoch noch andere optische Anomalien, auf die in Abschnitt 3.5 gesondert eingegangen wird.

Femtosekunden-Zerstörschwellen von Goldfilmen in der Literatur sind mit einer recht großen Streuung behaftet. Stuart et al. [6] geben 0.6 J/cm^2 für eine 500 nm dicke Goldschicht im Multischuss-Verfahren an, bei einer Wellenlänge von 1053 nm und 150 fs Pulsdauer. Dies ist konsistent mit obigen Messungen, da die in Abschnitt 3.2 angestellten Betrachtungen eine Erhöhung der Zerstörschwelle bei einem Wechsel der Wellenlänge von 795 nm auf 1053 nm zur Folge haben. Pronko et al. [42] berichten von nur 0.2 J/cm^2 bei 780 nm im Einzelschussbetrieb, während Krüger et al. [43] bei 615 nm und 300 fs 0.25 J/cm^2 (Multischuss) angeben.

Die Streuung der Literaturwerte deutet darauf hin, dass die experimentellen Bedin-

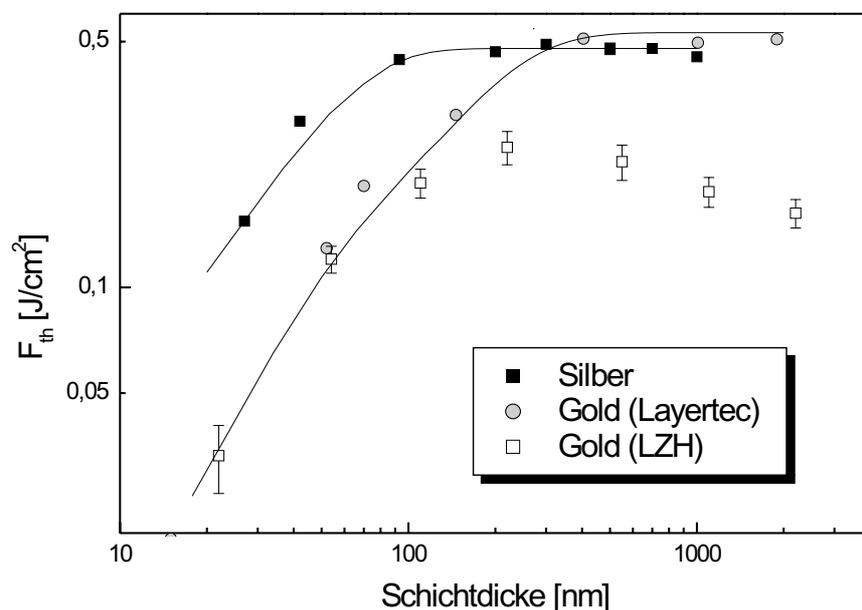


Abbildung 3.6: Messung der Filmdickenabhängigkeit der Zerstörschwelle an Gold- und Silberproben ohne Beschichtung. Gemessen wurde bei einem Einfallswinkel von 45° und TE-polarisiertem Licht. Alle Probenserien wurden mittels Ionenstrahl-Sputtern hergestellt. Die durchgezogenen Kurven wurden mittels TTM-Rechnungen und materialtypischem Elektron-Phonon-Kopplungsfaktor g berechnet. Näheres dazu ist in Abschnitt 3.4 zu finden. Die Abweichung der LZH-Proben von den anderen beiden Serien wird in Abschnitt 3.5.2 erläutert.

gungen einen großen Einfluss auf die gemessene Zerstörschwelle haben. Eine zweite Ursache ist die unterschiedliche Qualität der Filme, die in keiner der Arbeiten Erwähnung findet. Auf den Einfluss der Oberflächenrauigkeit der Probe auf die Zerstörschwelle wird in Abschnitt 3.5 näher eingegangen. Die Filmdickenabhängigkeit der Zerstörschwelle wird in den Abschnitten 3.4.1 und 3.4.2 diskutiert.

3.3.2 Pulsdauerabhängigkeit der Zerstörschwelle

Zwei der Gold-Serien (Layertec, LZH) und die Silberschichten wurden auf eine Pulsdauerabhängigkeit der Zerstörschwelle hin untersucht. Das TTM sagt eine konstante Zerstörschwelle voraus, solange die Pulsdauer deutlich unterhalb der Zeitspanne der Elektron-Phonon-Relaxation liegt und keine nichtlinearen Absorptionseffekte in Gold (ultradünne Filme [45]) vorliegen.

Beide untersuchten Metalle wiesen keine messbare Abhängigkeit der Zerstörschwelle

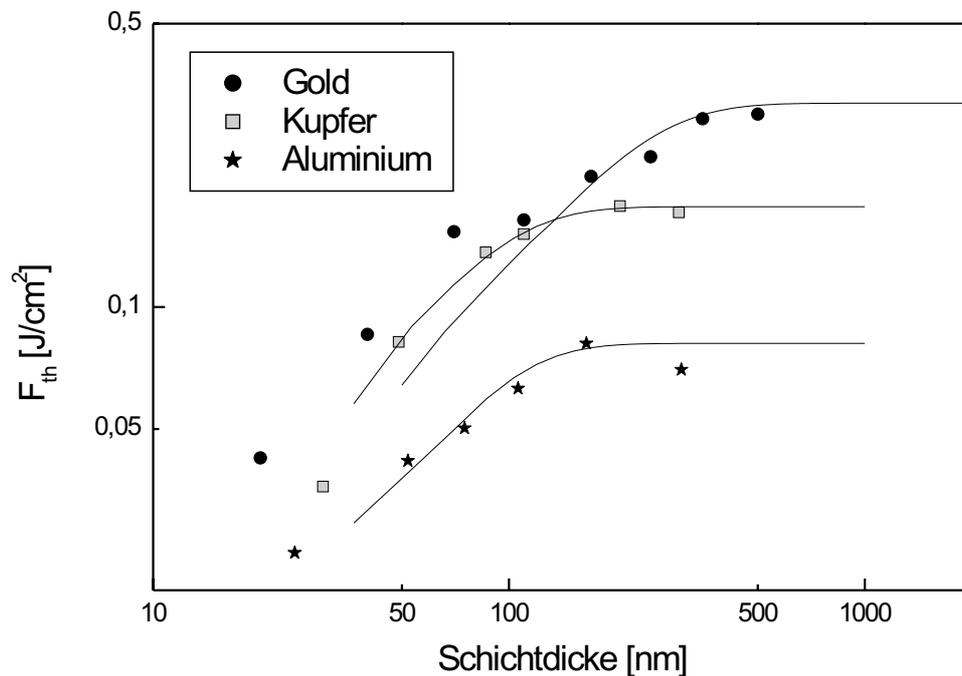


Abbildung 3.7: Messung der Filmdickenabhängigkeit der Zerstörschwelle an Gold-, Kupfer- und Aluminiumproben, jeweils ohne Beschichtung, bei senkrechtem Einfall des Laserstrahls. Alle Proben wurden am Institut für Festkörperphysik der FSU Jena durch Vakuum-Bedampfen hergestellt.

von der Pulsdauer im Bereich von 50 fs bis 500 fs auf. Die Filmdicken lagen zwischen 200 nm und 1000 nm. Dies weist darauf hin, dass kein intensitätsabhängiger Mechanismus bei Absorption und Ablation von optisch dichten Metallschichten eine Rolle spielen kann. Eine bildliche Darstellung vergleichender Messungen an Metallfilmen und Metall/Dielektrikum-Hybriden findet sich in Abschnitt 4.3.

Eine Kontrollmessung einer LZH-Goldschicht (Dicke: 550 nm) bei 1064 nm und 8 ns Pulsdauer ergab eine Zerstörschwelle von 2.5 J/cm².

3.4 Bestimmung der TTM-Parameter

Ziel dieses Abschnitts ist es, anhand des Vergleichs von Messwerten und TTM-Rechnungen Rückschlüsse auf die Elektron-Phonon-Kopplungskonstante g aller Metalle zu ziehen und die mittlere freie Weglänge der ballistischen Elektronen abzuschätzen.

		Au	Ag	Cu	Al
Wärmeleitungskoeffizient (300 K)	[W/cm K]	3.17	4.29	4.01	2.37
Wärmekapazität (300 K)	[J/mol K]	25.41	25.36	24.48	24.25
	[J/g K]	0.129	0.235	0.385	0.899
	[J/cm ³ K]	2.48	2.47	3.45	2.43
Schmelztemperatur	[°C]	1064	962	1085	660
Siedetemperatur	[°C]	2856	2162	2562	2519
Schmelzenthalpie	[J/g]	63.7	104.8	208.7	397
	[J/cm ³]	1229	1100	1870	1071
Siedenthalpie	[J/g]	1738	2390	4796	10800
	[kJ/cm ³]	33.54	25.10	42.97	29.16
abs. Laserenergie TE	[%]	0.963	2.357	2.640	8.992
	TM [%]	1.913	4.657	5.204	17.17
Schmelzwärme (T ₀ =300 K)	[kJ/cm ³]	3.12	2.74	4.58	1.95
Siedewärme (T ₀ =300 K)	[kJ/cm ³]	41.1	30.8	52.6	35.6

Tabelle 3.1: Einige thermische Eigenschaften der Proben-Metalle (nach [44]). Die Absorptionskoeffizienten wurden für einen Einfallswinkel von 45°, eine Wellenlänge von 795 nm und eine Filmdicke von 100 nm berechnet.

3.4.1 Gold

	Layertec	FSU Jena
$d_{0.9}$ [nm]	315	324
$d_{0.75}$ [nm]	202	207
$d_{0.5}$ [nm]	103.5	98

Tabelle 3.2: Aus Abb. 3.6 und 3.7 ermittelte Referenzpunkte der Gold-Serien (zur Bestimmung selbiger vgl. Abschn. 3.1.2).

Die in Tabelle 3.2 aufgelisteten Referenzpunkte stimmen in Anbetracht der Tatsache, dass sie erstens von zwei verschiedenen Probenserien stammen, zweitens an verschiedenen Messplätzen bestimmt wurden und sich drittens die Einfallswinkel unterschieden, sehr gut überein. Aus Abbildung 3.8, welche die Ergebnisse der TTM-Rechnungen für $l_b = 0$ zeigt, wurden folgende g bestimmt: Eine Variation der \hat{l}_b führt

[W/(m ³ K)]	Layertec	FSU Jena
$g_{0.9}$	$3.13 \cdot 10^{16}$	$2.96 \cdot 10^{16}$
$g_{0.75}$	$3.85 \cdot 10^{16}$	$3.65 \cdot 10^{16}$
$g_{0.5}$	$2.63 \cdot 10^{16}$	$3.12 \cdot 10^{16}$

Tabelle 3.3: Elektron-Phonon-Kopplungskonstanten, basierend auf der Auswertung der Referenzpunkte von Gold. Es wurden keine ballistischen Elektronen berücksichtigt.

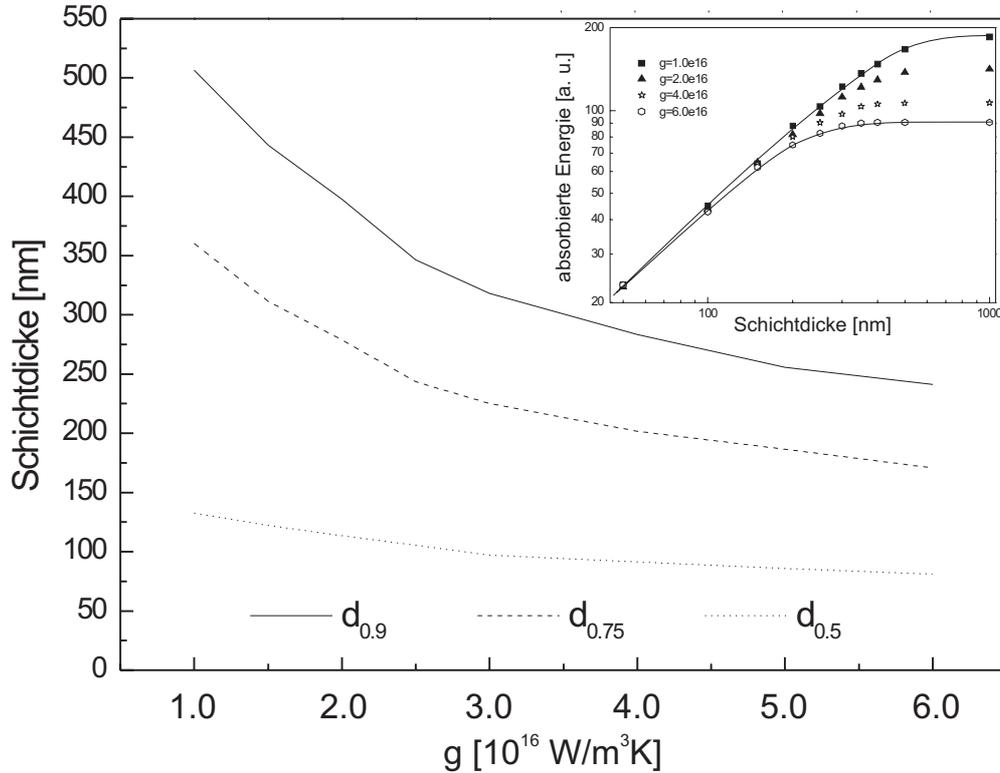


Abbildung 3.8: Numerisch bestimmte Referenzpunkte in Abhängigkeit von der Elektron-Phonon-Kopplung g für Gold. Das innere Diagramm zeigt die Ablationsenergie in Abhängigkeit von g und der Filmdicke d , in Analogie zu Abbildung 3.1. Es wurden keine ballistischen Elektronen berücksichtigt.

nun, wie in Abbildung 3.3 beschrieben, zu einer Veränderung der g für die verschiedenen Referenzpunkte.

Abbildung 3.9 zeigt die entstehenden Kurvenverläufe. Die g -Werte der Layertec-Proben liegen bei $l_b \approx 75 \text{ nm}$ am dichtesten beisammen, der resultierende g -Wert beträgt $(3.8 \pm 0.5) \cdot 10^{16} [\text{J}/\text{m}^3\text{K}]$. Der g -Wert der FSU-Proben beträgt $(3.5 \pm 0.5) \cdot 10^{16} [\text{J}/\text{m}^3\text{K}]$ bei $l_b \approx 20 \text{ nm}$.

Ursache dieser großen Abweichung in l_b ist möglicherweise eine in Wirklichkeit stark unterschiedliche mittlere freie Weglänge der ballistischen Elektronen in beiden Serien. Dagegen spricht, dass in Abbildung 3.8 die Kurven des 90%- und des 75%-Referenzpunktes nahezu parallel verlaufen - sie divergieren leicht für größere Filmdicken, schneiden sich aber nicht. Die 50%-Linie schneidet die beiden anderen Kurven, der Mittelwert der beiden Schnittpunkte ergibt die Abschätzung von l_b .

Alle drei gemessenen Referenzpunkte d_i beider Serien unterscheiden sich nicht sehr stark voneinander (siehe Tab. 3.3). Die Abweichung von 9 nm bzw. 5 nm im gemessenen $d_{0,9}$ bzw. $d_{0,75}$ wirken sich auf $g_{0,9}$ bzw. $g_{0,75}$ nicht wesentlich aus, der maxi-

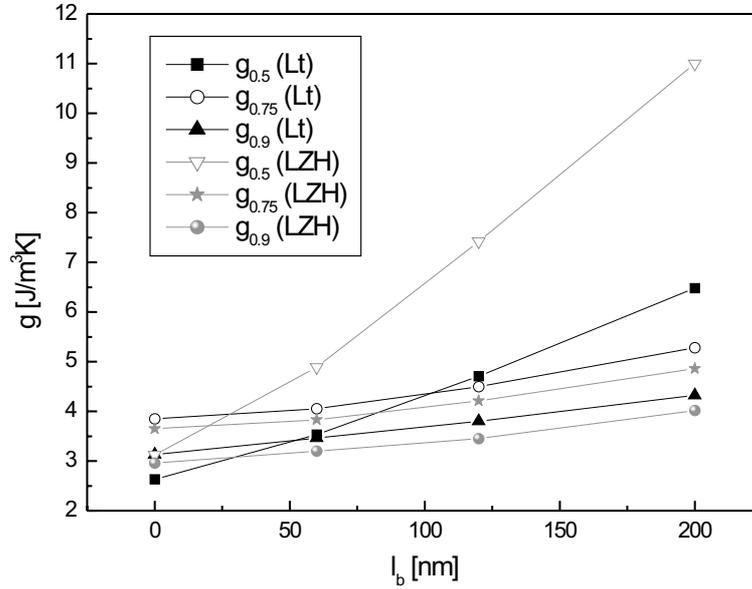


Abbildung 3.9: Änderung von g mit der mittleren freien Weglänge der ballistischen Elektronen l_b . In der Legende steht (Lt) für Layertec-Proben.

male Unterschied beträgt $g_{i,Lt} - g_{i,LZH} = 0.4$. Der Unterschied von 5.5 nm für den 50%-Punkt ergibt jedoch deutliche Differenzen in den resultierenden g/l_b -Kurven. Die Genauigkeit der Bestimmung der 50%-Referenz muss die Größenordnung ~ 1 nm erreichen (Abbildung 3.8), um zuverlässige Werte $g_{0,5}$ zu erhalten. Dies liegt daran, dass der Anstieg der F_{th}/d -Kurven bei geringeren Filmdicken größer ist, womit der gleiche Messfehler zu höheren Abweichungen beim ermittelten g führt. Die erreichte Genauigkeit bei der Bestimmung der d_i beträgt ca. ± 5 nm bei $d_{0,5}$, ± 7 nm bei $d_{0,75}$ und ± 10 nm bei $d_{0,9}$, woraus sich ein Fehler von ± 0.4 W/m³K bei der Bestimmung von g ergibt.

Der Mittelwert der mittleren freien Weglänge l_b von 50 nm besitzt nurmehr den Status einer Abschätzung. Jeder Wert zwischen $l_b = 20$ nm und $l_b = 100$ nm ist möglich, höhere Werte werden unwahrscheinlicher, da für diese die Differenz zwischen dem 50%-Punkt und den anderen beiden Referenzwerten stark anwächst.

In der Literatur werden ebenfalls sehr verschiedene Werte von l_b angegeben. In [46] beträgt l_b für Gold ca. 30 nm. Hohlfeld et al. [19] geben 105 nm an, Suarez et al. [41] 100 nm.

Die Literaturangaben für g variieren von $1.1 \cdot 10^{16}$ W/m³K bis $4.0 \cdot 10^{16}$ W/m³K. Im einzelnen wurden folgende Werte bestimmt (g in Einheiten von 10^{16} W/m³K):

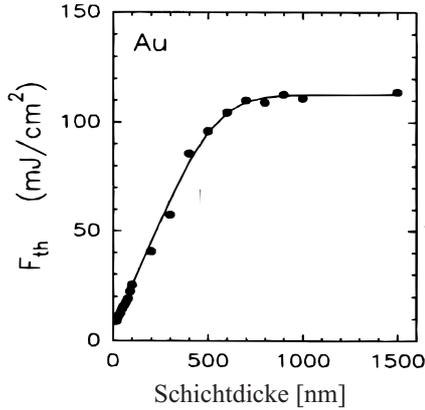


Abbildung 3.10: Messung von F_{th} in Abhängigkeit von d aus [19]; $d_{0.9}$ wird bei 550 nm, $d_{0.75}$ bei 405 nm und $d_{0.5}$ bei 245 nm erreicht. Die Wellenlänge betrug 400 nm, die Pulsdauer 200 fs.

1.1 ± 0.3 [47], 1.6 ± 0.6 [48], 2.0 ± 0.2 , 2.1 ± 0.3 , 2.3 ± 0.3 und 2.0-2.9 (Theorie) [19], ≈ 2.0 [49], 2.65 ± 0.5 [50], 3.0 ± 0.5 [51, 52] und ≈ 4 [53, 54].

Ein Großteil der Literaturwerte liegt damit unterhalb der in dieser Arbeit bestimmten Werte von g . Wie Abbildung 3.9 zeigt, steigen die g -Werte für $l_b > 50$ nm mit Verringerung der Referenzschwelle an ($g_{0.9} < g_{0.75} < g_{0.5}$). Dies deutet darauf hin, dass die im TTM implementierte Physik nicht ausreicht, um Ablationsvorgänge genau zu beschreiben. In [55] wird gezeigt, dass die Ablationsphase in Metallen einige Nanosekunden andauern kann. Während dieser Zeit wirken Vorgänge wie Wärmeleitung, thermische Ausdehnung und mechanische Schockwellen innerhalb des Probenvolumens, die zu einer Umverteilung der Energie vor bzw. während der Ablationsphase führen und die Schwellfluenz verändern.

Abbildung 3.10 zeigt die Ergebnisse einer Messung von Hohlfeld et al. [19]. Auffällig ist, dass die Wärmeeinflusszone (WEZ) deutlich größer ist als in den Messungen dieser Arbeit. Die aus dieser Kurve ermittelten g betragen $(1.0 - 1.6) \cdot 10^{16} J/(cm^3 K)$ ($l_b = 105$ nm) und liegen damit im unteren Bereich der Literaturwerte. Der Wert von l_b liegt bei 90 nm, für g ergibt sich unter Berücksichtigung der ballistischen Elektronen $(2.0 \pm 0.3) \cdot 10^{16} W/m^3 K$.

Die bei $\lambda = 400$ nm kleinere optische Skintiefe entspricht einer Verminderung der ballistischen Eindringtiefe um ca. 8 nm und bewirkt damit keine wesentliche Änderung der Wärmeeinflusszone. Die erhöhte Absorption verringert zwar die Zerstörschwelle, hat aber ebenfalls keinen Einfluss auf die WEZ selbst. Als veränderliche Materialparameter, die eine Änderung der WEZ zur Folge haben, verbleiben g und κ_e .

Da die Penetrationstiefe der Wärme als einzige Messgröße dieses Abschnitts von zwei sich gegensätzlich beeinflussenden Prozessparametern abhängt, lässt es sich leider nicht bestimmen, ob die größere WEZ in [19] durch eine geringere Elektron-Phonon-Kopplung oder eine höhere Wärmeleitfähigkeit des Elektronengases verursacht wird. Im allgemeinen wird g umso kleiner und κ_e umso größer, je eher die Kristallstruktur

den Idealfall des kubischen, einatomigen Gitters repräsentiert. Die Probenqualität spielt somit eine wesentliche Rolle bei der Bestimmung von g und sollte in Form der Oberflächenrauigkeit für jede Messung angegeben werden (siehe dazu auch Abschnitt 3.5).

3.4.2 Silber, Kupfer und Aluminium

Silber

Referenzpunkt	d_i [nm]	g [$10^{17} \text{ W}/(\text{m}^3 \text{ K})$]
90%	88	8.4
75%	63	8.8
50%	36	9.8

Literatur [$\cdot 10^{16} \text{ W}/(\text{m}^3 \text{ K})$]
1.1 ± 0.3 [47]
3.5 ± 0.5 [52, 56]
3.5 ± 2.0 [57]
2.3-3.0 (Theorie, [19])

Tabelle 3.4: Referenzpunkte, ermittelte g -Werte der Silber-Serie und Literaturangaben.

Die Silberproben stellen die große Ausnahme in der Reihe der hier betrachteten Edelmetalle dar. Die im Verlaufe dieser Arbeit bestimmten g unterscheiden sich von den Literaturwerten um mehr als das 20-fache. Die in Abbildung 3.6 dargestellte Messkurve ist aus drei Messungen an zwei verschiedenen Messplätzen entstanden. Die Werte verschiedener Versuchstage korrelierten sehr gut miteinander. Eine Silberprobe mit $\lambda/4$ -SiO₂-Beschichtung wurde darüberhinaus an einem unabhängigen Institut mit genau der gleichen Zerstörschwelle wie an der FSU Jena getestet ($0.84 \text{ J}/\text{cm}^2$ im Strahl). Die F_{th} von Silber und Gold stimmen für dicke Proben fast überein. Silber erreicht jedoch sein Maximum bei deutlich geringeren Filmdicken als Gold (siehe Abb. 3.6). Dies führt dazu, dass die Zerstörschwelle von Silber bei 20 nm-Filmen den vierfachen und bei 100 nm-Filmen den doppelten Wert von Gold erreichen.

Die in Tabelle 3.1 aufgelisteten thermischen Materialparameter von Gold und Silber führen jedoch zur Schlussfolgerung, dass Gold für alle Filmdicken eine bessere Zerstörschwelle aufweisen sollte als Silber. Die Wärmekapazität, die Schmelz- und Siedetemperatur sowie die Schmelzenthalpie von Gold sind höher oder gleich denen von Silber. In Abschnitt 3.2 wurde darüberhinaus festgestellt, dass der absorbierte Anteil des einfallenden Laserlichts ($\lambda = 795 \text{ nm}$) in idealen Goldschichten (1.0%) wesentlich geringer ist als in Silber (2.4%). Auch die aus den Messungen bei 633 nm abgeleitete Absorption ist für die Goldserie geringer.

Gold kann pro Volumeneinheit die gleiche Wärmemenge aufnehmen wie Silber, darüberhinaus wird die Wärme in ein größeres Volumen verteilt. Die aus TTM-Rechnungen resultierenden Zerstörschwellen von Silber dürften demnach $0.8 F_{th}^{Au}$ für dünne Schichten ($d < 100 \text{ nm}$) und $0.4 F_{th}^{Au}$ für dicke Schichten ($d > 400 \text{ nm}$) nicht überschreiten.

Dies deutet darauf hin, daß die Messergebnisse an Silber durch das TTM-Modell nicht richtig widerspiegelt werden. Der Fakt, dass dünne Silberschichten die drei- bis fünffache Energiemenge von gleichdicken Goldfilmen aufnehmen können, deutet auf zusätzliche optische und/oder mechanische Relaxationszweige [58] hin, deren Wirksamkeit durchaus bis in die ns-Zeitskala der Ablationsvorgänge gegeben sein kann. Eine intensitätsabhängige Veränderung von g veränderte zwar die erreichbaren Zerstörschwellen, wurde aber in entsprechenden Versuchen nicht festgestellt [19].

Kupfer

Referenzpunkt	d_i [nm]	g [$10^{17} \text{ W}/(\text{m}^3 \text{ K})$]
90%	126	3.5
75%	82	4.4
50%	52	4.7

Literatur [$\cdot 10^{16} \text{ W}/(\text{m}^3 \text{ K})$]
4.77 ± 0.7 [50]
≈ 4.8 [48]
4.8 ± 2.4 [47]
7.1 (Theorie, [41])
≈ 10 [59]
10.8-12.1 (Theorie, [19])
26 (Theorie, [60])

Tabelle 3.5: Referenzpunkte, ermittelte g -Werte der Kupfer-Serie und Literaturangaben.

Die in Tabelle 3.5 angegebenen Werte liegen bis zu einer Größenordnung über den Referenzen. Kupfer kann zwar im Vergleich zu Gold die anderthalbfache Energiemenge pro Volumen aufnehmen, absorbiert aber im Gegenzug etwa den 1.8-fachen Anteil von Gold. Für dünne Schichten folgt daraus $F_{th}^{Au} \approx 0.8 F_{th}^{Cu}$, was durch die Messungen (s. Abb. 3.7) bestätigt wird.

Die zu hohen g -Werte dürften ihre Erklärung in einer geringeren Qualität der mittels Vakuumbedampfung hergestellten Filme finden. Das Metallgitter weist in diesem Fall eine höhere Anzahl von Unregelmäßigkeiten pro Volumeneinheit auf, die wegen der gestörten Periodizität des Gitters eine Erhöhung der Elektron-Phonon-Kopplung zur Folge haben.

Die Kupfer-Proben verfehlen die theoretisch möglichen 97% Reflektivität bei 795 nm um zwei bis drei Prozent, was gleichbedeutend mit einem merklichen Abweichen des Films vom Festkörper ist.

Aluminium

Referenzpunkt	d_i [nm]	g [$10^{17} \text{ W}/(\text{m}^3 \text{ K})$]
90%	149	1.8
75%	93	2.3
50%	58	2.1

Literatur [$\cdot 10^{17} \text{ W}/(\text{m}^3 \text{ K})$]
3.1 (Theorie, [61])

Tabelle 3.6: Referenzpunkte, ermittelte g -Werte der Aluminium-Serie und Literaturangaben.

Die ermittelten Werte zeigen eine recht gute Übereinstimmung mit dem Literaturwert. Aluminium absorbiert bei 795 nm und TE-polarisiertem Licht den fünffachen Anteil von Gold und kann ca. 90% der Energie pro Volumen im Vergleich zu Gold aufnehmen. Folglich sollte $F_{th}^{Au} = (0.15 \dots 0.2) F_{th}^{Al}$ gelten, aus Abbildung 3.7 wurde $F_{th}^{Au} = (0.2 \dots 0.25) F_{th}^{Al}$ bestimmt.

3.5 Morphologie

Außer der bereits erwähnten visuellen Mikroskopie wurden während der Messungen an Metallfilmen weitere Mess- und Prüfverfahren angewandt, die sowohl eine genauere Bestimmung der Ablationsschwelle als auch den Nachweis von Oberflächen-Modifikationen bei Bestrahlung unterhalb der kritischen Fluenz ermöglichen sollten (*damage precursors* = unterfluente Schadensindikatoren).

3.5.1 Beschreibung der verwendeten Proben

Die optischen Eigenschaften metallischer Filme hängen von der Depositionstechnik und den Bedingungen bei der Herstellung ab [62]. Drei der Probenserien wurden deshalb weitergehenden Untersuchungen unterzogen, zwei Serien von Goldfilmen und eine Serie von Silberfilmen jeweils unterschiedlicher Dicken. Eine Gold- und eine Silberserie stammte von der Firma Layertec, während die zweite Goldserie vom Laserzentrum Hannover (LZH) hergestellt wurde. Sämtliche Proben wurden mittels Ion-Beam-Sputtering (IBS) hergestellt.

Auf die Reflexionseigenschaften der anderen Serien wurde bereits in Abschnitt 3.2 eingegangen. Auffällig war, dass die LZH-Serie bei Filmdicken von mehr als 200 nm einen Abfall des Reflexionskoeffizienten auf ca. 50% bei gleichzeitig deutlich sichtbarem Streulichtzuwachs aufwies.

Untersuchungen der Oberflächenrauigkeit der Proben mittels AFM-Messungen zeigten, dass die LZH-Proben mit $d > 200 \text{ nm}$ eine bis zu zehnfache rms-Rauigkeit aufwiesen (vgl. Abbildung Oberflächenrauigkeit), während die dünneren LZH-Schichten mit ihren Layertec-Pendants vergleichbar waren. Diese Abweichung der optischen und topologischen Eigenschaften innerhalb einer Probenserie zeigte im Experiment Auswirkungen sowohl auf die Ablationsschwelle als auch auf *damage precursors*.

Die dielektrische Funktion von Metallen wird durch die Theorie der *effektiven Medien* beschrieben, die den Film als Mischung von Material und Leerraum beschreibt. Sie wird durch die Maxwell-Garnett-Gleichung des effektiven Mediums [63] beschrieben

$$\varepsilon = \varepsilon_\alpha \left(1 - 3f_b \frac{\varepsilon_\alpha - 1}{2\varepsilon_\alpha + 1} \right), \quad (3.18)$$

wobei ε_α die dielektrische Funktion des Metalls und f_b der Volumenanteil des leeren Raums im Film ist. Die Oberflächenrauigkeit beeinflusst ebenfalls die dielektrische Funktion und kann durch die Theorie der effektiven Medien beschrieben werden. Eine mikroskopisch raue Oberfläche wird dabei als heterogenes Medium angenähert, das sich aus einer Mischung von Festkörper und Superstrat zusammensetzt [62]. Ein Beispiel für den Einfluss der Depositionstechnik auf die optischen Eigenschaften des Films sind Schichten, die aus porösem Gold hergestellt wurden [64, 65] und deren Dichte durchschnittlich um das 400-fache geringer ist als die des Festkörpers. Dieses sogenannte *Rauchgold* o. *Schwarzgold* absorbiert als Extremfall im visuellen einen großen Anteil des einfallenden Lichts und weist stark verringerte Schwellfluenzen auf. Die LZH-Schichten zeigen eine bemerkenswerte Koinzidenz von Herstellungsverfahren und optischen Eigenschaften. So geht der drastische Abfall des reflektierten Anteils über 200 nm Filmdicke einher mit einer Umstellung des Produktionsprozesses. Da sich die dickeren Schichten während des Sputterns stark aufheizten, wurde der Depositionsprozess nach 16 Minuten für 8 Minuten unterbrochen, wonach die nächste Teilschicht aufgetragen wurde. Laut Hersteller ist die Substrattemperatur ein kritischer Parameter für die Güte des Films, weshalb schlechtere optische Eigenschaften für die Filme mit temperaturbedingter Mehrfachdeposition zu erwarten waren.

3.5.2 Beobachtungen zur Morphologie

Für alle drei Serien konnten die Ablationsschwellen durch mehrfache Messungen zuverlässig bestimmt werden (s. Abschnitt 3.3). Die genannten LZH-Gold-Filme mit

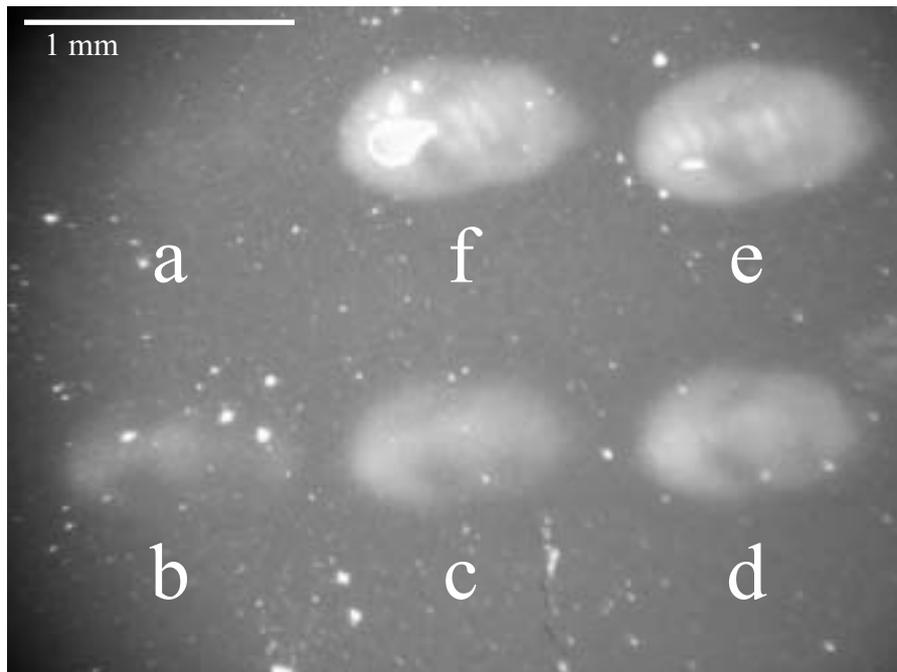


Abbildung 3.11: Oberflächen-Modifikationen unterhalb der Ablationsschwelle F_{th} an einer LZH-Goldschicht (Filmdicke 550 nm). Die applizierten Fluenzen im heißesten Punkt des Fokus' betragen: a) $0.26 F_{th}^I$, b) $0.39 F_{th}^I$, c) $0.62 F_{th}^I$, d) $0.80 F_{th}^I$, e) $0.94 F_{th}^I$ und f) $1.14 F_{th}^I$; F_{th}^I ist die Schwellfluenz der Absorption.

Dicken größer/gleich 200 nm wiesen darüberhinaus deutlich sichtbare Veränderungen der Oberfläche bei Bestrahlung weit unterhalb der Ablationsschwelle auf, die sich zuerst in einer leichten Änderung der Farbe im optischen Teleskop des Messaufbaus äußerten. Abbildung 3.11 illustriert das charakteristische Aussehen dieser Modifikationen im Streulicht eines optischen Mikroskops. Im Gegensatz zu fs-Ablationsstellen an Metallen (im Sinne der Übersichtlichkeit im folgenden **Typ I** genannt), deren Ränder im visuellen Mikroskop scharf definiert erscheinen, haben die Veränderungen der Oberfläche unterhalb F_{th} (**Typ II**) diffuse Abgrenzungen zum umliegenden, unbeeinflussten Gebiet.

