

Fokussierung ultrakurzer Laserpulse

DISSERTATION

zur Erlangung des akademischen Grades
doctor rerum naturalium (Dr. rer. nat.)

FRIEDRICH-SCHILLER-UNIVERSITÄT JENA



seit 1558

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

von Dipl.-Phys. Ulrike Fuchs

geboren am 08.08.1979 in Jena

Gutachter:

1. Prof. Dr. habil. Andreas Tünnermann, Friedrich-Schiller-Universität Jena
2. Prof. Dr. habil. Carsten Fallnich, Westfälische Wilhelms-Universität Münster
3. Prof. Dr. Roland Sauerbrey, Forschungszentrum Dresden-Rossendorf

Tag der letzten Rigorosumsprüfung: 29.10.2009

Tag der öffentlichen Verteidigung: 10.11.2009

Absorb what is useful,
Discard what is not,
Add what is uniquely your own.

Bruce Lee

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
2	Grundlagen	5
2.1	Mathematische Beschreibung ultrakurzer Laserpulse	5
2.2	Propagation ultrakurzer Laserpulse durch optische Systeme	7
2.2.1	Propagation durch optische Systeme	8
2.2.2	Propagation in die Fokusumgebung	8
2.2.3	Wave Propagation Method (WPM)	10
2.3	Der optische Kerr-Effekt in Kieselglas	11
2.3.1	Self-trapping und Selbstfokussierung	12
2.3.2	Selbstphasenmodulation und Selbstaufsteilung	13
2.3.3	Filamentierung	14
2.4	Erzeugung freier Ladungsträger in Kieselglas	15
2.4.1	Die komplexe Dielektrische Funktion	16
2.4.2	Das MRE-Modell der Kaskadenionisation	19
2.4.3	Nichtlineare Photoionisation	22
2.5	Permanente Materialmodifikationen in Kieselglas	27
3	Methodische Entwicklungen und numerische Umsetzung	31
3.1	Geometrische Optik-Berechnungen	32
3.2	Wellenoptische Berechnungen	32
3.2.1	Propagation mit linearer Materialwechselwirkung	33
3.2.2	Propagation mit nichtlinearer Materialwechselwirkung	33
3.2.3	Nichtlineare Propagation und Absorption im Material	37
3.3	Abschätzung der Materialparameter von Kieselglas	38
4	Optische Eigenschaften von ionisiertem Kieselglas	45
5	Betrachtungen zur Wechselwirkung fokussierter Laserpulse mit Kieselglas	53
5.1	Fokussierung aberrierter ultrakurzer Laserpulse in Kieselglas	54
5.1.1	Dispersions- und Beugungseffekte	54
5.1.2	Chromatische Aberrationen	60
5.1.3	Sphärische Aberrationen	63
5.2	Ausbildung von Streaks bei niedriger numerischer Apertur	65
5.3	Sättigung der maximalen Intensität und Elektronendichte	70
6	Ortsaufgelöste Charakterisierung fokussierter Laserpulse – SEA TADPOLE	73
6.1	Das Messprinzip von scanning SEA TADPOLE	74
6.2	Optimierung des spektralen und zeitlichen Auflösungsvermögens	76
6.3	Verbesserung der Ortsauflösung	80
6.3.1	SNOM-Fasern	81
6.3.2	Hoch-NA-Mikroskopobjektiv	83
6.4	Experimentelle Charakterisierung fokussierter Laserpulse	86

6.4.1	Messung mit einer SNOM-Faser	86
6.4.2	Messung mit einem Hoch-NA-Mikroskopobjektiv	89
Zusammenfassung und Ausblick		91
A	Skalare Wellenausbreitung	A-1
B	Berechnung der nichtlinearen Photoionisationsraten	B-1
B.1	Keldysh-Modell	B-1
B.2	erweitertes Modell nach Gruzdev	B-2
B.3	Vergleich der Photoionisationsraten	B-3
C	Numerik	C-1
C.1	Samplingparameter	C-1
C.2	Überprüfung der Rechengenauigkeit der WPM	C-3
D	Sea Tadpole	D-1
D.1	Technische Daten	D-1
D.2	Rekonstruktion des zeitlichen Pulsverlaufs	D-3
D.3	Spektrale, zeitliche und räumliche Auflösung	D-5
E	Fokussieroptiken	E-1
F	Experimente zu permanenten Materialmodifikationen in Kieselglas	F-1
Literatur		95

1 Einleitung

Die Kraft des Lichtes zu nutzen und für die eigenen Zwecke einzusetzen, ist ein historisch gut dokumentierter und mythologisch fest verwurzelter Menschheitstraum. Ausgangspunkt zahlreicher Überlegungen war dabei nahezu ausnahmslos, das teilweise sehr intensive Sonnenlicht, gebündelt als Werkzeug oder, wie durch Archimedes angedacht, als Waffe insbesondere zum Entfachen von Feuer zu nutzen. Mit der Entwicklung künstlicher, im Speziellen elektrischer Lichtquellen zu Beginn des 19. Jahrhunderts wurde die Verfügbarkeit von Licht deutlich kontrollierbarer und die Anwendungsgebiete damit bedeutend vielfältiger. Hinsichtlich des Einsatzes von Licht zur Materialbearbeitung stellt jedoch erst die nur etwa 50 Jahre zurückliegende Entwicklung des LASER-Prinzips und seine Realisierung den entscheidenden Durchbruch dar. Neuartige, bereits kommerziell erhältliche Lasersysteme erlauben die Erzeugung ultrakurzer Laserpulse mit Pulsdauern im Bereich weniger Femtosekunden und Pulsenergien im Millijoule-Bereich. Werden diese Laserpulse noch zusätzlich fokussiert können problemlos extrem hohe Spitzenintensitäten erreicht werden. Bereits eine Intensität um $10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$, welche mit Pulsenergien von wenigen Nanojoule erzeugt werden kann, ist ausreichend um Festkörper nachhaltig zu verändern. Gezielt eingesetzt, können so präzise kleinste Materialmodifikationen eingebracht werden, wie die Erfolge auf dem Gebiet der Mikro-Materialbearbeitung zeigen. Prominente Beispiele hierfür sind Femto-LASIK, direktes Schreiben dreidimensionaler Wellenleiter und gratfreies Bohren kleinster Löcher in metallische Werkstoffe.

Zentrales Element bei der Nutzung von Laserlicht für die Materialbearbeitung ist stets die Fokussierung der Laserpulse, da nur so die benötigte Intensität gekoppelt mit der geforderten Präzision erreicht werden kann. Aufgrund von Aberrationen der Fokussieroptik, Dispersions- und Beugungseffekten kann ein Laserpuls im fokalen Bereich starke raum-zeitliche Verzerrungen erleiden [1–14], welche nicht nur die erreichbare Spitzenintensität verringern, sondern auch die Reproduzierbarkeit der eingebrachten Materialmodifikationen erschweren. In Vorarbeiten im Rahmen der Diplomarbeit der Autorin [11] wurde bereits eine Methode für die Berechnung der Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse durch komplexe optische Systeme entwickelt, mit welcher alle durch eine reale Fokussieroptik eingebrachten Aberrations-, Dispersions- und Beugungseffekte vollständig und in ihrer natürlichen Mischung berücksichtigt werden können. Damit kann auf die Näherung durch einfache Modellsysteme verzichtet werden und darüber hinaus der direkte Vergleich zum Experiment erfolgen. An diesem Punkt setzen die Betrachtungen im Rahmen dieser Arbeit mit der Weiterentwicklung obiger Methode zur Berücksichtigung nichtlinearer Ma-

terialwechselwirkungen an. Dabei wird für die Berechnung der nichtlinearen Ausbreitung des Laserpulses im Material nicht, wie allgemein üblich, die nichtlineare SCHRÖDINGER-Gleichung gelöst [15–27], sondern vielmehr die Propagation jeder spektralen Komponente betrachtet, wobei der zeitliche Pulsverlauf an jedem Ort mittels FOURIER-Transformation rekonstruiert werden kann. Als nichtlineare Wechselwirkungsprozesse mit dem Material werden dabei der intensitätsabhängige Brechungsindex sowie die Erzeugung freier Ladungsträger berücksichtigt. Basis der wellenoptischen Berechnungen bildet die von W. Singer entwickelte Wave Propagation Method (WPM) [28, 29], welche die numerische Simulation der Ausbreitung in Medien mit lateral variierendem Brechungsindexprofil mit hoher Genauigkeit ermöglicht.

Aufgrund der speziellen Wahl der Berechnung der nichtlinearen Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse ist es im Rahmen dieser Arbeit erstmals möglich, die Wechselwirkung fokussierter, aberrierter ultrakurzer Laserpulse mit Kieselglas zu untersuchen. Kieselglas wird dabei exemplarisch als Vertreter der Dielektrika ausgewählt, da es in den Experimenten zur Mikro-Materialbearbeitung große Verbreitung aufweist und darüber hinaus als einzige Glassorte die Möglichkeit bietet, Materialparameter für die numerischen Simulationen über den Vergleich mit der kristallinen Form Quarz abzuschätzen. Dies ist von essentieller Wichtigkeit, da Modelle zur Beschreibung der nichtlinearen Photoionisation nur für periodische Festkörper [30–32] existieren und numerische Simulationen mit dem amorphen Material Glas eine besondere Herausforderung darstellen.

Die Entstehung von permanenten Materialmodifikationen in Dielektrika wird allgemein auf das Erreichen einer bestimmten Schwellendichte freier Elektronen zurückgeführt [15, 33–40], welche aufgrund des starken äußeren elektromagnetischen Feldes vom Valenz- ins Leitungsband übergegangen sind. Dies kann zum einen durch nichtlineare Photoionisation und zum anderen durch Stoßionisation erfolgen. Zur Beschreibung des ersten Prozesses wird vielfach das sogenannte KELDYSH-Modell verwendet [30]. Da die Ableitungen zu diesem aber eine zu einfache Annahme bezüglich des Bandstrukturmodells beinhalten, wird im Rahmen dieser Arbeit erstmalig das kürzlich von Gruzdev [31, 32] diesbezüglich erweiterte Modell in den numerischen Simulationen zur Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse verwendet. Bedingt durch das veränderte Bandstrukturmodell ergibt sich ein fundamental anderer Verlauf der intensitätsabhängigen Photoionisationsrate, welche beim Erreichen bestimmter Intensitäten Polstellen aufweist. Gruzdev setzt das Erreichen der 1. Polstelle bei etwa $10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$ aufgrund der Übereinstimmung zu experimentell bestimmten Schwellenintensitäten für Materialzerstörung mit dieser gleich. Im Rahmen der Untersuchungen in dieser Arbeit soll diese Vermutung näher untersucht werden. Der Beitrag der Stoßionisation zur Gesamtelektronendichte wird durch zu einfache Annahmen für den Femtosekundenbereich meist überschätzt [41, 42]. Durch Verwendung des von Rethfeld vorgeschlagenen MRE-Modells [41] kann die zeitliche Dynamik der Stoßionisation ohne großen zusätzlichen numerischen Aufwand mit berücksichtigt werden. Die Beschreibung der Wechsel-

wirkung des Laserpulses mit dem Material erfolgt mit einer Mischung von makroskopischen und mikroskopischen Modellen, welche bestmöglich aneinander angepasst werden. Darauf aufbauend soll über den Vergleich von experimentell erzeugten Materialmodifikationen in Kieselglas ein zuverlässiges Kriterium für das Entstehen von Materialmodifikationen vom Typ I (Brechzahlmodifikation) und Typ II (Materialzerstörung) abgeleitet und die Auswirkungen der veränderten Beschreibung der nichtlinearen Photoionisation evaluiert werden.

Für die Untersuchung der nichtlinearen Wechselwirkungen fokussierter, aberrierter ultrakurzer Laserpulse ist die Kenntnis der raum-zeitlichen Verzerrung der Pulsfronten durch die verwendete Fokussieroptik von grundlegender Bedeutung. Daher ist es notwendig über ein Messverfahren zur orts aufgelösten Charakterisierung fokussierter Laserpulse zu verfügen. Mit *scanning* SEA TADPOLE steht erstmals ein solches Verfahren zur Verfügung [43, 44], womit die Limitationen anderer Messverfahren, welche Laserpulse nicht im Fokus [45–51] oder nur räumlich integriert [52–54] charakterisieren können, überwunden wurde. Im Rahmen dieser Arbeit werden die Weiterentwicklungen bezüglich der Erhöhung der räumlichen und spektralen Auflösung diskutiert und der damit erreichte erste direkte Nachweis des Begleitpulses (*fore-runner pulse*) vorgestellt.