Die Schwellfluenz von Typ II ist daher nur abschätzbar. Die CCD-Aufnahme des Gebiets a) in Abbildung 3.11 lässt eine Modifikation gerade noch erahnen - im optischen Streulicht-Mikroskop war dieselbe Stelle um einiges deutlicher zu erkennen. Die Nachweis-Empfindlichkeit aller im Nachhinein genutzten Verfahren war, hinsichtlich des **Einsetzens** von Typ II, geringer als die der visuellen Beobachtung. Sicher erkannt wurden Typ II-Modifikationen ab $1/8 F_{th}^I$, teilweise waren schwache Veränderungen auch schon bei $1/10 F_{th}^I$ zu sehen. Die 200 nm dicke Schicht erwies sich wiederum als

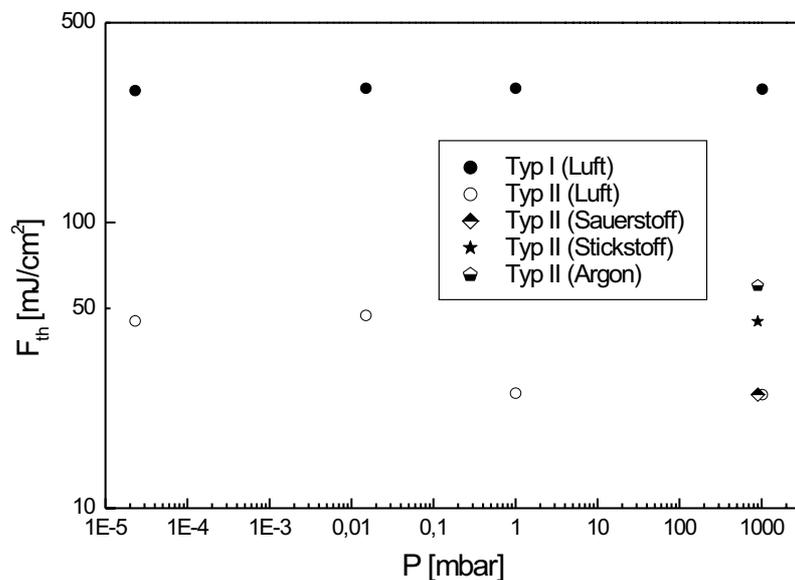


Abbildung 3.12: Zerstörschwellen von Typ I und Typ II in Abhängigkeit von Druck und umgebender Atmosphäre. Die Messungen in Sauerstoff, Stickstoff und Argon wurden bei einem Druck von 900 mbar durchgeführt.

Grenzfall, hier war Typ II nur bei Fluenzen knapp unterhalb der Ablationsschwelle wahrnehmbar und darüberhinaus sehr schwach ausgeprägt.

Die Schwellfluenz von Typ II wurde weiterhin auf Abhängigkeit von der Pulsdauer (50 fs-500 fs) und von der Wellenlänge (795 nm → 532 nm) untersucht, in beiden Fällen mit negativem Ergebnis. Leichte Veränderungen der Schwellfluenz von Typ II wurden dagegen bei Veränderung des Umgebungsdrucks und der Atmosphäre beobachtet (vgl. Abb. 3.12), während Typ I ähnlich wie in [66] keine Abhängigkeiten aufwies.

Ein ähnlicher Abfall der Schwellfluenz wurde in [67] bei der Ablation dickerer Gold- und Nickelfilme mit 8 ps-Pulsen bei 248 nm festgestellt. Die Einzelschusszerstörschwelle sank dort mit wachsender Filmdicke um eine Größenordnung, was ebenfalls auf eine drastische Änderung der optischen Eigenschaften der Filme innerhalb der Serie hinweist.

Alle LZH-Proben, auf denen Typ II existiert, weisen ausschließlich Typ I-Gebiete auf, die von einem Typ II-Hof umgeben sind. Dies wird dadurch erklärt, dass in einem räumlich gaussförmigen Puls die Fluenz von innen nach außen abnimmt. Die "Höhenlinie" der Ablationsschwelle in Abbildung 2.3, zuzüglich der Wärmeeinflusszone zu Beginn der Ablation, markiert die Grenze zwischen den Typen I und II.

Die in dieser Arbeit angegebene Schwellfluenz von Typ II legt die Vermutung nahe,

dass es sich bei diesem Typ von Oberflächenmodifikation um das Anschmelzen der Oberfläche handelt, während Typ I die Ablation und damit das Erhitzen der Probenoberfläche auf Siedetemperatur verkörpert. Die Packungsdichte in derjenigen Schicht, in welcher die Gittertemperatur größer als die Schmelztemperatur ist, wird im Laufe des Schmelzprozesses erhöht und bleibt nach der Erstarrung in dieser Form erhalten. Je höher die applizierte Fluenz ist, desto ausgedehnter wird das aufgeschmolzene Gebiet, und desto tiefer sinkt dessen Oberfläche im Vergleich zur unbehandelten ab. Das Verhältnis der Energiedichten pro Volumen ϵ^i , die notwendig sind, um eine Goldprobe auf Schmelz- bzw. Siedetemperatur zu erhitzen, sollte das Verhältnis der Zerstörschwellen von Typ II und Typ I widerspiegeln. Dabei ist in ϵ^I die Schmelzenthalpie ebensowenig enthalten wie die Siedetemperatur in ϵ^{II} , da für den Nachweis bereits die Änderung des Aggregatzustandes in einer wenige Nanometer dünnen Schicht der Oberfläche ausreicht, während der größte Teil des Probenvolumens noch im vorherigen Zustand verbleibt.

Die in Tabelle 3.1 angegebenen thermischen Parameter von Gold ergeben ein Verhältnis ϵ^I/ϵ^{II} von 4.4:1, welches sich vom gemessenen Verhältnis $F_{th}^I/F_{th}^{II} \approx [8..10]$ um den Faktor 0.5 unterscheidet. Diese Abweichung kann zwei Ursachen haben:

1. Während des Laserbeschusses existieren sehr viele hochenergetische ballistische Elektronen (vgl. Abschnitt 3.1.3), die sowohl mit Elektronen im Inneren der Probe als auch mit dem Gitter stoßen können. Die hohe Anzahl von fast simultanen Stößen mit dem Gitter der Granulen, die fast ausschließlich aus der Richtung der Probenoberfläche getroffen werden, bewirkt abhängig vom Volumenanteil f_b in Gleichung 3.18 eine Kompression des Films in Richtung Substrat. Der Beweis, dass hochenergetische Elektronen eine derartige Kompression auslösen können, wird in dieser Arbeit noch geführt.
2. Der Strahlungsdruck $p_S = I/c$ beträgt bei einer Fluenz von $0.03 J/cm^2$ und einer Pulsdauer von 100 fs ca. $10^7 Pa$ (100 bar). Er könnte damit ebenfalls für die Kompression des Films verantwortlich sein.

Abbildung 3.13 zeigt Reflektivitätsmessungen mit einem auf $40 \mu m$ fokussierten leistungsstabilisierten He-Ne-Laser über modifizierte Gebiete beiderlei Typs hinweg. Typ I-Zerstörstellen weisen einen Abfall der Reflektivität bis auf wenige Prozent auf, wenn der Metallfilm bis auf das Substrat abgetragen wurde. Modifizierte Gebiete des Typs II reflektieren jedoch um ca. fünf bis zehn Prozent besser als die unbehandelte Oberfläche, ebenso wie die Höfe der ablatierten Stellen. Diese Verbesserung der Reflektivität stützt die Annahme, dass Typ II einer Verdichtung des Films entspricht. Typ II konnte ebenfalls mittels Raster-Elektronen-Mikroskop (REM) und Weißlichtinterferometrie (WLI) nachgewiesen werden. In beiden Fällen lag die Nachweisgrenze

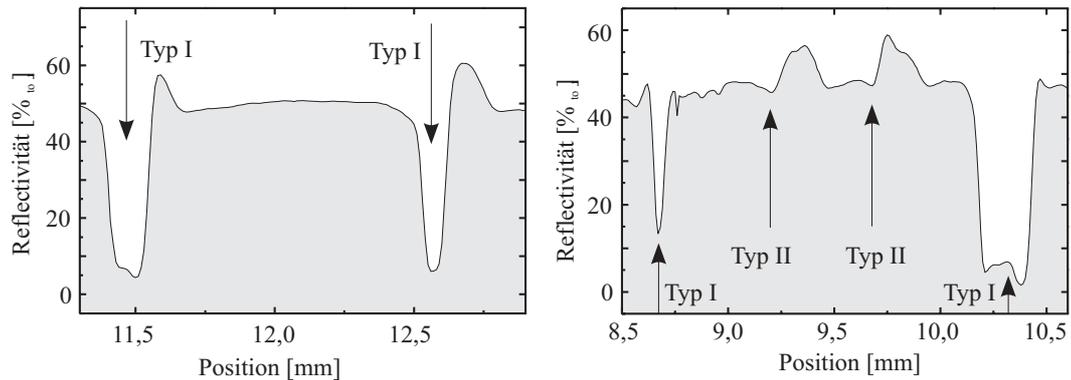


Abbildung 3.13: Reflexionsmessungen bei 633 nm (HeNe, cw, leistungsstabilisiert) über zwei verschiedene Reihen von lasermodifizierten Gebieten hinweg. Sowohl Typ II-Stellen als auch die Ränder von Typ I-Stellen weisen erhöhte Reflektivitäten im Vergleich zur unbelichteten Schicht auf. Die Filmdicke betrug 550 nm.

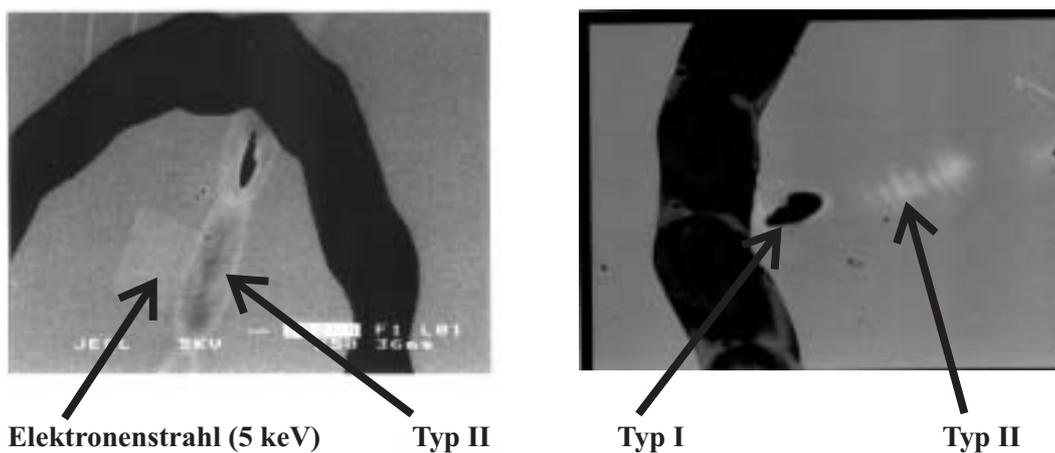


Abbildung 3.14: REM-Aufnahme (links) und visuelle Mikroskopie eines Typ I- und eines Typ II-Gebietes. Das Rechteck im linken Bild stammt von den 5 keV-Elektronen eines Elektronenspektroskops. Die Filmdicke betrug 1100 nm. Die schwarze Markierung wurde mit einem Filzstift aufgetragen und dient der Orientierung.

jedoch nur knapp unterhalb der Schwelle von Typ I. In der REM-Aufnahme (Abbildung 3.14, linkes Bild) lag die Maximalfluenz des Typ I-Flecks bei 0.30 J/cm^2 , das Gebiet darunter, welches nur Typ II zeigt, wurde mit einer Maximalfluenz von 0.23 J/cm^2 beschossen. Der Kontrast von Typ II im REM war sehr gering, was auf einen geringen Höhenunterschied in den Strukturen hindeutet, verbesserte sich aber, wenn die Probe um einen Winkel von 60° geneigt wurde.

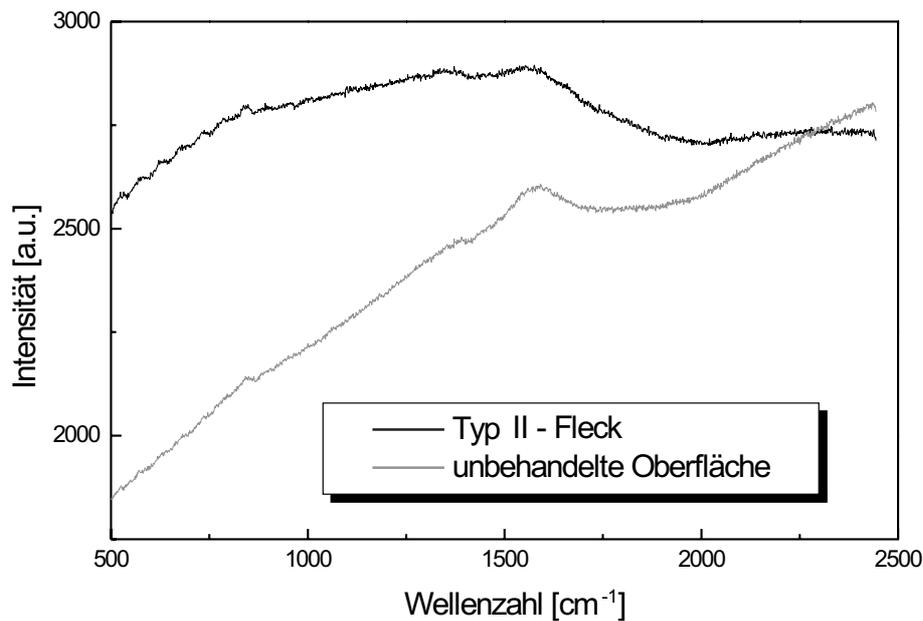


Abbildung 3.15: Ramanspektroskopie eines Typ II-Gebiets und der unbehandelten Oberfläche. Das Fehlen charakteristischer Linien und die Ähnlichkeit beider Kurven deuten darauf hin, dass keine Verunreinigung der Oberfläche durch andere Elemente als Gold vorliegt.

Links neben dem Typ II-Gebiet ist eine weitere rechteckige Struktur zu erkennen. Diese ist das Ergebnis des Beschusses der Probenoberfläche mit einem 5 keV-Elektronenstrahl, der zur Röntgenspektroskopie verwendet wurde und der Beweis dafür, dass außer dem Aufschmelzen der Oberfläche auch das Bombardement mit hochenergetischen Elektronen die Ursache für die beobachteten Modifikationen sein kann. Eine Temperaturerhöhung des Gitters durch den Elektronenstrahl über die Schmelztemperatur hinaus hätte keine Rechteckstruktur zur Folge, da der Strahl mehrere Sekunden lang appliziert wurde und sich die Wärme in dieser Zeit nahezu gleichmäßig über das gesamte Probenvolumen verteilt hätte.

Als Resultat der Röntgenspektroskopie wurden außer Gold nur eine geringe Menge Kohlenstoff und eine unerhebliche Sauerstofflinie festgestellt. Ramanspektroskopische Untersuchungen ergaben außer charakteristischen Gold-Linien keine weiteren signifikanten Strukturen. Damit wurde die Wahrscheinlichkeit, dass eine chemische Verunreinigung der Oberfläche die Ursache der verringerten Typ II-Schwellfluenzen ist, weiter reduziert.

Die Analyse mittels WLI ergab ebenfalls ein Absenken der Probenoberfläche. Das in Abbildung 3.16 abgebildete Gebiet wurde auf einem 1100 nm dicken LZH-Goldfilm mit einer Fluenz knapp unterhalb der Ablationsschwelle ($F = 0.25 \text{ J/cm}^2$) bestrahlt

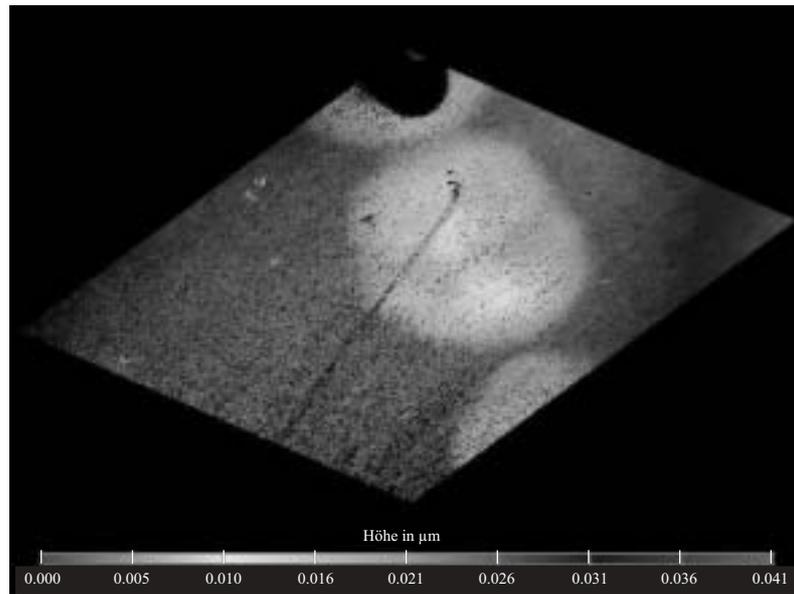


Abbildung 3.16: Interferometrische Aufnahme eines Typ II-Gebietes im Weißlicht. Der Höhenunterschied zwischen unbehandelter Oberfläche und tiefstem Punkt des Gebietes beträgt ca. 20 nm.

und weist einen maximalen Höhenunterschied von 20 nm zur unbehandelten Oberfläche auf. Die Nachweisgrenze der Typ II-Gebiete mittels WLI erreichte mit $1/6 F_{th}^I$ fast das Niveau visueller Streulichtbeobachtungen.

Aus den vorgestellten Analysen der Oberflächen der LZH-Serie lässt sich schlussfolgern, dass der Volumenanteil f_b des leeren Raums am Probenvolumen bei Fluenzen unterhalb der Ablationsschwelle verringert wurde. Obwohl die Probenoberflächen ebenfalls aufgeschmolzen werden sollten, wenn sie mit Fluenzen knapp unterhalb der Ablationsschwelle bestrahlt werden, erbrachte eine Analyse der anderen beiden Serien jedoch keine Anzeichen für eine Oberflächenmodifikation bei Applikation der genannten Fluenzen.

Zusammen mit den von Festkörperwerten nur wenig abweichenden Reflexionswerten deutet dies darauf hin, dass f_b in den beiden Serien bereits anfänglich sehr gering ist und sowohl durch Aufschmelzen als auch Elektronenstöße nur marginal verändert wird.

Einem experimentellen Glücksfall ist es zu verdanken, dass schließlich doch eine Veränderung der Oberfläche unterhalb der Ablationsfluenzen registriert werden konnte. Die in Abbildung 3.17 durch Pfeile markierten Stellen wurden bei Fluenzen knapp unterhalb der Ablationsschwelle bestrahlt. Die Probe wurde daraufhin in beiden

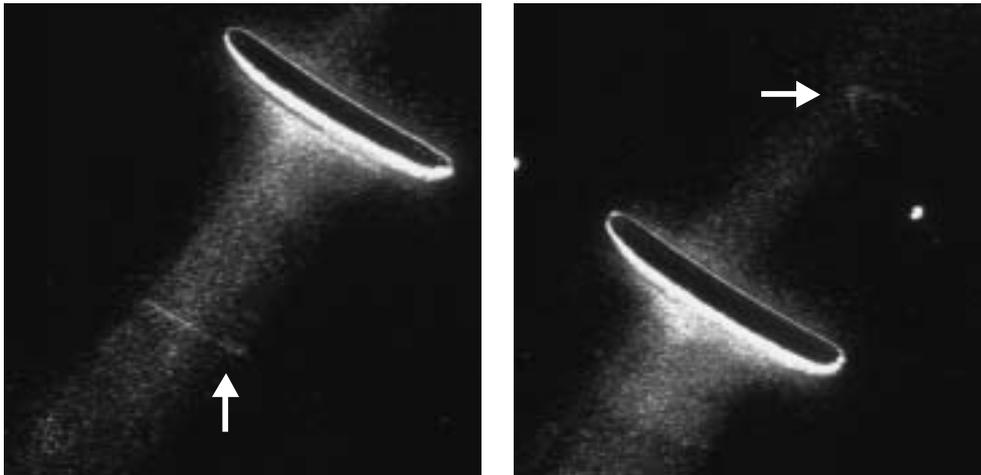


Abbildung 3.17: Beobachtung von Typ II an Layertec-Proben. Die mit Pfeilen markierten Stellen wurden mit Fluenzen von 0.42 J/cm^2 (linkes Teilbild) und 0.35 J/cm^2 bestrahlt und danach durch die Ablationsjets der benachbarten Gebiete markiert. Die Ablationsschwelle der 1000 nm dicken Probe betrug 0.50 J/cm^2 .

Fällen lateral verschoben und mit einer für Ablation ausreichenden Fluenz behandelt. Der durch die stark elliptische Form des Fokus entstehende horizontale Ablationsjet in Richtung der kleinen Halbachse der Ellipse markierte die vorher belichteten Stellen durch ein verstärktes Absetzen der Jet-Körnchen in Form des Umrisses des Fokus'. Für diese Markierungen sind zwei Ursachen denkbar:

- Das geschmolzene Gebiet senkt sich ab, während dessen Rand leicht aufgewölbt wird. Dem sich zur Oberfläche nahezu parallel bewegenden Jet wird durch diese Wälle eine bessere Angriffsfläche geboten, wodurch diese Stellen eine höhere Dichte der Ablagerungen aufweisen. Dagegen spricht, dass der Höhenunterschied im Verhältnis von ca. 10^{-3} bis 10^{-4} zur Ausdehnung des Gebiets steht und das Gebiet hinter den erhöhten Ablagerungen nicht komplett abgeschattet ist.
- Aufschmelzen und anschließendes Erstarren führen zu Spannungen am Rand des aufgeschmolzenen Gebiets, in deren Folge sich van der Waals- oder elektromagnetische Kräfte an diesen Stellen ändern und der Jet verstärkt angezogen wird. Die deutliche Markierung der Gebiete deutet darauf hin, dass diese Änderung in diesem Fall signifikant sein muss.

Die Nachweisgrenze der Modifikationen unterhalb der Ablationsschwelle durch Markieren betrug für die Layertec-Proben ca. $0.8 F_{th}^I$. Beobachtet wurden die Veränderungen in der dargestellten Deutlichkeit nur an 1000 nm und 2000 nm dicken Schichten.

Die 500 nm-Schicht zeigte das gleiche Verhalten in stark abgeschwächter Form und nur bei Fluenzen oberhalb 90% der Ablationsschwelle. Dünnere Schichten konnten nicht markiert werden.

Die Silberfilme wurden ebenfalls in dieser Richtung untersucht, allerdings ohne eindeutiges Ergebnis, da sich der Effekt zwar bei Fluenzen knapp unterhalb der Zerstörschwelle schwach andeutete, aber nicht sicher identifiziert werden konnte.

Ein Vergleich der Messungen und Ergebnisse an Metallen mit dielektrischen Materialien und Metall/Dielektrikum-Hybriden findet sich im nächsten Kapitel.

Kapitel 4

Zerstörschwellen an Dielektrika und Hybriden

Seit der Erfindung der gepulsten Laser untersuchten sehr viele Gruppen laserinduzierten Schaden an Dielektrika. Es wurden dielektrische Festkörper [6, 14, 55, 68, 69] und hochreflektive optische Schichtsysteme [6, 70] in einem weiten Pulsdauerbereich, beginnend im Mikrosekunden-Bereich bis hinunter zu einigen Femtosekunden untersucht. Auch andere Materialien, wie organische Substanzen [71–73] oder Flüssigkeiten [74], wurden vielfach hinsichtlich ihrer Zerstörfestigkeit getestet. Darüberhinaus existieren bereits Arbeiten, die sich mit theoretischen Modellen der optischen Zerstörung an Dielektrika und Hybriden beschäftigen [75].

Ziel dieses Abschnittes soll es sein, die während dieser Arbeit durchgeführten Zerstörschwellenmessungen an dielektrischen Materialien und Hybriden (Schichtsysteme, die anteilig aus dielektrischen und metallischen Materialien bestehen) hinsichtlich ihrer Konsistenz mit Literaturangaben zu prüfen und Schlussfolgerungen für deren Einsatz als optische Bauelemente in ultraschnellen und hochintensiven Lasersystemen zu ziehen.

4.1 Wechselwirkung von Laserstrahlung mit dielektrischen Schichten

4.1.1 Einführung

Im Unterschied zu Metallen kann die Elektronendichte in Dielektrika und Halbleitern nicht als konstant angenommen werden, da sie durch Interband-Übergänge sowie Multi-Photonen-Ionisation (MPI) und Lawinen-Ionisation (*electron-impact-ionization*, *avalanche ionization*, AI) während der Einwirkung des Laserstrahls verändert wird [33].

Die folgenden Prozesse haben sich als die für optische Zerstörung wesentlichen Prozesse von Dielektrika herauskristallisiert [13, 75]:

- Anregung von Elektronen aus dem Valenzband ins Leitungsband durch MPI
- Aufheizen der in der Probe durch Verunreinigungen oder an Grenzflächen vorhandenen [76] sowie der durch MPI erzeugten Elektronen durch das externe Feld mittels inverser Bremsstrahlung (*free carrier absorption*)
- Erzeugung hoher Elektronendichten ($n_e \approx 10^{20}$) im Leitungsband durch Stoßionisation (*avalanche ionization*), die derart erzeugten freien Elektronen werden durch inverse Bremsstrahlung ebenfalls aufgeheizt, wenn das externe Feld noch aktiv ist und tragen dann ihrerseits durch Stoßionisation zu weiteren freien Elektronen im Leitungsband bei. Das Ergebnis ist ein Lawinenprozess.
- Energietransfer aus dem Elektronengas ins Gitter, die Folge sind Schmelzen, Verdampfen, Plasmabildung oder Ablation.
- Coulomb-Explosion [77, 78]. Durch Photoionisation entsteht ein positiver Ladungsüberschuss an der Oberfläche, in dessen Folge positiv geladene Ionen in einem Sub-ps-Prozess explosionsartig die Oberfläche verlassen.

Oberhalb von einigen 10 ps zeigt sich eine $\sqrt{\tau}$ -Abhängigkeit der Zerstörfluenz (τ - Pulsdauer) [8, 11], welche auf thermisch induzierte Zerstörung hinweist. Noch während der Applikation des Pulses findet eine Diffusion der ins Gitter eingekoppelten Wärme in die Probe statt. Die laserinduzierte Zerstörung ist in diesem Pulsdauerbereich ein stochastischer Prozess [79], für jede beliebige Fluenz existiert eine von Null verschiedene, mit wachsender Fluenz ansteigende Wahrscheinlichkeit dafür, dass Zerstörung auftritt. Dieses Verhalten wird damit begründet, dass für lange Pulse die initiale Dichte der Elektronen im Leitungsband die Hauptrolle spielt und nichtlineare Anregungsmechanismen wie MPI kaum vorhanden sind.

Neuere Messungen haben gezeigt, dass sich die Schwellfluenzen im fs-Bereich zuverlässiger bestimmen lassen [6, 21, 80–82]. Grund dafür ist, dass die durch MPI angeregten Elektronen im Leitungsband die initial vorhandenen mit sinkender Pulsdauer immer mehr überwiegen, wodurch sich die Anzahl der den Lawinenprozess auslösenden Elektronen besser vorhersagen lässt [6, 42, 83, 84].

Die oben aufgelisteten Teilprozesse finden bis auf den letzten Schritt gleichzeitig, während der Laserbestrahlung, statt und verstärken einander gegenseitig. Während die MPI durch die Keldysh-Theorie [85] beschrieben wird, gibt es verschiedene theoretische Ansätze für die Stoßionisation, von denen hier die komplette kinetische Gleichung [6, 9, 10] und Annäherung durch eine Ratengleichung [6] genannt seien. Auf beide soll im nächsten Abschnitt näher eingegangen werden.

4.1.2 Kinetische Gleichung und Ratengleichung

Die vollständige kinetische Gleichung basiert auf der Annahme, dass ein Aufheizen der Elektronen durch Stöße stattfindet, bevor die in den Elektronen deponierte Energie in das Gitter übertragen wird. Dieses Aufheizen sorgt im Zusammenspiel mit Diffusion und Stoßionisation für den oben erwähnten Lawinenprozess, der sich durch eine kinetische Gleichung für die Verteilungsfunktion der Elektronen beschreiben lässt.

Der entscheidende Parameter für eine irreversible Veränderung der Probe ist hierbei das Erreichen einer kritischen Elektronendichte im Leitungsband, die typischerweise im Bereich von 10^{20} cm^{-3} bis 10^{21} cm^{-3} liegt [6, 13]. Dies ist in etwa der Dichtebereich, in dem die Energiedichte der Leitungsbandelektronen im Bereich der Bindungsenergie des Gitters liegt. Bei ca. $n_e \sim 2 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ wird die kritische Dichte für eine Wellenlänge von 795 nm erreicht. Die Probe reflektiert dann stark, bei gleichzeitig starkem Anstieg des absorbierten Anteils und entsprechender Steigerung der aufgenommenen Energie.

Die zeitliche Änderung der Energiedichte wird durch eine Fokker-Planck-Gleichung beschrieben [6, 9, 10], in die Energietransfer von den Elektronen ins Gitter, Joule-Aufheizen, Energiediffusion durch Elektron-Elektron-Stöße und Quellterme wie MPI, Tunnel- und Stoßionisation Einzug finden.

Die numerische Lösung dieser Gleichung bei konstanten Laserintensitäten zeigt, dass sich unter Ausschluss der MPI bereits nach wenigen Femtosekunden eine Elektronen-Lawine einstellt [6], während deren Verlauf die mittlere kinetische Energie der Elektronen konstant bleibt und die Verteilungsfunktion exponentiell mit der Zeit wächst

$$f(\epsilon, t) = g(\epsilon) \exp(\beta t). \quad (4.1)$$

Die Anfangsverteilungsfunktion $g(\epsilon)$ ist nicht maxwellsch. Die Ionisationsrate β hängt wegen der Absorption durch freie Ladungsträger linear von der Intensität ab. Die gesamte absorbierte Energie wird dazu genutzt, Leitungsbandelektronen zu produzieren. Wenn der Puls lang gegen die kurze Aufheizphase der initialen Elektronen ist ($\tau > 50 \text{ fs}$), ist es möglich, die Verteilungsfunktion für Pulse mit veränderlicher Intensität wie folgt auszudrücken

$$f(\epsilon, t) = g(\epsilon) \exp\left(\int_{-\infty}^t \beta dt'\right). \quad (4.2)$$

Die Linearität $\beta = \xi I(t)$ hält demnach fast während des gesamten Pulses an. Den Proportionalitätsfaktor ξ erhält man aus der numerischen Lösung der Fokker-Planck-Gleichung; er ist durch die Streuraten und die Bandlücke des Dielektrikums bestimmt. Die zeitliche Entwicklung der Elektronendichte im Leitungsband kann dann beschrieben werden durch

$$\frac{dn_e}{dt} = \beta n_e = \xi I(t) n_e. \quad (4.3)$$

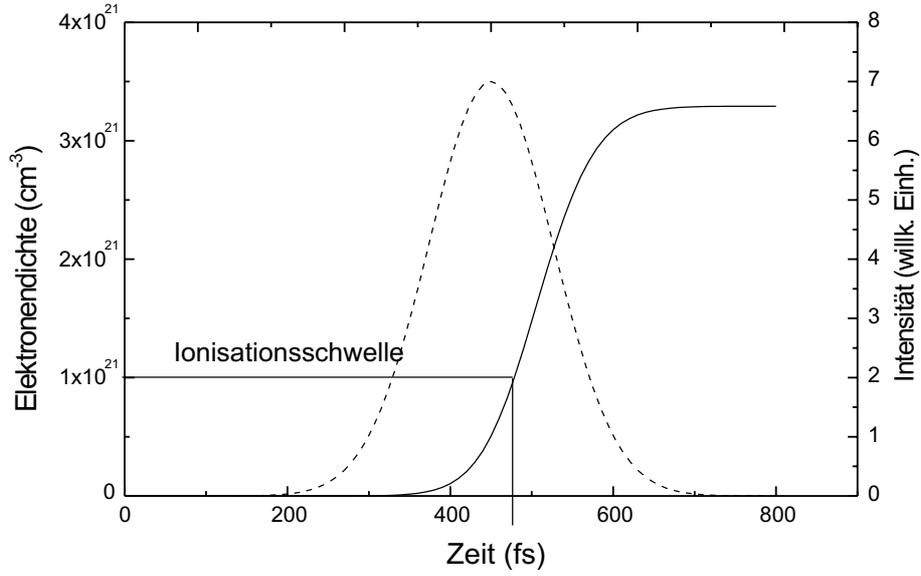


Abbildung 4.1: Elektronendichte im Leitungsband nach Gleichung 4.4 in Abhängigkeit von t . Die gestrichelte Linie kennzeichnet den zeitlichen Verlauf des 200 fs-Pulses.

Gleichung 4.3 beschreibt die Entwicklung der Elektronendichte ohne MPI. Letztere produziert Photoelektronen mit einer Rate, die proportional zu I^k ist, wobei k ganzzahlig ist und angibt, wieviele Photonen gleichzeitig absorbiert werden müssen, um die Bandlücke zu überwinden. Gleichung 4.3, um diesen Term ergänzt, wird zu

$$\frac{dn_e}{dt} = \xi I(t)n_e + \sigma_k I^k, \quad (4.4)$$

wobei σ_k den Streuquerschnitt der k -Photonenabsorption darstellt, der, falls nicht bekannt, mittels der Keldysh-Formel der starken Felder [85] bestimmt werden kann. Gleichung 4.4 impliziert, dass der Hauptanteil der Elektronen im Leitungsband während der zweiten Hälfte des Pulses produziert wird, da der Zuwachs durch Stoßionisation proportional zu n ist und n im Verlauf des Pulses kontinuierlich steigt (vgl. Abb. 4.1). Beim Erreichen der maximalen Intensität beträgt die Elektronendichte einen Bruchteil des Endwerts, die bis dahin erzeugten Elektronen dienen hauptsächlich als Quellelektronen für die folgende Lawine.