Die Arbeit beginnt mit der Ableitung und Erläuterung der Propagationmethoden in Kapitel 2, gefolgt von Betrachtungen zum optischen KERR-Effekt und der Herleitung der zum Ausbreitungsproblem passenden dielektrischen Funktion. In Kapitel 3 wird die numerische Umsetzung sowie die Abschätzung der Materialparameter für Kieselglas vorgestellt. Daran anschließend erfolgen in Kapitel 4 grundlegende Betrachtungen zur Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit ionisiertem Kieselglas. Aufbauend auf dieser Analyse werden in Kapitel 5 die unter Berücksichtigung der nichtlinearen Materialwechselwirkungen berechneten raum-zeitlichen Pulsverläufe vorgestellt und die daraus resultierenden Elektronendichteverteilungen mit den im Experiment erzeugten Strukturen verglichen. Den Abschluss bildet in Kapitel 6 die Vorstellung von *scanning* SEA TADPOLE als erstes Messverfahren zur raum-zeitlichen Charakterisierung fokussierter Laserpulse sowie dessen Weiterentwicklung bezüglich der Verbesserung der räumlichen und spektralen Auflösung und anschließender Demonstration des Messverfahrens.

2 Grundlagen

In diesem Kapitel wird nach der Ableitung der HELMHOLTZ-Gleichung die eindeutige Beschreibung der Eigenschaften ultrakurzer Laserpulse anhand der mathematischen Darstellung über die Spektralamplitude und Spektralphase aufgezeigt. Des Weiteren wird die Kombination von Ray-tracing und wellenoptischen Berechnungen zur Simulation der Propagation ultrakurzer Laserpulse durch komplexe optische System vorgestellt. Anschließend wird die WAVE PROPAGATION METHOD (WPM) zur Berechnung der Wellenausbreitung in Medien mit transversal variierendem Brechungsindexprofil eingeführt. Diese bildet die Basis für die numerischen Simulationen der Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse unter Berücksichtigung des optischen KERR-Effekts und der Erzeugung freier Ladungsträger, welche aufgrund der hohen Intensitäten sowohl das räumliche Brechungsindexprofil modifizieren, als auch durch Absorption das raum-zeitliche Profil der Laserpulse verändern. Die Beschreibung der Effekte, welche bei der nichtlinearen Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse auftreten und die nichtlineare Photoionisation in Kieselglas, sowie deren Auswirkungen, bis hin zu permanenten Materialmodifikationen, werden nacheinander in den drei letzten Abschnitten dieses Kapitels besprochen.

2.1 Mathematische Beschreibung ultrakurzer Laserpulse

Die Ausbreitung von elektromagnetischen Wellen wird grundlegend durch die MAXWELL'schen Gleichungen

$$\operatorname{rot}\mathbf{E} = -\frac{d}{dt}\mathbf{B}, \quad \operatorname{rot}\mathbf{H} = \mathbf{j} + \frac{d}{dt}\mathbf{D}, \quad \operatorname{div}\mathbf{D} = \rho, \quad \operatorname{div}\mathbf{B} = 0, \quad (2.1)$$

beschrieben [55]. Durch diese vier Gleichungen sind die elektrische Feldstärke \mathbf{E} und die dielektrische Verschiebung \mathbf{D} mit der magnetischen Flussdichte \mathbf{B} und dem magnetischen Feld \mathbf{H} verbunden. Des Weiteren bezeichnet ρ die elektrische Ladungsdichte und \mathbf{j} die Stromdichte. In der dielektrischen Verschiebung \mathbf{D} werden die Materialeigenschaften mittels der Polarisation \mathbf{P} durch den Zusammenhang

$$\mathbf{D} = \epsilon_0\mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (2.2)$$

berücksichtigt. In dieser Arbeit werden die Betrachtungen grundsätzlich auf nicht magnetisierbare Materialien,

$$\mathbf{B} = \mu\mu_0\mathbf{H} = \mu_0\mathbf{H} , \quad (2.3)$$

mit der relativen magnetischen Permeabilität μ und der Vakuumpermeabilität μ_0 beschränkt. Für ladungs- und stromfreie Medien ($\rho = 0$, $\mathbf{j} = 0$) lässt sich die Wellengleichung in der Form

$$\nabla^2\mathbf{E}(t, x, y, z) - \epsilon_0\mu_0\frac{\partial^2\mathbf{E}(t, x, y, z)}{\partial t^2} = \mu_0\frac{\partial^2\mathbf{P}(t, x, y, z)}{\partial t^2} \quad (2.4)$$

ableiten [55]. Durch FOURIER-Transformation der Wellengleichung (2.4) geht die zweifache Ableitung nach der Zeit in eine Multiplikation mit der Kreisfrequenz ω des elektrischen Feldes über und es ergibt sich:

$$\nabla^2\mathbf{E}(\omega, x, y, z) - \epsilon_0\mu_0\omega^2\mathbf{E}(\omega, x, y, z) = \mu_0\omega^2\mathbf{P}(\omega, x, y, z) . \quad (2.5)$$

Liegt lineare Materialresponns mit $P(\omega, x, y, z) = \epsilon_0\chi(\omega)E(\omega, x, y, z)$ in einem homogenen, isotropen Medium vor, kann diese weiter zur sogenannten HELMHOLTZ-Gleichung,

$$\nabla^2\mathbf{E}(\omega, x, y, z) + k^2\epsilon(\omega)\mathbf{E}(\omega, x, y, z) = 0 , \quad (2.6)$$

vereinfacht werden. Hierbei ist $k = \frac{\omega}{c_0} = \frac{2\pi}{\lambda_0}$ der Betrag des Wellenvektors mit der Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0 und der Vakuumwellenlänge λ_0 . Die relative dielektrische Funktion ist dabei durch $\epsilon(\omega) = 1 + \chi(\omega) = n^2(\omega)$ mit der skalaren dielektrischen Suszeptibilität $\chi(\omega)$ und dem Brechungsindex des Materials n gegeben. Für die Betrachtungen im Rahmen dieser Arbeit wird die Kopplung der Vektorkomponenten vernachlässigt und skalare Wellenausbreitung in z-Richtung angenommen (siehe Anhang A). Dadurch vereinfacht sich Gl. (2.6) zur skalaren HELMHOLTZ-Gleichung mit ebene Wellen der Form

$$E_L(\omega, x, y, z) = A(\omega, x, y, z) \cdot e^{ikz} \quad (2.7)$$

als allgemeine Lösung, wobei das physikalische E-Feld durch den Realteil $\text{Re}[E_L]$ beschrieben wird. Bei der skalaren HELMHOLTZ-Gleichung handelt es sich um eine lineare Differentialgleichung, weshalb auch alle Superpositionen von Gl. (2.7) Lösungen sind. Für die mathematische Beschreibung von ultrakurzen Laserpulsen ist diese Tatsache sehr nützlich, da ein Laserpuls

über die Zerlegung in seine FOURIER-Komponenten eindeutig beschrieben werden kann. Es gilt

$$E_L(t, x, y, z) = \mathcal{F}^{-1}[E_L(\omega, x, y, z)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega E_L(\omega, x, y, z) e^{i\omega t}, \quad (2.8)$$

$$E_L(\omega, x, y, z) = \mathcal{F}[E_L(t, x, y, z)] = \int_{-\infty}^{\infty} dt E_L(t, x, y, z) e^{-i\omega t}.$$

Der zeitliche Verlauf des elektrischen Feldes eines Laserpulses kann daher durch

$$E_L(t, x, y, z) = \mathcal{F}^{-1}[E_L(\omega, x, y, z)] = \frac{1}{2\pi} \int_{-\infty}^{\infty} d\omega A(\omega, x, y, z) \cdot e^{i\phi(\omega, x, y, z)} e^{i\omega t} \quad (2.9)$$

beschrieben werden. Dabei ist

$$E_L(\omega, x, y, z) = A(\omega, x, y, z) \cdot e^{i\phi(\omega, x, y, z)} \quad (2.10)$$

die spektrale Darstellung des Laserpulses mit der reellen spektralen Amplitude $A(\omega, x, y, z)$ und der Spektralphase $\phi(\omega, x, y, z)$, welche die Phasenlage zwischen den einzelnen Frequenzkomponenten angibt [56].

2.2 Propagation ultrakurzer Laserpulse durch optische Systeme

Für die Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit spielt die Fokussierung ultrakurzer Laserpulse mit realen Optiken eine entscheidende Rolle. Daher wird dieser Spezialfall [11], die Propagation durch abbildende optische Systeme, noch einmal näher betrachtet. Innerhalb abbildender optischer Systeme sind die Energiedichten¹ der ultrakurzen Laserpulse, welche im Rahmen dieser Arbeit betrachtet werden, noch hinreichend niedrig, um nichtlineare Materialwechselwirkungen mit den optischen Elementen vernachlässigen zu können. Werden nur lineare Effekte bei der Berechnung der Propagation zwischen Eintritts- und Austrittspupille des optischen Systems berücksichtigt, besteht keine Kopplung zwischen den einzelnen spektralen Komponenten des Laserpulses. Daher kann die Ausbreitung jeder spektralen Komponente einzeln berechnet werden. Dies gilt auch für die wellenoptische Ausbreitung in die Fokusumgebung, sofern nichtlineare Materialwechselwirkungen in diesem Gebiet vernachlässigt werden können. Zusätzlich kann mit der am Ende dieses Abschnittes vorgestellten WAVE PROPAGATION METHODE (WPM) die Ausbreitung in Gebieten mit transversal variierendem Brechungsindexprofil berechnet werden. Die gesuchte Feldverteilung des Laserpulses ergibt sich in allen linearen Fällen aus der kohärenten Überlagerung aller spektralen Komponenten am Ort (x, y, z) .

¹Für einen Gaußstrahl mit einem Strahlradius von 5mm ergibt sich für einem Laserpuls von 50fs Dauer und einer Pulsenergie von 1μJ eine mittlere Intensität von etwa $2,5 \cdot 10^7 \text{W/cm}^2$.

2.2.1 Propagation durch optische Systeme

Soll die Ausbreitung von Laserpulsen durch ein beliebiges abbildendes optisches System berechnet werden, bietet sich eine Kombination von geometrischer Optik und Wellenoptik an. Eine solche Zerlegung der Berechnungsschritte wurde bereits von Stammes 1986 [57] für die Behandlung der Ausbreitung von monochromatischem Licht vorgeschlagen. Im ersten Schritt wird zunächst die Propagation zwischen Eintritts²- und Austrittspupille³ des optischen Systems mit Methoden der geometrischen Optik berechnet. In den meisten Fällen ist es hierbei schon ausreichend, die ortsabhängige spektrale Phase $\phi_{Ab}(\omega, p'_x, p'_y, z_a)$ in der Austrittspupille zu bestimmen. Darin sind automatisch alle durch das System hervorgerufenen Änderungen der spektralen Phase durch Dispersion, Brechung, Reflexion und Aberrationen enthalten. Änderungen der spektralen Amplitude durch Streuung, Absorption oder Pupillenaberrationen lassen sich ebenfalls mit in Betrachtung einbeziehen, werden im Rahmen dieser Arbeit jedoch vernachlässigt. Abbildung 2.1 zeigt schematisch ein abbildendes optisches System mit den entsprechenden Koordinatensystemen und Eintritts- sowie Austrittspupille. Die genaue Lage dieser beiden Ebenen ist systemabhängig.

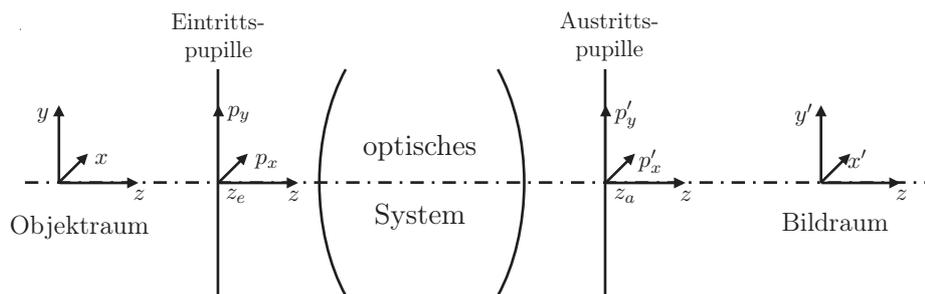


Abbildung 2.1: Darstellung der Koordinatensysteme, auf die sich in den nachfolgenden Ausführungen bezogen wird. Das optische System ist nicht näher spezifiziert und wird nur durch die Eintrittspupille bei $z = z_a$ und die Austrittspupille bei $z = z_e$ repräsentiert. Deren Lage hängt vom jeweiligen System ab und ist hier nur angedeutet.

2.2.2 Propagation in die Fokumgebung

Im zweiten Berechnungsschritt der Propagation werden die Feldverteilungen in der Fokumgebung mit wellenoptischen Methoden berechnet. Auftretende Beugungseffekte im System können bei dieser kombinierten Ausbreitung so behandelt werden, als ob sie nur von der Austrittspupille hervorgerufen werden [58], da diese die Abbildung der physikalischen Apertur des Systems ist. Die Propagation in den Bildraum erfolgt als Freiraumpropagation mit der Austrittspupille als Ausgangspunkt durch Lösen des RAYLEIGH-SOMMERFELD-Beugungsintegrals [58]. Um bei der Berechnung der Feldverteilungen in der Fokumgebung nicht auf paraxiale Näherungen zurückgreifen zu müssen, bietet es sich an, die Feldverteilungen der einzelnen spektralen Kom-

²Eintrittspupille: Bild der physikalisch begrenzenden Apertur im System vom Objektraum aus betrachtet.

³Austrittspupille: Bild der physikalisch begrenzenden Apertur im System vom Bildraum aus betrachtet.

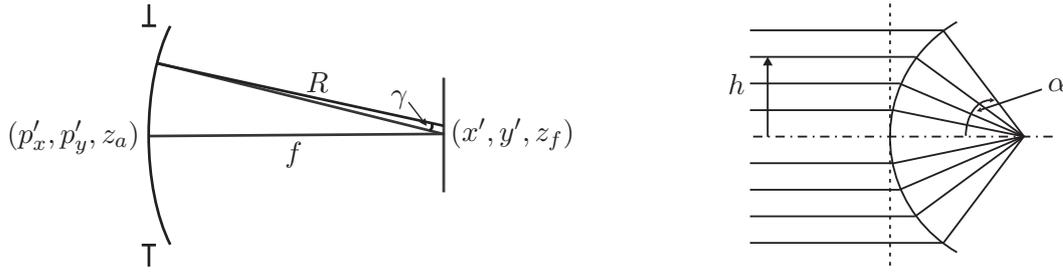


Abbildung 2.2: links: Schematische Darstellung der Lage der Referenzsphäre in der Austrittspupille mit den dazugehörigen Koordinatensystemen. Die Phasenfront in der Ebene der Austrittspupille wird direkt auf die Referenzsphäre projiziert (aplanatisches System). rechts: Schematische Darstellung der Energieprojektion für ein aplanatisches System $NA = n \cdot h/f = n \cdot \sin \alpha$.

ponenten auf einer Referenzsphäre (Abb.2.2 (links)) in der Austrittspupille zu berechnen [59]. Das hierfür abgeleitete Beugungsintegral,

$$E_L(\omega, x', y', z_f) = \frac{1}{i\lambda f} \exp[ikf] \cdot \exp\left[\frac{ik(x'^2 + y'^2)^{1/2}}{2f}\right] \cdot \mathcal{F}[E_{Ab}(\omega, p'_x, p'_y, z_a)] , \quad (2.11)$$

gleichet dem in FRAUNHOFER-Näherung - wobei jedoch die Kleinwinkelnäherung hier auf die Richtungsabweichung γ vom Radius bezogen ist. Da die Ausbreitung konvergierender Strahlen berechnet wird, ist diese Bedingung für nicht zu stark aberrierte Strahlen⁴ auch für große Öffnungswinkel noch gut erfüllt.

Bei der Umschrift des RAYLEIGH-SOMMERFELD-Beugungsintegrals auf die Verwendung der Referenzsphäre erfolgt eine Projektion der jeweiligen Wellenfront in der Austrittspupille auf diese Sphäre. Im Rahmen dieser Arbeit wird immer von einer aplanatischen Projektion [57] ausgegangen, wie sie in Abb. 2.2 (rechts) dargestellt ist. Dies ist äquivalent zur ABBESchen Sinus-Bedingung, $h/f = \sin \alpha$, wobei h der Strahlabstand zur optischen Achse im Objektraum, f der Radius der Referenzsphäre und α der Winkel des fokussierten Strahls mit der optischen Achse ist. Für die winkelabhängige Amplitudenverteilung⁵ auf der Referenzsphäre ergibt sich durch die Projektion:

$$A(\alpha) = A_0(f \sin \alpha) \sqrt{\cos \alpha} . \quad (2.12)$$

Die numerischen Resultate in dieser Arbeit wurden alle für eine homogen ausgeleuchtete Eintrittspupille und damit für $A_0(f \sin \alpha) = 1$ berechnet.

Für die Berechnung der Feldverteilungen $E(\omega, x, y, z_u)$ in der Fokuse Umgebung bietet sich die skalare Ausbreitung mit Hilfe des ANGULAR-SPECTRUM OF PLANE WAVES [58] an, welches eine exakte Umschrift des RAYLEIGH-SOMMERFELD-Beugungsintegrals ist. Auf diesem Wege kann das elektrische Feld sowohl vor als auch hinter dem Fokus berechnet werden. Für nicht zu

⁴Sphärische Aberrationen bis zu 50 Wellenlängen.

⁵Da die Phasenfronten auf der Referenzsphäre berechnet werden, passt die Projektion nur die Amplitudenverteilung gegenüber der Berechnung auf einer Ebene in der Austrittspupille an.

stark aberrierte Strahlen, wie bei den im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Fokussieroptiken, kann noch die nachfolgend beschriebene Vereinfachung eingeführt werden. Da die Phasenvariation der Feldverteilung in der Brennebene im allgemeinen gering ist, kann die quadratische Phasenfunktion vor dem FOURIER-Integral in Gl. (2.11) vernachlässigt werden. Die Berechnung der Feldverteilung in der Fokusumgebung vereinfacht sich damit zu einer Phasenmultiplikation der Feldverteilung in der Austrittspupille mit anschließender FOURIER-Transformation der Form [11–13]

$$E_L(\omega, x, y, z_u) \propto \omega \cdot \mathcal{F} \left[\hat{\mathbf{P}}_u E_{Ab}(\omega, p_x, p_y, z_a) \right] \quad (2.13)$$

$$\hat{\mathbf{P}}_u = \exp \left[ik\delta z \sqrt{1 - \frac{1}{f^2}(p_x^2 + p_y^2)} \right].$$

Dabei ist f sowohl der Abstand der Austrittspupille zur Brennebene, als auch der Krümmungsradius der Referenzsphäre und δz die Propagationsdistanz von der Brennebene weg.

2.2.3 Wave Propagation Method (WPM)

Zur Berechnung der Feldverteilungen bei Ausbreitung in einem (transversal) inhomogenen Medium wird in dieser Arbeit die von Singer [28, 29] vorgeschlagene WAVE PROPAGATION METHOD (WPM) verwendet. Diese stellt eine numerische Lösung der HELMHOLTZ-Gleichung dar, bei welcher Information aus dem Ortsfrequenzraum in den Ortsraum übertragen wird, indem die Richtungskomponenten des Winkelspektrums einer gegebenen Feldverteilung $E(x, y, z)$ einzeln als ebene Wellen ausgebreitet werden. Dadurch ist es möglich, den lokalen Brechungsindex $n_{xy}(z)$ zu berücksichtigen. Anschließend wird über alle Komponenten des Winkelspektrums summiert. Für kleine Schrittweiten δz ergibt sich folgendes Ausbreitungsintegral,

$$E_L(x, y, z + \delta z) = \int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} df_x df_y \underbrace{\tilde{E}(f_x, f_y, z) \cdot e^{i2\pi(xf_x + yf_y)}}_{\text{ebene Wellen}} \cdot e^{i\frac{2\pi}{\lambda_0} \delta z \sqrt{n_{xy}^2 - \lambda_0^2(f_x^2 + f_y^2)}}, \quad (2.14)$$

um δz ausgebreitete ebene Wellen

mit der Vakuumwellenlänge $\lambda_0 = \frac{2\pi}{\omega} c_0$. Des Weiteren soll der lokale Brechungsindex $n_{xy}(z)$ während eines Propagationsschrittes δz konstant sein. Aus der Forderung nach einer kontinuierlichen Phasenfront ergibt sich die Bedingung für die maximale Schrittweite δz in Ausbreitung zu $\delta z \ll \lambda/\delta n$, da die Phasendifferenz zweier benachbarter Gebiete mit unterschiedlichem Brechungsindex kleiner als 2π sein soll. Dabei ist δn die maximale Brechungsindexdifferenz. Die intensitäts- und damit zeitabhängige Änderung des Brechungsindex aufgrund des optischen KERR-Effekts und der Erzeugung freier Ladungsträger lässt keine pauschale Abschätzung der Schrittweite δz zu. Die maximale Schrittweite wird dabei auf $1\mu\text{m}$ begrenzt, was einer maximalen Brechungsindexänderung von $\delta n = 10^{-2}$ entspricht, welche bei den numerischen Simu-

lationen aber nur in unmittelbarer Fokusnähe erreicht oder überschritten wird⁶. Die Größe der lateralen Abtastung δx und δy muss individuell dem jeweiligen Brechungsindexprofil und der propagierenden Wellenfront angepasst werden, um auch hierbei kontinuierliche Phasenfronten zu gewährleisten. Die dafür notwendigen Abschätzungen befinden sich im Anhang C.1.

Die Rechengenauigkeit der WPM wird in Anhang C.2 anhand von zwei Testsystemen untersucht. Zum einen wird die Brechung einer ebenen monochromatischen Welle aus Vakuum in eine gekippte Glasplatte analysiert, da dies das einfachste Beispiel für eine lateral variierende Brechungsindexverteilung ist und die Ergebnisse sich zudem analytisch durch das Brechungsgesetz leicht überprüfen lassen. Die mit der WPM ermittelten Brechungswinkel stimmen auch bei großen Einfallswinkeln ($\alpha \leq 80^\circ$) noch mit dem Brechungsgesetz nach Snellius überein. Zum anderen wird die Propagation durch eine Gradientenindex-Linse berechnet, bei welcher der Strahlverlauf ebenfalls analytisch berechnet werden kann. Auch hier überzeugen die guten Ergebnisse der Abbildung einer Punktquelle und die WPM erscheint hervorragend geeignet für die Berechnungen mit variierendem lateralem Brechungsindexprofil, wie sie im Rahmen dieser Arbeit erfolgen.

2.3 Der optische Kerr-Effekt in Kieselglas

Bei der Fokussierung ultrakurzer Laserpulse treten schnell sehr hohe Spitzenintensitäten auf, welche nichtlineare Wechselwirkungen zwischen Laserpuls und Material zur Folge haben. Für die Untersuchungen im Rahmen dieser Arbeit wird der intensitätsabhängige, und damit auch zeitabhängige, Brechungsindex des Materials mit berücksichtigt, welcher auch als optischer KERR-Effekt bekannt ist. Nach der Ableitung der erweiterten Form der dielektrischen Funktion werden die daraus resultierenden nichtlinearen Effekte kurz diskutiert. Die Betrachtungen gelten dabei für Dielektrika im allgemeinen, erfolgen hier aber am Beispiel des für diese Arbeit relevanten Materials Kieselglas und mit dessen Materialparametern.

Bei hohen Intensitäten kann die Materialresponns nicht mehr als linear angenommen werden und die Polarisation $P(\omega) = \epsilon_0 \chi(\omega) E_L(\omega)$ enthält Terme höherer Ordnung bzgl. der Feldstärke E_L [20]. Die Suszeptibilität χ ist dabei im allgemeinen ein Tensor. Da das im Rahmen dieser Arbeit untersuchte Material Kieselglas als isotrop angenommen werden kann, reduziert sich die Suszeptibilität auf skalare Größen und der erste zusätzliche Term ist die Polarisation dritter Ordnung. Es ergibt sich

$$P(\omega) = \epsilon_0 \chi E_L(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)} E_L(\omega) + 3\epsilon_0 \chi^{(3)} |E_L(\omega)|^2 E_L(\omega) \quad (2.15)$$

mit $\chi^{(n)}$ als nichtlineare Suszeptibilitäten n-ter Ordnung und einer reellen effektiven Suszepti-

⁶Tritt zusätzlich hohe Absorption auf, ist es notwendig die Schrittweite δz weiter zu reduzieren (siehe Abschnitt 3.2.3).

bilität von

$$\chi_{\text{eff}} = \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)}|E_L(\omega)|^2 . \quad (2.16)$$

Der Brechungsindex genügt der allgemeinen Bedingung

$$n = \sqrt{1 + \chi_{\text{eff}}} = n_0 + \bar{n}_2 \langle E_L(t)^2 \rangle = n_0 + n_2 I , \quad (2.17)$$

wobei $\langle E_L(t)^2 \rangle$ die zeitliche Mittlung und \bar{n}_2 den nichtlinearen Brechungsindex meint. Bezogen auf die Intensität $I = \frac{1}{2}n_0c\epsilon_0|E_L|^2$ wird der nichtlineare Brechungsindex mit n_2 bezeichnet. Ein Vergleich bis zu den quadratischen Termen des elektrischen Feldes ergibt

$$n_0^2 = 1 + \chi^{(1)} \quad \text{und} \quad n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{\epsilon_0cn_0^2} . \quad (2.18)$$

Diese nichtlineare Materialrespons setzt sich genau genommen aus zwei Teilen zusammen - der instantanen Reaktion der Elektronen und dem zeitlich verzögerten RAMAN-KERR-Effekt, der zusätzlich die Wechselwirkung mit dem Gitter berücksichtigt. Ist die Dauer des Laserpulses groß gegenüber der zeitlichen Verzögerung der Materialantwort, erfährt der Laserpuls nur einen kulminierten intensitätsabhängigen Brechungsindex aus beiden Effekten. Für die Berechnungen im Rahmen dieser Arbeit wurde diese Zeitabhängigkeit des Brechungsindex vernachlässigt, da der zeitlich verzögerte Anteil nur etwa 18% von n_2 beträgt [60] und die durch den optischen KERR-Effekt hervorgerufenen Effekte aufgrund der starken externen Fokussierung und der kurzen Propagationsstrecke im Material nur eine untergeordnete Rolle spielen.