Die Ratengleichung 4.4 ist in dieser Form nur dann korrekt, wenn sich MPI und AI nur durch die jeweils bereitgestellten Elektronen beeinflussen. Wie in [86] gezeigt wird, überwiegt die Stoßionisation jedoch auch für Pulse kürzer als 100 fs. Bedingt wird dies dadurch, dass *während* des Vorgangs der MPI bei sehr kurzen Pulsen und hohen Intensitäten die Ortsamplitude der angeregten Elektronen größer wird als der interatomare Abstand. Das entsprechende Elektron gerät dabei durch Kollisionen außer Phase mit

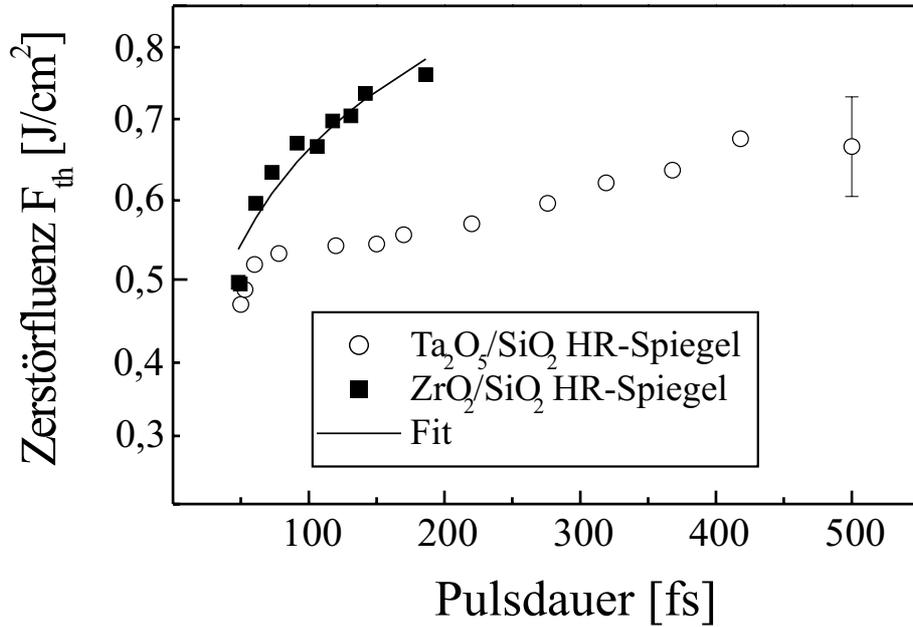


Abbildung 4.2: Zerstörschwelle zweier dielektrischer HR-Spiegel in Abhängigkeit von der Pulsdauer. Der eingezeichnete Fit wurde mittels numerischer Lösung der Ratengleichung errechnet.

der anregenden Welle - die Stöße des Ions mit dem anzuregenden Elektron überlagern sich folglich nicht immer konstruktiv. Die numerische Lösung der zeitabhängigen Schrödingergleichung in [12] illustriert das Auftreten dieser Kollisionen, deren mathematische Folge eine wesentliche Reduktion des MPI-Wirkungsquerschnitts ist, und zwar umso deutlicher, je höher die örtliche Amplitude der Elektronen im externen Feld im Vergleich zum interatomaren Abstand ist.

4.2 Messungen an dielektrischen Schichten

In Abbildung 4.2 sind eigene Messungen der Zerstörschwelle an Ta₂O₅/SiO₂- bzw. ZrO₂/SiO₂-Filmen in Abhängigkeit von der Pulsdauer grafisch dargestellt. Beide Kurven zeigen eine Verringerung der Zerstörfluenz mit sinkender Pulsdauer, die Anstiege der Kurven unterscheiden sich jedoch um den Faktor fünf.

Der eingezeichnete Fit ist das Resultat der numerischen Lösung der Ratengleichung 4.4. Abbildung 4.3 verdeutlicht die Vorgehensweise: Für jedes Avalanche-/MPI-Koeffizientenpaar wurde die Ratengleichung bei verschiedenen Pulsdauern gerechnet. Die so ermittelten Fits wurden mit den Messwerten verglichen und der daraus abgeleitete χ^2 -Wert über dem Avalanche-/MPI-Wertepaar aufgetragen.

Es wird deutlich, dass es kein eindeutiges Paar gibt, für das der χ^2 -Wert ein Mini-

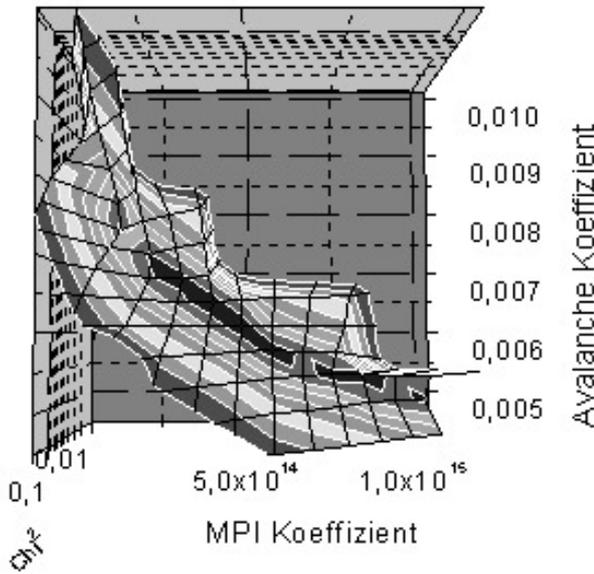


Abbildung 4.3: Ermittlung der Parameter ξ und σ_k aus Gleichung 4.4 für die Messungen am $\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegel, $k = 3$ für ZrO_2 , die höherbrechende Schicht.

man annimmt, vielmehr existiert für den gesamten MPI-Koeffizienten-Wertebereich in Abb. 4.3 ein Avalanche-Koeffizient, bei dem die χ^2 -Abweichung der gemessenen Werte von den numerisch bestimmten minimal wird und sich vom minimalen χ^2 nicht wesentlich unterscheidet. Das Resultat ist eine Talsohle, die sich über einen weiten Bereich von Abbildung 4.3 hinzieht. Die Bestimmung der beiden Parameter aus Abb. 4.3 ist demnach nur auf eine Größenordnung genau.

Das Minimum in χ^2 liegt bei $\xi = 6.1 \text{ cm}^2/\text{J}$ und $\sigma_3 = 4.6 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \text{ ps}^{-1} (\text{cm}^2/\text{TW})^3$, diese Werte sind auch Grundlage des Fits in Abbildung 4.2.

In [14] sind die Koeffizienten für BBS (Barium-Aluminium-Borosilikat) mit $\xi = 1.2 \text{ cm}^2/\text{J}$ und $\sigma_3 = 7 \cdot 10^{17} \text{ cm}^{-3} \text{ ps}^{-1} (\text{cm}^2/\text{TW})^3$ angegeben. Übernimmt man diesen Wert für σ_3 und leitet ξ aus Abb. 4.3 ab, ergibt sich ein Wert von $5.5 \text{ cm}^2/\text{J}$ für die ZrO_2 -Schicht als höherabsorbierende Schicht.

Der MPI-Querschnitt σ_3 liegt wie in [14] um mehr als zwei Größenordnungen unterhalb des Wertes, den man aus der Keldysh-Formel erhält. Lenzner et al. erklären dies damit, dass der Keldysh-Parameter $\gamma = \omega \sqrt{2mI_0}/eE$ (m, e - Elektronenmasse, -ladung; E - max. Laserfeld; ω - Kreisfrequenz des Pulses, I_0 - Bandlücke) für sehr kurze Pulse mit sinkender Pulsdauer kleiner als 1 wird und bei 5 fs den Wert 0.5 erreicht. Die Ionisationsrate aus der Keldysh-Formel ist jedoch nur für $\gamma \gg 1$ ("schwaches" Feld, hohe Frequenz) ein Ausdruck für den MPI-Querschnitt, während im Falle von $\gamma \ll 1$ (starkes Feld, kleine Frequenz) das Tunneln durch den verbotenen Bereich innerhalb einer halben Schwingung vonstatten gehen kann. Demnach würde die Photoionisation im sub-10 fs-Bereich durch den Tunneleffekt, und nicht durch MPI bestimmt werden.

In unsere Rechnung gingen jedoch nur Messungen oberhalb 40 fs Pulsdauer ein, wes-

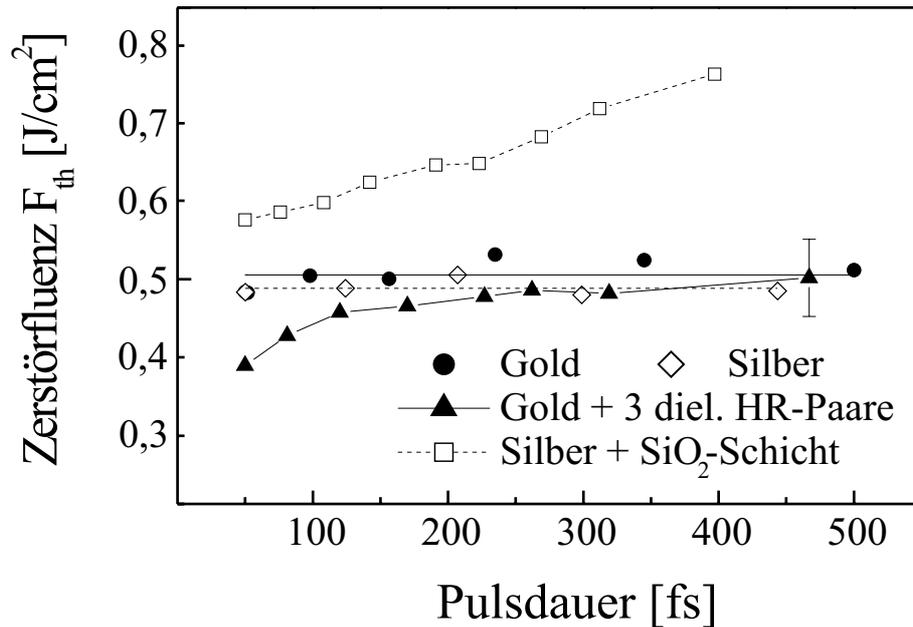


Abbildung 4.4: Zerstörschwellen von ungeschützten Gold- und Silberfilmen im Vergleich mit Metallfilmen, die mit einer oder mehreren dielektrischen Schichten überzogen wurden. Pure Metallfilme zeigen keine Pulsdauerabhängigkeit, während die Hybride einen Abfall der Schwellfluenz hin zu kürzeren Pulsdauern, ähnlich dem Verhalten von ausschließlich dielektrischen Filmen, aufweisen.

wegen $\gamma > \text{ca. } 3$ gilt. MPI sollte damit noch vorrangiger Photoelektronenlieferant sein, dennoch ergeben die Messkurven einen mit [14] vergleichbaren, deutlich zu niedrigen Wert.

Die oben erwähnte Reduktion des MPI-Querschnitts durch Stöße während der Anregungsphase ist eine weitere mögliche Erklärung für das beobachtete Verhalten von σ_3 , die darüberhinaus den Vorteil besitzt, dass sie bereits im Bereich von (50-100) fs wirksam ist. Du et al. [12] beweisen dies, indem sie bei 55 fs bzw. 100 fs Pulsdauer fast identische Zerstörschwellen für linear und zirkular polarisiertes Licht ermitteln, obwohl sich die MPI-Wirkungsquerschnitte deutlich unterscheiden.

4.3 Messungen an Hybriden

Für sehr kurze Pulse ($\tau < 50$ fs) erweisen sich Metalle wie Gold und Silber als zerstörfester im Vergleich mit allen untersuchten dielektrischen HR-Schichtsystemen. Die Problematik letzterer liegt darin, dass sie einerseits durch einen hohen Brechzahlunterschied zwischen niedrig- und hochbrechendem Material eine maximale Reflekti-

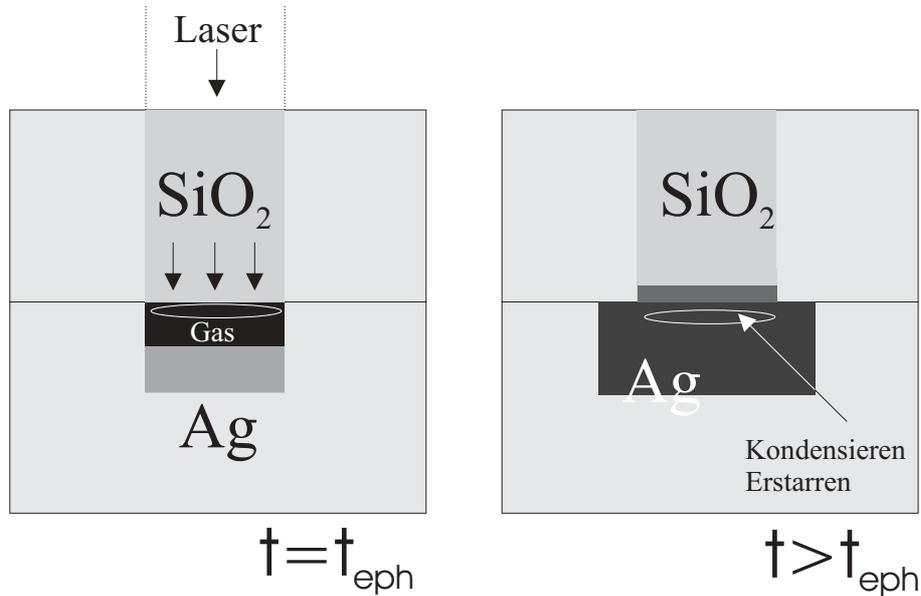


Abbildung 4.5: Verhinderung der Metall-Ablation in Hybriden durch eine SiO₂-Deckschicht. Dunklere Gebiete entsprechen höheren Temperaturen.

vität gewährleisten sollen, aber andererseits mit steigender Brechzahl n der höherbrechenden Schicht die Zerstörfluenz des Schichtsystems sinkt [76].

Im ultrakurzen Bereich sollten sich die Zerstörschwellen jedoch anheben lassen, indem auf eine Metallschicht eine oder mehrere dielektrische Schichten aufgebracht werden, die ihrerseits als $\lambda/4$ -System einen Teil der Strahlung vom Metall abhalten. Voraussetzung dafür ist natürlich, dass die Zerstörschwellen der verwendeten dielektrischen Schichten im beabsichtigten Pulsdauerbereich höher sind als die des Metallfilms.

Untersuchungen auf dem Gebiet der Hybride liegen bisher nur auf dem Gebiet der UV-Laseroptiken ($\lambda = 193 \text{ nm}$) vor. In [87] wurden Al-Filme mit mehreren Fluorid-HR-Schichten hinsichtlich Absorption und Zerstörschwellen überprüft, wobei ein Ansteigen der Zerstörschwelle mit der Anzahl der HR-Schichten verzeichnet wurde.

Abbildung 4.4 zeigt neben der gemessenen Pulsdauerabhängigkeit der Zerstörschwelle zweier reiner Metallfilme (Silber und Gold) von 500 nm Filmdicke auch die Ergebnisse mit zusätzlicher SiO₂-Schicht auf Silber und einem aus 3 Ta₂O₅/SiO₂-Schichten bestehenden HR-Spiegel auf Gold.

Im Falle des Gold/HR-Spiegel-Systems liegt die Zerstörschwelle in allen Pulsdauerbereichen unterhalb jener der Einzelsysteme (Abb. 4.2 und 4.4). Der zeitliche Verlauf deutet darauf hin, dass die dielektrische Schicht der Auslöser für die Zerstörung ist. Ein interessanter Fakt zeigt sich bei der Betrachtung der Werte des Ag/SiO₂-Systems. Silber hat eine gemessene Zerstörschwelle von 0.48 J/cm^2 , die Werte von SiO₂ liegen

oberhalb von $1.5 J/cm^2$ (Festkörper, $\tau > 40 fs$ [14]). Der SiO_2 -Film reflektiert selbst knapp 10% des einfallenden Lichts, die Zerstörschwelle des Hybrids sollte sich daher maximal auf $\sim 1.1 F_{th}^{Ag}$ verbessern. Schon bei 45 fs wird dieser Wert mit $1.2 F_{th}^{Ag}$ übertroffen, bei 500 fs gilt $F_{th}^{Hy} = 1.6 F_{th}^{Ag}$.

Wäre Absorption im Metall und anschließendes Aufschmelzen die alleinige Ursache für die Zerstörung des Hybrids, hinge die Zerstörschwelle nicht von der Pulsdauer ab. Das Dielektrikum hat demnach seinen Anteil am Verlauf der Kurve. *Shielding* des Metallfilms durch die erhöhte Elektronendichte im Leitungsband der SiO_2 -Schicht kommt als Ursache nicht in Frage, da dieser Effekt als intensitätsabhängiger Prozess (via σ_k) bei gleichbleibender Fluenz mit steigender Pulsdauer abnimmt.

Die um den Faktor 1.6 höhere Zerstörfluenz des Hybrids bei 400 fs bewirkt ein vollständiges Aufsieden der Silberoberfläche, diese erreicht bei $t \approx t_{eph}$ teilweise höhere Temperaturen als die Siedetemperatur. Das Entfernen des gasförmigen Materials von der Oberfläche wird jedoch durch die SiO_2 -Deckschicht verhindert (s. Abb. 4.5). Diese wurde weit genug unterhalb ihrer Zerstörschwelle bestrahlt, um noch im festen Zustand vorzuliegen und übt im Rahmen ihrer mechanischen Spannungsfestigkeit Gegendruck auf die Gasblase aus, die nicht expandieren kann. Ein Kühlmechanismus der Gasblase besteht in Erhitzen, Schmelzen und anfangs Verdampfen der benachbarten SiO_2 -Schicht. Es kommt zusätzlich zu einer Diffusion der Wärme nach Gleichung 3.12 in alle Richtungen, wobei der Diffusionskoeffizient $D = \kappa/C$ im Metall wesentlich höher ist. Der größte Teil der absorbierten Energie wird im Metall verteilt. Nachdem die Gasblase sich wieder verflüssigt hat, ist die Deckschicht keinem Druck mehr ausgesetzt, die Energie diffundiert unter Abkühlung und Erstarren der flüssigen Regionen in die gesamte Probe.

Die Ablation an derartigen Hybriden kann auf zwei verschiedene Arten ablaufen:

- Nur ein Teil der SiO_2 -Schicht wird aufgeschmolzen, der Druck der Gasblase überwindet den mechanischen Widerstand der restlichen Schicht. In diesem Fall wiesen die Ränder der Zerstörstellen Zersplitterung (Spallation) auf.
- Das Dielektrikum im Einflussbereich der Laserstrahlung wird vollständig geschmolzen und der mechanische Widerstand der Schicht unterbunden. Die Gasblase kann sofort expandieren und reißt das flüssige Dielektrikum mit. Die Ränder wären in diesem Fall glatt.

Im visuellen Mikroskop erschienen die Zerstörstellen auf den Ag/ SiO_2 -Proben meist mit glattem Rand, was auf Schmelzen der SiO_2 -Schicht als Auslöser der Ablation hindeutet. Sehr selten waren abgesplitterte Bereiche zu erkennen.

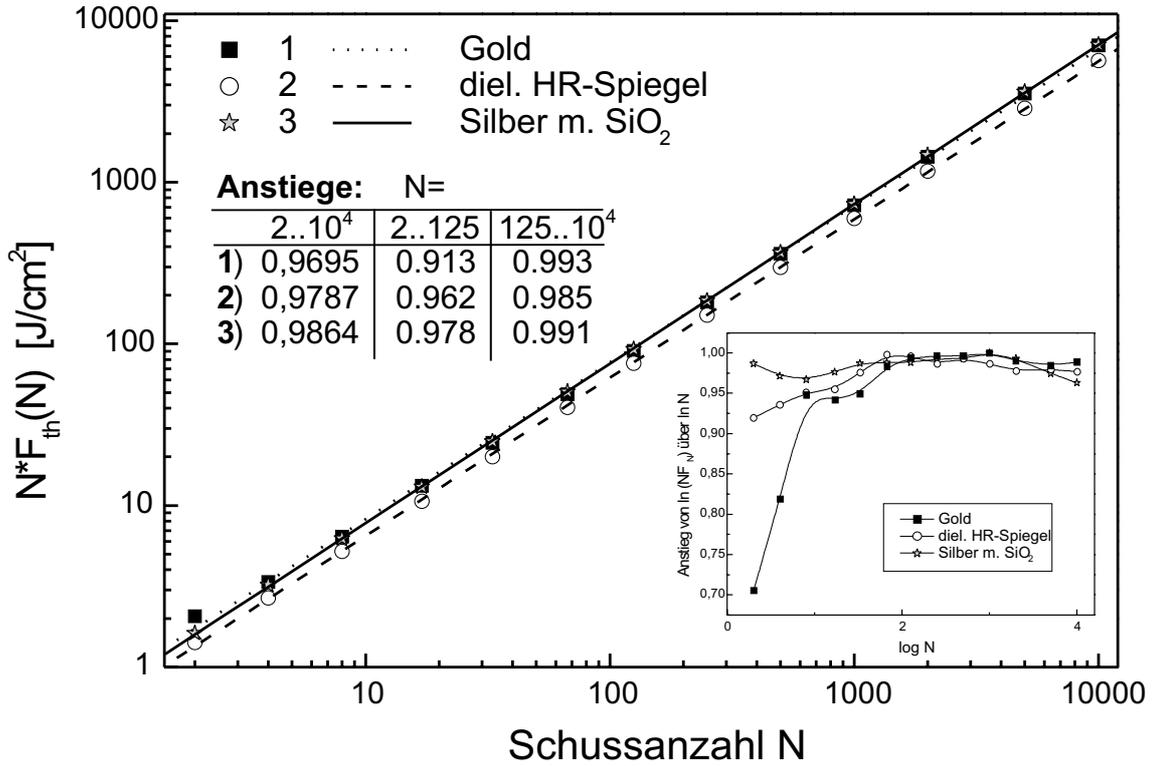


Abbildung 4.6: Vergleich des Multischussverhaltens je eines Metalls (Gold), eines dielektrischen Schichtsystems ($\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$) und einer Hybrid-Lösung (Silber mit einer SiO_2 -Schicht).

4.4 Multischusseexperimente

Für den routinemäßigen Einsatz von Laseroptik ist es oft von Belang, deren Verhalten im Bezug auf lang andauernde Laserbestrahlung zu studieren. Nach [88] gilt folgende Beziehung zwischen der Zerstörschwelle F_N nach N applizierten Schüssen und der Einzelschusszerstörschwelle F_1

$$F_N = F_1 \cdot N^{S-1}. \tag{4.5}$$

Den Anstieg S der Akkumulationskurve erhält man aus Diagramm 4.6, in dem die akkumulierte Fluenz $N \cdot F_N$ über N in doppelt-logarithmischer Darstellung aufgetragen ist. Je kleiner S ist, desto mehr Energie wird pro Schuss dauerhaft in der Probe deponiert und trägt beim nächsten Schuss zum Absenken der Zerstörschwelle bei.

Die innere Abbildung 4.6 zeigt die numerische Ableitung $\partial \log(N \cdot F_N) / \partial \log(N)$ und damit eine Abschätzung von S bei der Schussanzahl N . Diese Abschätzung ergibt zumindest für Goldfilm und HR-Spiegel eine deutliche Abhängigkeit von S von der Anzahl der bereits applizierten Schüsse. Während der Anstieg über die ersten sieben Messpunkte aller Kurven ($N=2 - N=125$) niedriger ausfällt als über alle 13 Punkte,

erreicht er für die letzten sieben Punkte ($N=125$ - $N=10^4$) nahezu 1.

In [88] wird vorgeschlagen, dass die Abnahme der F_N mit steigendem N auf Energiespeicherung in Form mechanischer Spannungen und Verformungen im Probenvolumen basiert. Die Herleitung der Spannungsamplitude σ (Gl. 6 in [88]) impliziert dabei ein der Gleichung 4.5 ähnliches Verhalten, infolgedessen $\partial \log(N \cdot F_N) / \partial \log(N)$ über den gesamten Bereich von N und die in [88] verwendeten Parameter n (cyclic strain-hardening exponent), b (fatigue-strength exponent) und c (fatigue-ductility exponent) konstante Werte annähmen.

Das Ergebnis der hier vorgestellten Messungen impliziert jedoch eine umso geringere mechanische Veränderung der Probe mit jedem Schuss, je höher die Anzahl der vorher bereits applizierten Schüsse ist, wodurch sich n , b und c teilweise weit außerhalb der in [88] angegebenen Bereiche bewegen.

Der für Gold ermittelte Wert $S = 0.993$ für $N > 125$ hat zur Folge, dass sich die Zerstörfluenz von 0.50 J/cm^2 bei 10^4 Schuss auf lediglich 0.44 J/cm^2 bei 10^{11} Schuss (entspricht drei Jahren Dauerbetrieb bei 1 kHz Rep'rate) verringert. Der Verschleiß optischer Bauelemente dürfte damit weniger auf mechanische Energiedeposition als vielmehr auf Änderung der optischen Eigenschaften durch Ablagerung von Verunreinigungen und chemische Modifikation zurückzuführen sein.

4.5 Referenzmessungen

4.5.1 Round-Robin-Experimente

Im Verlauf der Messungen ergab sich die Möglichkeit, gemessene Zerstörschwellen mit am Laserzentrum Hannover ermittelten Werten der gleichen Charge zu vergleichen. Bei der Betrachtung der Ergebnisse in Tabelle 4.1 fällt auf, dass eine Übereinstimmung aller Werte innerhalb des üblicherweise angegebenen Zerstörschwellen-Fehlerintervalls von $\pm (20-30)\%$ vorliegt. Die ermittelte Abweichung von 11% mittl. Fehlerquadrat (*rms*) stellt einen sehr guten Wert für untereinander nicht abgegliche Messplätze dar. Während die Mittelwerte der Fluenzen bei 150 fs tendenziell übereinstimmen, wurden an der FSU Jena bei 500 fs Werte ermittelt, die ca. 10% unter denen des LZH lagen. In Jena wurde keine Abhängigkeit der Intensitätsverteilung im Fokus von der Pulsdauer festgestellt, die Abweichungen in der beobachteten Größenordnung zur Folge hätte.

Vergleichende Messungen zweier identischer Probenserien konnten im Verlauf der Arbeit auch in der Bundesanstalt für Materialforschung und -prüfung Berlin durchgeführt werden (Messung Juli 2001 in Abb. 4.7). Auch die dort ermittelten Abweichungen der Werte liegen innerhalb des üblichen Fehlerintervalls.

Probe	FSU Jena $F_{th}[J/cm^2]$ (τ)	LZ Hannover $F_{th}[J/cm^2]$ (τ)	$\Delta F_{th}/\overline{F_{th}}$
Au	0.72 (50 fs)	0.61 (150 fs)	0.08
Au enhanced ¹	0.64 (150 fs)	0.52 (150 fs)	0.10
Ag m. Schutz ²	0.84 (150 fs)	0.84 (150 fs)	0.00
Ta ₂ O ₅ /SiO ₂ A	0.77 (150 fs)	0.82 (150 fs)	0.03
Ta ₂ O ₅ /SiO ₂ A	0.95 (500 fs)	1.10 (500 fs)	0.07
Ta ₂ O ₅ /SiO ₂ B	0.54 (500 fs)	0.64 (500 fs)	0.08
Ta ₂ O ₅ /SiO ₂ $\lambda/4$	0.76 (500 fs)	0.85 (500 fs)	0.06
<i>Ag enhanced¹</i>	0.44 (50 fs)	0.50 (150 fs)	0.06
<i>TiO₂/SiO₂</i>	0.50 (50 fs)	0.35 (150 fs)	0.18
<i>Ta₂O₅/SiO₂ B</i>	0.42 (50 fs)	0.54 (150 fs)	0.12
<i>Ta₂O₅/SiO₂ $\lambda/4$</i>	0.50 (50 fs)	0.64 (150 fs)	0.12
<i>Au enhanced¹</i>	0.70 (500 fs)	0.90 (1.0 ps)	0.12
<i>Ag enhanced¹</i>	0.60 (500 fs)	0.75 (1.0 ps)	0.11
<i>TiO₂/SiO₂</i>	0.46 (500 fs)	0.90 (1.0 ps)	0.32
¹⁾ 3 Pärchen Ta ₂ O ₅ /SiO ₂		$\overline{F_{th}} = 1/2 (F_{th,1} + F_{th,2})$	
²⁾ eine $\lambda/4$ -Schicht SiO ₂		$\Delta F_{th} = F_{th,i} - \overline{F_{th}} $	

Tabelle 4.1: Zerstörschwellenwerte verschiedener Proben derselben Charge, gemessen an der FSU Jena bzw. am LZ Hannover, im Vergleich. Die Anzahl der Pulse betrug in allen Fällen 10000. Die kursiv gedruckten Materialien lassen wegen der Pulsdauerabhängigkeit ihrer Zerstörschwellen und der Differenzen in der applizierten Pulsdauer τ nur einen indirekten Vergleich der Werte über F_{th}/τ -Diagramme des Materials zu. Die Fluenz ist in dieser Tabelle als Fluenz im Strahl angegeben, der Einfallswinkel war 45° , TE.

4.5.2 Referenzproben

Die Genauigkeit der bestimmten Zerstörschwellen lässt sich durch wiederholte Messungen derselben Probe über einen längeren Zeitraum abschätzen und verbessern, wobei darauf zu achten ist, dass die Probe keine Langzeitabhängigkeit der Zerstörschwelle aufweist, wie sie zum Beispiel durch die Oxydation der Oberfläche von Silberschichten auftritt.

Zu diesem Zweck wurden zu Beginn jedes Messtags bis zu drei verschiedene Referenzproben vermessen (vgl. Abb. 4.7). Die hierbei ermittelten statistischen Schwankungen betragen 15% *rms* für die Gesamtheit aller drei Proben; dieser Wert wurde als mittleres Fehlerintervall übernommen.

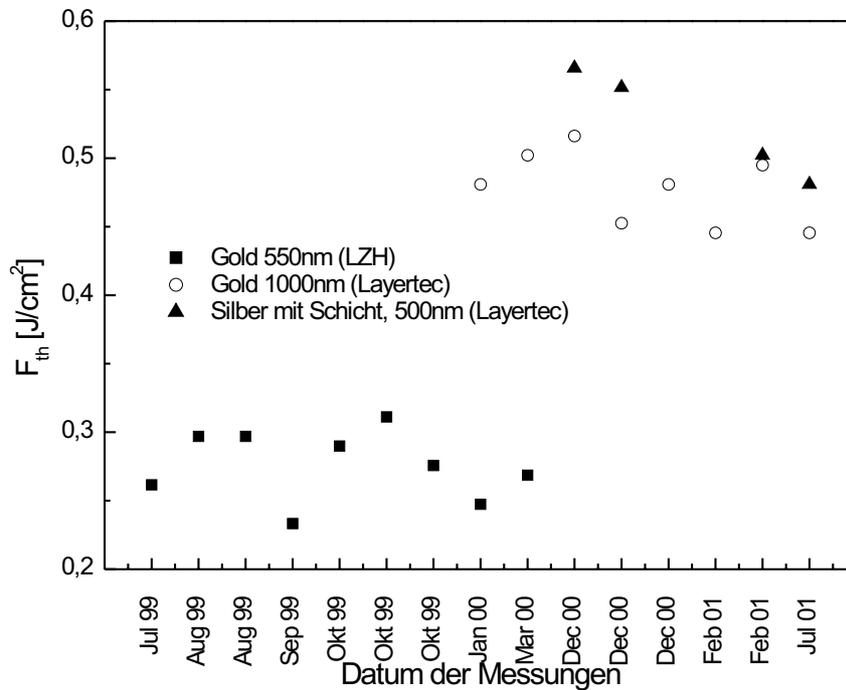


Abbildung 4.7: Zerstörschwellenmessungen an Referenzproben. Alle Messungen bis auf jene von Juli 2001 (BAM, $\tau_{Puls}=120$ fs) wurden am Jenaer kHz-System bei 50 fs durchgeführt. Der Grund für den Wechsel der Referenzprobe im März 2000 bestand darin, dass die von Juli 1999 an verwendete Goldprobe keinerlei freie Stellen für weitere Zerstöreperimente aufwies.

Die Gründe für die Einführung zusätzlicher Referenzproben im Januar 2000 und Dezember 2000 war der, dass die erste Probe im März 2000 keine unzerstörten Gebiete mehr aufwies und erst im Dezember 2000 die Nützlichkeit mehrerer gleichzeitig vermessener Referenzproben erkannt wurde. Einer weiteren Erhöhung der Anzahl der Referenzproben stand die eingeschränkte Laserzeit entgegen.

Immer dann, wenn mehrere Referenzwerte pro Messtag vorliegen (in Abb. 4.7 von Januar 2000 bis Juli 2001), lassen sich Fehler bei der Energie- oder Flächenbestimmung des Laserspots eliminieren, indem die Abweichungen aller Referenzwerte des Messtags von deren langfristigem Mittelwert bestimmt werden. Zeigen alle Abweichungen die gleiche Tendenz, deutet dies auf Unterschiede im Messregime der verschiedenen Tage hin. Nur in diesem Fall macht es Sinn, die Abweichung ΔF_{th} vom langfristigen

Mittelwert zu bestimmen durch

$$\Delta F_{th} = \frac{1}{n} \sum_{i=1}^n [F_{th,i} - \langle F_{th,i} \rangle], \quad (4.6)$$

wobei n die Anzahl der Referenzproben des Messtags ist.

Kapitel 5

Gitter- und Kompressortheorie

Im folgenden Kapitel sollen die theoretischen Grundlagen für die in Kapitel 6 folgende Auswertung der Messungen an Gittern und Kompressoren geschaffen werden. Ausgehend von einer kurzen Vorstellung von CPA-Systemen werden die Begriffe des spektralen Abschneidens, der spektralen Übertragungsfunktion, der Effizienzbestimmung und der Phasendispersion mathematisch und begrifflich geklärt. Beispiele werden anhand eines Designs gerechnet, das im Versuchsaufbau vom Kapitel 6 in der Praxis untersucht werden konnte.

5.1 Daten des Testsystems

Die folgenden Betrachtungen werden durch eine Beispielkonfiguration veranschaulicht. Es handelt sich dabei um das Design eines Kompressors aus dielektrischen Gittern ($\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ HR-Stack, korrigierte SiO_2 Deckschicht), der für ein TiSa-Lasersystem bei einer Zentralwellenlänge von 795 nm und eine Pulsdauer von 100 fs optimiert wurde [89]. Die Liniendichte der Gitter beträgt 1800 l/mm, was einem Littrowwinkel (Einfallswinkel = Ausfallswinkel) von 45.68° entspricht.

5.2 CPA-Systeme und Gitterkompressoren

Die Anwendung des CPA-Verfahrens (*chirped pulse amplification*) [1] hat in den letzten Jahren zu einer wesentlichen Erhöhung der erreichbaren Laserleistung bis in den Petawatt-Bereich geführt [90]. Insbesondere kompakte Tischgeräte sind von Interesse, da sie vielfältige neuartige Anwendungen in der Medizin, in der Materialverarbeitung oder in der Spektroskopie ermöglichen. Die Weiterentwicklung solcher Systeme hat vor allem die Erhöhung der Zuverlässigkeit und der Laserleistung zum Ziel, bei gleichzeitiger Verringerung der Abmessungen und Kosten.

Die Leistungsfähigkeit von CPA-Systemen ist in den meisten Fällen durch die Zerstörschwelle des letzten Kompressorgitters begrenzt. Die gesamte, dem Kompressor nachfolgende Laseroptik muss zwar die gleichen Strahlintensitäten aushalten können, durch die Strukturierung des Gitters kommt es jedoch zu Feldstärkeüberhöhungen, welche die Zerstörschwelle heruntersetzen.

Um die Grenzintensitäten zu erhöhen, bietet es sich an, Reflexionsgitter herzustellen, die vollständig aus dielektrischem Material bestehen [89,91,92]. Die Beugung in dielektrischen Gittern basiert auf der Interferenz zwischen dem an einem Oberflächengitter gebeugten und dem durch ein $\lambda/4$ -Schichtsystem zurück gespiegelten Licht. Durch Anpassung der Gitterparameter ist es theoretisch möglich, nahezu 100% des einfallenden Lichtes in die reflektive -1. Ordnung in Littrow-Anordnung zu beugen. Alle anderen Ordnungen überlagern sich destruktiv oder sind evaneszent [89].

5.3 Das CPA-Konzept

Das CPA-Konzept beruht darauf, dass der Oszillator-Puls vor der Verstärkung mit Hilfe dispersiver Elemente zeitlich um das 100- bis mehr als 10.000-fache gestreckt wird. Um den gleichen Faktor verringert sich die Intensität des Seed-Pulses, wodurch ein höherer Verstärkungsfaktor und damit ein gesteigerter Energiedurchsatz möglich ist. Im konventionellen (Nicht-CPA-)Lasersystem ist der Verstärkungsfaktor durch die Zerstörschwelle der im Verstärker verwendeten optischen Bauelemente limitiert. Nach erfolgter Verstärkung wird der Puls mittels dispersiver Elemente komprimiert. Diese sind so angeordnet, dass der im Strecker und den nachfolgenden optischen Komponenten eingebrachte Chirp idealerweise genau kompensiert wird. Dabei ist jedoch zu beachten, dass jedes vom Strahlengang durchlaufene Bauelement des Lasersystems seine materialtypische Dispersion in die Frequenzmodulation einbringt. Darüberhinaus modifizieren nichtlineare Effekte bei hohen Intensitäten den Chirp zusätzlich. Eine genaue Analyse der im Lasersystem verwendeten optischen Materialien und deren Auswirkungen auf den Gesamtchirp unter Beachtung der Leistungsparameter des Systems (Ausgangsleistung, Pulsdauer/Bandbreite) ist daher unerlässlich für das Design eines CPA-Kompressors.