Die in der Literatur angegebenen Werte für den nichtlinearen Brechungsindex variieren von $n_2 = 2,44 \cdot 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$ für Glasfasern⁷ aus Kieselglas [61] und $n_2 = 3,75 \cdot 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$ [62, 63]. Der am meisten zitierte Wert ist $n_2 = 3,2 \cdot 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$ [20], welcher auch für die Berechnungen in dieser Arbeit gewählt wurde. Darin ist der Anteil des RAMAN-KERR-Effekt, welcher etwa 18% von n_2 beträgt [60], bereits enthalten. Die Suszeptibilität dritter Ordnung ist nach Gl. (2.18) durch $\chi^{(3)} = 6,25 \cdot 10^{-23} \text{m}^2/\text{V}^2$ gegeben⁸.

2.3.1 Self-trapping und Selbstfokussierung

Bei positivem n_2 steigt der Brechungsindex in Gebieten höherer Intensität, welche bei GAUSS-Strahlen im Strahlzentrum liegen. Dadurch entsteht ein Brechungsindexprofil mit der Wirkung

⁷Durch das Ziehen der Glasfasern im Herstellungsprozess werden wahrscheinlich Materialeigenschaften verändert, weshalb dieser Wert für n_2 nicht zu den Bedingungen in den numerischen Simulationen in dieser Arbeit passt.

⁸Die hier berechnete Suszeptibilität dritter Ordnung ist um Faktor 4 kleiner als in [20], da eine abweichende Definition des elektrischen Feldes (siehe Abschnitte 2.1) verwendet wurde.

einer Sammellinse. In diesem Zusammenhang definiert man die kritische Leistung [64]

$$P_{\text{krit}} = \eta \frac{\lambda_0^2}{4\pi n_0 n_2}, \quad (2.19)$$

bei welcher sich die Aufweitung des Strahls durch Beugung und die Fokussierung durch das Brechungsindexprofil gerade kompensieren⁹. Genau an diesem Punkt spricht man vom Effekt des SELF-TRAPPING, da eine Strahlführung einsetzt. Übersteigt die Leistung P_{krit} beginnt der Prozess der SELBSTFOKUSSIERUNG [20]. Der Wert der Konstanten η hängt vom Strahlprofil ab und ist für Festkörper für eine Reihe von Strahlprofilen numerisch bestimmt worden [64]. Das untere Limit liegt bei $\eta \approx 1,86225$ für TOWNS-Strahlprofile (Solitonen), wohingegen GAUSS-Strahlen einen höheren Wert von $\eta \approx 1,8962$ besitzen. Eine Abschätzung mit obigen Parametern ergibt für die kritische Leistung $P_{\text{krit}} \approx 2\text{MW}$, was für einen 35fs-Laserpuls (FWHM) einer Pulsenergie von etwa 70nJ entspricht.

Wie stark sich der Effekt der Selbstfokussierung auf die Fokussierung ultrakurzer Laserpulse auswirkt, hängt von der verwendeten numerischen Apertur (NA) ab. Bei starker Fokussierung spielt die zusätzliche Wirkung der Selbstfokussierungslinse nur eine sehr untergeordnete Rolle. Untersucht man allerdings die Fokussierung mit niedrigen NAs, verursacht die zusätzliche Selbstfokussierungslinse eine Verschiebung der Fokussierungsoptik. Die Stärke der Brennweitenverkürzung hängt dabei wiederum von der Leistung des Laserpulses ab.

2.3.2 Selbstphasenmodulation und Selbstaufsteilung

Bei der Ausbreitung von ultrakurzen Laserpulsen durch dispersive Medien kommt es aufgrund der Dispersion und der Nichtlinearität des Brechungsindex (Gl. (2.17)) zu Veränderungen der zeitlichen Pulsform [20]. Bei niedrigen Intensitäten ist der bestimmende Effekt die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD), welche für normale Dispersion zu einem zeitlichen Auseinanderlaufen des Laserpulses führt¹⁰. Da der Intensitätsverlauf des Laserpulses zeitabhängig ist, ändert sich auch der Brechungsindex in Gl. (2.17) mit der Zeit. Dies ruft unter anderem den Effekt der Selbstphasenmodulation hervor, was eine Verbreiterung des Pulsspektrums und eine veränderte Spektralphase zur Folge hat. Nachfolgend wird eine Abschätzung bezüglich der in dieser Arbeit typischen Simulationsparameter zur Relevanz der Selbstphasenmodulation durchgeführt. Gilt für die zusätzlich erzeugte Phasendifferenz

$$\Delta\phi_{\text{NL}} \cong n_2 \frac{2\pi}{\lambda_0} I_0 L \geq 2\pi \quad (2.20)$$

⁹Die Ableitungen zur kritischen Leistung und den charakteristischen Wechselwirkungslängen basieren auf den Annahmen der Strahlausbreitung im Rahmen der GAUSSschen Optik.

¹⁰Besitzt der Laserpuls eingangs bereits einen *down-chirp* kann es auch zu einer Verkürzung der Pulsdauer kommen.

auf dem geometrischen Weg L im Material, so wird angenommen, dass die Selbstphasenmodulation wesentlich zur Verbreiterung des Pulsspektrums beiträgt [20]. Im Rahmen dieser Arbeit werden Laserpulse bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$, die in Kieselglas mit einer mittleren Tiefe von etwa $200\mu\text{m}$ fokussiert werden, betrachtet. Daraus ergibt sich eine Mittenintensität des Laserpulses von mindestens $1,25 \cdot 10^{13}\text{W/cm}^2$, um eine Phasenänderung von 2π hervorzurufen. Diese Intensität liegt schon im Bereich der Werte, welche in der Literatur für die Zerstörschwelle von Kieselglas angegeben werden [23, 32, 65]. Daher wird die Veränderung des Spektrums ein untergeordneter Effekt in den Simulationen sein. Nicht zu vernachlässigen ist dagegen die Modifizierung der Spektralphase, welche auch schon bei Werten $< 2\pi$ zur Veränderung der zeitlichen Pulsform bis hin zur Ausbildung von Doppel- und Mehrfachpulsen führt.

Der Effekt der Selbstaufsteilung resultiert aus der intensitätsabhängigen Gruppengeschwindigkeit des Laserpulses. Für Materialien mit $n_2 > 0$ ist der Brechungsindex für die Pulsspitze höher als an den (zeitlichen) Rändern. Dies führt zu einer zeitlichen Verzögerung dieser beiden Gebiete zueinander. Als Konsequenz entsteht eine Aufsteilung des hinteren Teils des Laserpulses. Für die Abschätzung des Einflusses auf die zeitliche Pulsform lässt sich folgende Selbstaufsteilungsdistanz definieren [20]:

$$L_{\text{ss}} = \frac{c\Delta\tau}{n_2 I}, \quad (2.21)$$

wobei angenommen wird, dass der nichtlineare Brechungsindex n_2 wellenlängenunabhängig ist. Für einen Laserpuls mit $\Delta\tau = 35\text{fs}$ und einer Mittenintensität von $1 \cdot 10^{13}\text{W/cm}^2$ ergibt sich für Kieselglas $L_{\text{ss}} = 3,3\text{mm}$. Das ist wesentlich größer als die maximalen Fokussiertiefen in den numerischen Simulationen, weshalb der Effekt der Selbstaufsteilung in den numerischen Berechnungen nicht berücksichtigt wird.

2.3.3 Filamentierung

Bei Leistungen wesentlich oberhalb der kritischen Leistung P_{krit} kann Filamentierung auftreten, was zu einer Aufspaltung der Wellen- bzw. Pulsfront in viele transversale Segmente führt. Jedes Filament trägt in etwa die Leistung P_{krit} [20]. Eine Ursache hierfür liegt in den ursprünglichen Modulationen der Wellenfront, welche während der Propagation aufgrund der Verstärkung durch Vier-Wellen-Mischung anwachsen.

Man spricht auch von (longitudinaler) Filamentbildung, wenn sich ähnlich dem Prozess des SELF-TRAPPING, durch die Wechselwirkung von Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung Gebiete mit nahezu konstanter Intensität entlang der Ausbreitungsrichtung bilden. Nichtlineare Absorption im Material führt bei steigenden Intensitäten zur vermehrten Erzeugung freier Ladungsträger (siehe Kapitel 2.4). Eine steigende Ladungsträgerdichte führt zur Absenkung des Brechungsindex (Gl. (??)), was dem Prozess der Selbstfokussierung entgegenwirkt.

Wie sich in den vorangegangenen Abschätzungen gezeigt hat, dominiert keiner der Effekte, welche durch den optischen KERR-Effekt hervorgerufen werden, die nichtlineare Ausbreitung der Laserpulse für die in dieser Arbeit untersuchten Fälle. Da aber die Fokussierung von aberrierten Laserpulsen untersucht wird, kann diese nichtlineare Änderung des Brechungsindex auch nicht einfach vernachlässigt werden, denn die Intensitätsprofile in der Fokumgebung weichen mitunter stark von denen beugungsbegrenzter Fokussierung ab. Dies gilt insbesondere auch, wenn die intensitätsbedingte Brechungsindexerhöhung zusätzlich noch durch andere Materialwechselwirkungen, wie zum Beispiel starke Absorption aufgrund von nichtlinearer Photoionisation (siehe Kapitel 4), verstärkt wird. Aufgrund der gewählten Simulationsmethode für die Berechnung der Ausbreitung im Material (siehe Abschnitt 3) werden alle obigen Prozesse und ihre Wechselwirkung mit berücksichtigt. Dabei wird insbesondere keiner dieser Effekte von vornherein vernachlässigt.

2.4 Erzeugung freier Ladungsträger in Kieselglas

Durch Fokussierung ultrakurzer Laserpulse können schon mit sehr geringen Pulsenergien Intensitäten im Bereich von $10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ erzielt werden. Bei den meisten Dielektrika ist die dabei im Material deponierte Energie bereits ausreichend groß, um permanente Materialmodifikationen zu verursachen [20, 36, 65–70]. Wird das Material zerstört, spricht man von einem optischen Durchbruch (LIB - *Laser Induced Breakdown*). Ursächlich hierfür sind nichtlineare Ionisationsprozesse, durch welche bei steigender Intensität vermehrt freie Ladungsträger im Material erzeugt werden, die dann ein Elektron-Loch-Plasma bilden. Bei Laserpulsdauern kürzer als 1ps sind die Prozesse, welche letztendlich zur permanenten Materialmodifikation führen, mehrstufig und noch nicht vollständig verstanden. Zusätzlich gibt es bei der Wahl der Parameter zur Simulation der Erzeugung der freien Ladungsträger in Kieselglas einen großen Spielraum bzgl. der in der Literatur derzeit zitierten Werte. Die Abschätzung und Auswahl der in dieser Arbeit verwendeten Materialparameter erfolgt daher erst in Abschnitt 3.3, obwohl nachfolgend schon vereinzelt spezifische Materialparameter von Kieselglas zur besseren Orientierung mit angegeben sind. Die verschiedenen Ansätze und die bisherigen Resultate zur Erklärung optischer Durchbrüche in Kieselglas in der Literatur werden zudem am Ende dieses Kapitels kritisch diskutiert, um die Ergebnisse dieser Arbeit einordnen zu können. Zuvor werden die durch die Anwesenheit freier Elektronen veränderten optischen Eigenschaften von Dielektrika näher untersucht und die komplexe dielektrische Funktion eingeführt, welche die Wechselwirkung des Laserpulses mit dem veränderten Material beschreibt. Anschließend werden das MRE-Modell der Kaskadenionisation und zwei Modelle zur Beschreibung der nichtlinearen Photoionisation vorgestellt.

2.4.1 Die komplexe Dielektrische Funktion

Bei der Herleitung der HELMHOLTZ-Gleichung (2.6) in Abschnitt 2.1 wurde von strom- und ladungsfreien Medien ($\mathbf{j} = 0$, $\rho = 0$) ausgegangen, was für lineare Materialresponns zur homogenen Wellengleichung führte. In Abschnitt 2.3 wurde bereits eine nichtlineare Materialresponns in Form des optischen KERR-Effekts eingeführt und dessen Auswirkung auf die Pulsausbreitung diskutiert. Nun sollen zusätzlich die bei hohen Laserintensitäten erzeugten freien Ladungsträger in der dielektrischen Funktion $\epsilon(\omega)$ bzw. der Suszeptibilität $\chi(\omega)$ mit berücksichtigt werden.

Der einfachste Ansatz zur Beschreibung der zeitlichen Änderung der Elektronendichte im Leitungsband besteht im DRUDE-Modell der nichtlinearen Ionisation [41, 71–73]:

$$\frac{d\rho}{dt} = \dot{\rho}_{\text{pi}}(E_L) + \alpha(E_L) \cdot \rho - \frac{\rho}{\tau_{\text{rek}}} . \quad (2.22)$$

Aufgrund der nichtlinearen Photoionisation, welche direkt vom elektrischen Feld E_L abhängt, werden Elektronen mit der Ionisationsrate $\dot{\rho}_{\text{pi}}$ vom Valenzband direkt in das Leitungsband überführt. Der zweite Term beschreibt die Änderung der Elektronendichte durch Stoßionisation (Kaskadenionisation) zwischen einem Elektron im Leitungsband und einem Elektron im Valenzband und ist direkt proportional zur Dichte der Elektronen im Leitungsband, wobei der Kaskadenkoeffizient $\alpha(E_L)$ die Wahrscheinlichkeit für ein Stoßereignis beinhaltet. Der letzte Term in Gl. (2.22) beschreibt die zeitliche Änderung der Elektronendichte durch Rekombination der Elektron-Loch-Paare mit einer experimentell bestimmten Rekombinationszeit (Abklingzeit) in Kieselglas von $\tau_{\text{rek}} = 150 - 170\text{fs}$ [63, 72–74]. Die Erzeugung freier Ladungsträger wird auf natürliche Weise nach oben hin durch die Anzahl der verfügbaren Valenzelektronen beschränkt. Als Anhaltspunkt für eine Abschätzung dient dabei wieder $\alpha\text{-SiO}_2$, welches $2 \cdot 10^{22}$ Formeleinheiten/ cm^3 und 16 Valenzelektronen pro Formeleinheit aufweist. Allerdings wird auch schon bei einfacher Ionisation, das heißt ein Valenzelektron pro Atom geht in das Leitungsband über, die kritische Plasmadichte $\rho_{\text{krit}} = 1,48 \cdot 10^{21} \text{cm}^{-3}$, bei welcher die elektromagnetische Welle durch das Plasma reflektiert und absorbiert wird, überschritten. Die maximale Dichte des Elektronenplasmas bei vollständiger Ionisation beträgt $\rho_{\text{max}} = 3,2 \cdot 10^{23} \text{cm}^{-3}$. Wu *et al.* [70] ergänzen die beiden ersten Terme auf der rechten Seite von Gl. (2.22) um den zusätzlichen Faktor $(1 - \frac{\rho}{\rho_{\text{max}}})$. Dieser stellt zwar sicher, dass die maximale Elektronendichte nicht überschritten wird, ruft aber gleichzeitig eine Art Abklingverhalten der Erzeugungsprozesse hervor. Da für ein solches Verhalten keinerlei Anhaltspunkte in der Literatur gefunden werden konnten, wird im Rahmen dieser Arbeit von einem schlagartigen Stopp der Prozesse ausgegangen, was einem zusätzlichen Faktor in Form einer Stufenfunktion entsprechen würde. Eine ähnliche Vorgehensweise wird auch von Christensen *et al.* [40] vorgeschlagen.

Die Anwesenheit freier Ladungsträger modifiziert die dielektrische Funktion $\epsilon(\omega)$ in der Form

$$\epsilon(\omega) = 1 + \chi_{\text{eff}}(\omega) + \chi_e(\omega) , \quad (2.23)$$

wobei der Beitrag der Valenzbandelektronen χ_{eff} rein reell ist und aus ihm der Brechungsindex des transparenten Hintergrundmaterials nach Gl. (2.17) und (2.18) resultiert. Nachfolgend wird der Ausdruck für χ_e abgeleitet, wobei Energieerhaltung zwischen dem Prozess der Absorption von Photonen aus dem Laserfeld in Gl. (2.23) und der Erzeugung freier Elektronen nach der Ratengleichung (2.22) gewährleistet werden muss.

Betrachtet wird hierfür zunächst die Bewegung eines freien Elektrons im periodischen Potential des Festkörpers unter Einfluss eines äußeren elektrischen Feldes E_L ¹¹. Durch die Annahme einer effektiven Elektronenmasse m_e^* wird der Wechselwirkung des Elektrons mit dem Festkörper Rechnung getragen. Die Dämpfung der Elektronenbewegung durch Stöße mit dem Gitter wird durch die phänomenologische Größe der Stoßzeit τ_e berücksichtigt. Dieser Fall kann durch die Wellengleichung bei Anwesenheit eines äußeren Stroms j ,

$$\nabla^2 E_L + \frac{\omega^2}{c^2} \left(1 + \frac{i}{\omega \epsilon_0} \sigma(\omega) \right) E_L = 0, \quad (2.24)$$

beschrieben werden [75], wobei $\sigma(\omega)$ die frequenzabhängige Leitfähigkeit in der Form

$$\sigma(\omega) = \frac{\sigma_0}{1 - i\omega\tau_e} = \frac{n_0\tau_e e^2}{m_e^*(1 - i\omega\tau_e)} \quad (2.25)$$

ist. In Analogie zur homogenen Wellengleichung erhält man aus Gl. (2.24) und Gl. (2.25) die DRUDE-Formel der komplexen dielektrischen Funktion freier Elektronen,

$$\epsilon_e(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + \frac{i}{\tau_e})} = 1 + \tilde{\chi}_e \quad \text{mit} \quad \omega_p^2 = \frac{\rho e^2}{m_e^* \epsilon_0}. \quad (2.26)$$

Hierbei wurde die Plasmafrequenz des Elektronengases ω_p eingeführt, welche durch die Dichte der freien Elektronen ρ , die Elementarladung e und die effektive Elektronenmasse m_e^* bestimmt wird und die harmonische Schwingung der Elektronen gegenüber dem Gitter beschreibt. Für den Fall $\omega_p \geq \omega$ wird das Plasma für die elektromagnetische Welle undurchdringlich. Ab diesem Punkt tritt neben starker Absorption auch Reflektion am Plasma auf. Die dafür notwendige kritische Dichte $\rho_{\text{krit}} = \frac{m_e^* \epsilon_0}{e^2} \cdot \omega^2$ beträgt für Kieselglas bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ $\rho_{\text{krit}} = 1,48 \cdot 10^{21} \text{cm}^{-3}$. Die effektive Elektronenmasse des Leitungsbandes wird hierfür in Abschnitt 3.3 über die Zustandsdichte des freien Elektronengases auf $m_e^* = 0,85 \cdot m_e$ abgeschätzt. Durch die Suszeptibilität $\tilde{\chi}_e$ aufgrund freier Ladungsträger werden in Gl. (2.26) Intrabandübergänge durch Absorption von

¹¹Diesen phänomenologischen Betrachtungen liegt das DRUDE-Modell zur Beschreibung eines freien Elektronengases zugrunde, welches keine Einschränkung bezüglich der Art des Festkörpers macht und daher auch für freie Ladungsträger in Dielektrika angewendet werden kann.

Photonen aus dem Laserfeld und die Änderung der Brechzahl n durch die erhöhte Ladungsträgerdichte berücksichtigt. Die Verknüpfung der dielektrischen Funktion und der Ratengleichung (2.22) erfolgt über die Herleitung des Zusammenhangs zwischen der Absorption und der Extinktion κ . Dafür wird zunächst die komplexe dielektrische Funktion in Gl.(2.26) in Real- und Imaginärteil zerlegt,

$$\epsilon_e(\omega) = 1 - \frac{\omega_p^2 \tau_e^2}{1 + \omega^2 \tau_e^2} + i \frac{\omega_p^2 \tau_e}{\omega(1 + \omega^2 \tau_e^2)} = \epsilon_e'(\omega) + i\epsilon_e''(\omega) , \quad (2.27)$$

wodurch der Brechungsindex n_e und der Extinktionskoeffizient κ_e berechnet werden können. Es gilt für den komplexen Brechungsindex

$$\hat{n} = n + i\kappa = \sqrt{\epsilon(\omega)} = \sqrt{\epsilon'(\omega) + i\epsilon''(\omega)} , \quad (2.28)$$

womit sich

$$n^2 = \frac{1}{2} \left(\sqrt{\epsilon'^2 + \epsilon''^2} + \epsilon' \right) \quad \text{und} \quad \kappa^2 = \frac{1}{2} \left(\sqrt{\epsilon'^2 + \epsilon''^2} - \epsilon' \right) \quad (2.29)$$

und die inversen Zusammenhänge

$$\epsilon' = n^2 - \kappa^2 \quad \text{und} \quad \epsilon'' = 2n\kappa \quad (2.30)$$

ergeben. Der Brechungsindex n bestimmt die Phasengeschwindigkeit $v_{\text{ph}} = c/n$ der elektromagnetischen Welle im Medium und der Extinktionskoeffizient κ beschreibt deren Absorption. Die dadurch bedingte Abnahme der Intensität im Laserfeld kann mit Hilfe des LAMBERT-BEERSchen-Gesetzes,

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I = -2 \frac{\omega_0}{c} \kappa I, \quad (2.31)$$

beschrieben werden. Die absorbierte Energie wird zum einen zur Photoionisation (Interbandübergang) und zum anderen zur sequentiellen 1-Photonen-Absorption (Intrabandabsorption) benötigt. Letztere ist in der aus dem DRUDE-Modell resultierenden dielektrischen Funktion bereits berücksichtigt. Der zusätzliche Beitrag zur Absorption ist intensitätsabhängig und damit für ultrakurze Laserpulse auch zeitabhängig. Für die Überwindung der effektiven Bandlücke $\tilde{\Delta}$ ergibt sich

$$\frac{dI}{dz} = -\tilde{\Delta} \frac{d\rho}{dt} = -2 \frac{\omega_0}{c} \kappa_{\text{pi}} I . \quad (2.32)$$

Für den Extinktionskoeffizienten erhält man mit Gl. (2.22) und der Näherung $n \approx n_0$

$$\kappa_{\text{pi}} = \frac{1}{2} \frac{\tilde{\Delta} c \dot{\rho}_{\text{pi}}}{\omega_0 I} \quad (2.33)$$

Zusätzlich zum optischen KERR-Effekt (Gl. (2.17)) ist die nichtlineare Photoionisation ein weiterer zeitabhängiger Materialwechselwirkungsprozess, der aufgrund der Absorption den zeitlichen Verlauf des Laserpulses modifiziert und gleichzeitig auch zur zeitlichen Veränderung der Elektronendichte beiträgt.

2.4.2 Das MRE-Modell der Kaskadenionisation

Wie anfangs bereits erwähnt, stellt das DRUDE-Modell der nichtlinearen Ionisation den einfachsten Ansatz zur Beschreibung der zeitlichen Änderung der Elektronendichte aufgrund von nichtlinearer Photoionisation, Stoßionisation und Plasmarekombination dar. Die Ratengleichung (2.22) wurde für Laserpulse im Nanosekundenbereich vorgeschlagen und verifiziert ([41, 71] und dortige Referenzen). Für Laserpulse im Bereich weniger Femtosekunden reicht diese Beschreibung der Kaskadenionisation jedoch nicht mehr aus, da die DRUDE-Stoßzeit τ_e für die meisten Festkörper im Bereich weniger fs liegt [71] und damit die Zeit, die ein Elektron benötigt, um eine ausreichend hohe kinetische Energie für eine Stoßionisation aufzubauen, nicht mehr vernachlässigt werden kann. Da das DRUDE-Modell diese Zeitabhängigkeit nicht mit berücksichtigt und die Stoßionisationsrate proportional zur Dichte der gesamten Elektronen ist, wird der Beitrag der Stoßionisation für ultrakurze Laserpulse überschätzt [41, 42]. Eine bessere Beschreibung der Zeitabhängigkeit der Stoßionisation auf der Zeitskala ultrakurzer Laserpulse ist durch eine sogenannte kinetische Modellierung möglich [76]. Zusätzlich können dabei in den numerischen Simulationen Relaxationsprozesse, wie Elektron-Elektron-Streuung und Elektron-Phonon-Streuung, mit berücksichtigt werden. Allerdings ist der numerische Aufwand zur Berechnung der zeitlichen Änderung der Elektronendichte um Größenordnungen höher als beim Lösen der einzelnen Differentialgleichung (2.22) des DRUDE-Modells.