5.3.1 Aufbau und Strahlenverlauf

Abbildung 5.1 skizziert den Verlauf der Strahlen einzelner Wellenlängen im Standard-Treacy-Kompressor [93]. Der Eingangsstrahl, der alle Frequenzkomponenten enthält, fällt auf das erste Kompressorgitter und wird dort abhängig von der Wellenlänge gebeugt. Der Ausfallswinkel $\theta_a(\lambda)$ bei der Wellenlänge λ ist durch die Gittergleichung

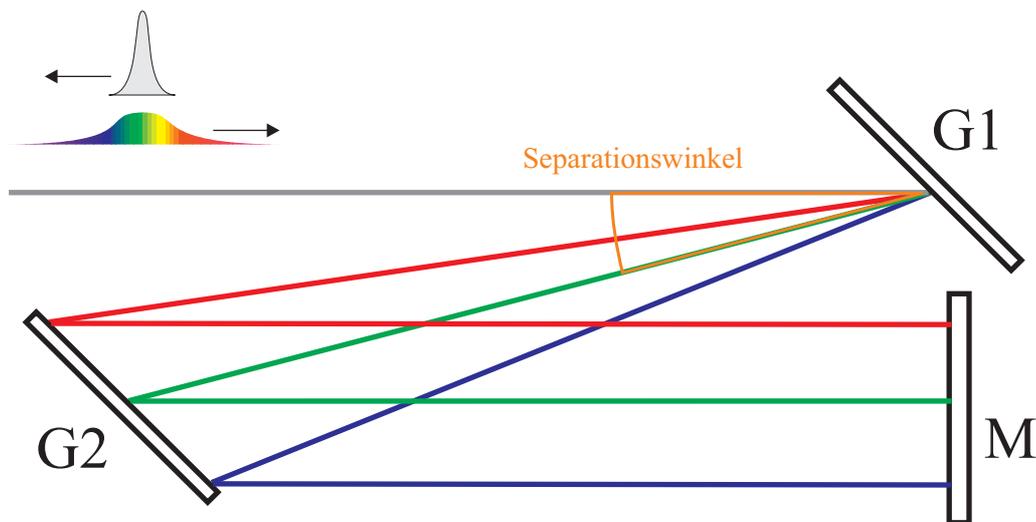


Abbildung 5.1: Strahlenverlauf in einem Standard-Treacy-Kompressor.

bestimmt:

$$\theta_a(\lambda) = \arcsin(\sin \theta_e(\lambda) + m \frac{\lambda}{d}), \quad (5.1)$$

wobei m die Beugungsordnung ist, d die Gitterkonstante und θ_e der Einfallswinkel sind. Das zweite Gitter ist genau parallel zum ersten angeordnet, so dass der Ausfallswinkel $\theta_a(\lambda)$ am ersten Gitter gleich dem Einfallswinkel $\theta_e(\lambda)$ am zweiten Gitter ist. Aus der Gittergleichung (5.1) folgt zusätzlich, dass der Einfallswinkel am ersten Gitter dem Ausfallswinkel am zweiten Gitter entspricht, unabhängig von λ .

Für jede Wellenlänge lässt sich ein Winkel bestimmen, bei dem der Strahl das beugende Gitter in der -1. Ordnung unter dem gleichen Winkel verlässt, in dem er eingefallen ist. Dieser Winkel wird Littrowwinkel $\theta_L(\lambda)$ genannt und ist durch Gleichung 5.1 bestimmt:

$$\theta_L(\lambda) = \arcsin\left(\frac{\lambda}{2d}\right). \quad (5.2)$$

Der Separationswinkel $\theta_S = \theta_e(\lambda) - \theta_a(\lambda)$ ist in diesem Fall gleich 0.

5.4 Definition der Effizienz von Gittern und Kompressoren

Als Effizienz η eines Gitters oder Kompressors wird das Verhältnis der Ausgangsenergie in der gewünschten Beugungsordnung zur zu Eingangsenergie bezeichnet. Im Falle

der Beugung an einem einzelnen Gitter ergibt sich η zu

$$\eta = \left[\int_0^\infty E_S(\lambda) R_S(\lambda) d\lambda \right] - v_s \quad (5.3)$$

$E_S(\lambda)$ – spektrale Energiedichte
 $R_S(\lambda)$ – spektrale Übertragungsfunktion
 $v_s(\lambda)$ – Streuverluste.

Die spektrale Energiedichte $E_S(\lambda') = \frac{dE}{d\lambda} \Big|_{\lambda'}$ sei zur Erleichterung der Rechnung normiert, d. h.,

$$\int_0^\infty E_S(\lambda) d\lambda = 1. \quad (5.4)$$

Auf die spektrale Übertragungsfunktion wird in Abschnitt 5.5 näher eingegangen. Soll die Effizienz eines Kompressors bestimmt werden, sind zusätzlich Verluste durch spektrales Abschneiden (beschrieben durch die Ortsabhängigkeit des übertragenen Spektrums) zu beachten. Beiden Effekten wird mit der Clipping-Funktion $C_S(\lambda, x)$ Rechnung getragen, die in Abschnitt 5.6 beschrieben wird.

Zuerst soll jedoch kurz das Hauptarbeitsmittel bei der theoretischen Effizienzbestimmung - die elektromagnetische Gittertheorie - vorgestellt werden. Der erste Lösungsansatz in dieser Hinsicht wurde von Lord Rayleigh beschrieben [94]. Während es noch heute üblich ist, die Ausbreitung der elektromagnetischen Felder außerhalb des Gitters durch eine Reihenentwicklung als spezielle Lösung der Helmholtz-Gleichung - die *Rayleigh expansion* - darzustellen, führt diese Vorgehensweise, im Inneren des Gitters angewendet, zu numerischen Problemen. Skalare Theorien versagen, wenn die Gitterparameter die Größenordnung der Wellenlänge erreichen und unterschreiten. Den Ausweg aus der Situation bieten rigorose Vektortheorien, wie sie seit einiger Zeit in vielfältiger Form vorgeschlagen wurden [95, 96]. Aus der Vielzahl der angebotenen Lösungen seien als Beispiele die BKK-Methode [97–99] sowie die Familien der modalen [100–105] und der RCWA-Methoden [106–109] genannt.

Die Anforderungen an die Theorie sind vielfältig: Sie sollte Mehrschichtsysteme (Mehrschicht-Spiegel+Gitter), korrugierte Gitter, Spiegel und Substrat behandeln können und gleichzeitig in jedem gerechneten Fall konvergieren.

Die RCWA-Methode wurde in der in Anhang A vorgestellten Form deshalb bevorzugt, weil sie es ermöglicht, Gitterprofile beliebiger Form und Abmessungen sowie beliebigen Materials ohne Beschränkung der numerischen Stabilität zu rechnen. Dies wird durch den Übergang zu physikalisch sinnvollen Matrixelementen durch Zwischenschritte in der Matrixkopplung erreicht, die Konvergenzprobleme für dicke, dämpfende Schichten und hohe, evaneszente Ordnungen beseitigt.

Für diese Arbeit wurde eine Implementation dieser Methode nach Anhang A in Gestalt eines professionellen Programms in der Beta-Phase verwendet [110].

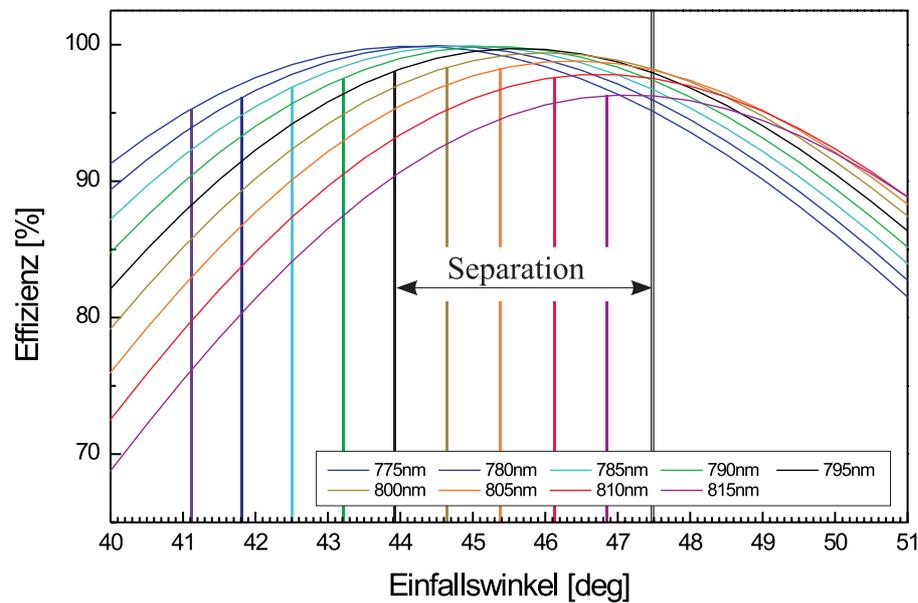


Abbildung 5.2: Beugungseffizienz eines dielektrischen Gitters in Abhängigkeit von Wellenlänge und Winkel. Wählt man einen festen Einfallswinkel (graue Säule), resultiert für jede Wellenlänge ein bestimmter Ausfallswinkel (farbige Linien). Die Effizienz des Gitters bei einer bestimmten Wellenlänge ergibt sich aus den Schnittpunkten der entsprechenden Kurve mit den Senkrechten bei Ein- oder Ausfallswinkel.

5.5 Spektrale Übertragungsfunktion

Die spektrale Übertragungsfunktion $R_S(\lambda)$ gibt an, wie hoch die Effizienz der -1. Beugungsordnung in Abhängigkeit von der Wellenlänge ist. Sie kann sowohl für die einfache Beugung an einem Gitter als auch für den gesamten Strecker oder Kompressor (Beugung an mehreren Gittern, ohne spektrales Abschneiden!) angegeben werden. Vor allem bei dielektrischen Gittern hängt die Effizienz stark vom Separationswinkel ab - die spektrale Übertragungsfunktion gilt daher immer nur für ein bestimmtes Kompressordesign oder einen festen Einfallswinkel.

In Abbildung 5.2 ist die Winkelabhängigkeit der Beugungseffizienz für die im Testsystem relevanten Spektralanteile aufgezeigt. Wird ein Einfallswinkel auf dem ersten Gitter vorgegeben (graue Säule), unterscheiden sich die Austrittswinkel für jede Wellenlänge. Die Austrittswinkel des ersten Gitters entsprechen den Einfallswinkeln auf dem zweiten Gitter, dessen Austrittswinkel entspricht dem Einfallswinkel des ersten Gitters. Die Effizienz beider Gitter bei einer bestimmten Wellenlänge ergibt sich somit aus den Schnittpunkten der entsprechenden Kurve mit den Senkrechten bei Ein-

oder Ausfallswinkel.

In einem realen Kompressor gibt es einen verbotenen Bereich für den Einfallswinkel am ersten Gitter, welcher auf die endlichen Abmessungen des zweiten Gitters zurückzuführen ist - der Strahl muss das zweite Gitter passieren, bevor er vom ersten gebeugt wird (s. Abb. 5.1). Die Passage kann in der Einfallsebene stattfinden (zwei Möglichkeiten: $\theta_e < \theta_L$ oder $\theta_e > \theta_L$) oder oberhalb des zweiten Gitters.

In jedem Fall wird in einem realen 2-Gitter-Kompressor eine gewisse Strahlablenkung in Richtung der Gitterlinien (\mathbf{z}) geschehen müssen - dies ist auf die nötige Separation von ein- und austretendem Strahl zurückzuführen. Dies führt zum sogenannten Fall des *conical mounting*, bei dem TE- und TM-Moden miteinander gekoppelt sind, und zwar umso mehr, je größer der Winkel θ_z in z -Richtung ausfällt. Da Gitter für Kompressoren häufig für eine Polarisation optimiert werden, sinkt die Effizienz mit steigendem θ_z . Konstruktionsbedingt ist dieser Winkel θ_z für die senkrechte Passage des zweiten Gitters vor der ersten Beugung mindestens dreimal größer als bei den beiden anderen genannten Fällen.

Abbildung 5.3 zeigt die spektrale Übertragungsfunktion für ein einzelnes Gitter und für das Kompressor-Testsystem (vier Beugungen), ohne Berücksichtigung des spektralen Abschneidens. Den verschiedenen Einfallswinkeln entspricht eine Verstimmung des HR-Spiegels unter dem Oberflächen-Gitter hin zu kürzeren ($\theta_e < \theta_L$) bzw. längeren ($\theta_e > \theta_L$) Wellenlängen. Deshalb werden höhere Effizienzen für kürzere Wellenlängen bei kleineren Einfallswinkeln erreicht. Welcher Winkel letztendlich zu wählen ist, hängt davon ab, welche der beiden Übertragungsfunktionen nach Multiplikation mit dem einfallenden Spektrum und nachfolgender Integration bzw. Fouriertransformation die besseren Resultate liefert.

5.6 Spektrales Abschneiden

5.6.1 Berechnung der Grenz-Wellenlängen

Je nach Design des Kompressors und verfügbarer Größe der verwendeten Gitter existieren zwei Grenzwellenlängen, bei denen die gebeugten Strahlen gerade noch vollständig auf das zweite Gitter fallen (vgl. Abb. 5.1). Alle Wellenlängen, die außerhalb dieses Intervalls liegen, werden zum Teil oder vollständig abgeschnitten (*spectral clipping*). Die verlorengegangenen Frequenzkomponenten fehlen im komprimierten Strahl und führen selbst bei idealer Kompensierung der Phasendisersion höherer Ordnung zur Verlängerung der Pulsdauer und zu Nebenpulsen (vgl. Abbildung 5.4). Die Grenz-Wellenlängen λ_{max} und λ_{min} in einem Treacy-Kompressor lassen sich im idealisierten Falle eines einfallenden Strahls ohne Strahldurchmesser mittels des fol-

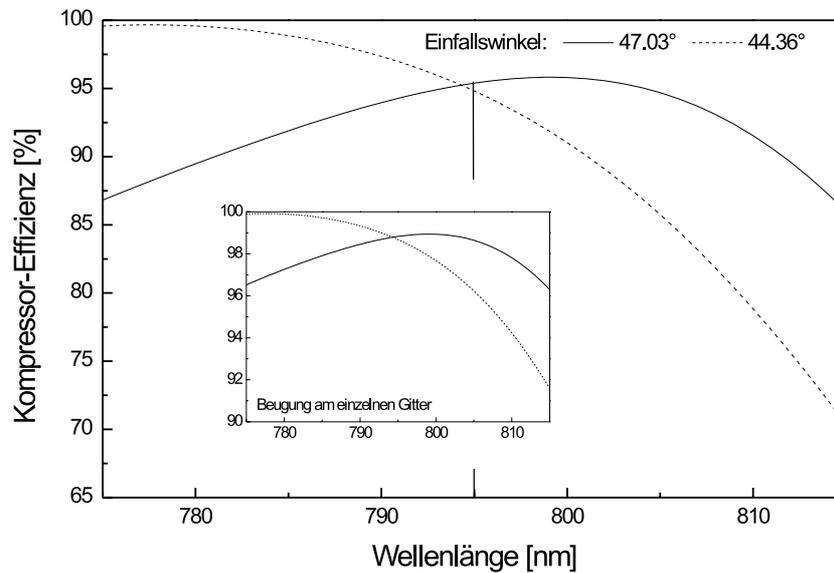


Abbildung 5.3: Berechnete Effizienz eines dielektrischen Testsystem-Kompressors in Abhängigkeit von der Wellenlänge bei einem Separationswinkel von 2.68° . Durch die feste Separation sind nur zwei Einfallswinkel möglich: einer unterhalb und einer oberhalb des Littrowwinkels. In diesem Fall ergibt sich für $\theta_e > \theta_L$ eine etwas größere Effizienz.

genden Gleichungssystems bestimmen:

1. Die Gittergleichung für λ_{min} und die -1. Ordnung lautet:

$$\sin \theta_{min} = \lambda_{min}/d - \sin \theta_e, \quad (5.5)$$

wobei θ_i der Einfallswinkel, d die Gitterkonstante, λ_{min} die untere Grenz-Wellenlänge und θ_{min} der Ausfallswinkel bei λ_{min} ist.

2. In Analogie zu Gleichung 5.5 gilt für λ_{max} :

$$\sin \theta_{max} = \lambda_{max}/d - \sin \theta_e. \quad (5.6)$$

3. Die Bedingung, dass auf beiden Seiten in gleichem Abstand von der Zentralfrequenz abgeschnitten wird, soll erfüllt werden:

$$\frac{1}{\lambda_{min}} + \frac{1}{\lambda_{max}} = \frac{2}{\lambda_C} \quad (5.7)$$

4. Die Kompressorparameter Separation l_s und Gitterbreite b fließ wie folgt ein:

$$b = l_s \cos \theta_C (\tan \theta_{max} - \tan \theta_{min}). \quad (5.8)$$

θ_C ist der Ausfallswinkel der Zentralwellenlänge.

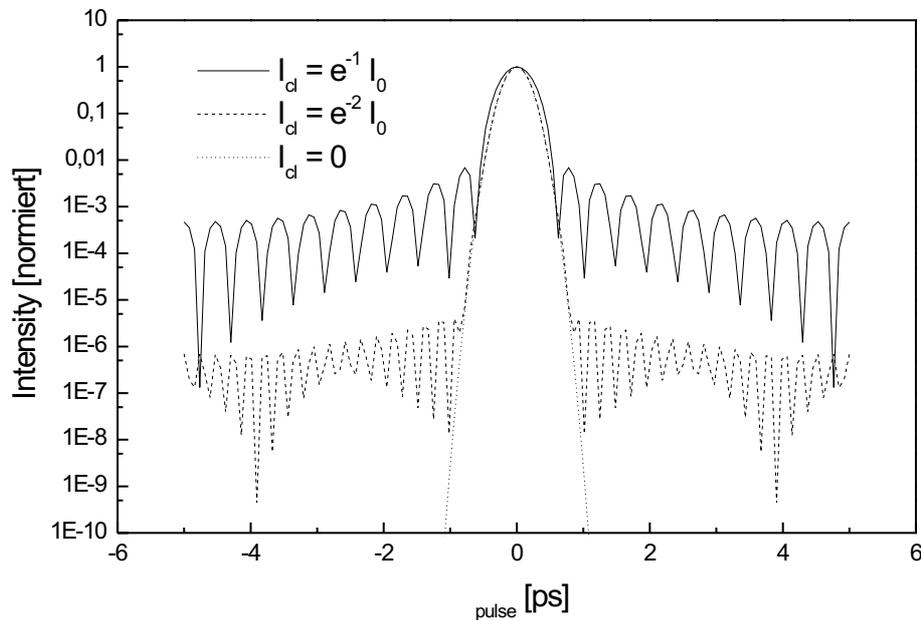


Abbildung 5.4: Zeitlicher Pulsverlauf für einen spektral gaußförmigen Puls, bei dem alle Frequenzanteile für $I_{cl} < e^{-1} I_{max}$, $I_{cl} < e^{-2} I_{max}$ und $I_{cl} = 0$ abgeschnitten wurden.

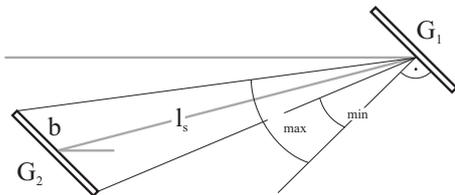


Abbildung 5.5: Skizze zur Berechnung der Grenz-Wellenlängen.

Die Lösung dieses Gleichungssystem ist aufgrund der transzendenten Funktionen recht kompliziert darzustellen, numerisch jedoch schnell umsetzbar. Es zeigt sich, dass die Grenz-Wellenlängen, bedingt durch den inversen Charakter von Gleichung 5.7, leicht asymmetrisch zur Zentralwellenlänge liegen. Desweiteren verändert sich die Grenz-Wellenlänge mit der Separation zwischen Einfallswinkel und Littrowwinkel (vgl. Abb. 5.6). Es muss beachtet werden, dass die Separation der Gitter einer Neujustage bedarf, wenn man den Einfallswinkel bzw. Separationswinkel im Kompressor ändert.

Wird bei einem spektral gaußförmigen Puls bei $\omega_0 \pm$ (FWHM) abgeschnitten, gewinnt ($\theta_e > \theta_L$) oder verliert ($\theta_e < \theta_L$) man bei 5° Separation im Vergleich zum Littrowfall bei Einfallswinkeln um 45° ca. 0.7% der Gesamtenergie des Pulses.

Je breitbandiger ein zu verstärkender Puls ist, desto größer ist der von allen relevanten Frequenzkomponenten aufgespannte Winkelbereich, den es mit dem zweiten Gitter abzudecken gilt. Daraus folgt, dass die Separation zwischen Ein- und Ausfallswinkel

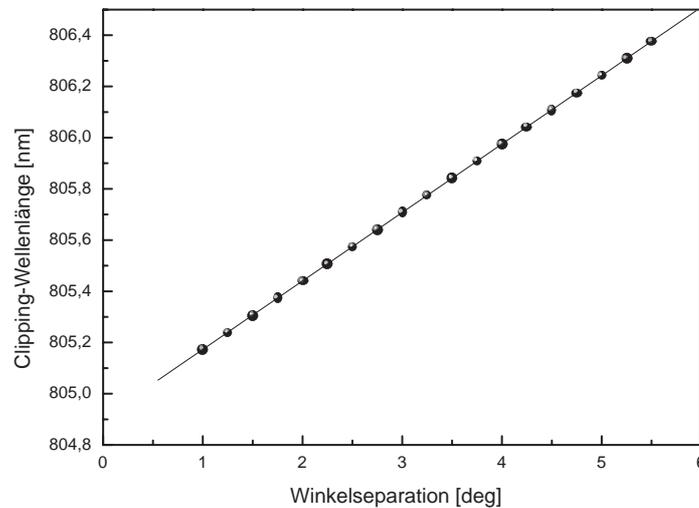


Abbildung 5.6: Grenz-Wellenlänge λ_{max} in Abhängigkeit von der Separation zwischen Einfallswinkel und Littrowwinkel. Dieser Kurvenverlauf ergibt sich bei $\theta_e > \theta_L$, im umgekehrten Fall nimmt λ_{max} mit der Separation ab.

der Zentralwellenlänge des Pulses mit zunehmender Bandbreite steigen muss (siehe Abschnitt 5.8).

Sind die Gitterabmessungen und eine Obergrenze für das spektrale Abschneiden vorgegeben, ist mithin die maximal mögliche Separation der Kompressorgitter vorgeschrieben. Daraus folgend kann der maximale zeitliche Streckungsfaktor bei einmaligem Durchlauf des Kompressors nicht beliebig hoch gewählt werden. Größere Streckungs- oder Komprimierungsverhältnisse erreicht man dann nur durch Mehrfachdurchläufe - auf Kosten der Effizienz.

5.6.2 Die Übertragungsfunktion C_S

Im Falle eines endlichen Strahldurchmesser muss ein Bezugspunkt definiert werden, wenn Grenz-Wellenlängen angegeben werden sollen. Im Falle von symmetrischen, räumlichen Strahlprofilen ist das im Allgemeinen der Mittelpunkt des Strahles, bei asymmetrischen Strahlprofilen bezieht man sich auf den Punkt der höchsten Intensität (*hottest spot*).

Für die Grenz-Wellenlängen liegt damit der Bezugspunkt des Strahles genau auf dem Rand des Gitters. Das bedeutet, dass Anteile dieser Wellenlänge das Gitter rechts oder links passieren. Die Gitterkante wirkt wie eine Schneide, die einen umso größeren Teil

des Strahles blockiert, je weiter die entsprechende Wellenlänge außerhalb der Grenzwellenlänge liegt. Die Folge ist eine laterale Abhängigkeit der im Strahl enthaltenen Spektralkomponenten. Für die weiteren Erläuterungen in diesem Abschnitt wird ein Koordinatensystem so in den Strahlquerschnitt gelegt, dass die x -Achse mit der dispersiven Ebene der Gitter übereinstimmt und x für die Strahlanteile am größten ist, die das zweite Gitter vor dem Einfall auf das erste Gitter im weitesten Abstand passieren. Für den Bezugspunkt (Strahlmittelpunkt oder *hottest spot*) gelte $x = 0$. Für den im Folgenden betrachteten Fall $\theta_e > \theta_L$ sind alle Strahlanteile mit $x > 0$ blauverschoben, da die Zentralwellenlänge dieses Strahlanteils das zweite Gitter auf der roten Seite des Spektrums des Bezugspunktes trifft und der rote Anteil des Spektrums deshalb früher abgeschnitten wird, während der blaue Anteil hinzugewinnt. Für die Ermittlung der Grenz-Wellenlängen für Strahlkomponenten mit $x \neq 0$ ist das Gleichungssystem 5.5-5.8 ungeeignet, da das Spektrum nur im Fall $x = 0$ symmetrisch abgeschnitten wird und Gleichung 5.7 ausschließlich in diesem Fall gilt.

Für die Ermittlung der Grenz-Wellenlängen im asymmetrischen Fall $x \neq 0$ müssen zunächst die Impaktparameter $\Delta_{max}(0)$ und $\Delta_{min}(0)$ bestimmt werden. $\Delta_{max}(x)$ entspricht dem Abstand der oberen Grenz-Wellenlänge von der Zentralwellenlänge auf dem zweiten Gitter (bei Abstand x zum Bezugspunkt des Strahls):

$$\Delta_{max}(x = 0) = l_s \cos \theta_C \left(\frac{\lambda_{max} - \lambda_C}{d} \right) \quad (5.9)$$

$$\Delta_{min}(x = 0) = l_s \cos \theta_C \left(\frac{\lambda_C - \lambda_{min}}{d} \right) \quad (5.10)$$

Ist $x \neq 0$, verschieben sich alle Spektralkomponenten auf dem zweiten Gitter um $x / \cos \theta_e$. Für die Grenz-Wellenlängen ergibt sich somit

$$\lambda_{max}(x) = \lambda_C + \frac{d(\Delta_{max}(0) - x / \cos \theta_e)}{l_s \cos \theta_C} \quad (5.11)$$

$$\lambda_{min}(x) = \lambda_C - \frac{d(\Delta_{min}(0) + x / \cos \theta_e)}{l_s \cos \theta_C}. \quad (5.12)$$

5.7 Effizienzbestimmung

Ist der Strahldurchmesser um mindestens einen Faktor zehn kleiner als die Abmessung des zweiten Gitters der Beugungsrichtung, kann der Einfluss der x -Abhängigkeit des Abschneide-Intervalls auf Pulsdauer und spektrale Übertragungsfunktion vernachlässigt werden. Dies war während unserer Experimente der Fall. Die Pulsdauern weichen dann über den Querschnitt des Strahles weit weniger als 1% voneinander ab, und die durch das Abschneiden bedingte spektrale Übertragungsfunktion C_S ist

durch eine normierte Rechteckfunktion

$$C_S(\lambda) = \begin{cases} 1, & \lambda_{min} < \lambda < \lambda_{max} \\ 0, & \text{sonst} \end{cases} \quad (5.13)$$

hinreichend genau angegeben. Die Effizienz eines Zwei-Gitter-Treacy-Kompressor [93] ergibt sich zu

$$\eta_G = \left[\int_0^\infty E_S(\lambda) C_S(\lambda) \prod_{i=1}^4 R_S^{(i)}(\lambda) d\lambda \right] - v_S. \quad (5.14)$$

Berücksichtigt man, dass $C_S(\lambda)$ eine Rechteckfunktion ist (vgl. Gl. 5.13), wird Gleichung 5.14 zu

$$\eta_G = \left[\int_{\lambda_{min}}^{\lambda_{max}} E_S(\lambda) \prod_{i=1}^4 R_S^{(i)}(\lambda) d\lambda \right] - v_S. \quad (5.15)$$

Falls größere Strahldurchmesser auftreten, ist das Schneidenintegral nach Li et al. [111] zu berechnen. Ebenfalls möglich ist die Umformung der Gleichung 5.14, in der die spektrale Energiedichte durch die spektrale Fluenzdichte F_S (die ebenfalls auf 1 normiert sei) ersetzt wird und zusätzlich über die Ortskoordinaten gemittelt wird

$$\eta_G = \left[\int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty F_S(x, y, \lambda) \prod_{i=1}^4 R_S^{(i)}(\lambda) C_S(x, \lambda) d\lambda dx dy \right] - v_S. \quad (5.16)$$

Da innerhalb des Integrals außer in F_S keine y -Abhängigkeit vorkommt, kann die spektrale Intensität durch Integration über y in eine spektrale "Linienfluenz" $\tilde{F}_S(x, \lambda)$ überführt werden. Dies bietet sich an, wenn der örtliche Strahlverlauf in analytischer Form vorliegt. Gleichung 5.16 schreibt sich dann

$$\eta_G = \left[\int_0^\infty \int_0^\infty \tilde{F}_S(x, \lambda) \prod_{i=1}^4 R_S^{(i)}(\lambda) C_S(x, \lambda) d\lambda dx \right] - v_S. \quad (5.17)$$

$C_S(x, \lambda)$ ist wiederum eine Rechteckfunktion mit von x abhängigen Sprungpunkten

$$C_S(x, \lambda) = \begin{cases} 1, & \lambda_{min}(x) < \lambda < \lambda_{max}(x) \\ 0, & \text{sonst} \end{cases}, \quad (5.18)$$

wodurch die λ -Integrationsgrenzen x -abhängig werden:

$$\eta_G = \left[\int_0^\infty \int_{\lambda_{min}(x)}^{\lambda_{max}(x)} \tilde{F}_S(x, \lambda) \prod_{i=1}^4 R_S^{(i)}(\lambda)(x, \lambda) d\lambda dx \right] - v_S. \quad (5.19)$$

Da die spektralen Übertragungsfunktionen $R_S^{(i)}(\lambda)$ in den seltensten Fällen in analytischer Form vorlagen, wurden die Gleichungen 5.14 bzw. Gleichung 5.19 während der Effizienzbestimmung numerisch integriert. Bei Gleichung 5.19 ist dafür eine Doppelschleife notwendig, wobei in der inneren Schleife über die spektralen Beiträge bei festem x und in der äußeren Schleife über x summiert wurde. Die Grenz-Wellenlängen $\lambda_{min}(x)$ und $\lambda_{max}(x)$ werden mittels Gl. 5.11 bestimmt.

5.8 Dispersion höherer Ordnung

5.8.1 Dispersion in Strecker und Kompressor

In einem CPA-System wird die Winkeldispersion, die durch Brechung in Prismen oder Beugung an Gittern hervorgerufen wird, genutzt, um einen niedrigerenergetischen fs-Quellpuls zeitlich zu strecken [93, 112]. Der gestreckte Laserpuls durchläuft, bevor er im Kompressor wieder komprimiert wird, verschiedene Verstärkerstufen und dazugehörige optische Komponenten. Bedingt durch die Dispersion der im CPA-System verwendeten Bauelemente wie Verstärkermedium, Pockelszellen, Spiegel und auch während der Passage durch Luft erfährt der Puls eine zusätzliche Phasenverzerrung.

Selbst wenn man den Kompressor so gestaltet, dass die durch ihn verursachte negative Dispersion die positive Dispersion des Streckers genau aufhebt, wird man im allgemeinen noch keinen bandbreitenbegrenzten Puls (Puls mit minimaler Pulsdauer, Fouriertransformation des unverzerrten Spektrums) erhalten. Dies wird durch die bereits angesprochene materialbedingte Dispersion im CPA-System verhindert. Für den Aufbau eines ultraschnellen CPA-Systems müssen deshalb alle Quellen von Dispersion berücksichtigt und derart miteinander abgestimmt werden, dass die auf Phasenverzerrung zurückzuführende zeitliche Pulsverlängerung klein gegenüber der bandbreitenbegrenzten Pulsdauer ist.

In der Literatur finden sich verschiedenste Methoden der Dispersionskompensation, zum Beispiel die Kombination von Gittern und Teleskopen, Fernrohren und Prismen, die Einbeziehung von Fasern und speziellen optischen Gläsern sowie die Optimierung mittels Winkelanpassung [111, 113–116].

Die mathematische Beschreibung der in einem Lasersystem entstehenden Phasendispersion höherer Ordnung, sowie Vorschläge zur Optimierung des Kompressors finden sich in Anhang B.

Kapitel 6

Aufbau eines dielektrischen Gitterkompressors

6.1 Messanordnung

6.1.1 Das Lasersystem

Während der Erprobung des dielektrischen Gitterkompressors wurde ein Eigenbau-Ti:Sa-Lasersystem verwendet. Der Oszillator lieferte 120 fs-Pulse mit einer Bandbreite von ca. 9 nm FWHM bei einer Zentralwellenlänge von (800 ± 5) nm. Die Oszillator-Pulse wurden in einem konventionellen Strecker, bestehend aus Goldgittern mit 2000 Linien/mm, auf ca. 220 ps gestreckt und danach in einem regenerativen Verstärker auf Energien von 250-400 μJ verstärkt. Der Strahldurchmesser betrug (3-4) mm (bei $(1/e^2) I_0$). Der Laser arbeitete mit Wiederholraten von 9.7 bzw. 20 Hz.

6.1.2 Die Kompressorgitter

Die Gitter wurden für eine Wellenlänge von 795 nm konstruiert [89]. Beim Design der Gitter wurde beachtet, dass diese leicht außerhalb des Littrowfalls betrieben werden müssen, da der Strahl das zweite Gitter vor dem Einkoppeln in den Kompressor in endlicher Distanz passieren muss. Dies führt zu leicht veränderten Abhängigkeiten der Effizienz der -1. Beugungsordnung von den Gitterparametern, weshalb sich die Parameter des Designs von den in [89] angesprochenen unterscheiden.