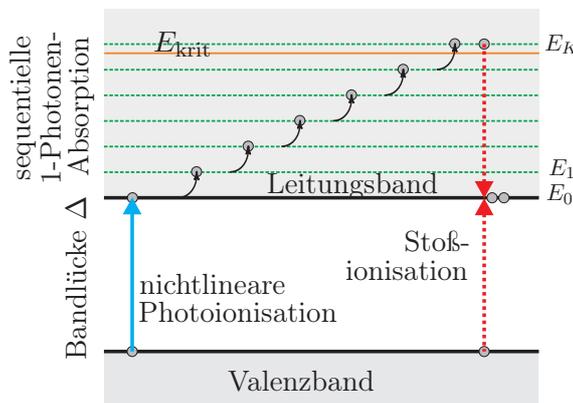


Abbildung 2.3: Schematische Darstellung der Erzeugung freier Elektronen und der sequentiellen 1-Photonen-Absorption nach dem MRE-Modell für den Fall $K = 6$. Ein Elektron geht durch nichtlineare Photoionisation vom Valenz- ins Leitungsband über. Dort kann es vom untersten Niveau E_0 mittels sequentieller 1-Photonenabsorption in die höheren Energieniveaus aufsteigen und beim Überschreiten von E_{krit} mittels Stoßionisation ein zweites freies Elektron erzeugen.

Einen guten Kompromiss stellt die Verwendung des von Rethfeld vorgeschlagenen *Multiple Rate Equation Model* (MRE-Modell) [41, 42] dar, für das von Rethfeld die gute Übereinstimmung der berechneten Elektronendichten mit dem kinetischen Ansatz gezeigt wurde. Das MRE-Modell beschränkt sich auf die Erweiterung des DRUDE-Modells durch die Berücksichtigung des primären Effekts der Intrabandabsorption und der damit verbundenen Möglichkeit, die Dichte der Elektronen mit ausreichend hoher Energie für Stoßionisation berechnen zu können. Die zeitliche Änderung der Elektronendichte im Leitungsband wird dabei mit Hilfe von *virtuellen* Energieniveaus beschrieben, welche den energetischen Abstand $\hbar\omega$ haben. Das niedrigste Energieniveau E_0 entspricht der Unterkante des Leitungsbandes. In diesem sammeln sich die Elektronen, die durch nichtlineare Photoionisation vom Valenzband ins Leitungsband übergehen. Durch sequentielle 1-Photonen-Absorption mit der Wahrscheinlichkeit W_{1pt} steigen die Elektronen in höhere Energieniveaus auf und können beim Erreichen der kritischen Energie für Stoßionisation E_{krit} mit der Wahrscheinlichkeit W_{st} ein weiteres Elektron durch Stoßionisation aus dem Valenzband ins Leitungsband heben. Anschließend befinden sich beide Elektronen im Energieniveau E_0 und der Kreislauf kann erneut beginnen. Das K -te Energieniveau steht dabei stellvertretend für alle höheren Energieniveaus, welche durch Absorption weiterer Photonen erreicht werden können [41]. Wenn ein Elektron mit einer Energie $E > E_{krit}$ mit einem Elektron aus dem Valenzband stößt, sollen sich anschließend beide im untersten Energieniveau E_0 befinden und die verbleibende Energiedifferenz an das Gitter abgegeben worden sein¹². In Abb. 2.3 ist dieser Prozess schematisch für den Fall $K = 6$ dargestellt.

Für den nichtstationären Fall erfolgt die Berechnung der Elektronendichten ρ_k in den Energieniveaus $E_k = k \cdot \hbar\omega$ durch einen Satz $K + 1$ gekoppelter linearer Differentialgleichungen, wobei K die Anzahl der absorbierten Photonen zum Erreichen von $E_K \geq E_{krit}$ ist. Gegenüber dem ursprünglich von Rethfeld [41, 42] vorgeschlagenen MRE-Modell erfolgt an dieser Stelle eine Erweiterung um die in Gl. (2.22) enthaltene Abklingzeit τ_{rek} des Elektronen-Loch-Plasmas. Damit ergibt sich

$$\begin{aligned}
\dot{\rho}_0 &= \dot{\rho}_{pi} + 2W_{st} \cdot \rho_K - W_{1pt} \cdot \rho_0 - \rho_0/\tau_{rek} \\
\dot{\rho}_1 &= W_{1pt} \cdot \rho_0 - W_{1pt} \cdot \rho_1 - \rho_1/\tau_{rek} \\
&\vdots \\
\dot{\rho}_{K-1} &= W_{1pt} \cdot \rho_{K-2} - W_{1pt} \cdot \rho_{K-1} - \rho_{K-1}/\tau_{rek} \\
\dot{\rho}_K &= W_{1pt} \cdot \rho_{K-1} - W_{st} \cdot \rho_K - \rho_K/\tau_{rek} .
\end{aligned} \tag{2.34}$$

Die Summation über alle Energieniveaus ergibt eine gegenüber der DRUDE-Gleichung (2.22)

¹²Die Annahme einer Aufteilung der Energiedifferenz zu gleichen Teilen auf beide Elektronen wäre willkürlich und die Berücksichtigung einer Verteilungsfunktion ist zu aufwendig und würde den Nutzen des MRE-Modells zunichte machen [77].

abgewandelte Ratengleichung der Form

$$\frac{d\rho}{dt} = \dot{\rho}_{\text{pi}} + W_{\text{st}} \cdot \rho_K - \frac{\rho}{\tau_{\text{rek}}}, \quad (2.35)$$

welche die veränderte zeitliche Entwicklung der Elektronendichte beschreibt. Aus der Summe der Dichten ρ_k aller Energieniveaus ergibt sich die Gesamtelektronendichte ρ im Leitungsband. Die dielektrische Funktion nach Gl. (??) behält weiterhin ihre Gültigkeit, da die Grundannahmen ihrer Ableitung unverändert bleiben und lediglich eine veränderte Gesamtelektronendichte den Berechnungen zugrunde gelegt wird. Die zur Lösung der Differentialgleichungen (2.34) und (2.35) benötigte Ionisationsrate $\dot{\rho}_{\text{pi}}$ und die kritische Energie E_{krit} für Stoßionisation, sowie die Wahrscheinlichkeiten W_{1pt} werden in den nachfolgenden Abschnitten 2.4.3 und 3.3 berechnet.

Die Wahrscheinlichkeit für Stoßionisation W_{st} kann für kleine Energiedifferenzen $E - E_{\text{krit}}$ mit dem von Keldysh abgeleiteten Ausdruck

$$W_{\text{st}} = P \cdot \left(\frac{E - E_{\text{krit}}}{E_{\text{krit}}} \right)^2 \quad (2.36)$$

abgeschätzt werden [76, 78]. Dabei sind E die kinetische Energie eines freien Elektrons und E_{krit} die kritische Energie für Stoßionisation. Für den Parameter P werden für Kieselglas in der Literatur bisher Werte in zwei verschiedenen Größenordnungen verwendet. Zum einen $P = 1,3\text{fs}^{-1}$ und $P = 1,5\text{fs}^{-1}$ [34, 37, 38, 79] und zum anderen $P = 21,2\text{fs}^{-1}$ [76]. Die ersten beiden Werte wurden, u.a. im Rahmen von Monte-Carlo-Simulationen, unter der Annahme kleiner Energiedifferenzen $E - E_{\text{krit}}$ abgeleitet. Der letzte Wert wurde hingegen anhand einer kinetischen Modellierung ermittelt, welche zunächst auf die Näherung kleiner Energiedifferenzen verzichtet und auch nicht von einer Gleichverteilung der Restenergie zwischen den Stoßpartnern ausgeht. Aus diesem weitaus allgemeineren Fall der Beschreibung der Stoßionisation wurde dann von Kaiser *et al.* der Parameter P für den Spezialfall kleiner Energiedifferenzen ermittelt, welcher im Rahmen dieser Arbeit verwendet wird. Bei der Modellierung der sequentiellen 1-Photonen-Absorption mit dem MRE-Modell wird die Energie der Elektronen auf dem untersten Niveau im Leitungsband mit $E_0 \approx 0$ angenommen. Daher ergibt sich für die kinetische Energie der Elektronen vor einem Stoß $E_K = K \cdot \hbar\omega$, wobei K Photonen absorbiert wurden. Die kritische Energie E_{krit} für Stoßionisation wird von der Größe der Bandlücke Δ , der zeitlich gemittelten Oszillationsenergie der Elektronen im Laserfeld $\langle E_{\text{oszi}} \rangle$ und der Forderung nach Impulserhaltung bestimmt. Es gilt

$$E_{\text{krit}} = \left(1 + \frac{\mu}{m_{\text{vb}}} \right) \cdot \tilde{\Delta} \quad \text{mit} \quad \tilde{\Delta} = \Delta + \langle E_{\text{oszi}} \rangle \quad (2.37)$$

mit der reduzierten Masse $\mu^{-1} = m_{\text{vb}}^{-1} + m_{\text{lb}}^{-1}$, welche durch die Elektronenmassen m_{vb} und m_{lb} im Valenz- und Leitungsband gegeben sind. Die Wahl des Bandstrukturmodells bestimmt

maßgeblich die mittlere Oszillationsenergie $\langle E_{\text{oszi}} \rangle$ eines Elektrons während einer Periode des elektrischen Feldes und wird daher gemeinsam mit der Photoionisation in Abschnitt 2.4.3 diskutiert. Zur Berechnung der kritischen Energie muss auch die reduzierte Masse μ , das heißt das Massenverhältnis von Elektronen im Valenzband zu Elektronen im Leitungsband, bekannt sein. Nimmt man $m_{\text{vb}} = m_{\text{lb}}$ an, so ergibt sich der Vorfaktor in Gl. (2.37) zu $3/2$ [41, 42, 76, 78]. Berechnungen der effektiven Elektronenmassen im Rahmen der Dichte-Funktional-Theorie (DFT) für $\alpha\text{-SiO}_2$ legen allerdings den Schluss nahe, dass die Elektronenmasse im obersten Valenzband eine Größenordnung oder mehr höher als im untersten Leitungsband ist [80]. Damit ergibt sich $E_{\text{krit}} \approx \tilde{\Delta}$, was für alle nachfolgenden Berechnungen angenommen wird. Durch die Kenntnis von E_{krit} ist es möglich, die Anzahl der Photonen K bei gegebener Photonenenergie $\hbar\omega$, welche durch 1-Photonen-Absorption die kinetische Energie der Elektronen auf $E > E_{\text{krit}}$ erhöhen, zu berechnen. Da der Wert der effektiven Bandlücke $\tilde{\Delta}$ feldstärkenabhängig ist, trifft dies auch auf die Stoßionisationswahrscheinlichkeit W_{st} und die kritische Energie E_{krit} zu. Letzteres bedingt wiederum eine Feldstärkenabhängigkeit der Anzahl der zu absorbierenden Photonen.

Abschließend bleibt anzumerken, dass die Wahl der reduzierten Masse μ auch die zeitliche Änderung der Elektronendichte beeinflusst, da durch sie bestimmt wird, wie viele Photonen ein Elektron absorbieren muss, um $E > E_{\text{krit}}$ zu erreichen und damit vorgegeben wird, wie lange ein Elektron durchschnittlich benötigt, um ausreichend Energie für Stoßionisation anzusammeln. Bei der Annahme identischer Massen würde sich die Anzahl der benötigten Photonen um den Faktor $\frac{3}{2}$ erhöhen. Im nichtstationären Fall verringert sich damit der prozentuale Anteil der durch Stoßionisation erzeugten Elektronen. Im stationären Fall, das heißt für Pulsdauern im Pikosekundenbereich oder zeitlich konstante Intensität verschwindet dieser Unterschied, da quasi alle Elektronen durch Stoßionisation erzeugt werden [42].

2.4.3 Nichtlineare Photoionisation

Um ein Elektron durch Photoionisation aus dem Valenzband in das Leitungsband zu überführen, ist bei Materialien mit großer Bandlücke Δ und Licht im sichtbaren Bereich die Absorption von einzelnen Photonen nicht ausreichend. Für den Fall der nichtlinearen Photoionisation mit $\hbar\omega \ll \Delta$ hat Keldysh 1965 [30] eine Theorie zur Berechnung der entsprechenden Ionisationsraten $\dot{\rho}_{\text{pi}}$ vorgestellt (siehe Anhang B). Diese vereint die Berechnung der beiden Ionisationsregime – Tunnelionisation und Multiphotonenabsorption – miteinander. Um den Übergang zwischen beiden Regimen zu kennzeichnen und um die beiden Grenzfälle, in denen einer der beiden Prozesse überwiegt, zu unterscheiden, wurde der sogenannte KELDYSH-Parameter

$$\gamma_k = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{m_{\text{el}}^* c n_0 \epsilon_0 \Delta}{2I}} \quad (2.38)$$

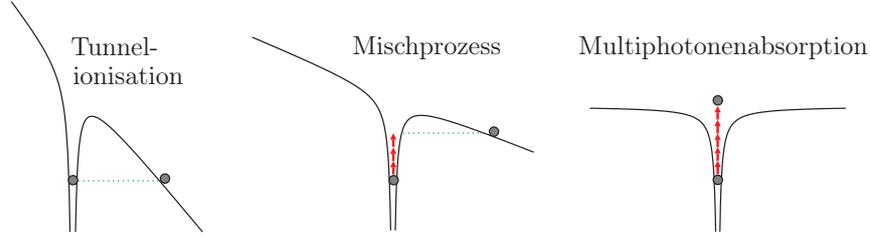


Abbildung 2.4: Schematische Darstellung zur nichtlinearen Photoionisation mit ihren zwei Grenzfällen: **links** Tunnelionisation für $\gamma_k \ll 1$ und **rechts** Multiphotonenionisation für $\gamma_k \gg 1$. **Mitte:** Mischprozess von Multiphotonenabsorption und Tunnelionisation bei $\gamma_K \approx 1$.

definiert. Dabei sind m_{el}^* die reduzierte effektive Elektronen-Loch-Masse, Δ die Bandlücke, $I = \frac{1}{2}n_0\epsilon_0c|E_L|^2$ die Intensität des Laserfeldes bei der Kreisfrequenz ω und e gibt die Elementarladung an. Für die Betrachtung der Grenzfälle wird meist in $\gamma_k \ll 1$ (kleine Frequenzen und große Feldstärken) für Feld- bzw. Tunnelionisation und in $\gamma_k \gg 1$ (hohe Frequenzen und weniger starke Felder) für Multiphotonenabsorption unterschieden. Bei ersterer wird durch das Laserfeld das Coulombpotential stark deformiert und das Elektron kann die verbleibende Potentialbarriere durchtunneln. Bei der Multiphotonenabsorption werden gleichzeitig mehrere Photonen durch das Elektron absorbiert. Ist der KELDYSH-Parameter $\gamma_K \approx 1$, so wird im Allgemeinen von einer Mischung beider Prozesse ausgegangen. Alle drei Fälle sind in Abb. 2.4 schematisch dargestellt.