In Zusammenarbeit mit der Layertec GmbH, Mellingen und Carl Zeiss, Jena, wurden zwei Reihen von Gittern unabhängig voneinander in verschiedenen Ätzanlagen hergestellt. Auf $6 \times 6 \text{ cm}^2$ große Substrate, deren Dicke bei der ersten Serie 1 cm und bei der zweiten 2 cm betrug, wurde ein hochreflektives $\text{Nb}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ - $\lambda/4$ -Schichtsystem aufgesputtert. Die einzelnen Schichten wurden zwecks Erhöhung der Bandbreite des

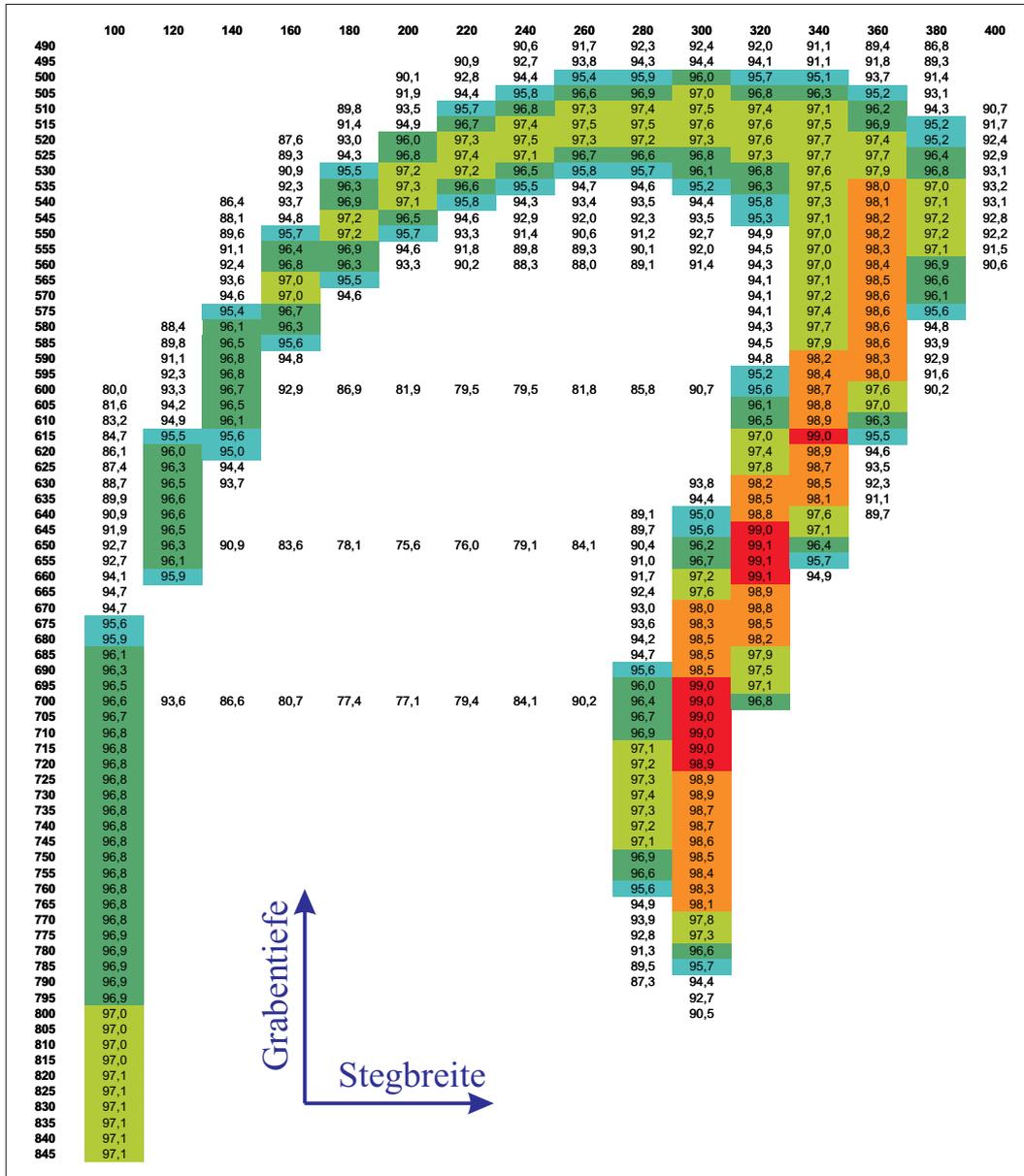


Abbildung 6.1: Berechnete Abhängigkeit der Beugungseffizienz -1. Ordnung von der Stegbreite und der Grabentiefe der Gitter. Der Rechnung lagen Gitter mit einer Linienbreite von 1800 Linien/mm zugrunde, der Separationswinkel betrug 2.68° . Hohe Effizienz, gepaart mit relativer Unabhängigkeit der Effizienz von den Gitterparametern findet man im Gebiet bei Grabentiefen von 550 nm und Stegbreiten von 360 nm.

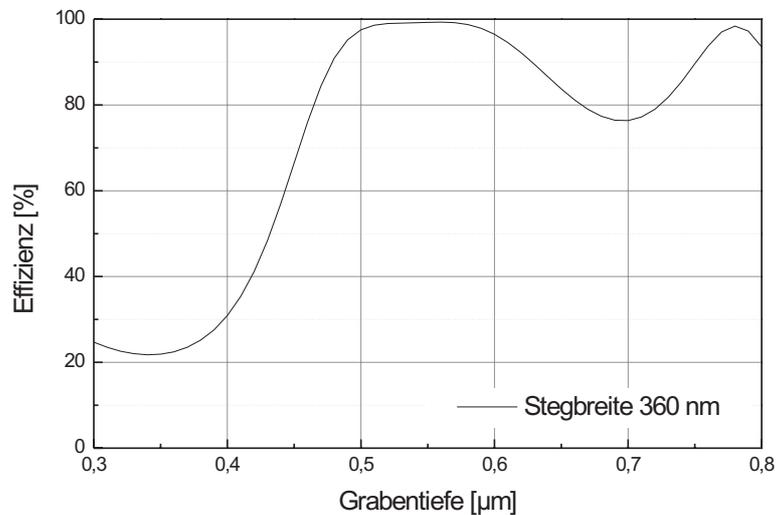


Abbildung 6.2: Berechnete Abhängigkeit der Beugungseffizienz -1. Ordnung von der Grabentiefe der Gitter (1800 Linien/mm) bei einer festen Stegbreite von 360 nm, bei einem Separationswinkel von 2.68° . Das erste, breitere Effizienz-Maximum ist bei einer Grabentiefe von 550 nm zentriert [89].

Spiegels leicht verstimmt, was sich jedoch auf die Effizienz des Spiegels nicht merklich auswirkt.

In die oberste Schicht, bestehend aus SiO_2 mit einer Dicke von 550 nm, wurde das Gitterprofil mittels Interferenzholographie [117] geätzt. Die SiO_2 -Schicht wurde zuerst gleichmäßig mit einer Photolackschicht bedeckt. Diese wurde durch zwei kohärente Quellen so belichtet, dass das entstehende Streifenmuster auf dem Photoresist eine Liniendichte von 1800 Linien/mm aufwies. Nach der Entwicklung des Photolacks wurde die entstandene Struktur mittels reaktivem Ionenstrahlätzen (am IOF Leipzig) in die darunterliegende SiO_2 -Deckschicht übertragen. Die Ätztiefe sollte durch eine zwischen der Top- SiO_2 -Schicht und dem Spiegelsystem liegende, 20 nm dicke Al_2O_3 -Ätzstopschicht kontrolliert werden.

Die entstandenen Gitter haben effektive Abmessungen von 5.6 cm in Dispersionsrichtung und (3.0-5.0) cm senkrecht dazu. Das Verhältnis von Durchmesser des Laserstrahles zu Breite des Gitters in Dispersionsrichtung war im Experiment also geringer als 1:10, was eine Verwendung der einfacheren Effizienzformel 5.14 rechtfertigt. Die angestrebten Parameter waren eine Gitterperiode von 556 nm, eine Grabenbreite von 198 nm (Tastverhältnis 1.8) und eine Grabentiefe von 550 nm bei binärer Gitterform. Diese Parameter wurden gewählt, da sie sowohl eine hohe Beugungseffizienz als

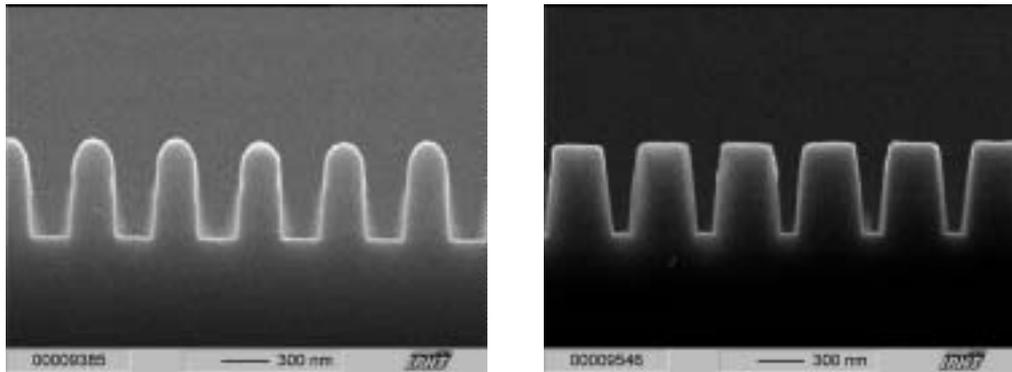


Abbildung 6.3: Elektronenmikroskop-Aufnahmen an Replika je eines Gitters der ersten (links) und der zweiten Serie (rechts). Die erste Serie weist ein Tastverhältnis von nahezu 1:1 und halbkreisförmige Täler auf, während die zweite Serie zwar der binären Form sehr nahe kommt, jedoch ein Tastverhältnis von fast 1:3 hat.

auch die geringste Abhängigkeit letzterer von kleinen Abweichungen der Gitterparameter garantiert (vgl. Abbildung 6.1). Die theoretisch erreichbare Beugungseffizienz für die angegebenen Gitterparameter beträgt für die Zentralwellenlänge von 795 nm über 99% im Littrowfall und über 97% bei einem Separationswinkel von 2.68° .

Abbildung 6.3 zeigt Elektronenmikroskop-Messungen (Fraunhofer-Institut Jena) der Profile von Replikas der hergestellten Gitter, die von der Oberfläche abgenommen wurden. Die Gitter der ersten Serie haben eine charakteristische Grabentiefe von ca. 590 nm bei einer Grabenbreite von 290 nm. Es wurde nur eines der beiden Gitter vermessen, da beide Gitter eine sehr ähnliche Profilform aufwiesen. Die angestrebte Toleranz von ± 20 nm konnte bei beiden Parametern nicht erreicht werden. Die Profilform weicht in den Tälern deutlich von der Binärform ab.

Die Gitter der zweiten Serie weisen mittlere Grabenbreiten von 410 nm bzw. 440 nm und -tiefen von 590 nm bzw. 630 nm auf, was noch deutlicher außerhalb der Toleranzgrenzen liegt. Die angestrebte Binärform wurde dagegen fast erreicht, der Flankenwinkel gegenüber der Oberflächennormalen beträgt im Schnitt 6° .

Die Abweichungen des Tastverhältnisses sind im Wesentlichen in der Herstellungsart begründet. Beim holografischen Verfahren wechseln sich Hell- und Dunkelzonen in gleichem Abstand ab, da es sich um ein Interferenzmuster handelt. Entwickelt man auf hohe Kontraste und geringe Schwellwerte, lässt sich das Tastverhältnis auf etwas mehr als 1:1 einstellen, allerdings auf Kosten von bei solcher Entwicklung stark hervorgehobener Unregelmäßigkeiten im Interferenzmuster. Durch das ungewollte Ätzen der Seitenwände wird das Tastverhältnis verringert.

Die genaue Grabentiefe soll durch die Ätzstopschicht erreicht werden, die den Ätzpro-

zess verlangsamt. Entweder beruft man sich dabei auf Erfahrungswerte der Ätzdauer oder betrachtet das entstehende Gitter mit einem Massenspektrometer und bricht das Ätzen ab, sobald Anteile von Al_2O_3 gemessen werden. Wie die zweite Serie zeigt, scheint die Stoppschicht schon durchgeätzt zu sein, bevor man Al_2O_3 im Massenspektrometer registriert.

6.1.3 Justage des Kompressors

Um die schnelle und genaue Kompressorjustage zu erleichtern, wurde der Kompressor nach Miesak [118] aufgebaut. Eine detaillierte Beschreibung dieser Vorgehensweise ist in Anhang C zu finden.

6.2 Messungen

6.2.1 Autokorrelation

Die Pulsdauer der komprimierten Pulse wurde mit einem Einzelschuss-SHG-Autokorrelator aufgenommen. Abbildung 6.4 zeigt die kürzesten gemessenen Autokorrelationskurven von Oszillator und komprimiertem Puls.

Die ermittelten Breiten der Autokorrelationskurven von Oszillator- und komprimiertem Puls betragen 210 ± 6 fs bzw. 178 ± 6 fs (FWHM). Dies entspricht für gaußsche Pulse (149 ± 6 fs) Pulsdauer für den komprimierten Puls und (126 ± 6 fs) für den Oszillator. Maximale Kompression wurde bei einer Separation der beiden Gitter von 73 cm erreicht.

Die Verlängerung der Pulsdauer ist auf spektrales Abschneiden (vgl. Abschnitt 5.6) und unzureichende Kompensation der dritten Ordnung der Phasendispersion (vgl. Abschnitt 5.8) zurückzuführen. Nimmt man einen gaußförmigen Puls an, ergibt sich aus der Geometrie und den vorn genannten Gitterabmessungen eine Pulsverbreiterung von 17 % durch spektrales Abschneiden, was dem gemessenen Wert von 18 % sehr nahekommt.

6.2.2 Spektrale Übertragungsfunktion

Wie in Abschnitt 5.5 erläutert, ist die Beugungseffizienz aller Arten von Reflexionsgittern eine Funktion des Ein-/Ausfallwinkels und wegen Gleichung 5.1 auch der Wellenlänge des gebeugten Strahls. Eine hohe Beugungseffizienz η (Gl. 5.3) wird immer dann erreicht, wenn die Beugungseffizienz der spektralen Komponente mit der höchsten spektralen Energie E_S (d. h. für die Zentralwellenlänge λ_C) maximiert wird, wie dies in den Abbildungen 6.1 und 6.2 demonstriert wurde.

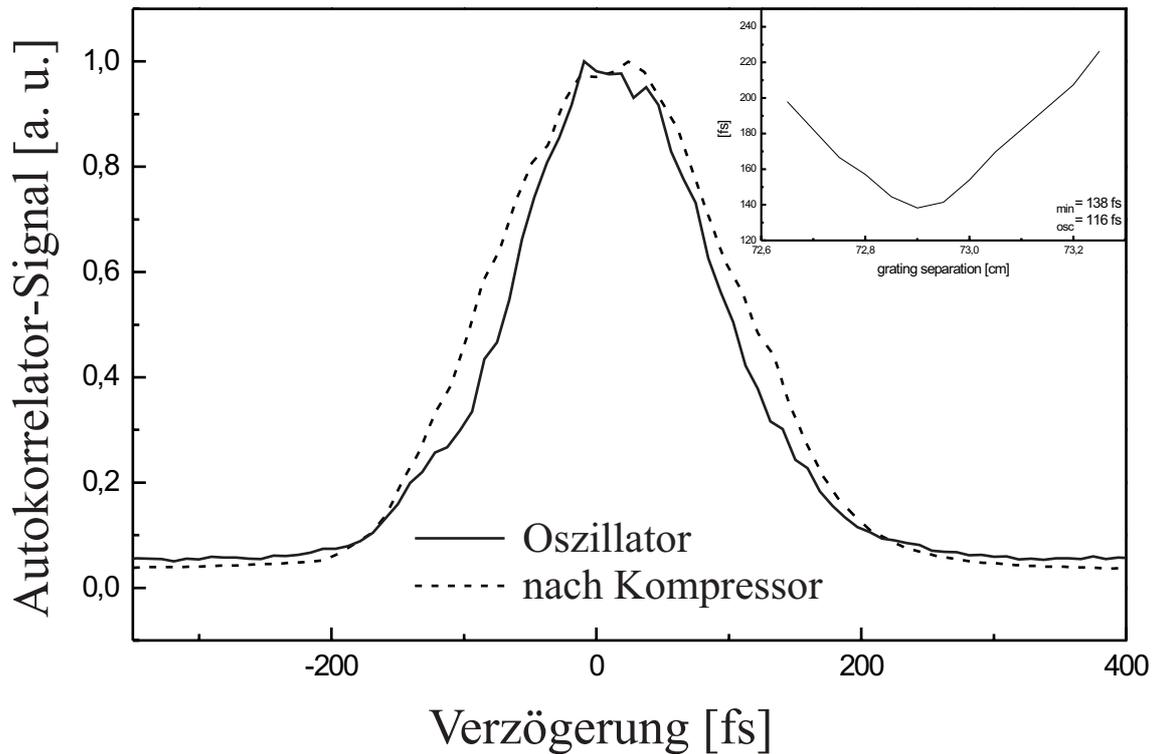


Abbildung 6.4: Gemessene Autokorrelationskurven des Oszillatorsignals (gestrichelte Kurve) und des komprimierten Pulses. Die FWHM betragen 210 ± 6 fs bzw. 178 ± 6 fs, was im Falle von gaußscher Pulsform Pulsdauern von $(149 \pm 6$ fs) und $(126 \pm 6$ fs) entspricht. Das eingelagerte Diagramm zeigt die Autokorrelationsfunktion in Abhängigkeit von der Gitterseparation.

Infolge des spektralen Abschneidens und der Abhängigkeit der Beugungseffizienz vom Einfallswinkel kommt es zu einer Modifikation des Spektrums des komprimierten Pulses. Abbildung 6.6 zeigt die gemessenen Spektren des Pulses im unkomprimierten und im komprimierten Fall. Das Spektrum nach dem Kompressor wird durch das spektrale Abschneiden dahingehend modifiziert, dass die spektralen Komponenten mit $\lambda < 785$ nm und $\lambda > 805$ nm unterdrückt werden. In Abbildung 6.6 sind diese Grenzen durch vertikale Balken angegeben. Die tatsächlichen Verluste durch spektrales Abschneiden wurden aus der Differenz der beiden gemessenen Kurven zu 11% bestimmt. Innerhalb der Kompressorbandbreite wird das Spektrum wegen der Abhängigkeit der Beugungseffizienz dielektrischer Gitter von der Wellenlänge geringfügig verändert. Diese Abhängigkeit hat zwei Ursachen:

- Hochreflektierende dielektrische Spiegel zeigen eine Abhängigkeit des Reflexionsvermögens von der Wellenlänge [76, 119].
- Die Frequenzkomponenten verlassen das erste Gitter bei gleichem Einfallswin-

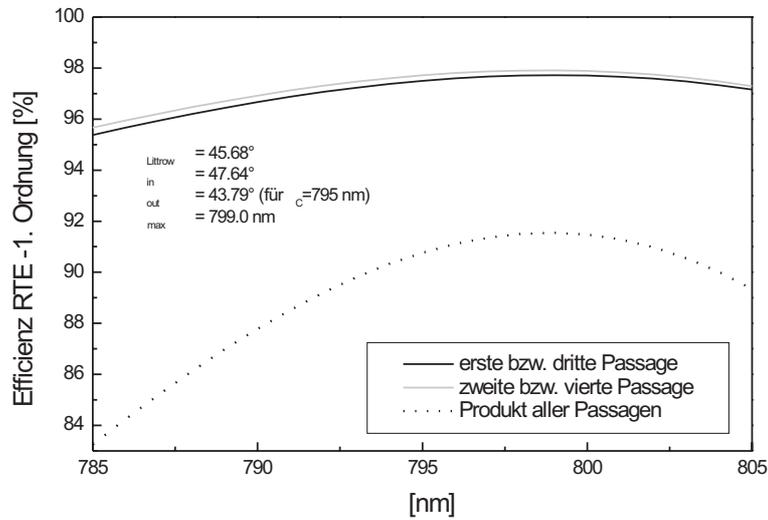


Abbildung 6.5: Vergleich der Beugungseffizienzen eines Gitters mit den Design-Gitterparametern (Stegbreite 198 nm, Grabentiefe 550 nm) bei einer Zentralwellenlänge von 795 nm. Die erste und die dritte Passage (gleicher Einfallswinkel für alle Wellenlängen) sind geringfügig effizienter als die zweite und vierte (gleicher Ausfallswinkel).

kel unter unterschiedlichen Winkeln, wodurch sich die Interferenzeigenschaften des Systems (HR-Spiegel/korrigierte Oberfläche) verändern. Beim Auftreffen des divergierenden Strahls auf das zweite Gitter wird der Vorgang am ersten Gitter insofern umgekehrt, dass die strahlenden Anregungs- und Detektionskanäle (siehe Anhang A.1) vertauscht werden. Evaneszente Detektionskanäle am ersten Gitter können als Anregungskanäle des zweiten Gitters nicht bedient werden, dafür bilden sich evaneszente Moden in dessen Detektionskanälen, die am ersten Gitter nicht angeregt werden konnten. Für kleine Separationswinkel und genügend große Anzahl berücksichtigter Rayleigh-Ordnungen sind die resultierenden Abweichungen jedoch gering (vgl. Abbildung 6.5).

Abbildung 5.3 in Abschnitt 5.5 zeigt die spektrale Übertragungsfunktion am ersten Gitter für zwei verschiedene Einfallswinkel. Für den im Experiment gewählten Fall $\theta_i > \theta_L$ weisen die roten Strahlanteile den geringeren Separationswinkel auf, ihre Beugungseffizienz ist wegen der geringeren Abweichung zum Littrowfall größer (dies ist gleichbedeutend mit der in Abschnitt 5.5 angesprochenen Verstimmung des Systems). Diese Aussage gilt ebenso für alle anderen Gitterpassagen. Es ist deshalb zu erwarten, dass das Maximum der spektralen Antwort leicht zu längeren Wellenlängen verschoben ist. Abbildung 6.6 zeigt genau die vorausgesagte Verschiebung der spek-

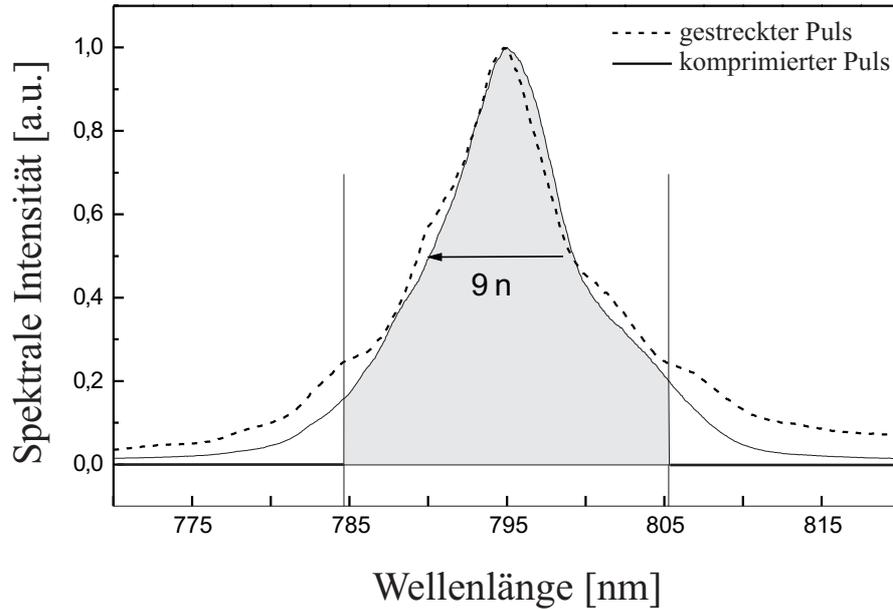


Abbildung 6.6: Gemessene Spektren des gestreckten (durchgängige Linie) und des komprimierten Pulses. Die vertikalen Linien geben die Wellenlängen des spektralen Abschneidens an, der den Kompressor passierende Frequenzbereich ist schattiert dargestellt.

tralen Antwort des Kompressors zu längeren Wellenlängen. Die Theorie ist dadurch jedoch noch nicht bestätigt, da sich, wie in Abschnitt 6.1.2 angesprochen, die realen Gitterparameter wesentlich von den Designparametern unterscheiden.

Ordnet man die beiden Gitter der zweiten Zeiss-Serie in das Diagramm 6.1 ein, ist zu bemerken, dass das Gitter G14/5 sehr nahe an einem der lokalen Effizienzmaxima liegt, während G14/4 genau in einer Senke verschwindet. Trotz dieser unterschiedlichen Voraussetzungen zeigen RCWA-Simulationen mit den per Elektronenmikroskop ermittelten Gitterparametern jeweils einen Anstieg von P_S mit der Wellenlänge, wenn auch die Maxima der Kurven bei verschiedenen Wellenlängen erreicht werden (s. Abb. 5.3). Diagramm 6.6 wird somit auch durch die Rechnungen mit den experimentell ermittelten Gitterparametern gestützt.

6.2.3 Effizienz in Abhängigkeit vom Separationswinkel

Wie bereits in Anhang B angesprochen, wird die Gesamt-Phasendispersion dritter Ordnung im Falle der Vernachlässigbarkeit höherer Ordnungen durch Verändern des Einfallswinkels und damit des Separationswinkels minimiert. Wählt man, wie in Abschnitt 5.5 motiviert, $\theta_i > \theta_L$, wird das Spiegelsystem unter der korrigierten Oberfläche in Richtung längerer Wellenlängen verstimmt. Abbildung 6.8 zeigt die Folgen dieser

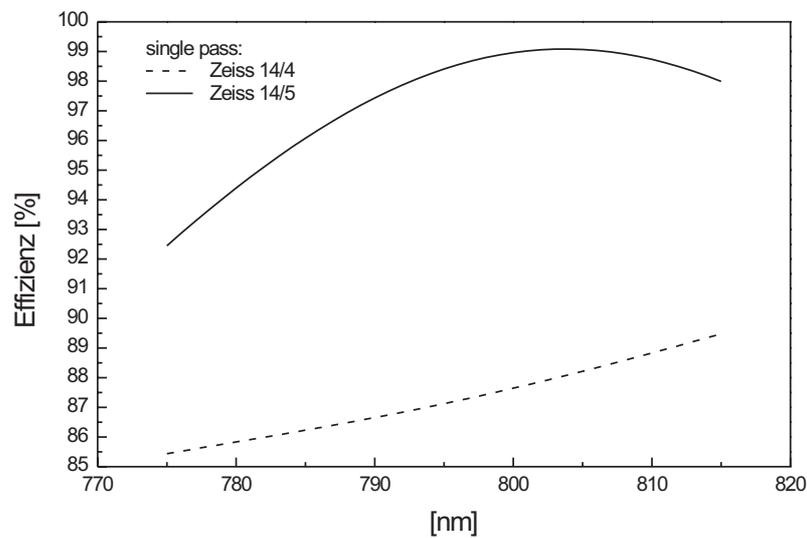


Abbildung 6.7: Spektrale Effizienz der beiden Zeiss-Gitter der zweiten Serie für eine einfache Passage.

Verstimmung für das beste Gitter beider Serien, Zeiss 14/5.

Zwei Tendenzen sind auszumachen:

1. Die Maxima der spektralen Übertragungsfunktion verschieben sich mit wachsender Winkelseparation von der Zentralwellenlänge zu größeren Wellenlängen.
2. Die Maxima der spektralen Übertragungsfunktion sinken mit wachsendem Separationswinkel im Betrag.

Wegen Gleichung 5.3 sinkt mit betragsmäßig (in allen Punkten) geringerer spektraler Übertragungsfunktion P_S die Gesamt-Effizienz der Beugung am Gitter.

Die Folge dessen ist in Abbildung 6.9 zu sehen. Bei beiden Gitterserien, bestehend aus jeweils zwei verschiedenen Gittern, sinkt die Effizienz des Kompressors mit steigendem Separationswinkel. Im besten Fall, bei einer Winkelseparation von 1.8° , erreichen der Kompressor mit Gittern der zweiten Serie eine Effizienz η_G von knapp über 0.58, während die erste Serie $\eta_G=0.52$ erzielt.

Die in Abbildung 6.9 eingezeichneten theoretischen Kurven wurden unter Nutzung der aus den Elektronenmikroskop-Messungen bestimmten und in Abschnitt 6.1.2 vorgestellten Gitterparameter beider Serien bestimmt. Für den Kompressor mit Gittern der zweiten Serie ergibt sich eine theoretische Effizienz von 76% bei einem Separationswinkel von 1.8° , spektrales Abschneiden und Streuverluste sind bei diesem Wert noch nicht berücksichtigt.

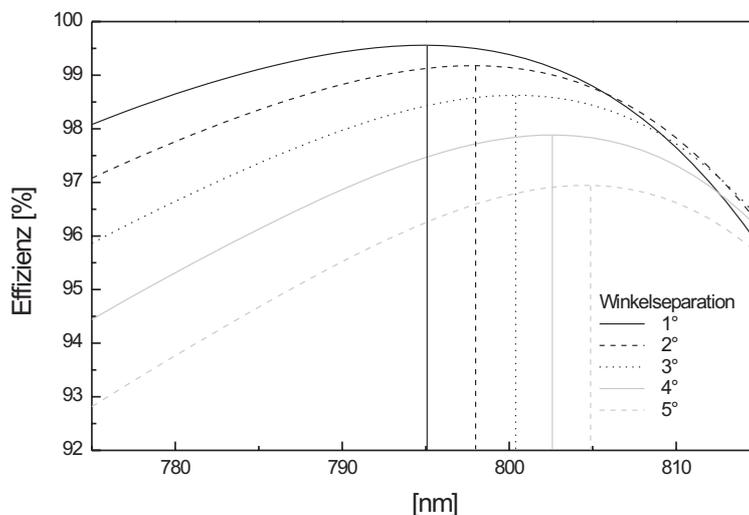


Abbildung 6.8: Abhängigkeit der spektralen Übertragungsfunktion vom Separationswinkel für das beste Gitter der zweiten Zeiss-Serie. Auffällig ist die Verschiebung der Effizienzmaxima zu längeren Wellenlängen mit steigendem Separationswinkel. Bei Wellenlängen größer 805 nm steigt die Effizienz mit wachsender Winkelseparation sogar kurzzeitig an, in der spektralen Integration der Funktion ist jedoch ein stetiger Abfall festzustellen. Wegen der Gaußform der spektralen Energiedichte erhalten die Frequenzen um 795 nm zusätzliches Gewicht.

Als Verluste durch das spektrale Abschneiden wurden die in Abschnitt 6.2.2 ermittelten 11% übernommen. Typische Streuverluste an dielektrischen Gittern betragen (3-4)% pro Gitterpassage [89]. Berücksichtigt man beide Verlustarten, reduziert sich die theoretische Effizienz des Kompressors mit Gittern der zweiten Serie auf 59% bei 1.8° Separation, was mit den gemessenen 58% gut übereinstimmt.

Die Beugungseffizienzen der ersten Gitterserie wurden zusätzlich an einem Streumessplatz als Funktion des Einfallswinkels bei einer Wellenlänge von 830 nm gemessen (U. Schuhmann, Jenoptik). Darüberhinaus wurden die Beugungseffizienz im Littrowfall in Abhängigkeit vom Auftreffpunkt des Strahls auf dem Gitter gemessen. Der Maximalwert der Beugungseffizienz betrug 92% für das erste bzw. 90% für das zweite Gitter der ersten Serie. Die nullte Ordnung schlug mit 5% bzw. 7% zu Buche, die jeweils restlichen 3% können in Übereinstimmung mit [89] als Streuverluste bezeichnet werden.

Da nur die Gitterparameter eines der beiden Gitter vermessen wurden, ist die theoretische Abschätzung mit einiger Unsicherheit behaftet. Die Beugungseffizienz des mi-

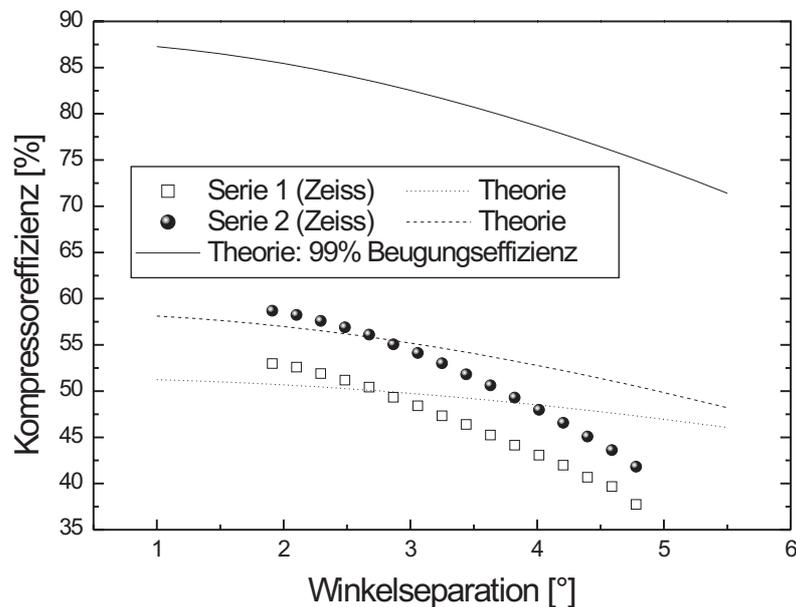


Abbildung 6.9: Messung der Kompressoreffizienz von zwei verschiedenen Gitterserien (Quadrate und Punkte) als Funktion des Separationswinkels. Die berechneten Kurven beinhalten spektrales Abschneiden. Es werden 3% Streuverluste pro Gitterpassage angenommen. Die durchgezogene Theoriekurve gibt an, welche Kompressoreffizienz mit dem besten Gitter aller Serien und unter günstigsten Voraussetzungen (kein spektrales Abschneiden, Streuverluste 3%) erreichbar wäre.

kroskopierten Gitters beträgt nach der Theorie mehr als 94% bei $\theta_{sep} = 1.8^\circ$. Mit 11% Verlust durch spektrales Abschneiden und 3% durch Streuung ergibt sich eine theoretische Kompressoreffizienz von 57%. Dieser Wert sinkt auf unter 54%, wenn man für das zweite Gitter 2% weniger Effizienz annimmt (der Unterschied von 2% wurde allerdings bei einer anderen als der Designwellenlänge gemessen). Das Experiment erbrachte 52% Effizienz.

Die gemessene Verringerung der Effizienz vom Separationswinkel fällt für beide Serien sehr viel grösser aus als durch die Theorie vorhergesagt. Beide Messreihen wurden jeweils in einer nochmaligen Messung reproduziert. Es liegt nahe, das Verhalten der Effizienzkurven in Abhängigkeit von leichten Veränderungen der Gitterparameter zu untersuchen, um in der Folge möglicherweise den Anstieg der Theoriekurven dem der Messungen besser anpassen zu können.

Abbildung 6.10 zeigt die Ergebnisse der Variationsrechnungen für die Parameter Grabenbreite und -tiefe. Die Grabenbreite wurde an der Sohle der korrigierten Schicht

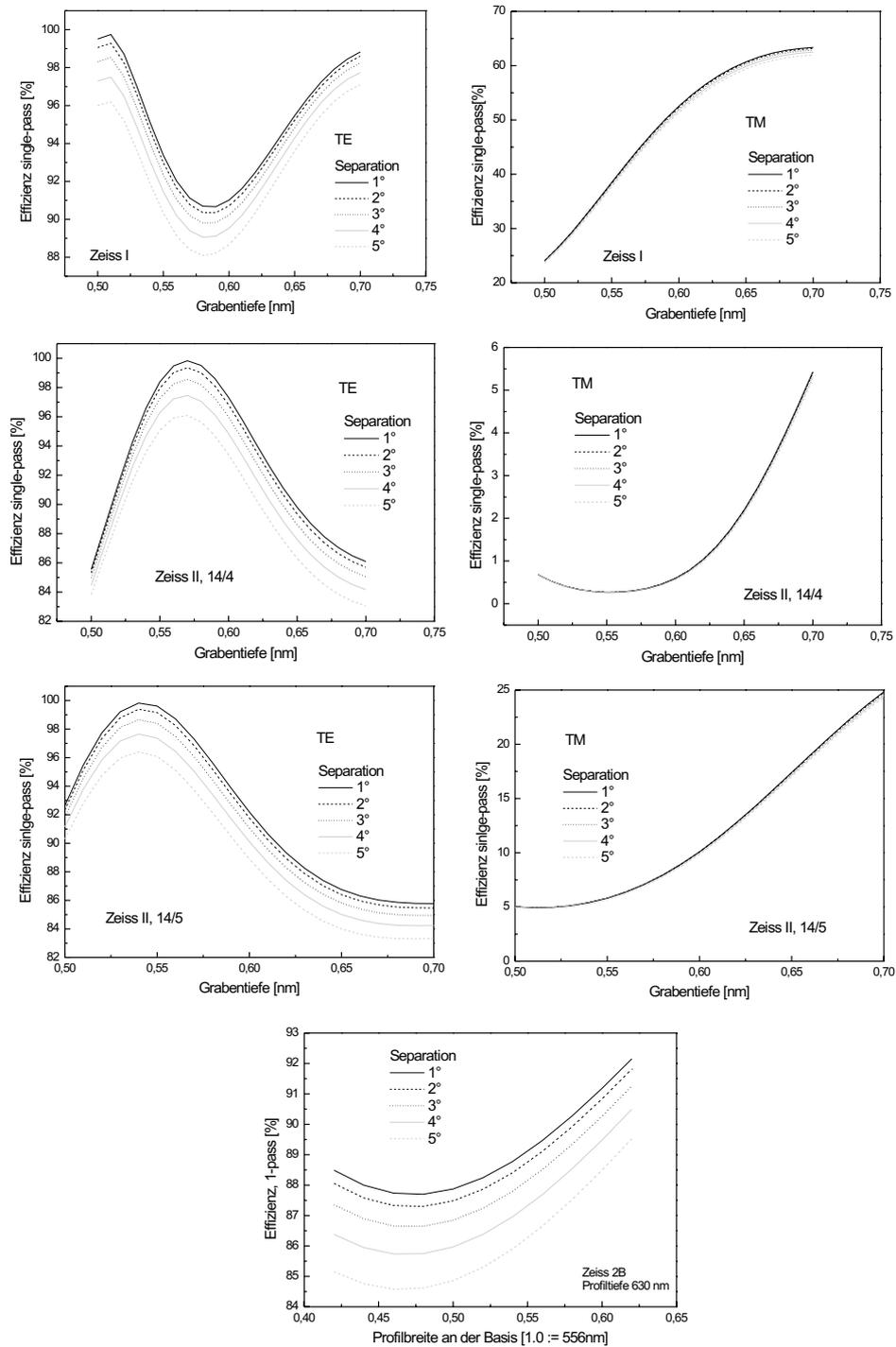


Abbildung 6.10: Abhängigkeit der Beugungseffizienz vom Separationswinkel bei gleichzeitiger Variation der Gitterparameter Grabentiefe und Grabenbreite (an der Sohle). Der steilere Verlauf der Messkurven im Vergleich zur Theorie kann nicht durch Abweichungen der Gitterparameter auf ein- und demselben Gitter erklärt werden.

verändert (Sohlenbreite). Aus den Elektronenmikroskop-Aufnahmen war ersichtlich, dass bei allen Gittern besonders die Grabentiefe größeren Schwankungen unterworfen war (mittlerer Schwankungswert: ca. $\pm 5\%$). Besonderer Augenmerk galt daher der eventuellen Veränderung der Verhältnisse der Effizienzen bei unterschiedlichen Separationswinkeln in Abhängigkeit von diesem Parameter. Die ersten sechs Teildiagramme in Abbildung 6.10 zeigen die Beugungseffizienzen sowohl im TE- als auch im TM-Fall für alle Gitter, deren Parameter bekannt waren.

TM wurde nur für den Fall gerechnet, dass sich starke Abhängigkeiten zeigten, die sich wegen der schwachen Kopplung der transversalen Moden im konischen Fall auch auf die Gesamteffizienz hätten auswirken können. Das Gegenteil ist jedoch der Fall, die Effizienz in TM hängt nicht oder nur schwach von der Veränderung der Grabentiefe ab.

TE zeigt eine stärkere Abhängigkeit der Effizienz von der Grabentiefe. Allerdings verändern sich die *Verhältnisse* der Effizienzen bei unterschiedlichen Separationswinkeln für alle drei Gitter auch über größere Bereiche der Grabentiefe kaum - die Auswirkung der Schwankungen dieses Parameters auf den Verlauf der Theorie-Kurven in Abbildung 6.9 ist demnach marginal.

Ähnliches zeigt sich bei der Variation der Sohlenbreite für TE-polarisiertes Licht und je ein Gitter aus jeder Serie, dargestellt in den beiden unteren Teildiagrammen von Abbildung 6.10. Auch hier ist keine nennenswerte Änderung der Verhältnisse der Effizienzen zu verzeichnen.

Die Suche nach Ursachen der Abweichung beschränkt sich damit auf nichtperiodische Schwankungen der Gitterparameter und separationswinkelabhängige Streuverluste. Letzteres kann ausgeschlossen werden, da die Streumessungen bei 830 nm (was einer Verstimmung des Gittersystems durch Verschiebung zu größeren Einfallswinkeln entspricht) die üblichen 3% ergaben.

Nichtperiodische Gitterschwankungen können mittels RCWA-Methode nicht gerechnet werden, da die Voraussetzung $\epsilon(z) = \epsilon(z+p)$ (vgl. Anhang A) nicht mehr gegeben ist). Da keine feste Periode p existiert, sind auch die Moden β_m und die Dielektrizitätskonstante $\epsilon(x)_{m,m'}$ (vgl. Abschnitt A.2.1 im Anhang) nicht eindeutig definiert. Es ist nicht auszuschließen, dass sich unregelmäßige Änderungen des Gitterprofils umso deutlicher in einer Effizienzverringerung äußern, je größer der Separationswinkel wird und die Geometrie vom Idealfall des Littrowwinkels abweicht.

6.2.4 Zerstörschwellen

Von allen vorliegenden Gittern wurden die Zerstörschwellen bei der Arbeitswellenlänge und im Bereich der vorgesehenen Pulsdauern gemessen. Tabelle 6.1 zeigt diese

Gitter	λ [nm]	τ_{Puls} [fs]	F_{th} [J/cm^2]	
			Gitter	Spiegel
Ni ₂ O ₅ /SiO ₂ , SiO ₂ -Top	795	120	0.13	0.22
Gold auf SiO ₂ , Probe Nr. 1	795	50	0.18	0.50
Gold auf SiO ₂ , Probe Nr. 2	795	50	0.10 Typ I	0.29 Typ I
			<0.02 Typ II	<0.04 Typ II
Ni ₂ O ₅ /SiO ₂ , SiO ₂ -Top	532	550	0.11	0.18

Tabelle 6.1: Zerstörschwellenwerte verschiedener Gitter im Vergleich mit HR-Spiegeln desselben Materials. Bei den dielektrischen Gittern wurden die Spiegel-Werte am Rand, außerhalb des korrigierten Bereiches gemessen. Das 532-nm-Gitter ist identisch mit dem in [89] vorgestellten. Die Werte der Goldgitter und -spiegel stammen nicht von denselben Proben, die Gitter wurden mit den jeweils besten Goldspiegeln verglichen, in Abhängigkeit davon, ob sie Typ II-Schaden aufwiesen oder nicht.

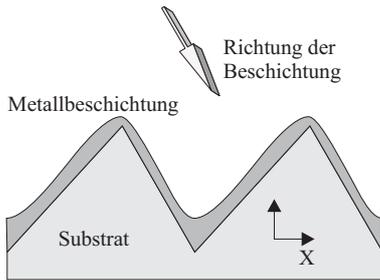


Abbildung 6.11: Veranschaulichung des Zuschneiefekts bei der Beschichtung von korrigierten Substraten mit Metallen. Höhendifferenzen werden tendenziell nivelliert, vergleichbar mit einer Schneedecke, die den Höhenunterschied der Schollen eines brachliegenden Feldes ausgleicht. Die Folge ist eine variable Filmdicke in Abhängigkeit von x .

Werte im Vergleich mit den Zerstörschwellen vergleichbarer Spiegel. Nur bei den dielektrischen Gittern war der Randbereich groß genug, um auf ihm Messungen des unkorrigierten Schichtsystems durchzuführen. Dieses unterscheidet sich von einem HR-Spiegel dadurch, dass die Dicke der Top-Schicht nicht $\lambda/4$ beträgt, sondern die geplante Tiefe der Gräben (550 nm bei den Zeiss-Serien) aufweist.

Die Goldgitter wurden dagegen mit den besten verfügbaren Goldspiegeln verglichen, wobei nach Proben unterschieden wurde, die entweder nur Typ I oder Typ I und Typ II (vergleiche Abschnitt 3.5.2) aufwiesen.

Es fällt auf, dass alle Gitterwerte deutlich unter denen der ebenen Oberflächen liegen. Während dielektrische Gitter etwa die Hälfte der Spiegelzerstörschwellen erreichen, unterscheidet sich Goldgitter von -spiegeln um ca. den Faktor drei.

Erklärt wird dies durch den Fakt, dass es innerhalb der korrigierten Schicht der Gitter durch Interferenz zu Feldstärkeüberhöhungen kommen kann, die bis zu doppelt so hohe Feldstärken im Vergleich zur applizierten Feldstärke erreichen [92]. Bei dielektrischen Gittern bewirken darüberhinaus bei der Korrigation entstehende Ober-

flächenunregelmäßigkeiten, gewellte Kanten und Materialaufwerfungen, wie sie in den Profilen von Abbildung 6.3 zu sehen sind, eine Verringerung der Zerstörschwelle. Diese erhöhen die Anzahl der Defekte, speziell der Oberflächendefekte, und bilden damit Absorptionskeime, durch die sich die im Gitter aufgenommene Wärme pro bestrahlter Fläche erhöht.

In Jena hergestellte dielektrische Gitter bestanden bis zum Zeitpunkt dieser Arbeit ausschließlich aus einem Nb_5O_2 / SiO_2 -Spiegelsystem mit korrugierter SiO_2 -Oberfläche. Es steht zu erwarten, dass bei Verwendung anderer hochbrechender Materialien wie zum Beispiel Ta_2O_5 die Zerstörschwellen der Gitter im Sub-100 fs-Bereich auf über 0.5 J/cm^2 angehoben werden können. Gleichzeitig ist jedoch mit Verlusten bei der Reflektivität des Spiegelsystems zu rechnen [76]. Die Anzahl der HR-Schichten müsste also gesteigert werden.

Bei Metallbeschichtungen bilden sich vor allem an Profilkanten, bedingt durch den sogenannten Zuschneieffekt (vgl. Abbildung 6.11), veränderte Profilformen aus. Dies hat unterschiedliche Metallschichtdicken an verschiedenen Orten des Profils zur Folge, wodurch sich, wie bereits in Abschnitt 3.2 diskutiert, der vom Metall absorbierte Anteil des einfallenden Lichtes ändert. Im allgemeinen nimmt die Filmdicke an Bruchkanten ab, eine erhöhte Absorption und damit stärkere Erwärmung an diesen Stellen ist die Folge. Die Stärke der Absorptionsänderung kann einige Hunderstel Prozent (bei $d > 100 \text{ nm}$) bis einige Prozent (bei $d \sim 20 \text{ nm}$) betragen.

Die Zerstörschwelle sinkt lokal, es wird bevorzugt an den Kanten abladiert. Da die Wärmeeinflusszone in Metallen bei Applikation von fs-Pulsen 100 bis 400 Nanometer beträgt und sich die Zone auch in alle Richtungen ausbreitet, folgt ein Abschmelzen der Schicht von den Kanten her, mit lateralem Vordringen kleiner oder gleich der Wärmeeinflusszone (je nach applizierter Fluenz).

Auch die Oberflächenrauigkeit des Metallfilms spielt, wie in Abschnitt 3.5.1 beschrieben, eine Rolle bei der Zerstörfluenz von Metallgittern.

6.3 Vergleich von dielektrischen, metallischen und Hybridgittern

Zum Ende dieser Arbeit stellt sich die Frage, welche Art von Gitter beim Aufbau eines CPA-Systems wann einzusetzen ist. Die entscheidenden Parameter sind:

- **Zentralwellenlänge des Lasers**

Mit Abnahme der Wellenlänge in Richtung UV eignen sich immer weniger Materialien für die Verwendung in optischen Bauelementen. Metalle werden mit kürzerer Wellenlänge durchsichtig (XUV), während bei Dielektrika die Photon-

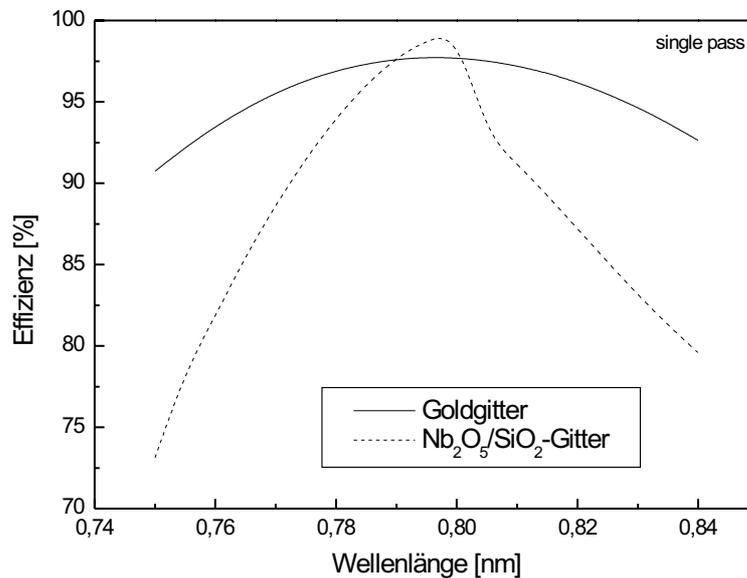


Abbildung 6.12: Vergleich der spektralen Effizienzen eines optimierten Metall- mit der eines dielektrischen Gitters. Das dielektrische Gitter erzielt nur innerhalb von 11 nm um die Zentralwellenlänge bessere Ergebnisse. Ca. ab Bandbreiten von 30 nm FWHM ist die spektrale Effizienz multipliziert mit dem Spektrum für das Goldgitter größer.

energie größer als die Bandlücke wird [76]. Bei 795 nm (Ti:Sa) und im NIR lassen sich jedoch die meisten Materialien verwenden.

- **Angestrebte Pulsdauer und damit die spektrale Bandbreite des Pulses**

Abbildung 6.12 zeigt die spektrale Abhängigkeit der Effizienz eines dielektrischen Gitters (Nb₅O₂/SiO₂, für $\lambda=795$ nm optimiert) im Vergleich zu der eines Metallgitters (Gold). Beim gerechneten Beispiel erzielt das dielektrische Gitter nur in einem sehr engen Bereich von 11 nm um die Zentralwellenlänge bessere Effizienzen, während das Metallgitter durch die schwache Abhängigkeit der Effizienz von der Wellenlänge den gesamten übrigen Spektralbereich (gerechnet bis zu Bandbreiten von 90 nm) beherrscht. Der Deckungspunkt der Gesamteffizienzen ist bei einer Halbwertsbreite von ca. 30 nm zu finden. Die Änderung der Effizienz pro Spektreinheit ist im gesamten Spektralbereich für dielektrische Gitter größer, die Folge sind größere Einengung des Spektrums und zeitliche Pulsverlängerung. Bei größeren Bandbreiten ist darüberhinaus ein größerer Separationswinkel notwendig (vgl. Abschnitt 5.8). Auch hier reagiert das Me-

tallgitter auf Veränderungen träger; die Verluste bei hohen Separationswinkeln sind geringer.

- **Zerstörschwelle des vierten Kompressorgitters im Langzeitbetrieb**

Nur auf dem vierten Kompressorgitter trifft der voll komprimierte und verstärkte Laserpuls auf. Alle anderen Gitter erfahren nur einen Bruchteil dieser Energiedichten, sind also in Hinsicht der Zerstörschwelle unkritisch. Die Untersuchungen in den Kapiteln 3 und 4 haben gezeigt, dass die besten dielektrischen Spiegel bei Pulsdauern von mehr als 100 fs deutlich bessere Zerstörfluenzen als Metallspiegel aufweisen. Bei Pulsdauern von weniger als 50 fs sinken die Schwellen auch der besten dielektrischer Spiegel unter die der Metallspiegel. Zwischen 50 fs und 100 fs sind die Werte vergleichbar. Metallspiegel mit einer niedrigbrechenden, dielektrischen ($\lambda/4$)-Versiegelung (Hybride) weisen eine um bis zu 10% verbesserte Zerstörschwelle gegenüber dem unversiegelten Metallspiegel auf.

- **Mindestabmessungen der Gitter**

Vergrößert man die Fläche des Laserstrahles auf dem vierten Kompressorgitter, verringert sich die Fluenz, die auf das vierte Gitter einwirkt. Damit lassen sich höhere Strahl-Gesamtenergien realisieren. Während derzeit Metallgitter mit Abmessungen von 30x30 cm² keine Seltenheit sind (in Einzelfällen bis zu 1 m²), stecken die Technologien zur Herstellung dielektrischer Gitter noch in den Kinderschuhen. Das spektrale Abschneiden lässt sich somit durch Metallgitter besser unterdrücken.

- **Gesamtkosten von Strecker und Kompressor**

Metallgitter sind bei gleichen Abmessungen zur Zeit um einen Faktor von 3-10 billiger als vollkommen dielektrische Gitter. Hybridgitter (eine bzw. mehrere Deckschichten) sind nur geringfügig teurer als Metallgitter.

Zusammenfassend lässt sich sagen, dass für die meisten CPA-Systeme einfache und billige Metallgitter vollkommen ausreichen. Der Einsatz dielektrischer Gitter lohnt sich nur dann, wenn bei Pulsdauern von mehr als 80 fs hohe Effizienz und hohe Zerstörschwellen bei geringen Abmessungen erforderlich sind, d. h. in platzsparenden Hochleistungslasersystemen. Höchstleistungslaser im Petawattbereich bedienen sich der Metallgitter, aus Kosten- und Skalierungsgründen.

Bei Pulsdauern von weniger als 50 fs sind Metall- bzw. Hybridgitter ohnehin unersetzlich. Sie weisen einen geringeren Abfall der Effizienz in Abhängigkeit von Wellenlänge und Separationswinkel und höhere Zerstörschwellen als vergleichbare dielektrische Gitter auf - bei geringeren Kosten und derzeit größeren realisierbaren Abmessungen.

Kapitel 7

Zusammenfassung und Ausblick

Im Verlauf dieser Arbeit wurden Multischuss-Experimente zur Zerstörfestigkeit und zur Effizienz von Laserspiegeln und Kompressor-Reflexionsgittern für den Einsatz im Ultrakurzzeitbereich ($\tau_{puls} = 50..500 \text{ fs}$) bei einer Wellenlänge von 795 nm durchgeführt. Die wichtigsten Ergebnisse werden im Folgenden zusammengefasst.

1. Round-Robin-Experimente zur Bestimmung von Zerstörschwellen ergaben eine gute Übereinstimmung der während dieser Arbeit gemessenen Werte mit Ergebnissen anderer Institute. Wiederholte Messungen an Referenzproben untermauerten die Zuverlässigkeit der Messwerte.
2. Experimente zur Pulsdauerabhängigkeit der Zerstörschwelle ergaben eine konstante Zerstörschwelle für metallische Filme im Pulsdauerbereich von 50 fs bis 500 fs. Dielektrische Multischicht-Spiegel wiesen mit sinkender Pulsdauer eine verringerte Zerstörschwelle auf. Unterhalb von 50 fs Pulsdauer erreichte auch das beste dielektrische Schichtsystem ($\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$) nicht die Zerstörfestigkeit der besten Metallfilme (Gold und Silber). Die LIDT von Hybridschichten (Metallfilm + dielektrische Oberflächenschichten) zeigten, abhängig von ihrer Zusammensetzung, in ihrer Zeitabhängigkeit vorrangig dielektrische Merkmale. Hinsichtlich ihrer Zerstörfestigkeit erwiesen sich Hybridschichten als ernstzunehmende Alternative zu herkömmlichen Laseroptik-Materialien. Wichtig sind in diesem Zusammenhang zukünftige Messungen der Zerstörschwelle von Hybridschichten in Abhängigkeit von der Dicke der dielektrischen Oberflächenschicht.
3. Für verschiedene Metallfilme wurde die Filmdickenabhängigkeit der Zerstörschwelle untersucht. Aus den Messergebnissen wurde mit Hilfe numerischer Berechnung des Zwei-Temperatur-Modells die Elektron-Phonon-Kopplung g und größenordnungsmäßig die Eindringtiefe ballistischer Elektronen l_b bestimmt. Für drei von vier getesteten Metallen (Au, Al, und Cu) stimmten die ermittelten

- g -Werte gut mit den Literaturangaben überein. Die Elektron-Phonon-Kopplung in Silber lag um über eine Größenordnung über den Literaturwerten.
4. Für dünne Filme bis zu 250 nm Dicke wies Silber (bei geringfügig geringerer Reflexionseffizienz) eine deutlich höhere Zerstörschwelle als Gold auf. Silberschichten sind demnach prädestiniert für den Einsatz in filmdickenlimitierten Laseroptiken wie Metallgittern. Zukünftige Experimente in sollten sich darauf konzentrieren, Gold-Silber-Legierungen und Goldschichten mit dünner Silberoberfläche ($d \approx (10..50) \text{ nm}$) hinsichtlich ihrer Zerstörschwellen zu untersuchen.
 5. Multischussexperimente mit veränderlicher Schusszahl zeigten, dass der Anteil der pro Schuss im Probenvolumen in Form von mechanischen Verspannungen und Wärme *dauerhaft* deponierten Energie mit wachsender Anzahl der bereits applizierten Schüsse abnimmt.
 6. Die Untersuchung der Schadensmorphologie an verschiedenen Goldfilmen zeigte für alle in dieser Hinsicht untersuchten Proben eine Modifikation der Oberfläche bereits bei Fluenzen unterhalb der Ablationsschwelle. Die Schwellfluenz dieser Modifikation hängt wesentlich von der Oberflächenqualität der Probe ab.
 7. Für ein Titan:Saphir-Lasersystem ($\lambda_c = 795 \text{ nm}$) wurde ein Zwei-Gitter-Kompressor aufgebaut, dessen Komponenten komplett aus dielektrischen Materialien bestanden. Eine maximaler Durchsatz von 58% wurde gemessen.
 8. Der angestrebte Designparameter-Bereich wurden bei keinem der dielektrischen Testgitter erreicht. Die gemessenen Kompressor-Effizienzen konnten durch Einsetzen der realen Gitterparameter in eine numerische RCWA-Simulationen, unter Berücksichtigung von spektralem Abschneiden und Streuverlusten nachvollzogen werden.
 9. Dielektrische Gitter mit Beugungseffizienzen von mehr als 97% in der -1. Ordnung lassen sich dann herstellen, wenn die Gitterparameter *Stegbreite* und *Grabentiefe* um weniger als $\pm 20 \text{ nm}$ von den Sollparametern abweichen. Herstellungsverfahren, die eine solche Genauigkeit ermöglichen könnten, sind holographische Lithographie, Elektronenstrahlolithographie und die Herstellung von Gittern durch Ablation mit ultrakurzen UV-Laser-Pulsen [120].

Literaturverzeichnis

- [1] D. Strickland and G. Mourou. Compression of amplified chirped optical pulses. *Opt. Commun.*, 56:219–221, 1985.
- [2] P. Mainea, D. Strickland, P. Bado, M. Pessot, and G. Mourou. Generation of ultrahigh peak power pulses by chirped pulse amplification. *IEEE J. Quantum Electron.*, 24:398–403, 1988.
- [3] S. I. Anisimov, B. L. Kapelianovich, and T. L. Perelman. Electron emission from metal surfaces exposed to ultrashort laser pulses. *Sov. Phys. JETP*, 39:375, 1974.
- [4] P. B. Corkum, F. Brunela, N. K. Sherman, and T. Srinivasan-Rao. Thermal response of metals to ultrashort-pulse laser excitation. *Phys. Rev. Lett.*, 61:2886–2889, 1988.
- [5] E. Matthias, M. Reichling, J. Siegel, O. W. Käding, S. Petzoldt, H. Skurk, P. Bizenberger, and E. Neske. The influence of thermal diffusion on laser ablation of metal films. *Appl. Phys. A*, 58:129, 1994.
- [6] B.C. Stuart, M.D. Feit, S. Herman, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, and M.D. Perry. Optical ablation by high-power short-pulse lasers. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13:459–468, 1996.
- [7] S. S. Wellershoff, J. Hohlfeld, J. Güdde, and E. Matthias. The role of electron-phonon coupling in femtosecond laser damage of metals. *Appl. Phys. A*, 69:99, 1999.
- [8] N. Bloembergen. Laser-induced electrical breakdown in solids. *IEEE J. Quant. Electr.*, 10:375, 1974.
- [9] L. H. Holway and D. W. Fradin. Electron avalanche breakdown by laser irradiation in insulating crystals. *J. Appl. Phys.*, 46:279–291, 1975.
- [10] M. Sparks, D. L. Mills, R. Warren, T. Holstein, A. A. Mararudin, L. J. Sham, E. Loh, and D. F. King. Theory of electron-avalanche breakdown in solids. *Phys. Rev. B*, 24:3519–3536, 1981.
- [11] M. H. Niemz. Threshold dependence of laser-induced optical breakdown on pulse duration. *Appl. Phys. Lett.*, 66(10):1181–1183, 1995.
- [12] D. Du, X. Liu, and G. Mourou. Reduction of multi-photon ionization in dielectrics due to collisions. *Appl. Phys. B*, 63:617–621, 1996.
- [13] M. Lenzner. Femtosecond laser-induced damage of dielectrics. *Int. J. of Mod. Phys. B*, 13(13):1559–1578, 1999.
- [14] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, Ch. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz. Femtosecond optical breakdown in dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, 80(18):4076–4079, 1998.

- [15] B.C. Li, S. Martin, and E. Welsch. Pulsed top-hat beam thermal lens measurement on ultraviolet dielectric coatings. *Optics Lett.*, 24(20):1398–1400, 1999.
- [16] B.C. Li and E. Welsch. Probe-beam diffraction in a pulsed top-hat beam thermal lens with a mode-mismatched configuration. *Appl. Opt.*, 38(24):5241–5249, 1999.
- [17] K. Ettrich, H. Blaschke, and E. Welsch. Damage precursor measurement on uv optical coatings. *SPIE*, 2428:410, 1995.
- [18] J. Siegel. *Schwellenbestimmung für die Excimerlaser-Ablation metallischer und dielektrischer Schichten*. PhD thesis, Freie Universität Berlin, 1994.
- [19] J. Hohlfeld. *Ultrafast Electron-, Lattice- and Spin-Dynamics in Metals*. PhD thesis, Freie Universität Berlin, 1998.
- [20] J. Bonse. *Materialbearbeitung von Halbleitern und Nitridkeramiken mit ultrakurzen Laserpulsen*. PhD thesis, TU Berlin, 2001.
- [21] D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squiler, and G. Mourou. Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO_2 with pulse widths from 7 ns to 150 fs. *Appl. Phys. Lett.*, 64(23):3071, 1994.
- [22] J. A. Arnaud, W. M. Hubbard, G.D. Mandeville, B. de la Claviere, E. A. Franke, and J.M. Franke. Technique for fast measurement of gaussian laser beam parameters. *Appl. Opt.*, 10:2775, 1971.
- [23] B. Cannon, T. S. Gardner, and D. K. Cohen. Measurement of 1- μm diam beams. *Appl. Opt.*, 25(17):2981, 1986.
- [24] J. M. Liu. Simple technique for measurement of pulsed gaussian-beam spot sizes. *Opt. Lett.*, 7:196, 1982.
- [25] J. Jandeleit, G. Urbasch, H. Hoffmann, H. G. Treusch, and E. Kreutz. Picosecond laser ablation of thin copper films. *Appl. Phys. A*, 63:117–121, 1996.
- [26] J. Krueger. *Ultrakurze Laserimpulse in der Micromaterialbearbeitung*. PhD thesis, Technische Universität Cottbus, 1998.
- [27] R. Bödefeld. *CCD-Polarimetrie mittels Savartplatte*. PhD thesis, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 1998.
- [28] S. Szatmari and F. P. Schäfer. Simplified laser system for the generation of 60 fs pulses at 248 nm. *Opt. Comm.*, 68(5):196–202, 1988.
- [29] G. Almasi, S. Szatmari, and P. Simon. Optimized operation of short-pulse krf amplifiers by off axis amplification. *Opt. Comm.*, 88:231–239, 1992.
- [30] <http://www.physik.uni-jena.de/qe/technik/labor-2.html>.
- [31] M. I. Kaganov, I. M. Lifschitz, and L. V. Tanatarov. Relaxation between electrons and the crystalline lattice. *Sovj. Phys. JETP*, 4(2):173–178, 1957.
- [32] F. Korte, S. Nolte, B. N. Chichkov, T. Bauer, G. Kamlage, T. Wagner, C. Fallnich, and H. Welling. Far-field and near-field material processing with femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. A*, 68:391, 1999.
- [33] F. Korte, S. Adams, A. Egbert, C. Fallnich, A. Ostendorf, S. Nolte, M. Will, J. P. Ruske, B. N. Chichkov, and A. Tünnermann. Sub-diffraction limited structuring of solid targets with femtosecond laser pulses. *Optics Express*, 7(2):41, 2000.

- [34] A. P. Kanavin, I. V. Smetanin, V. A. Isakov, Y. V. Atanasiev, B. N. Chichkov, B. Welleghausen, S. Nolte, C. Momma, and A. Tnnermann. heat transport in metals irradiated by ultrashort laser pulses. *Phys. Rev. B*, 57(23):14698–14703, 1998.
- [35] W. Greiner, L. Neise, and H. Stöcker. *Thermodynamik und Statistische Mechanik*. Verlag Harry Deutsch, Frankfurt/M., 2. edition, 1993.
- [36] D. Pines and P. Nozieres. *The theory of quantum liquids, Vol. 1*. W. A. Benjamin, New York, 1989.
- [37] C. Kittel. *Einführung in die Festkörperphysik*. Oldenbourg-Verlag, München Wien, 11. edition, 1996.
- [38] S. Ogawa, H. Nagano, and H. Petek. Hot electron dynamics at cu(100), cu(110), and cu(111) surfaces: Comparison of experiment with fermi-liquid theory. *Phys. Rev. B*, 55(16):869–877, 1997.
- [39] W. L. Kruer. *The Physics of Laser Plasma Interactions*. Addison-Wesley, Redwood City, 1988.
- [40] S. D. Brorson, J. G. Fujimoto, and E. P. Ippen. Femtosecond electronic heat-transport dynamics in thin gold films. *Phys. Rev. Lett.*, 59:1962, 1987.
- [41] C. Suarez, W. E. Bron, and T. Juhasz. Dynamics and transport of electronic carriers in thin gold films. *Phys. Rev. Lett.*, 75:4536, 1995.
- [42] P. P. Pronko, S. K. Dutta, J. Squier, J. V. Rudd, D. Du, and G. Mourou. Machining of sub-micron holes using a femtosecond laser at 800 nm. *Opt. Commun.*, 114:106–110, 1995.
- [43] J. Krüger and W. Kautek. Femtosecond-pulse laser processing of metallic and semiconducting thin films. *SPIE*, 2403:436–447, 1995.
- [44] D. R. Lide (editor-in chief). *CRC Handbook of Chemistry and Physics*. CRC Press, 76. edition, 1995.
- [45] S. L. Logunov, T. S. Ahmadi, M. A. El-Sayed, J. T. Khoury, and R. L. Whetten. Electron dynamics of passivated gold - nanocrystals probed by subpicosecond transient absorption spectroscopy. *J. Phys. Chem. B*, 101(19):3713–3719, 1996.
- [46] M. K. Weilmeyer, W. H. Rippard, and R. A. Buhrman. Ballistic electron transport through au(111)/si(111) and au(111)/si(100) interfaces. *Phys. Rev. B*, 59:R2521, 1999.
- [47] U. Conrad. *Lineare und nichtlineare fs-zeitaufgelöste transiente Thermoreflexionsspektroskopie an Edelmetallen. Diplomarbeit*. PhD thesis, FU Berlin, 1995.
- [48] O. Wright. Dynamics of ultrafast nonequilibrium stress generation in metals. *J. Phys.*, 4:C7–701, 1994.
- [49] C.-K. Sun, F. Vallée, L. H. Acioli, E. P. Ippen, and J. G. Fujimoto. Femtosecond tunable measurement of electron thermalisation in gold. *Phys. Rev. B*, 48:12365, 1994.
- [50] S. D. Brorson, A. Kazeroonian, J. S. Modera, D. W. Face, T. K. Cheng, E. P. Ippen, and M. S. Dresselhaus. Femtosecond room-temperature measurement of the electron-phono coupling constant λ in metallic superconductors. *Phys. Rev. Lett.*, 64:2172, 1990.
- [51] W. S. Fann, R. Storz, H. W. Thom, and J. Bokor. Direct measurement of nonequilibrium electron-energy distributions in subpicosecond laser-heated gold films. *Phys. Rev. Lett.*, 68:2834, 1992.

- [52] R. H. M. Groeneveld, R. Sprik, and A. Lagendijk. Effect of a nonthermal electron distribution on the electron-phonon energy relaxation process in noble metals. *Phys. Rev. B*, 45:5079, 1992.
- [53] T. Juhasz, H. E El Sayet-Ali, G. O. Smith, C. S. Suarez, and W. E. Bron. Direct measurement of the transport of nonequilibrium electrons in gold films with different crystal structures. *Phys. Rev. B*, 48:15488, 1993.
- [54] H. E El Sayet-Ali, T. Juhasz, G. O. Smith, and W. E. Bron. Femtosecond thermorefectivity and thermotransmittivity of polycrystalline and single-crystalline gold films. *Phys. Rev. B*, 45:4488, 1991.
- [55] D. v. D. Linde and K. Sokolowski-Tinten. The physical mechanics of short pulse laser ablation. *Appl. Surf. Sci.*, 154-155:1–10, 2000.
- [56] R. H. M. Groeneveld, R. Sprik, and A. Lagendijk. Ultrafast relaxation of electrons probed by plasmons at a thin silver film. *Phys. Rev. Lett.*, 57:784, 1990.
- [57] O. Wright and V. E Gusev. Ultrafast nonequilibrium stress generation in gold and silver. *Phys. Rev. B*, 49:9985, 1994.
- [58] J. Krüger, P. Meja, M. Autric, and W. Kautek. Femtosecond pulse laser ablation of anodic oxide coatings on aluminium alloys with on-line acoustic observation. *Appl. Surf. Sci.*, 186:374–380, 2002.
- [59] H. E. El Sayed-Ali, T. B. Norris, M. A. Pessot, and G. A. Mourou. Time-resolved observation of electron-phonon relaxation in copper. *Phys. Rev. Lett.*, 58:1212, 1987.
- [60] G. L. Eesley. Generation of nonequilibrium electrons and lattice temperatures in copper by picosecond laser pulses. *Phys. Rev. B*, 33:2144, 1986.
- [61] B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicanek, and G. Simon. Femtosecond laser-induced heating of electron gas in aluminium. *Appl. Phys. A*, 69:109–112, 1999.
- [62] E. D. Palik. *Handbook of optical constants*. Academic Press, San Diego, 1998.
- [63] D. E. Aspnes, J. B. Theeten, and F. Hottier. *Phys. Rev. B*, 20:3292, 1979.
- [64] L. Harris and J. K. Beasley. The infrared properties of gold smoke deposits. *J. Opt. Soc. Am.*, 42:134, 1951.
- [65] C. G. Granquist and O. Hunderi. *Phys. Rev. B*, 16:3513, 1977.
- [66] S. Preuss, A. Demchuk, and M. Stuke. Sub-picosecond uv laser ablation of metals. *Appl. Phys. A*, 61:33–37, 1995.
- [67] A. Rosenfeld and E. E. B. Campbell. Picosecond uv-laser ablation of au and ni films. *Appl. Surf. Sci.*, 96-98:439–442, 1996.
- [68] D. von der Linde and H. Schüler. Breakdown threshold and plasma formation in femtosecond laser-solid interaction. *J. Opt. Soc. Am. B*, 13(1):216, 1996.
- [69] M. Li, S. Menon, J. P. Nibarger, and G. N. Gibson. Ultrafast electron dynamics in femtosecond optical beakdown of dielectrics. *Phys. Rev. Lett.*, 82(11):2394, 1999.
- [70] C.J. Hooker, J.M.D. Lister, K. Osvay, D.T. Sheerin, D.C. Emmony, and R.L.J. Cowell. Pulse-length scaling of laser damage at 249nm in oxide and fluoride multilayer coatings. *Optics Letters*, 18(12):944, 1993.