Eine der Grundannahmen in den Ableitungen von Keldysh ist die Modellierung der Bandstruktur durch die sogenannte KANE-Typ Energie-Impuls-Relation¹³

$$E_{\text{kane}}(\mathbf{p}) = \Delta \sqrt{1 + \frac{p^2}{m_{el}^* \Delta}} \quad (2.39)$$

und der Näherung der Bandstruktur durch jeweils ein Valenz- und ein Leitungsband mit direkter Bandlücke. Dies ist eine sehr einfache Annahme für eine Bandstruktur und in der Nähe des Γ -Punktes eine vielfach bewerte Näherung. Da sie aber nur eine leichte Energieabhängigkeit der Elektronenmasse berücksichtigt, versagt diese Näherung für steigende Elektronenenergien und vor allem am Rand der ersten Brillouin-Zone völlig. Die kürzlich durch Gruzdev [31, 32] eingeführte Erweiterung zum KELDYSH-Modell setzt an diese Stelle eine kosinusförmige Energie-Impuls-Beziehung der Elektronen, was für Materialien mit einer großen Bandlücke eine bessere Näherung der Bandstruktur in der ersten Brillouin-Zone darstellt. Für ein isotropes Material mit den Gitterkonstanten $d = d_x = d_y = d_z$ und den Quasi-Impulsen p_x , p_y und p_z ergibt sich

$$E_{\text{cos}}(\mathbf{p}) = \Delta \left[1 + \frac{\hbar^2}{m_{el}^* \Delta d^2} \left(1 - \cos\left(\frac{d}{\hbar} p_x\right) \cos\left(\frac{d}{\hbar} p_y\right) \cos\left(\frac{d}{\hbar} p_z\right) \right) \right]. \quad (2.40)$$

¹³Diese stellt bereits eine Verbesserung gegenüber einer parabolischen Bandstruktur dar, wie sie in der Literatur auch häufig verwendet wird (siehe dazu Zitate in [31]) und welche aufgrund der konstanten Bandkrümmung eine konstante Elektronenmasse zur Folge hat.

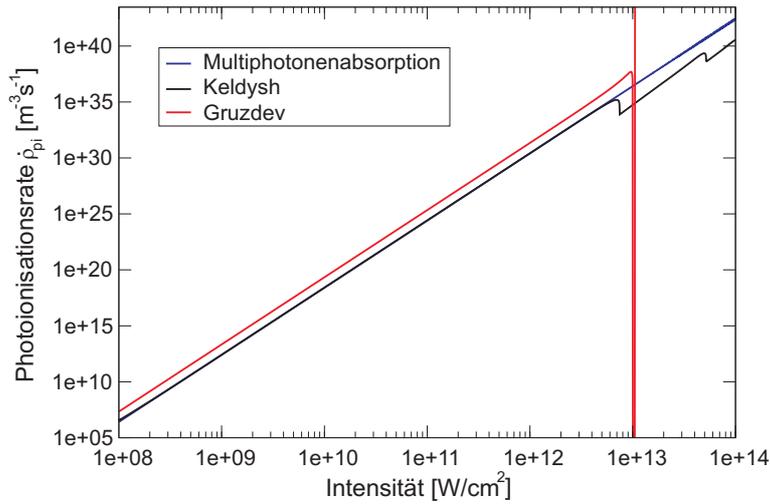


Abbildung 2.5: Graphische Darstellung der Photoionisationsraten berechnet mit den Modellen nach Keldysh (schwarze Kurve) und nach Gruzdev (rote Kurve) mit dem selben Satz Materialparameter (Abschnitt 3.3) für $\lambda_0 = 800\text{nm}$. Zusätzlich ist die Ionisationsrate für reine Multiphotonenabsorption mit dem grundlegenden Verlauf $\dot{\rho}_{pi} = \sigma_K \cdot I^K$ für $K = 6$ mit eingezeichnet (blau). Die Erläuterungen zum spezifischen Verlauf finden sich im Text.

Die Form der Energie-Impuls-Beziehung in Gl. (2.40) resultiert aus Berechnungen der Bandstruktur, bei welcher nur Wechselwirkungen der nächsten Nachbarn (*tight binding*) berücksichtigt werden. Nach wie vor wird die Bandstruktur durch nur ein Valenz- und ein Leitungsband mit direkter Bandlücke genähert. Die komplette mathematische Beschreibung beider Modelle findet sich in Anhang B. Die Wahl der nach Gl. (2.40) modifizierten Energie-Impuls-Relation bringt erstaunlich starke Veränderungen der Ionisationsrate¹⁴ mit sich, wie man in Abb. 2.5 sehen kann. Die Photoionisationsrate nach Keldysh (schwarze Kurve) zeigt die typischen Stufen im Verlauf, wenn aufgrund der Vergrößerung der effektiven Bandlücke bei zunehmender Intensität die Ordnung des Absorptionsprozesses steigt. Durch die Wahl der hyperbolischen Bandstruktur treten bei Keldysh mehrere solcher Stufen auf, da die effektive Bandlücke für steigende Intensitäten sehr groß wird (siehe Abb. 2.6). Da die Multiphotonenabsorption mit steigender Ordnung unwahrscheinlicher wird, sinkt an den Intensitäten der Ordnungswechsel die Photoionisationsrate abrupt ab und steigt dann wieder mit einer I^K -Abhängigkeit an. Bei der mit dem Modell von Gruzdev berechneten Photoionisationsrate (rote Kurve) tritt mit den gewählten Materialparametern bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ kein solcher Ordnungswechsel auf. Ursächlich hierfür ist die geringe Variation der effektiven Bandlücke mit der Intensität des äußeren Feldes, welche in Abb. 2.6 graphisch dargestellt ist, und das zufällige Zusammenfallen des Ordnungswechsels mit der nachfolgend diskutierten 1. Polstelle der Ionisationsrate für die gewählten Materialparameter.

Der markanteste und wichtigste Unterschied der Ionisationsraten von Keldysh und Gruzdev besteht im Auftreten von Polstellen¹⁵, wenn die elektrische Feldstärke die Werte $E_L = \frac{\hbar\omega}{ed} \cdot \xi_N$ erreicht, wobei ξ_N die N-te Wurzel der Bessel-Funktion J_0 angibt. In Abb. 2.5 ist die Ionisati-

¹⁴Analog zur Vorgehensweise von Keldysh gelten die Ableitungen für monochromatisches Licht und die Ionisationsrate wird über eine Schwingungsperiode des elektrischen Feldes E_L gemittelt.

¹⁵Die Ausbildung der Polstellen resultiert aus der Näherung der Energie-Impuls-Relation durch Gl. (2.40). Werden durch eine realistischere Bandstruktur Terme höherer Ordnung mit berücksichtigt, bilden sich Minima und Maxima, bei welchen die Ionisationsrate erst um mehrere Größenordnungen ab und dann wieder zu nimmt [32]. Deren Lage stimmt mit den Positionen der Polstellen überein.

onsrate bis zur ersten Polstelle mit $\xi_1 = 2,4048256$ aufgetragen. Dies entspricht einer Feldstärke von $E_L = 7,225 \cdot 10^9 \frac{\text{V}}{\text{m}}$ und damit einer Intensität von $I_{\text{th}} = 1,005 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. Da diese Intensität mit den experimentell bestimmten Schwellwerten zur Erzeugung eines optischen Durchbruchs in Kieselglas [32, 65, 81] korrespondiert und dies auch für weitere Materialien zutrifft, schlägt Gruzdev vor, die Schwellintensität I_{th} generell über die Lage der ersten Polstelle zu bestimmen. Dieser Vorschlag wird im Rahmen dieser Arbeit zur Orientierung und Einordnung verschiedener Ergebnisse aus der Literatur verwendet. Des Weiteren weist er darauf hin, dass durch die Materialmodifikationen das Material für Intensitäten größer als an der 1. Polstelle mit veränderten Parametern beschrieben werden muss, weshalb das Modell nach Gruzdev hier nur mit Intensitäten bis zur ersten Polstelle verwendet wird. Die sprunghaft ansteigende Erzeugung freier Elektronen an der ersten Polstelle erklärt Gruzdev mit der sich dort einstellenden gleichen mittleren Wahrscheinlichkeit für alle Valenzelektronen durch Multiphotonenabsorption vom Valenz- ins Leitungsband überzugehen, da im Mittel alle Elektronen die komplette Brillouin-Zone während einer Schwingungsperiode des äußeren Feldes durchlaufen. Die Ionisationsrate an der Polstelle wird auf natürliche Weise nach oben durch die maximal vorhandene Anzahl von Valenzelektronen $\rho_{\text{max}} = 3,2 \cdot 10^{23} \text{cm}^{-3}$ beschränkt¹⁶. Weiterführende Betrachtungen zum Verhalten der Ionisationsrate an der 1. Polstelle, sowie Erläuterungen zur unterschiedlichen Stärke der beiden Ionisationsraten bei gleicher Parameterwahl finden sich in Anhang B.

Die Untersuchungen von Gruzdev [31] zeigen auch, dass bis zum Auftreten der ersten Polstelle die Photoionisation allein durch den Prozess der Multiphotonenabsorption (Abb. 2.4 (rechts)) bestimmt wird. Zu ähnlichen Ergebnissen sind auch Schaffer *et al.* [65] und Wu *et al.* [70] unter Verwendung des KELDYSH-Modells für Intensitäten bis $3 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ gekommen. Ein Vergleich der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Ionisationsraten mit reiner Multiphotonenabsorption mit dem grundlegenden Verlauf $\dot{\rho}_{\text{pi}} = \sigma_K \cdot I^K$ für $K = 6$ ist mit in Abb. 2.5 dargestellt. Der Multiphotonenabsorptionsquerschnitt σ_K wurde dabei für die beste Approximation der Photoionisationsraten nach dem KELDYSH-Modell gewählt und beträgt $\sigma_{6,Ke} = 1,2 \cdot 10^{12} \text{cm}^{-3} \text{ps}^{-1} (\text{cm}^2/\text{TW})^6$. Aus Experimenten bei einer Wellenlänge von 780nm wurden zwei Werte für σ_K ermittelt, die aber mehrere Größenordnungen auseinander liegen und auch von dem hier angegebenen Wert stark abweichen. Eine mögliche Ursache hierfür könnte die in der Auswertung verwendete Ratengleichung sein, bei welcher die Stoßionisation proportional zur Gesamtelektronendichte ist und diese für Pulsdauern im Femtosekundenbereich damit stark überschätzt wird (siehe Abschnitt 2.4.2). Die Rückrechnungen aus Messungen der Schwellfluenz für einen optischen Durchbruch von Lenzner *et al.* 1998 ergaben den Wert $\sigma_{6,Le} = 6 \cdot 10^{8 \pm 0,9} \text{cm}^{-3} \text{ps}^{-1} (\text{cm}^2/\text{TW})^6$ [69]. Im darauffolgenden Jahr berechneten Li *et al.* mit ei-

¹⁶Da Glas ein amorpher Festkörper ist, ist die Zahl der Valenzelektronen, das heißt der Elektronen, die für einen Übergang vom Valenz- ins Leitungsband zur Verfügung stehen, nicht bekannt. Im Rahmen dieser Arbeit wurde daher eine Abschätzung der oberen Grenze mit der Anzahl der Valenzelektronen der Einzelatome getroffen. Damit ergeben sich 16 pro Formeleinheit SiO_2 . Aber auch die Annahme einfacher Ionisierung ändert nichts an der qualitativen Diskussion der entstehen Plasmadichten.