- [71] G. H. Pettit and R. Sauerbrey. Pulsed ultraviolet laser ablation. *Appl. Phys. A*, 56:51–63, 1993.
- [72] L. V. Zhigilei and P. B. S. Kodali. Hot electron dynamics at cu(100), cu(110), and cu(111) surfaces: Comparison of experiment with fermi-liquid theory. *Phys. Rev. B*, 55(16):869–877, 1997.
- [73] K. Knig, I. Riemann, and W. Fritzsche. Nanodissection of human chromosomes with near-infrared femtosecond laser pulses. *Optics Letters*, 26(11):819–821, 2001.
- [74] A. Vogel, J. Noack, K. Nahenand D. Theisen, S. Busch, U. Parlitz, D. X. Hammer, G. D. Noojin, B. A. Rockwell, and R. Birngruber. Energy balance of optical breakdown in water at nanosecond to femtosecond time scales. *Phys. Rev. B*, 68:271–280, 1999.
- [75] D. Bäuerle. *Laser Processing and Chemistry*. Springer Verlag, Berlin/Heidelberg, 1996.
- [76] K. Ettrich. *Wechselwirkung von hochreflektiven dielektrischen Schichtsystemen mit ultravioletten Laserpulsen*. PhD thesis, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 1997.
- [77] R. Stoian abd M. Boyle, A. Thoss, A. Rosenfeld, D. Ashkenasi, G. Korn, E. E. B. Campbell, and I. V. Hertel. Ultrafast laser ablation of dielectrics employing temporally shaped femtosecond pulses. *SPIE*, 4426:78–81, 2002.
- [78] H. Varel, M. Wahmer, A. Rosenfeld, D. Ashkenasia, and E. E. B. Campbell. Femtosecond laser ablation of sapphire: time-of-flight analysis of ablation plume. *Applied Surface Science*, 127-129:128–133, 1998.
- [79] M. Bass and H. H. Barrett. *IEEE J. Quant. Electr.*, QE-8:338, 1972.
- [80] B.C. Stuart, M.D. Feit, A.M. Rubenchik, B.W. Shore, and M.D. Perry. Laser induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses. *Phys. Rev. Lett.*, 74(12):2248, 1995.
- [81] W. Kautek, J. Krüger, M. Lenzner, S. Sartania, C. Spielmann, and F. Krausz. Laser ablation of dielectrics with pulse durations between 20 fs and 3 ps. *Appl. Phys. Lett.*, 69(21):3146, 1996.
- [82] H. Varel, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, R. Herrmann, F. Noack, and E. E. B. Campbell. Laser-induced damage in SiO_2 and CaF_2 with picosecond and femtosecond laser pulses. *Appl. Phys. A*, 62:293–294, 1996.
- [83] J. Krüger and W. Kautek. Femtosecond-pulse visible laser processing of transparent materials. *Appl. Surf. Sc.*, 96-98:430, 1996.
- [84] M. Lenzner, J. Krüger, W. Kautek, and F. Krausz. Precision laser ablation of dielectrics in the 10 fs regime. *Appl. Phys. A*, 68:369, 1999.
- [85] L. V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sovj. Phys. JETP*, 20(8):1307–1314, 1964.
- [86] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane, and G. Mourou. Short-pulse laser damage in transparent material as a function of pulse duration. *Phys. Rev. Lett.*, 82(19):3883, 1999.
- [87] H. Blaschke, M. Jupe, D. Ristau, S. Martin, S. Bock, and E. Welsch. Investigations of the dynamic absorptance behaviour of hybrid multilayers at 193 nm. *SPIE*, 4679:28, 2001.
- [88] C. S. Jee, M. F. Becker, and R.M. Walser. *J. Opt. Soc. Am. B*, 5:648, 1988.

- [89] K. Hehl, J. Bischoff, U. Mohaupt, M. Palme, B. Schnabel, L. Wenke, R. Bödefeld, W. Theobald, E. Welsch, R. Sauerbrey, and H. Heyer. High-efficiency dielectric reflection gratings: design, fabrication, and analysis. *Appl. Opt.*, 38(38):6257–6271, 1999.
- [90] M. D. Perry and G. Mourou. Terawatt to petawatt subpicosecond lasers. *Science*, 264:917–924, 1994.
- [91] M. D. Perry, R. D. Boyd, J. A. Britten, D. E. Decker, B. W. Shore, C. Shannon, and E. Shults. High-efficiency multilayer dielectric diffraction gratings. *Opt. Lett.*, 20:940–942, 1995.
- [92] B. W. Shore, M. D. Perry, J. A. Britten, R. D. Boyd, M. D. Feit, H. T. Nguyen, R. Chow, and G. E. Loomis. Design of high-efficiency dielectric reflection gratings. *J. Opt. Soc. Am. A*, 14:1124–1136, 1997.
- [93] E. B. Treacy. Optical pulse compression with diffraction gratings. *IEEE J. Quantum Electron.*, QE-5:454–458, 1969.
- [94] Lord Rayleigh. On the dynamical theory of gratings. *Proc. Roy. Soc.*, A79:399–416, 1907.
- [95] R. Petit. *Electromagnetic Theory of Gratings*. Springer-Verlag, Berlin, 1980.
- [96] D. Maystre. Rigorous vector theories of diffraction gratings. *Progress in Optics, Amsterdam*, XXI:1–67, 1984.
- [97] C. B. Burckhardt. Diffraction of a plane wave at a sinusoidally stratified dielectric grating. *J. Opt. Soc. Am.*, 56:1502–1509, 1966.
- [98] F. G. Kaspar. Diffraction by thick, periodically stratified gratings with complex dielectric constant. *J. Opt. Soc. Am.*, 63:37–45, 1973.
- [99] K. Knop. Rigorous diffraction theory for transmission phase gratings with deep rectangular grooves. *J. Opt. Soc. Am.*, 68:1206–1210, 1978.
- [100] D. Maystre and R. Petit. Diffraction par un reseau lamellaire infiniment conducteur. *Opt. Commun.* 5, pages 90–93, 1972.
- [101] L. C. Botten, R. C. McPhedran, J. L. Adams, J. R. Andrewartha, and M. S. Craig. The dielectric lamellar diffraction grating. *Opt. Acta*, 28:413–428, 1981.
- [102] L. C. Botten, R. C. McPhedran, J. L. Adams, J. R. Andrewartha, and M. S. Craig. Rigorous diffraction theory for transmission phase gratings with deep rectangular grooves. *Opt. Acta*, 28:1087–1102, 1981.
- [103] L. C. Botten, R. C. McPhedran, and J. L. Adams. Rigorous diffraction theory for transmission phase gratings with deep rectangular grooves. *Opt. Acta*, 28:1103–1106, 1981.
- [104] D. M. Pai and K. A. Awada. Analysis of dielectric gratings of arbitrary profiles and thicknesses. *J. Opt. Soc. Am. A*, 8(5):755–762, 1991.
- [105] L. Li. Use of fourier series in the analysis of discontinuous periodic structures. *J. Opt. Soc. Am. A*, 13(6):1870–1876, 1996.
- [106] M. G. Moharam and T. K. Gaylord. Rigorous coupled-wave analysis of planar-grating equation. *J. Opt. Soc. Am.*, 71:811–818, 1981.
- [107] M. G. Moharam and T. K. Gaylord. Diffraction analysis of dielectric surface-relief gratings. *J. Opt. Soc. Am.*, 72:1385–1392, 1982.

- [108] M. G. Moharam, E. B. Grann, and D. A. Pommet. Formulation for stable and efficient implementation of the rigorous coupled-wave analysis of binary gratings. *J. Opt. Soc. Am. A*, 12(5):1068–1076, 1995.
- [109] M. G. Moharam, D. A. Pommet, and E. B. Grann. Stable implementation of the rigorous coupled-wave analysis for surface relief gratings: enhanced transmittance matrix approach. *J. Opt. Soc. Am. A*, 12(5):1077–1086, 1995.
- [110] K. Hehl and J. Bischoff. *Unigit*. private, 1.00 edition, 2001.
- [111] B. C. Li, W. Theobald, E. Welsch, and R. Sauerbrey. Optimization of grating size in chirped-pulse-amplification laser system. *Appl. Phys. B*, 71:819–826, 2000.
- [112] R. Dorsinville, P. P. Ho, J. T. Massanah, and R. R. Alfano. *The Supercontinuum Laser Source*. Springer, New York, 1989.
- [113] M. Stern, J. P. Heritage, and E. W. Chase. Grating compensation of third-order fiber dispersion. *IEEE J. Quantum Electron.*, 28:2742–2748, 1992.
- [114] W. E. White, F. G. Patterson, R. L. Combs, D. F. Price, and R. L. Shepherd. Compensation of higher-order frequency dependent phase terms in chirped-pulse amplification systems. *Opt. Lett.*, 18:1343–1345, 1993.
- [115] A. Sullivan and W. E. White. Phase control for production of high-fidelity optical pulses for chirped-pulse amplification. *J. Opt. Soc. Am. A*, 12(5):1077–1086, 1995.
- [116] S. Kane and J. Squier. Grating compensation of third-order material dispersion in the normal dispersion regime: Sub-100-fs chirped-pulse amplification using a fiber stretcher and grating-pair compressor. *IEEE J. Quantum Electron.*, 31:2052–2057, 1995.
- [117] R. D. Boyd, J. A. Britten, D. E. Decker, B. W. Shore, B. C. Stuart, M. D. Perry, and L. Li. High-efficiency metallic diffraction gratings for laser application. *Appl. Opt.*, 34:1697–1706, 1995.
- [118] E. Miesak and R. Negres. Alignment procedure for a dual grating pulse compressor. *OPN news*, 1998.
- [119] M. V. Klein and T. E. Furtak. *Optik*. Springer Verlag, Berlin, 1. edition, 1988.
- [120] K. Chen, J. Ihlemann, P. Simon, I. Baumann, and W. Sohler. Generation of submicron surface gratings on linbo3 by ultrashort uv-laser pulses. *Appl. Phys. A*, 65:517–518, 1997.
- [121] K. Hehl and J. Bischoff. Matrix formalism for the diffraction computation on one-dimensional multilayer gratings. *unpublished*, 2002.
- [122] L. Li. A modal analysis of lamellar diffraction gratings in conical mountings. *J. Mod. Phys.*, 40:553–573, 1993.
- [123] M. C. Hutley and D. Maystre. Total absorption of light by a diffraction grating. *Opt. Commun.*, 19:431–436, 1976.
- [124] L. Mashev and E. Popov. Anomalies of metallic diffraction gratings. *J. Opt. Soc. Am. A*, 6:1561–1567, 1989.
- [125] P. Lalanne and G. M. Morris. Highly improved convergence of the coupled-wave method for tm polarization. *J. Opt. Soc. Am. A*, 13(4):779–784, 1996.

-
- [126] C. Fiorini, C. Sauteret, C. Rouyer, N. Blanchot, S. Seznec, and A. Migus. Temporal aberrations due to misalignments of a stretcher-compressor system and compensation. *IEEE J. Quantum Electron.*, 30(7):1662–1670, 1994.
- [127] D. N. Fittinghoff, B. C. Walker, J. A. Squier, C. A. Toth, C. Rose-Petruck, and C. P. J. Barty. Dispersion considerations in ultrafast cpa systems. *IEEE J. Select. Topics Quantum Electron.*, 4(2):430–439, 1998.
- [128] M. Born and E. Wolf. *Principles of Optics*. Cambridge UP, 7. edition, 1999.
- [129] D. Lorenz. *Frequenzkonversion bei hohen mittleren Leistungen*. PhD thesis, Berlin, 1994.

Anhang A

RCWA-Formalismus

Der RCWA-Formalismus (*Rigorous Coupled Wave Approach*) ermöglicht als direkt aus den Maxwell-Gleichungen resultierende Methode die numerische Simulation der optischen Vorgänge an Beugungsgittern, die aus mehreren übereinanderliegenden, homogenen oder inhomogenen Schichten bestehen, die wiederum durch flache oder wellige Grenzflächen voneinander getrennt sind. Dabei müssen keinerlei Einschränkungen hinsichtlich der Form oder des Aspektverhältnisses gemacht werden.

Es ist notwendig, sich mit der theoretischen Grundlage dieser Vorgehensweise auseinanderzusetzen, um deren Möglichkeiten und Beschränkungen bei der Berechnung der Effizienzen von Gittern und Spiegeln verschiedensten Materials zu kennen. Zum verwendeten Programm existiert eine unveröffentlichte Referenz [121], welche zur Grundlage der folgenden Diskussion wurde. Der folgende Abschnitt dient weniger der Vorstellung der RCWA-Methode, als vielmehr einer Einsicht in die Verlässlichkeit und Relevanz der mit ihr abgeleiteten Ergebnisse.

Der Algorithmus basiert auf dem von der Behandlung flacher Layer her bekannten Matrixformalismus, der mit Bezug auf unebene Grenzflächen und Volumeninhomogenitäten erweitert wurde. Es soll deshalb zuerst kurz auf die Behandlung flacher Schichten eingegangen werden, bevor der erweiterte Formalismus für beliebige Schichten vorgestellt wird.

A.1 Ebene Schichten

Für ebene Schichtsysteme gilt die Translationssymmetrie senkrecht zur Oberflächennormalen \mathbf{e}_x . Der im Bezug auf die x-Achse senkrecht ausgerichtete Wellenzahlvektor β , der damit parallel zur Schichtoberfläche ist, bleibt dann erhalten. Als Koordinatensystem werden die drei Einheitsvektoren \mathbf{e}_x , $\vec{e}_\beta = \beta/\beta$ und $\mathbf{e}_s = \mathbf{e}_\beta \times \mathbf{e}_x$ definiert. Die beiden Polarisationszustände TE (charakterisiert durch E_s und H_β ; $H_x = -\beta E_s$)

und TM (H_s, E_β ; $E_x = \beta/\epsilon H_s$) sind entkoppelt und jeweils durch die ersten beiden in den Klammern angegebenen Größen vollständig charakterisiert.

Die Dispersionsrelation

$$\alpha_i^2 + \beta^2 = \epsilon_i \quad (\text{A.1})$$

bestimmt den zu \mathbf{e}_x parallelen Wellenzahlvektor α in der i -ten Schicht. Dieser kann sowohl positiv als auch negativ sein, was freier Ausbreitung in beide Richtungen entspricht. Die transversalen Gesamtfelder ergeben sich aus der Superposition der "Plus"- und "Minus"-Felder (TE: E_+, E_-) bzw. (TM: H_+, H_-):

$$\begin{pmatrix} E_s \\ H_\beta \end{pmatrix}^i = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \alpha_i & -\alpha_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_+ \\ E_- \end{pmatrix}^i = \mathbf{\Gamma}_{\text{TE}}^i \begin{pmatrix} E_+ \\ E_- \end{pmatrix}^i \quad (\text{A.2})$$

$$\begin{pmatrix} H_s \\ E_\beta \end{pmatrix}^i = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -\alpha_i/\epsilon_i & \alpha_i\epsilon_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H_+ \\ H_- \end{pmatrix}^i = \mathbf{\Gamma}_{\text{TM}}^i \begin{pmatrix} H_+ \\ H_- \end{pmatrix}^i \quad (\text{A.3})$$

Die Transmission vom Punkt x_i zum Punkt x_{i+1} kann ebenfalls in Matrixschreibweise ausgedrückt werden durch

$$\begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^{x_i} = \begin{pmatrix} t_i^{-1} & 0 \\ 0 & t_i \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^{x_{i+1}} = \mathcal{T}^i \begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}_{i+1}^x, \quad (\text{A.4})$$

wobei $t_i = \exp(i\alpha_i d_i)$ die Phasenänderung und die Abschwächung einer ebenen Welle beschreibt, die innerhalb der Schicht einen Weg d_i zurücklegt. Für TE gilt $E_\pm = S_\pm$, für TM $H_\pm = S_\mp$.

Die Maxwellgleichungen fordern die Kontinuität der transversalen Komponenten des elektromagnetischen Feldes beim Passieren einer Grenzfläche. Demnach folgt für Felder und Gamma-Matrizen beim Übergang von der i -ten in die $i+1$ -te Schicht für TE und TM (für S_\pm sind TE: E_\pm bzw. TM: H_\pm einzusetzen)

$$\mathbf{\Gamma}_{\text{TE, TM}}^i \begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^i = \mathbf{\Gamma}_{\text{TE, TM}}^{i+1} \begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^{i+1} \quad (\text{A.5})$$

woraus durch Umstellen folgende Beziehungen für die transversalen Felder folgt:

$$\begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^i = (\mathbf{\Gamma}^{-1})_{\text{TE, TM}}^i \mathbf{\Gamma}_{\text{TE, TM}}^{i+1} \begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^{i+1} \quad (\text{A.6})$$

Die invertierten Gamma-Matrizen nehmen dabei folgende Form an:

$$(\mathbf{\Gamma}^{-1})_{\text{TE}}^i = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & 1/\alpha_i \\ 1 & -1/\alpha_i \end{pmatrix}, \quad (\mathbf{\Gamma}^{-1})_{\text{TM}}^i = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 & -\epsilon_i/\alpha_i \\ 1 & \epsilon_i/\alpha_i \end{pmatrix} \quad (\text{A.7})$$

Ausgehend von der Ausbreitung der \pm -Wellen durch den gesamten Stack, von untersten Schicht (d) zur obersten (u), erhält man die Ausbreitungsmatrix \mathcal{P} , indem man

die Γ - und \mathcal{T} -Matrizen entsprechend des Auftretens der relevanten Schichteigenschaft (d.h., Grenzschicht oder Transmission) zum sogenannten T-Matrix-Algorithmus aneinanderreicht:

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^u &= (\Gamma^{-1})^u \Gamma^{u+1} \dots \Gamma^i \mathcal{T}^i (\Gamma^{-1})^i \dots (\Gamma^{-1})^{d-1} \Gamma^d \begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^d \\ &= \begin{pmatrix} a & b \\ c & d \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^d = \mathcal{P}^{\text{ud}} \begin{pmatrix} S_+ \\ S_- \end{pmatrix}^d \end{aligned} \quad (\text{A.8})$$

Es ist von praktischem Interesse, die Beziehungen zwischen den in den Stack einlaufenden Wellen (Anregung) und den den Stack verlassenden Wellen (Detektion) in einer Matrixbeziehung zu erfassen. Dafür muss Gleichung A.8 umgeschrieben (teilweise invertiert) werden:

$$\begin{aligned} \begin{pmatrix} S_-^u \\ S_+^d \end{pmatrix} &= \begin{pmatrix} R^u & T^d \\ T^u & R^d \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_+^u \\ S_-^d \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} ca^{-1} & d - ca^{-1}b \\ a^{-1} & -a^{-1}b \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_+^u \\ S_-^d \end{pmatrix}^d. \end{aligned} \quad (\text{A.9})$$

A.2 Behandlung von RCWA-Schichten

Ziel dieses Abschnitts ist es, einen Matrixformalismus zu finden, der die Fortpflanzung des elektromagnetischen Feldes inner- und außerhalb von RCWA-Schichten durch Γ - und \mathcal{T} -Matrizen beschreibt. Die Periodizität des Stacks wird dafür so gewählt, dass sie nur in einer Koordinate wirkt (\mathbf{z}). Profile, die von der binären Form abweichen, also eine Abhängigkeit auch in \mathbf{x} -Richtung (parallel zur Oberflächennormalen des Stacks) aufweisen, müssen damit in RCWA-Schichten zerlegt werden, innerhalb derer es keine \mathbf{x} -Abhängigkeit der dielektrischen Funktion ϵ gibt. Die gewählte Dicke der Schichten hängt sowohl vom Material der Schicht (Metalle benötigen ein weitaus feineres Slicing als Dielektrika) als auch vom Winkel der Materialgrenzschicht gegen die \mathbf{x} -Koordinate (je größer dieser Winkel, desto dünner die RCWA-Schichten) ab.

A.2.1 Differenzialgleichungen

Die Periodizität der Schicht sei durch $\epsilon(z) = \epsilon(z + p)$ in der gesamten Schicht charakterisiert. Im Gegensatz zum ebenen Stack bleibt β nicht erhalten, vielmehr koppeln verschiedene $\vec{\beta}_m = \vec{\beta}_0 + \frac{2\pi m}{p\vec{e}_z}$ miteinander. Im Falle der klassischen Anordnung (d. h., β_0 hat keine y -Komponente) schreiben sich E - und H -Feld wie folgt:

$$\mathbf{E}(x, z) = \sum \mathbf{E}_m(x) \exp(i\beta_m z) \quad \mathbf{H}(x, z) = \sum \mathbf{H}_m(x) \exp(i\beta_m z) \quad (\text{A.10})$$

Die Felder bestehen aus der Summe einer beliebigen (unendlichen) Anzahl von Moden, die im Gitter angeregt werden können. Jeder Feldstärkevektor lässt sich dann wiederum als Vektor aufschreiben, dessen Komponenten die Einzelmoden darstellen. Der Modenindex m wird im folgenden bei der Beschreibung der Felder zwecks Vereinfachung weggelassen. Die Dielektrizitätskonstante kann in diesem Zusammenhang als Matrix mit den Elementen

$$\epsilon(x)_{m,m'} = \frac{1}{p} \int_0^p \epsilon(z, x) \exp[2\pi iz(m - m')/p] dz \quad (\text{A.11})$$

geschrieben werden. Führt man noch die Matrix $\beta_{m,m'} \equiv \beta_m \delta_{m,m'}$ ein, führt das zu folgenden normalisierten Maxwell-Gleichungen ($\omega/c = 1$):

$$\begin{aligned} \text{rot } \mathbf{H} = i\epsilon\mathbf{E} : \quad & -i\beta H_y = -i\epsilon E_x \\ & i\beta H_x - \frac{d}{dx} H_z = -i\epsilon E_y \\ & \frac{d}{dx} H_z = -i\left(\frac{1}{\epsilon}\right)^{-1} E_z \end{aligned} \quad (\text{A.12})$$

$$\begin{aligned} \text{rot } \mathbf{E} = -i\mathbf{H} : \quad & -i\beta E_y = -iH_x \\ & i\beta E_x - \frac{d}{dx} E_z = -iH_y \\ & \frac{d}{dx} E_z = iH_z \end{aligned} \quad (\text{A.13})$$

Die Normalenkomponenten E_x und H_x können mit Hilfe der Gleichungen A.12 und A.13 durch H_y und E_y ausgedrückt werden. Die restlichen vier Differentialgleichungen erster Ordnung können wiederum den beiden ungekoppelten Polarisationszuständen TE und TM zugeordnet werden.

A.2.2 Matrixformulierung

Die Matrixgleichung für TE lautet

$$\frac{d}{dx} \begin{pmatrix} E_y \\ H_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & i \\ i(\epsilon - \beta^2) & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} E_y \\ H_z \end{pmatrix}, \quad (\text{A.14})$$

für TM ergibt sich

$$\frac{d}{dx} \begin{pmatrix} H_y \\ E_z \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 0 & -i\left(\frac{1}{\epsilon}\right)^{-1} \\ i(\beta\epsilon^{-1}\beta - 1) & 0 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H_y \\ E_z \end{pmatrix}. \quad (\text{A.15})$$

Es hat sich erwiesen, dass das äquivalente Differentialgleichungssystem zweiter Ordnung [122]

$$\frac{d^2}{dx^2} \mathbf{S} = \mathcal{D} \mathbf{S} \quad (\text{A.16})$$

$$\begin{aligned}
\text{TE : } \mathcal{D} &= \beta^2 - \epsilon, \quad S = E_y \\
\text{TM : } \mathcal{D} &= \left(\frac{1}{\epsilon}\right)^{-1} (\beta\epsilon^{-1}\beta - 1), \quad S = H_y \\
\mathcal{D} &= (\beta\epsilon^{-1}\beta - 1), \quad S = E_z
\end{aligned}$$

in der Lösung effizienter ist, da sich unter anderem die Anzahl der zu berechnenden Gleichungen von $2N$ auf N verringert (N = Anzahl der berücksichtigten Rayleigh-Ordnungen). Diagonalisiert man die \mathcal{D} -Matrizen ($\mathcal{D}' = \mathcal{W}^{-1}\mathcal{D}\mathcal{W}$), so dass die neue Matrix \mathcal{D}' Elemente ungleich Null nur in der Hauptdiagonalen enthält, ergeben sich neue Differentialgleichungen mit dem transformierten Feldstärke-Vektor $\mathbf{S}' = \mathcal{W}^{-1}\mathbf{S}$. Die Elemente S'_m (der Rayleigh-Ordnung m) genügen der folgenden Beziehung

$$\frac{d^2}{dx^2} S'_m = d_m S'_m, \quad (\text{A.17})$$

wobei die d_m die Elemente der Hauptdiagonalen von \mathcal{D}' darstellen. Löst man diese DGL mit dem üblichen Ansatz $S'_m \sim \exp(-q_m x)$, erhält man die Dispersionsrelation $q_m^2 = d_m$, wobei sich die q_m , bedingt durch die verschiedenen \mathcal{D} (Gl. A.16), für die beiden Polarisationszustände TE und TM unterscheiden. Für jedes d_m folgen zwei Eigenfunktionen zu den Eigenvektoren S'_m^+ und S'_m^- . Die Ausbreitung des Feldes von x_0 nach x wird dann beschrieben durch

$$S'_m^\pm(x) = \exp[q_m(x \pm x_0)] S'_m^\pm(x_0). \quad (\text{A.18})$$

A.2.3 Γ -, \mathcal{T} - und \mathcal{P} -Matrizen von RCWA-Slices

Es liegt nahe, die \mathcal{T} -Matrizen mit Hilfe von Gleichung A.18, analog zu Gleichung A.4, mit den Diagonalmatrixelementen $t_i^{mm'} = \exp(-q_m d_i) \delta_{mm'}$ zu definieren.

Die $\mathbf{\Gamma}$ -Matrizen, die durch die Gleichungen A.2 und A.3 auch für RCWA-Schichten definiert sind, gilt es, den Vektor \mathbf{S} in Gleichung A.16 durch die entsprechenden transversalen Komponenten zu ersetzen. Für TE gilt:

$$E_y(x) = \mathcal{W}_E(\mathbf{E}_+ + \mathbf{E}_+). \quad (\text{A.19})$$

H_z ist durch Gleichung A.14 bestimmt:

$$\frac{dE_y}{dx} = iH_z = \mathcal{W}_E \mathcal{Q}_E - (\mathbf{E}_+ + \mathbf{E}_+). \quad (\text{A.20})$$

\mathcal{Q}_E ist eine Diagonalmatrix mit $Q_e^{mm'} \equiv q_e^m \delta_{mm'}$ mit den positiven q_e^m -Werten. Somit ist die Matrix $\mathbf{\Gamma}_{\text{TE}}$ wie folgt definiert:

$$\mathbf{\Gamma}_{\text{TE}} = \begin{pmatrix} \mathcal{W}_E & \mathcal{W}_E \\ i\mathcal{W}_E \mathcal{Q}_E & -i\mathcal{W}_E \mathcal{Q}_E \end{pmatrix}. \quad (\text{A.21})$$

Die $\mathbf{\Gamma}_{\text{TM}}$ -Matrix lässt sich analog herleiten zu

$$\mathbf{\Gamma}_{\text{TM}} = \begin{pmatrix} \mathcal{W}_H & \mathcal{W}_H \\ -i\frac{1}{\epsilon}\mathcal{W}_H\mathcal{Q}_H & -i\frac{1}{\epsilon}\mathcal{W}_H\mathcal{Q}_H \end{pmatrix}. \quad (\text{A.22})$$

Substrat und Superstrat seien unstrukturiert. Die S_{\pm} -Wellen an der vordersten bzw. hintersten Grenzschicht haben dann die gleiche Bedeutung wie beim ebenen Schichtsystem, sie enthalten allerdings alle Beugungsordnungen. Die Ausbreitungsmatrix ist durch Gleichung A.8 definiert, mit dem Unterschied, dass die $S_{\pm}^{u,d}$ N-Vektoren und die a, b, c, d $N \times N$ -Matrizen sind. Ebenes Schichtsystem und RCWA-Schichtsystem unterscheiden sich weiterhin durch die Beziehungen, die innerhalb der Matrizen zur Anwendung kommen (vgl. dazu z. B. die Definitionen der beiden $\mathbf{\Gamma}_{\text{TE}}$ -Matrizen, Gl. A.2 und A.21).

A.2.4 Matrixkopplung

Um Ursache (einlaufende Felder) und Wirkung in Zusammenhang zu bringen, müssen die Feldvektoren aus Gleichung A.8 umgeordnet werden:

$$\begin{pmatrix} S_-^u \\ S_+^d \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} \mathbf{R}^u & \mathbf{T}^d \\ \mathbf{T}^u & \mathbf{R}^d \end{pmatrix} \begin{pmatrix} S_+^u \\ S_-^d \end{pmatrix} = \mathcal{R} \begin{pmatrix} S_+^u \\ S_-^d \end{pmatrix} \quad (\text{A.23})$$

Die \mathcal{R} -Matrix-Elemente werden mit Hilfe der Gleichungen A.8 und A.23 aus den Elementen der \mathcal{P} -Matrix bestimmt durch:

$$\mathbf{T}^u = \mathbf{a}^{-1} \quad (\text{A.24})$$

$$\mathbf{R}^u = \mathbf{c}\mathbf{T}^u \quad (\text{A.25})$$

$$\mathbf{T}^d = -\mathbf{T}^u\mathbf{d} \quad (\text{A.26})$$

$$\mathbf{R}^d = -\mathbf{c}\mathbf{T}^u\mathbf{b} + \mathbf{d} \quad (\text{A.27})$$

Gleichung A.24 gilt für beide Polarisationszustände. S_{\pm} ist entweder durch E_{\pm} (TE) oder H_{\pm} (TM) zu ersetzen. Die Herangehensweise, erst die Ausbreitungsmatrix \mathcal{P} nach Gleichung A.8 und daraus die Transmissions- und Reflexionsmatrizen zu bestimmen, scheidet daran, dass die Inversion der Matrix \mathbf{a} aufgrund ihrer Beschaffenheit besonders bei dickeren Schichten sehr häufig fehlschlägt.

Dies lässt sich an einer ebenen Schicht ($\epsilon(z) = \text{const.}$) nachvollziehen. Die \mathcal{D} -Matrix in Gleichung A.16 ist in diesem Fall von vornherein diagonalisiert, die Dispersionsrelation schreibt sich

$$\begin{aligned} q_m^2 &= \beta_m^2 - \epsilon = -\alpha_m^2 \\ \alpha_m &= iq_m \quad \text{mit} \quad \text{Im}(\alpha_m) > 0. \end{aligned} \quad (\text{A.28})$$

Für metallische Schichten (ϵ ist negativ) oder hohe, evaneszente Moden ($\beta_m^2 > |\epsilon|$) werden die α_m imaginär, woraus für die \mathbf{t} -Matrizen im ebenen Fall

$$\mathbf{t}_{mm}^i = \exp(-q_m^i d^i) = \exp(-i\alpha_m^i d^i) \quad (\text{A.29})$$

folgt, dass deren Matrixelemente sehr groß werden oder verschwinden können, was bei der Ausführung der numerischen Multiplikation und insbesondere der notwendigen Inversion (A.24) solcher Matrizen bei der Mitnahme großer Ordnungszahlen wegen Gl. A.29 zwangsläufig zu Problemen führt. Die Inversion ist in diesem Fall schlecht konditioniert.

Die Anwendung von Gleichung A.23 und die nachfolgende Berechnung der Reflexions- und Transmissionskoeffizienten bereitet hingegen keine Probleme. Bei einer dicken Metallschicht ist die Transmission, wie zu erwarten, Null und die Reflexion enthält damit keinen Feldanteil von der hinteren Seite der Schicht. Es bietet sich daher an, die Propagationsmatrizen und die \mathcal{R} -Matrizen zu einem Schema zu verkoppeln, welches numerisch stabil ist und die Vorteile von \mathcal{P} - und \mathcal{R} -Matrizen miteinander verbindet. Für jeden Teil der Schicht lassen sich \mathcal{P}^i - und \mathcal{R}^i -Matrizen definieren. Die \mathcal{P}^i -Matrizen können dabei sowohl \mathbf{T}^i -, $\mathbf{\Gamma}^i$ - als auch $(\mathbf{\Gamma}^i)^{-1}$ -Matrizen des Schichtteils sein. Die \mathcal{R}^i -Matrix ist durch Gleichung e0542 charakterisiert.

Für zwei aufeinander folgende Schichtkomponenten ($i = 1, 2$) lassen sich dann verschiedene Kopplungsschemata aus \mathcal{P}^i - und \mathcal{R}^i -Matrizen finden, von denen drei für die numerische Simulation von Bedeutung sind:

1. $\mathcal{P}^1 \cdot \mathcal{R}^2$ -Kopplung:

$$\begin{aligned} \mathbf{H} &= (\mathbf{a}_1 + \mathbf{b}_1 \mathbf{R}_2^u)^{-1} \\ \mathbf{R}^u &= (\mathbf{c}_1 + \mathbf{d}_1 \mathbf{R}_2^u) \mathbf{H} \\ \mathbf{T}^u &= \mathbf{T}_2^u \mathbf{H} \\ \mathbf{R}^d &= \mathbf{R}_2^d - \mathbf{T}_2^u \mathbf{H} \mathbf{b}_1 \mathbf{T}_2^d \\ \mathbf{T}^d &= -(\mathbf{R}^u \mathbf{b}_1 - \mathbf{d}_1) \mathbf{T}_2^d \end{aligned} \quad (\text{A.30})$$

Diese Kopplung wird verwendet, wenn $\mathcal{P}^1 = \mathbf{T}^1$ oder $\mathcal{P}^1 = \mathbf{\Gamma}^1$ gilt. Für die Berechnung der Hilfsmatrix \mathbf{H} muss die Matrix \mathbf{a}_1 invertiert werden, was für aber auch für dicke Schichten keine Probleme bereitet - für $\mathcal{P}^1 = \mathbf{T}^1$ müsste zum Beispiel die inverse \mathbf{t}^i -Matrix (vgl. Gleichung A.4) invertiert werden.

2. $(\mathcal{P}^1)^{-1} \cdot \mathcal{R}^2$ -Kopplung:

$$\begin{aligned} \mathbf{H} &= (\mathbf{d}_1 + \mathbf{R}_2^u \mathbf{b}_1)^{-1} \\ \mathbf{R}^u &= \mathbf{H}(\mathbf{R}_2^u \mathbf{c}_1 + \mathbf{c}_1) \end{aligned}$$

$$\begin{aligned}
\mathbf{T}^u &= \mathbf{T}_2^u(\mathbf{a}_1 + \mathbf{b}_1\mathbf{R}^u) \\
\mathbf{R}^d &= \mathbf{T}_2^u\mathbf{b}_1\mathbf{H} + \mathbf{R}_2^d \\
\mathbf{T}^d &= \mathbf{H}^u\mathbf{T}_2^d
\end{aligned} \tag{A.31}$$

Diese Kopplung wird verwendet, wenn $\mathcal{P}^1 = (\mathbf{\Gamma}^1)^{-1}$.

3. $\mathcal{R}^1 \cdot \mathcal{R}^2$ -Kopplung:

$$\begin{aligned}
\mathbf{H} &= (\mathbf{1} - \mathbf{R}_1^d\mathbf{R}_2^u)^{-1} \\
\mathbf{R}^u &= \mathbf{R}_1^u + \mathbf{T}_1^d\mathbf{R}_2^u\mathbf{H}\mathbf{T}_1^u \\
\mathbf{T}^u &= \mathbf{T}_2^u\mathbf{H}\mathbf{T}_1^u \\
\mathbf{R}^d &= \mathbf{R}_2^d - \mathbf{T}_2^u\mathbf{H}\mathbf{R}_1^d\mathbf{T}_2^u \\
\mathbf{T}^d &= \mathbf{T}_1^d(\mathbf{1} + \mathbf{R}_2^u\mathbf{H}\mathbf{R}_1^d)\mathbf{T}_2^d
\end{aligned} \tag{A.32}$$

Diese Kopplung wird dazu verwendet, die \mathcal{R} -Matrizen aufeinanderfolgender Schichten miteinander zu verknüpfen.

Man startet nun die Berechnung mit den Werten $\mathbf{T}^u = \mathbf{T}^d = \mathbf{1}$ und $\mathbf{R}^u = \mathbf{R}^d = \mathbf{0}$ im Substrat und benutzt dann die ersten beiden Kopplungsmechanismen, um die $\mathbf{\Gamma}$ - und \mathbf{T} -Matrizen rekursiv miteinander zu verknüpfen. Gleichung A.32 wird zur Zeitersparnis genutzt, wenn Wiederholungen innerhalb des Schichtsystems auftreten.

A.2.5 Bemerkung

Die Erprobung des Programms zeigte Effekte wie die totale Absorption von Licht durch metallische Gitter vollkommen richtig und unverfälscht [123, 124]. In den Code fließen ständige Verbesserungen ein, wie zum Beispiel die Verbesserung der Konvergenz der Lösung für die -1. Ordnung im TM-Fall nach [125].

Anhang B

Phasendispersion in Strecker und Kompressor

Üblicherweise wird die frequenzabhängige Phase unter Annahme einer quasi-monochromatischen Welle in eine Taylorreihe entwickelt [111, 126, 127].

$$\phi(\omega) = \phi(\omega_0) + \left. \frac{\partial \phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2!} \left. \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + \frac{1}{3!} \left. \frac{\partial^3 \phi}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^3 + O(\Delta\omega^4), \quad (\text{B.1})$$

wobei ω die Kreisfrequenz und ω_0 die Zentralfrequenz der Entwicklung darstellen. Schreibt man die Gleichung B.1 als Potenzreihe, ergibt sich folgendes Bild

$$\phi(\omega) = \phi(\omega_0) + T_1 (\omega - \omega_0) + T_2 (\omega - \omega_0)^2 + T_3 (\omega - \omega_0)^3 + O(\Delta\omega^4), \quad (\text{B.2})$$

d. h., die Koeffizienten T_i in Gleichung B.2 entsprechen den i -ten partiellen Ableitung von Gleichung B.1. Die zeitliche Verschiebung des Pulses in Abhängigkeit von der akkumulierten Phase ist

$$\tau(\omega) = \frac{\partial \phi(\omega)}{\partial \omega}. \quad (\text{B.3})$$

Setzt man die Gleichungen B.1 bzw. B.2 in Gleichung B.3 ein, erhält man

$$\begin{aligned} \tau(\omega) &= \left. \frac{\partial \phi}{\partial \omega} \right|_{\omega_0} + \left. \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) + \frac{1}{2} \left. \frac{\partial^3 \phi}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 + O(\Delta\omega^3) \\ &= T_1 + T_2 (\omega - \omega_0) + T_3 (\omega - \omega_0)^2 + O(\Delta\omega^3) \end{aligned} \quad (\text{B.4})$$

Der Koeffizient T_1 entspricht einer Gesamtverschiebung des Pulses, er wirkt sich jedoch nicht auf die Pulsform aus. Zwischen den beiden Gittern hängt T_1 von der lateralen Impaktkoordinate x auf dem ersten Gitter ab, die Folge ist eine inhomogene Welle, deren Phasenfront nicht mit der Front konstanter Amplituden übereinstimmt. Dem Puls wird eine künstliche Verzögerung aufgeprägt, welche nach der Passage des zweiten Gitters verschwindet, sofern dieses genau parallel zum ersten ausgerichtet

ist [128]. Alle anderen Terme T_i mit $i > 1$ bewirken Verzerrungen der Pulsform. T_2 , die quadratische Phasendispersion, wird auch als Gruppengeschwindigkeitsdispersion (group delay dispersion, GDD) bezeichnet. Die Dispersion gerader Ordnungen bewirken zeitlich symmetrische Pulsveränderungen, während die ungeraden Ordnungen je nach Vorzeichen Vor- oder Nachpulse verursachen.

Die oben eingeführten Entwicklungen sind immer dann unproblematisch, wenn jeder Summenterm der Ordnung i einen wesentlich kleineren dispersiven Beitrag einbringt als der vorangehende Term der Ordnung $i - 1$:

$$\left. \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0) \gg \left. \frac{1}{2} \frac{\partial^3 \phi}{\partial \omega^3} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^2 \gg \left. \frac{1}{6} \frac{\partial^4 \phi}{\partial \omega^4} \right|_{\omega_0} (\omega - \omega_0)^3 \dots \quad (\text{B.5})$$

Je kürzer die zu betrachtenden Pulse werden, desto mehr Signifikanz für die Pulsform weisen diejenigen Spektralanteile auf, für die $\omega - \omega_0$ deutlich von Null abweicht. Da die einzelnen Phasendispersionsterme nur von der Strecker-/Kompressorgeometrie und der Dispersion der vom Strahl durchlaufenen Materialien und nicht von der Bandbreite des Pulses abhängen, bewirkt eine Bandbreitenvergrößerung eine verstärkte Wirkung der Dispersionsterme höherer Ordnungen, da die $(\omega - \omega_0)$ -Potenzen für einen weiteren Bereich betrachtet werden müssen.

Die Auswirkungen der Phasendispersionsterme höherer Ordnung auf die Pulsform lässt sich abschätzen, indem man einem bandbreitenbegrenzten Puls frei wählbarer Pulsdauer eine reine Dispersion der gewünschten Ordnung aufprägt und die FWHM der Fouriertransformierten des modifizierten Pulses über der Stärke der Dispersion aufträgt. Gibt man eine Toleranzgrenze für die Pulsverbreiterung vor, lassen sich so für jede Pulsdauer Obergrenzen für die Dispersion der gewählten Ordnung angeben [127]. Die Bestimmung der Phasendispersionsterme wird durch Abb. B.1 illustriert. Der Phasenunterschied zwischen ein- und ausfallendem Strahl beträgt

$$\phi(\omega) = \mathbf{k}_{\theta_o(\omega)} \cdot \mathbf{P}_1 \mathbf{P}_2, \quad (\text{B.6})$$

wobei \mathbf{k}_{θ_o} den Wellenzahlvektor des Strahls zwischen den Gittern, P_1 den Phasenursprung auf dem ersten und P_2 den Phasenursprung auf dem zweiten Gitter bezeichnen. Bezeichnet man D als die senkrechte Separation der Gitter (entspricht der Strecke $\mathbf{P}_1 \mathbf{P}_2$), folgt aus Gleichung B.6:

$$\phi(\omega) = \frac{\omega}{c} D \cos[\theta_o(\omega)]. \quad (\text{B.7})$$

Die einzelnen Terme der Ordnung i lassen sich nun durch i -fache partielle Differentiation, wie durch die Gleichungen B.1 und B.2 vorgegeben, ermitteln. θ_o ist durch die Gittergleichung 5.1 bestimmt [126].

$$T_1 = \left(\frac{\partial \phi(\omega)}{\partial \omega} \right)_{(\omega=\omega_0)} = \frac{D}{c} \frac{1 + \sin \theta_i \sin \theta_o}{\cos \theta_o} \quad (\text{B.8})$$

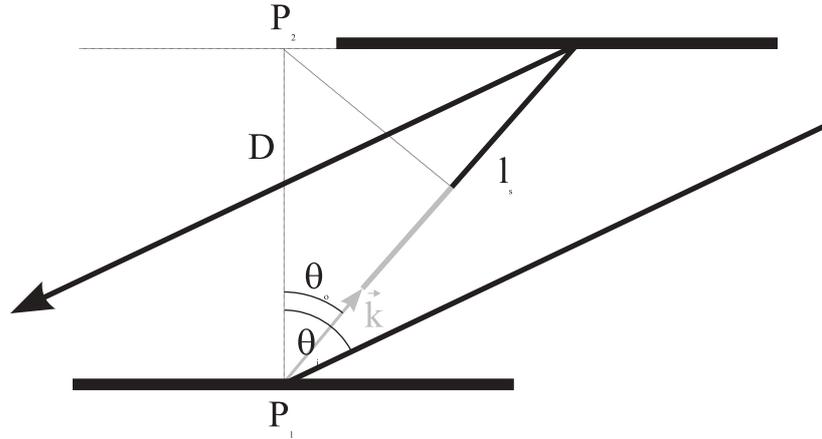


Abbildung B.1: Skizze zur Bestimmung der Phasenverschiebung. D ist der rechtwinklige Abstand der beiden Gitter voneinander, $\theta_{i,o}$ sind die Ein- und Ausfallswinkel, l_s die Gitterseparation und \mathbf{k} der Wellenzahlvektor des gebeugten Strahls.

$$T_2 = \left(\frac{\partial^2 \phi(\omega)}{\partial \omega^2} \right)_{(\omega=\omega_0)} = -D \frac{N^2 \lambda^3}{2\pi c^2} \frac{1}{\cos^3 \theta_o} \quad (\text{B.9})$$

$$T_3 = \left(\frac{\partial^3 \phi(\omega)}{\partial \omega^3} \right)_{(\omega=\omega_0)} = 3D \frac{N^2 \lambda^4}{4\pi^2 c^3} \frac{1 + \sin \theta_i \sin \theta_o}{\cos^5 \theta_o} \quad (\text{B.10})$$

$$T_4 = \left(\frac{\partial^4 \phi(\omega)}{\partial \omega^4} \right)_{(\omega=\omega_0)} = 3D \frac{N^2 \lambda^5}{8\pi^3 c^4} \frac{\cos^2 \theta_i \cos \theta_o - 5(1 + \sin \theta_i \sin \theta_o)}{\cos^7 \theta_o} \quad (\text{B.11})$$

B.1 Materialdispersion

Jedes vom Laserstrahl durchlaufene Material, inklusive Luft, verändert die Phasenbeziehungen zwischen den Spektralkomponenten des Strahls. Ursache ist die Abhängigkeit der Material-Brechzahl von der Wellenlänge (Material-Dispersion), welche für jede spektrale Komponente des Pulses eine unterschiedliche optische Weglänge durch das Material zur Folge hat. Die dadurch verursachte zeitliche Verschiebung der Strahlkomponente mit der Kreisfrequenz ω beträgt

$$\tau(\omega) = \frac{L}{c_0} \frac{d}{d\omega} [n(\omega)\omega]. \quad (\text{B.12})$$

L ist die durchlaufene Materiallänge, $n(\omega)$ die Brechzahl des Materials bei der Kreisfrequenz ω und c_0 die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum.

Leitet man $\tau(\omega)$ partiell nach ω ab, erhält man unter Zuhilfenahme von Gleichung B.3 die Dispersionskoeffizienten T_i mit $i > 1$. Für jedes berechnete Material ist sicherzustellen, dass sich die einzelnen Dispersionsterme im Sinne von Ungleichung B.5

unproblematisch verhalten. Für den Großteil der optischen Materialien ist dies bei Wellenlängen von 800 nm gegeben [127].

Die Wellenlängenabhängigkeit der Brechzahl bestimmt man entweder durch Inter- oder Extrapolation der in Referenzen wie [44] gelisteten Brechzahlwerte oder mittels der Sellmeier-Gleichung:

$$n^2(\lambda) = A + \frac{B}{\lambda^2 - C} - D\lambda^2. \quad (\text{B.13})$$

Die in Gleichung B.13 einzusetzenden Sellmeier-Koeffizienten werden durch unabhängige Arbeitsgruppen mittels Parameter-Fits an die gemessenen Werte bestimmt und sind in der Literatur vielfach zu finden (Beispiel: Diverse Werte für KTP - [129]). Für die wichtigsten in Ultrakurzzeitlasern verwendeten Materialien existieren bereits auch Literaturwerte der Materialdispersion zweiter bis fünfter Ordnung [127].

B.2 Optimierung des Kompressors unter Berücksichtigung der Dispersionsterme höherer Ordnung

Die Gleichungen B.8 bis B.11 in Anhang B definieren die Abhängigkeit der Dispersionsterme T_i von drei frei wählbaren Parametern: Der senkrechten Gitterseparation D , dem Separationswinkel $\theta_i - \theta_o$ und der Gitterkonstanten N . Während die ersten beiden Parameter durch Aufbau und Anordnung von Strecker und Kompressor beeinflusst werden können, sind die Gitterkonstanten vorher festzulegen, was eine genaue Kenntnis der im System durchlaufenen Materialwege voraussetzt. Durch die Berücksichtigung von N bei der Optimierung des Durchsatzes kann man jedoch theoretisch Phasendispersionen von der zweiten bis zur vierten Ordnung verschwinden lassen - vorausgesetzt, die Materialdispersion dritter und vierter Ordnung des gesamten Systems bleibt so klein, dass nur moderate Veränderungen von Separationswinkel und Gitterkonstanten notwendig sind.

Im allgemeinen wird bei Systemen mit Pulsdauern von über 100 fs und einer Streckung auf mehrere 100 ps so vorgegangen, dass zuerst die Material-Dispersion zweiter und dritter Ordnung des gesamten Systems anhand der durchlaufenen Wege abgeschätzt wird. Daraufhin werden die Dispersionsterme höherer Ordnung von Strecker und Kompressor in der gewünschten Konfiguration gerechnet. Eine leichte Variation der Strecker- oder Kompressorparameter führt zu Diagrammen wie Abb. B.2, aus denen sich durch die Materialdispersion anfallende Änderungen der Gitterseparation und des Separationswinkels abschätzen lassen.

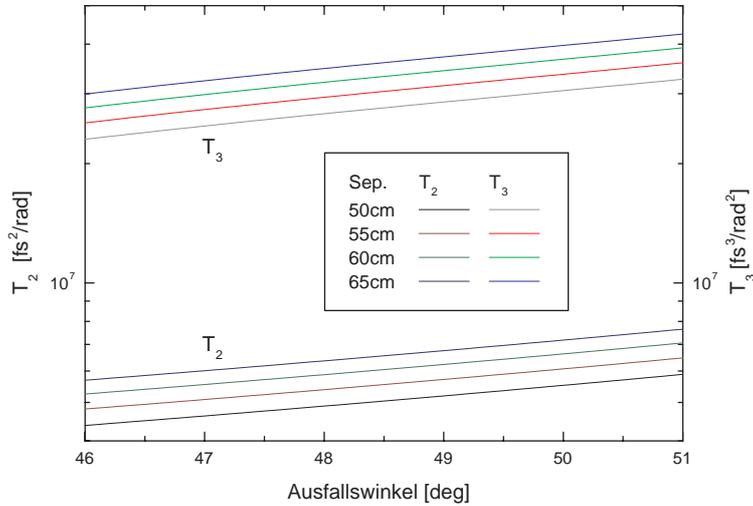


Abbildung B.2: Phasendispersionsterme (vgl. Anhang B) für das Testsystem in Abhängigkeit von Separation und Ausfallswinkel. Hat man beispielsweise die Materialdispersion dritter Ordnung zu $1 \cdot 10^7$ bestimmt, ist eine Änderung des Ausfallswinkels im Kompressor um 0.42° notwendig.

In einem realen System wird die GDD durch Veränderung der Separation D zum Verschwinden gebracht. Dann wird die dritte Ordnung über die Änderung der Separationswinkel in Strecker und Kompressor minimiert. Wegen der Abhängigkeit von T_2 von θ_o und damit vom Separationswinkel θ_{sep} müssen die beiden erwähnten Schritte iterativ wiederholt werden, bis die gewünschte Genauigkeit erreicht worden ist.

Ist die erwünschte Pulsdauer kleiner als 100 fs, gewinnt weiterhin die Dispersion vierter Ordnung an Signifikanz. Zusätzlich zur vorher angesprochenen Vorgehensweise kann man in jeder Iteration einen dritten Schritt einführen, bei dem die Materialdispersion vierter Ordnung durch Anpassung des Verhältnisses der Gitterkonstanten von Strecker und Kompressor ausgeglichen wird. Da die zweite und die dritte Ordnung (oder die notwendige Separation und der Separationswinkel) ebenfalls von der Gitterkonstanten abhängen, wird die im jeweiligen Iterationsschritt bereits durchgeführte Optimierung dieser beiden Ordnungen wieder verstimmt; die Iteration konvergiert also langsamer.

Die Gültigkeit dieses Verfahrens folgt aus Gleichung B.8 (Anhang 2.4), welche die unterschiedliche Abhängigkeit der Dispersionsordnungen des Streckers bzw. Kompressors von den drei Optimierungsparametern D , $\theta_e - \theta_a$ und N zeigt. Eine Änderung

der Gitterkonstanten bewirkt zwar auch eine Änderung des Einfallswinkels und damit eine Änderung des Beitrages des Separationswinkels zu den Chirps verschiedener Ordnungen, vom Betrag her unterscheiden sich die Auswirkungen von Gitterkonstanten und Separationswinkel jedoch!

Bei der rechnerischen Optimierung muss beachtet werden, dass sich die Variation der Gitterkonstanten aus Gründen der Geometrie und des möglichen Auftretens strahlender höherer Beugungsordnungen nicht beliebig durchführen lässt.

Bei Pulsdauern von weniger als 40 fs spielt die fünfte Ordnung ebenfalls eine Rolle. In diesem Fall stehen für vier zu optimierende Ordnungen nur drei veränderbare Parameter zur Verfügung. Je nach Verwendung des zu optimierenden CPA-Systems kann der Puls hinsichtlich der Pulsdauer oder der Pulsform (z.B. Vermeidung von Nebenpulsen, die auf ungeradzahlige Ordnungen zurückzuführen sind) optimiert werden; die Folge sind Einbußen beim nichtbeachteten Optimierungsziel. Ein weiterer möglicher Weg ist die Verwendung speziell gechirpter dielektrischer Spiegel in Multi-Pass-Anordnung.

Anhang C

Kompressor-Justage nach Miesak

Beide Gitter sind auf einer drehbaren Schiene angeordnet, deren Drehachse durch die Oberfläche des ersten Gitters verläuft. Die Drehachsen beider Gitter verlaufen ebenfalls jeweils durch deren Oberflächen. Der Spiegel M1 steht auf einer Translationschiene und kann vom seinem ursprünglichen Ort, an dem er den Strahl nach der Passage des zweiten Gitters retroreflektiert, in den einfallenden Strahl vor dem ersten Gitter bewegt werden.

Die Justage des Zwei-Gitter-Kompressors läuft wie folgt ab (siehe Abb. C.1):

1. Der einfallende Strahl wird so eingestellt, dass er Blende B_1 mittig durchläuft und das erste Gitter in der Drehachse trifft.
2. Der Spiegel M_1 wird an die Position M'_1 verschoben und so justiert, dass der reflektierte Strahl B_1 von hinten genau mittig trifft.
3. M_1 wird an seine ursprüngliche Position verschoben.
4. An G_1 wird der Littrowfall eingestellt, der aufgespaltene Reflex wird in gleiche Höhe mit B_1 gebracht (ein Teil des Spektrums passiert die Blende mittig, der Rest liegt rechts und links auf gleicher Höhe).
5. G_1 wird so justiert, dass das aufgespaltene Spektrum mittig auf G_2 zu liegen kommt.
6. G_2 wird so eingestellt, dass der komprimierte Strahl die B_1 mittig von hinten trifft, eventuell ist M_1 horizontal so nachzuführen, dass das gesamte Spektrum reflektiert wird.
7. Zur Auskopplung des Strahls wird außerhalb des Kompressors ein Spiegel knapp unter- oder oberhalb des einfallenden Strahls postiert. Dabei ist auf möglichst

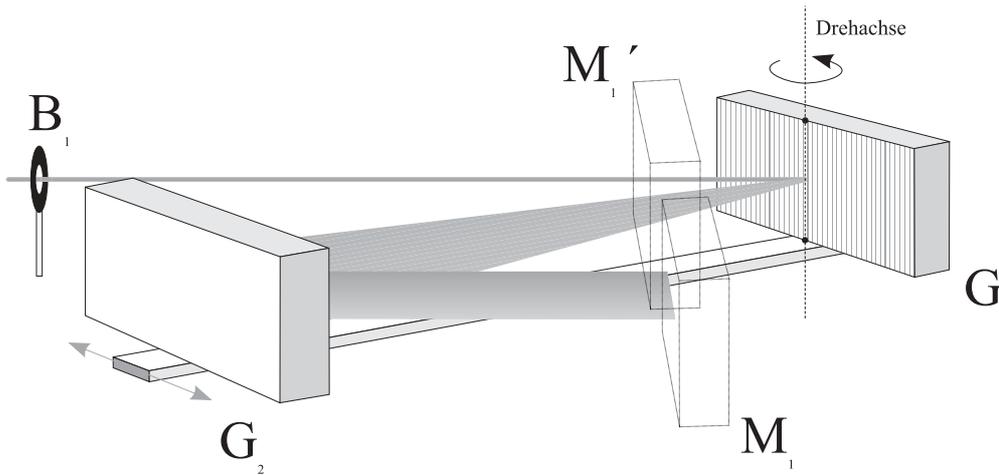


Abbildung C.1: Aufbau zur Kompressorjustage nach Miesak [118].

geringen vertikalen Abstand d_V zwischen einfallendem Strahl und Spiegel zu achten.

8. Der Strahl wird am Ort des Auskoppelspiegels durch vertikales Verstellen *beider* Gitter um den Betrag d_V nach oben/unten verschoben. Der am ersten Gitter zu verstellende Anteil beträgt

$$d_{G_1} = d_V \frac{\overline{G_1 G_2} + \frac{1}{2} \overline{M_2 G_1}}{\overline{G_1 M_1} + \frac{1}{2} \overline{M_2 G_1}}, \quad (\text{C.1})$$

am zweiten Gitter ist um

$$d_{G_2} = d_V \frac{\overline{G_2 M_1}}{\overline{G_1 M_1} + \frac{1}{2} \overline{M_2 G_1}} \quad (\text{C.2})$$

zu verstellen. Dadurch ist gewährleistet, dass das inherente *conical mounting* gleichmäßig auf beide Gitter verteilt und gleichzeitig minimiert wird.

Wird die Separation variiert, ändert sich nur die horizontale Position des Spektrums auf M_1 . Soll der Separationswinkel modifiziert werden, ist die Schiene um den entsprechenden Betrag zu drehen und der Ablauf Schritt für Schritt nachzuvollziehen. Bei kleineren Änderungen des Separationswinkels (weniger als $\pm 3^\circ$ gegenüber der Urjustage) wurde im konischen Fall justiert (nur Schritte 5. und 6., keine vertikalen Veränderungen des Strahlverlaufs nach Urjustage).

Danksagung

Hiermit möchte ich all denjenigen Dank sagen, die zur Entstehung dieser Arbeit auf die eine oder andere Art und Weise beigetragen haben.

Herr Prof. R. Sauerbrey ermöglichte es mir, einen Großteil meiner Messungen an modernster fs-Lasertechnik im IOQ Jena durchzuführen und ließ mir bei der Bearbeitung des Themenkreises weitgehende Freiräume.

Herrn Dr. W. Theobald habe ich viele Einsichten in die behandelten Themen zu verdanken, die sich während umfangreicher Gesprächs- und Auswerterunden bildeten.

Herrn Prof. K. Hehl möchte ich dafür danken, mir in vielen Fachdiskussionen "Licht am Fahrrad" gemacht zu haben. Seine Wärme und Menschenkenntnis hat mir so manches Mal den nötigen Rückhalt gegeben. Dank auch dafür, dass er, zusammen mit Herrn Dr. J. Bischoff, den RCWA-Code zur Verfügung stellten.

Herr Dr. E. Welsch ist nicht nur eine wandelnde Bibliothek in Sachen *LIDT*, durch seine wirklich erstaunlichen Kenntnisse von Aphorismen, Anekdoten, Sprichwörtern und der deutschen Sprache im Allgemeinen hat er oft zur fördernden Auflockerung der Atmosphäre beigetragen.

Der kHz-Gruppe des IOQ um Herrn Dr. T. Feurer möchte ich wegen ihrer Unterstützung und der ermöglichten Messzeit an ihrem System danken.

Das gleiche gilt für die Arbeitsgruppe an der BAM, insbesondere für Herrn Dr. J. Krüger und S. Martin, die mir mehrere Messungen an ihrem Institut ermöglichte und durch ausgiebige fachliche Diskussionen ebenfalls zum Entstehen dieser Arbeit beitrug.

Herrn R. Steiner von der Firma Carl Zeiss Jena gilt mein Dank für die fruchtbare Zusammenarbeit auf dem Gebiet der dielektrischen Gitter.

Ich danke J. Schreiber und H. Geßner für gemeinsam verbrachte Mess- und andere Abende. Die beiden sorgten, zusammen mit G. Sansone, Dr. R. J. Kingham, F. Ronneberger, P. Mämpel, V. Ulrich, W. Ziegler, G. Teufer und L. Veisz, für ein wirklich angenehmes Arbeitsklima. C. Knöll als regelmäßiger Besucher des Zimmers 408 erstaunt mich immer wieder mit seinen lässig hingeworfenen Gedankenblitzen, die sich mehr als einmal als sehr zutreffend erwiesen.

Nicht zuletzt möchte ich meiner Familie danken: meinen Eltern für das Ermöglichen der ersten Schritte auf einem Weg, der in dieser Arbeit eine wichtige Zwischenstation passiert. Dank auch dem Familien-”Clan”, der hinsichtlich des Zusammenhalts Vergleiche mit italienischen Verhältnissen nicht zu scheuen braucht. Und ich danke Dir, Heike, für Deine unendliche Geduld.

Lebenslauf

Ragnar Bödefeld

Ich wurde am 3. Septmeber 1971 als erstes Kind meiner Eltern, Godehard Bödefeld (geb. 07.02.1950 in Rochlitz) und Regina Bödefeld (geb. Bartl, Grünhain, 08.02.1950) in Schlema (Erzgebirge) geboren.

Nach dem Umzug meiner Eltern nach Karl-Marx-Stadt im Jahre 1972 besuchte ich dort Kinderkrippe und Kindergarten. Am 1. September 1978 wurde ich an der Friedrich-Hähnel-Oberschule K.-M.-St. eingeschult. Nach zwei Jahren wechselte ich an die Walentina-Tereschkowa-Oberschule, eine sprachenorientierte Schule mit der Hauptausrichtung Russisch/Englisch. Nach Beendigung der sechsten Klasse wurde ich wegen meiner sportlichen Erfolge in der Leichtathletik an die Kinder- und Jugendsportschule (KJS) Karl-Marx-Stadt delegiert, wo ich zwei Jahre verblieb.

Mit Beginn der neunten Klasse wechselte ich zurück an die Walentina-Tereschkowa-Oberschule. Nach Abschluss der 10. Klasse mit erweitertem Sprachunterricht an dieser Oberschule bewarb ich mich an der EOS "Friedrich-Engels" Karl-Marx-Stadt, wo ich im Juli 1990 mein Abitur ablegte.

Vom 1. September 1990 bis zum 31. August 1991 leistete ich meinen Zivildienst im Dezernat 9 der Stadtverwaltung (Abt. Umweltschutz) ab.

Mit dem Wintersemester 1991/92 schrieb ich mich an der Friedrich-Schiller-Universität Jena für den den Studiengang Physik-Diplom ein. Von Februar bis August 1994 legte ich hier die Prüfungen zum Vordiplom Physik ab (Prädikat: "gut").

Im September 1994 unterbrach ich mein Studium an der FSU Jena für einen einjährigen Auslandsaufenthalt an der University of Sussex in Brighton, England. Im Vordergrund stand dabei die Vertiefung meiner Kenntnisse in der Physik-Fachsprache Englisch und der Besuch ergänzender Vorlesungen in den Fächern Physik und Astronomie.

Meine Diplomarbeit mit dem Thema "CCD-Polarimetrie mittels Savartplatte am 90cm-Schmidt-Spiegelteleskop der Universitätssternwarte Jena" schrieb ich im Zeitraum November 1996 – Februar 1998 (dreimonatige Unterbrechung wegen Krankheit) am Astrophysikalischen Institut der FSU Jena. Das Diplomzeugnis mit dem Prädikat "gut (1.9)" erhielt ich im April 1998.

Seit April 1998 bin ich am Institut für Optik und Quantenelektronik der Physikalisch-Astronomischen Fakultät der FSU Jena als Doktorand beschäftigt.

Ehrenwörtliche Erklärung

Ich erkläre hiermit ehrenwörtlich, dass ich die vorliegende Arbeit selbständig, ohne unzulässige Hilfe Dritter und ohne Benutzung anderer als der angegebenen Hilfsmittel und Literatur angefertigt habe. Die aus anderen Quellen direkt oder indirekt übernommenen Daten und Konzepte sind unter Angabe der Quelle gekennzeichnet.

Bei der Auswahl und Auswertung folgenden Materials haben mir die nachstehend aufgeführten Personen in der jeweils beschriebenen Weise unentgeltlich geholfen:

1. Dr. Wolfgang Theobald, Revision
2. Dr. Jörg Krüger, Revision
3. Sven Martin, Revision

Weitere Personen waren an der inhaltlich-materiellen Erstellung der vorliegenden Arbeit nicht beteiligt. Insbesondere habe ich hierfür nicht die entgeltliche Hilfe von Vermittlungs- bzw. Beratungsdiensten (Promotionsberater oder andere Personen) in Anspruch genommen. Niemand hat von mir unmittelbar oder mittelbar geldwerte Leistungen für Arbeiten erhalten, die im Zusammenhang mit dem Inhalt der vorgelegten Dissertation stehen.

Die Arbeit wurde bisher weder im In- noch im Ausland in gleicher oder ähnlicher Form einer anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Die geltende Promotionsordnung der Physikalisch-Astronomischen Fakultät ist mir bekannt.

Ich versichere ehrenwörtlich, dass ich nach bestem Wissen die reine Wahrheit gesagt und nichts verschwiegen habe.

Jena, 13.06.2002

Ragnar Bödefeld

Liste der Veröffentlichungen und öffentlichen Vorträge:

Veröffentlichungen:

1. K. Hehl, J. Bischoff, U. Mohaupt, M. Palme, B. Schnabel, L. Wenke, R. Bödefeld, W. Theobald, E. Welsch, R. Sauerbrey and H. Heyer: "High-efficiency dielectric reflection gratings: design, fabrication, and analysis", Appl. Opt. **38**, 38, 6257-6271, 1999
2. R. Bödefeld, J. Schreiber, H. Gessner, E. Welsch, W. Theobald, T. Feuerer and R. Sauerbrey: "Optical damage of sputtered gold films irradiated with femtosecond laser pulses", Proc SPIE **4347**, 2000
3. R. Bödefeld, W. Theobald, K. Hehl and R. Sauerbrey: "Dielectric grating compressor for a Ti:sapphire CPA laser system", Appl. Phys. B, Rapid Comm., 2002 (to be published)
4. R. Bödefeld, W. Theobald, J. Krüger, W. Kautek and R. Sauerbrey: "Femtosecond laser-induced damage thresholds of metal films of various layer thickness", 2002 (to be published)

Vorträge:

1. R. Bödefeld, W. Theobald, E. Welsch, T. Feuerer, J. Schreiber, H. Gessner: "Untersuchungen zur optischen Zerstörfestigkeit von optischen Komponenten mittels ultrakurzer Pulse", DPG-Tagung Bonn, April 2000
2. R. Bödefeld, W. Theobald, R. Sauerbrey, R. Steiner and K. Hehl: "Characterization of a dielectric grating compressor for chirped pulse amplification laser systems", OPTO 2002, Mai 2002
3. R. Bödefeld, W. Theobald, R. Sauerbrey, R. Steiner and K. Hehl: "Characterization of a dielectric grating compressor for chirped pulse amplification laser systems", CLEO 2002, Mai 2002 (Lecturer: S. Düsterer)

Alternative laseroptische Bauelemente für ultrakurze Pulse

Thesen zur Dissertation von Ragnar Bödefeld

1. Round-Robin-Experimente zur Bestimmung von Zerstörschwellen lieferten eine gute Übereinstimmung der während dieser Arbeit gemessenen Werte mit Ergebnissen anderer Institute. Wiederholte Messungen an Referenzproben untermauerten die Zuverlässigkeit der Messwerte.
2. Experimente zur Pulsdauerabhängigkeit der Zerstörschwelle ergaben eine konstante Zerstörschwelle für metallische Filme im Pulsdauerbereich von 50 fs bis 500 fs. Dielektrische Multischicht-Spiegel wiesen mit sinkender Pulsdauer eine verringerte Zerstörschwelle auf. Unterhalb von 50 fs Pulsdauer erreichte auch das beste dielektrische Schichtsystem ($\text{ZrO}_2/\text{SiO}_2$) nicht die Zerstörfestigkeit der besten Metallfilme (Gold und Silber).
3. Die LIDT von Hybridschichten (Metallfilm + dielektrische Oberflächenschichten) zeigten, abhängig von ihrer Zusammensetzung, in ihrer Zeitabhängigkeit vorrangig dielektrische Merkmale. Hinsichtlich ihrer Zerstörfestigkeit erwiesen sich Hybridschichten als ernstzunehmende Alternative zu herkömmlichen Laseroptik-Materialien. Wichtig sind in diesem Zusammenhang zukünftige Messungen der Zerstörschwelle von Hybridschichten in Abhängigkeit von der Dicke der dielektrischen Oberflächenschicht.
4. Für verschiedene Metallfilme wurde die Schichtdickenabhängigkeit der Zerstörschwelle untersucht. Aus den Messergebnissen wurde mit Hilfe numerischer Berechnung des Zwei-Temperatur-Modells die Elektron-Phonon-Kopplung g und größenordnungsmäßig die Eindringtiefe ballistischer Elektronen l_b bestimmt. Für drei von vier getesteten Metallen (Au, Al, und Cu) stimmten die ermittelten g -Werte gut mit den Literaturangaben überein. Die Elektron-Phonon-Kopplung in Silber lag um über eine Größenordnung über den Literaturwerten.
5. Für dünne Filme bis zu 250 nm Dicke wies Silber (bei geringfügig geringerer Reflexionseffizienz) eine deutlich höhere Zerstörschwelle als Gold auf. Silberschichten sind demnach prädestiniert für den Einsatz in filmdickenlimitierten Laseroptiken wie Metallgittern. Zukünftige Experimente sollten sich darauf konzentrieren, Gold-Silber-Legierungen und Goldschichten mit dünner Silberoberfläche ($d \approx (10..50)$ nm) hinsichtlich ihrer Zerstörschwellen zu untersuchen.
6. Multischusseexperimente mit veränderlicher Schusszahl zeigten, dass der Anteil der pro Schuss im Probenvolumen in Form von mechanischen Verspannungen und Wärme *dauerhaft* deponierten Energie mit wachsender Anzahl der bereits applizierten Schüsse abnimmt.
7. Die Untersuchung der Schadensmorphologie an verschiedenen Goldfilmen zeigte für alle in dieser Hinsicht untersuchten Proben eine Modifikation der Oberfläche bereits bei Fluenzen unterhalb der Ablationsschwelle. Die Schwellfluenz dieser Modifikation hängt wesentlich von der Oberflächenqualität der Probe ab.

8. Für ein Titan:Saphir-Lasersystem ($\lambda_c=795$ nm) wurde ein Zwei-Gitter-Kompressor aufgebaut, dessen Komponenten komplett aus dielektrischen Materialien bestanden. Eine maximaler Kompressor-Durchsatz von 58% wurde gemessen.

9. Der angestrebte Gitterparameter-Bereich wurden bei keinem der dielektrischen Testgitter erreicht. Die gemessenen Kompressor-Effizienzen konnten durch Einsetzen der realen Gitterparameter in eine numerische RCWA-Simulation, unter Berücksichtigung von spektralem Abschneiden und Streuverlusten, nachvollzogen werden.

10. Dielektrische Gitter mit Beugungseffizienzen von mehr als 97% in der -1. Ordnung lassen sich dann herstellen, wenn die Gitterparameter *Stegbreite* und *Grabentiefe* um weniger als 20 nm von den Sollparametern abweichen. Herstellungsverfahren, die eine solche Genauigkeit ermöglichen könnten, sind holographische Lithographie, Elektronenstrahlolithographie und die Herstellung von Gittern durch Ablation mit ultrakurzen UV-Laser-Pulsen.