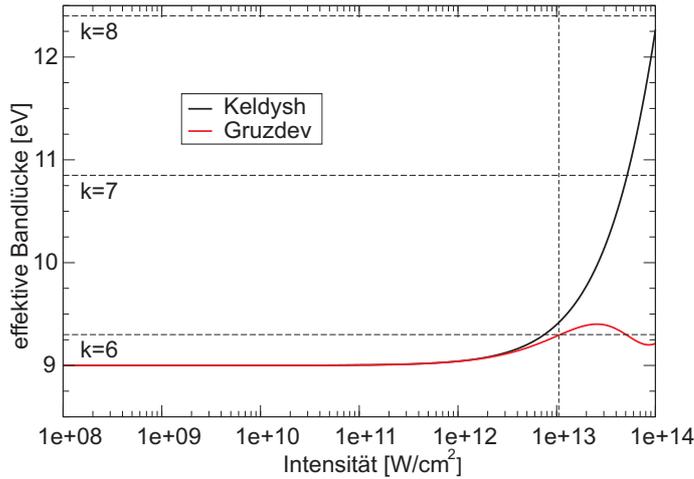


Abbildung 2.6: Graphische Darstellung der effektiven Bandlücke $\tilde{\Delta}$ für das KELDYSH-Modell (schwarz) und das erweiterte Modell nach Gruzdev (rot). Zusätzlich sind die virtuellen Energieniveaus des MRE-Modells eingezeichnet, welche aufgrund der getroffenen Näherungen (siehe Text) sowohl den Ordnungswechsel in der Photoionisation als auch für die Stoßionisation anzeigen. Des Weiteren ist die Lage der 1. Polstelle der Photoionisationsrate nach Gruzdev mit eingezeichnet.

nem erweiterten Modell anhand der selben Messwerte einen wesentlich kleineren Wirkungsquerschnitt von $\sigma_{6,Li} = 3 \cdot 10^4 \text{ cm}^{-3} \text{ ps}^{-1} (\text{cm}^2/\text{TW})^6$ [36]. Bei beiden Messungen¹⁷ handelt es sich um Ablationsmessungen, das heißt, die Zerstörung des Materials erfolgte an der Oberfläche. Es wird im Allgemeinen angenommen, dass die nichtlineare Photoionisationsraten an der Oberfläche und im Material identisch ist, da die Oberflächenschicht, in der die Bandstruktur verändert ist, nur wenige Atomlagen beträgt und damit auch bei Ablation die Elektronen im Wesentlichen im Material ionisiert werden [82]. Daher wird im nachfolgenden Abschnitt auf diese experimentellen Daten zur Abschätzung der Materialparameter für die numerischen Simulationen zurückgeriffen.

Aus den zwei hier betrachteten Modellen für die Bandstruktur (Gl. (2.39) und Gl. (2.40)) resultieren zwei sehr verschiedene Formen der effektiven Bandlücke $\tilde{\Delta}$, welche in Abb. 2.6 in Abhängigkeit von der Intensität dargestellt sind. Für den Fall von reiner Multiphotonenabsorption ($\gamma_k \gg 1$) ist die zeitlich gemittelte Oszillationsenergie während einer Schwingungsperiode des äußeren Feldes mit der Feldstärke E_L und der Frequenz ω für den Fall der KANE-Typ Bandstruktur bei Keldysh [30] durch

$$\langle E_{oszi} \rangle = \frac{e^2}{4\mu\omega^2} \cdot |E_L|^2 \quad (2.41)$$

gegeben. Die effektive Bandlücke folgt nach Gl. (2.37) durch $\tilde{\Delta} = \Delta + \langle E_{oszi} \rangle$. Mit der von Gruzdev [31, 32] vorgeschlagen kosinusförmigen Energie-Impuls-Relation ergibt sich eine effektive Bandlücke der Form

$$\tilde{\Delta} = \Delta + \frac{\hbar^2}{m_{el}^* d^2} \cdot \left[1 - J_0 \left(\frac{eE_L d}{\hbar\omega} \right) \right]. \quad (2.42)$$

Dabei ist J_0 die Bessel-Funktion 1. Art und 0. Ordnung. Für Kieselglas werden für die Bandlücke

¹⁷Li *et al.* haben zusätzlich auch eigene Messungen durchgeführt, um die Abklingzeit des Plasmas, welche für ihr erweitertes Modell benötigt wird, zu ermitteln.

$\Delta = 9\text{eV}$ [41, 42, 63, 76] angenommen. In Abschnitt 3.3 werden die effektive Gitterkonstante auf $d = 5,159\text{\AA}$ und die reduzierte effektive Elektronen-Loch-Masse auf $m_{el}^* = m_e$ abgeschätzt. Die Photonenenergie bei der Zentralwellenlänge des Laserpulses $\lambda_0 = 800\text{nm}$ beträgt $\hbar\omega = 1,55\text{eV}$. Zur Veranschaulichung der Ordnungswechsel bei der Multiphotonenionisation und der Stoßionisation sind in Abb. 2.6 die (virtuellen) Energieniveaus für $\hbar\omega = 1,55\text{eV}$ des MRE-Modells mit eingezeichnet. Aufgrund der getroffenen Näherungen bzgl. der kritischen Energie für Stoßionisation (siehe Abschnitt 2.4.2) finden beide Arten des Ordnungswechsels bei gleichen Energien statt. Des Weiteren ist zur besseren Orientierung die Lage der 1. Polstelle der Photoionisationsrate nach Gruzdev mit eingezeichnet.

2.5 Permanente Materialmodifikationen in Kieselglas

Bei Kieselglas treten zwei verschiedene Arten von Modifikationen im Material auf [62, 63]. Typ I ist eine reversible lokale Brechungsindexerhöhung, welche durch Ausheizen mit Temperaturen über 900°C behoben werden kann. Die Brechungsindexerhöhung kann durch eine lokale Erhöhung der optischen Dichte des Materials erklärt werden, welche durch das plötzliche Aufheizen durch (ultrakurze) Laserpulse gefolgt von schneller Abkühlung¹⁸ und einer damit verbundenen Veränderung der chemischen Bindungen im Material entsteht [83]. Diese Art der Materialmodifikation wird zum Beispiel zum dreidimensionalen Schreiben von Wellenleiterarrays oder Bragg-Gittern verwendet [83–85]. Typ II ist eine permanente Materialmodifikation, die sich durch Ausheizen nicht beheben lässt und in deren unmittelbarer Umgebung das Material doppelbrechend wird. Sie wird meist als optischer Durchbruch (LIB - *Laser Induced Breakdown*) bezeichnet. Beide Prozesse werden in der Literatur einhellig als Schwellwertprozesse diskutiert, wobei unter gleichen experimentellen Bedingungen die Pulsenergie zum Erzeugen von LIB stets höher als bei einer Modifikation vom Typ I ist. Um eine Materialmodifikationen nachzuweisen gibt es zwei prinzipielle Herangehensweisen. Zum einen den passiven Nachweis, bei welchem das Material nach dem Beschuss mit Laserpulsen analysiert und aufgetretene Modifikationen den Prozessparametern (Pulsdauer, Pulsenergie, Anzahl der Pulse etc.) zugeordnet werden [35, 62, 63, 65]. Zum anderen kann man versuchen, während der Bestrahlung *in situ* Veränderungen zu registrieren. Diese Variante ist erprobt bei der Bestimmung von Oberflächenzerstörungsschwellen, wo das Plasma direkt detektiert und analysiert werden kann [36, 72]. Efimov *et al.* ist die Verwendung dieser Messmethode auch für Messungen im Material gelungen [66].

Bei den in der Literatur gefundenen Messungen zu LIB kann in drei Arten der Angabe des Schwellwertes unterschieden werden. Am einfachsten ist es, den Durchbruch mit der mittleren Laserleistung in Verbindung zu setzen [62, 63], da hierfür keine Charakterisierung der Laserpulse oder die Kenntnis der Fokuseometrie nötig ist. Durch Aberration der verwendeten optischen

¹⁸Die Abkühlung des Materials ist im Vergleich zur Abkühlung während des Herstellungsprozesses (mehrere Tage bis Wochen) von Kieselglas sehr kurz.

Komponenten und einen möglicherweise nicht transformlimitierten Laserpuls ist die Übertragbarkeit dieser Ergebnisse auf andere experimentelle Situationen schwierig. Deshalb kann die Angabe der Schwellfluenz hilfreicher sein, da die Fokusgeometrie zumindest näherungsweise berücksichtigt wird [35, 39, 40, 70]. Oftmals wird bei einer solchen Berechnung von einer idealen Abbildung und einer gemittelten Energieverteilung im Zentrum des AIRY-Scheibchens ausgegangen, weshalb die Aussagekraft dieser Werte auch kritisch beurteilt werden muss. Zudem wird bei einer solchen Abschätzung nur die lineare Fokussierung berücksichtigt, das heißt, die Fluenz im Fokus ist direkt proportional zur Pulsenergie und nichtlineare Propagationseffekte werden gänzlich vernachlässigt. Zuletzt gibt es noch die Variante, in welcher die Schwellintensität im Fokus bei einem optischen Durchbruch berechnet wird [23, 65, 66]. Hierfür ist es notwendig, die räumliche und zeitliche Intensitätsverteilung des Laserpulses im Fokus zu kennen. In [65, 66] wurde versucht, Aberration durch die Fokussierung so gering wie möglich zu halten und somit unter der Annahme idealer Fokussierung auf die maximal erreichte Intensität zurückrechnen zu können. Von Schaffer *et al.* ist 2001 der häufig zitierte Wert der Schwellintensität für LIB in Kieselglas unter Verwendung von 110fs-Laserpulsen bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ und einer Fokussierung mit $\text{NA} = 0,65$ zu $I_{\text{th}} = 3,2 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ bestimmt worden¹⁹. In wie weit sich dieses Ergebnis auf kürzer Pulsdauern übertragen lassen und was für eine Rolle die Wahl der Kieselglassorte spielt, darüber kann an dieser Stelle nur spekuliert werden. Es sei aber darauf hingewiesen, dass Said *et al.* [81] in Experimenten mit fünf auf verschiedene Arten hergestellten Kieselglassorten für Nanosekundenpulse gezeigt haben, dass die benötigten Pulsenergien bzw. die daraus berechneten Schwellintensitäten bei gleichen Versuchsbedingungen um bis zu einem Faktor vier auseinander liegen können.

Zusätzlich wird in manchen Veröffentlichungen versucht, aus den gemessenen Schwellfluenzen oder -intensitäten auf die damit im Material erreichte Plasmaelektronendichte zu schließen (z.B. in [65]), um eine Art kritische Dichte für den optischen Durchbruch zu ermitteln, da diese ein Maß für die in das Material eingebrachte Energie darstellt. Wie bereits in den vorangegangenen Abschnitten gezeigt wurde, hängen die Photoionisationsraten und der Anteil der durch Stoßionisation erzeugten Elektronen stark von den gewählten Modellen zur Beschreibung der möglichen Effekte und den dazu ausgesuchten Materialparametern ab.

Daher reichen die Angaben in der Literatur von $\rho_{\text{LIB}} \approx 10^{18} \text{cm}^{-3}$ [33], über $\rho_{\text{LIB}} \approx 10^{19} \text{cm}^{-3}$ [15, 34, 35, 37] bis hin zu zahlreichen Angaben, die den optischen Durchbruch mit der starken Absorption des Plasmas kurz vor Erreichen der kritischen Dichte $\rho_{\text{krit}} = 1,48 \cdot 10^{21} \text{cm}^{-3}$ gleichsetzen²⁰ [35–40]. Aufgrund der starken Abweichungen der Angaben zur Schwelldichte des

¹⁹Im Experiment erfolgte der Beschuss des Materials mit jeweils 3000 Laserpulsen. In wie weit die Schwellintensität für LIB unter dem Beschuss mit nur einem Laserpuls abweicht, wurde nicht bestimmt.

²⁰Durch eine solche Annahme wird die Schwelldichte für einen optischen Durchbruch automatisch wellenlängenabhängig. In den Experimenten in [65] wird aber lediglich eine Wellenlängenabhängigkeit der Schwellintensität beobachtet, was auf die unterschiedliche Photonenenergie und damit der verschiedenen Ordnung des Absorptionsprozesses zurückgeführt werden kann.

Elektronen-Loch-Plasmas für das Auftreten eines optischen Durchbruchs und dem zusätzlichen Umstand, dass nicht immer alle experimentellen Parameter vollständig angegeben sind, werden nachfolgend die Ergebnisse der numerischen Simulationen mit eigenen experimentellen Untersuchungen zur Fokussierung ultrakurzer Laserpulse in Kieselglas aus der Diplomarbeit [11] verglichen. Die REM-Aufnahmen und Pulsparameter der Experimente sind noch einmal in Anhang *F* zusammengefasst.

Es wird allgemein davon ausgegangen, dass Materialmodifikation in Kieselglas durch das Aufheizen des Gitters aufgrund von Stößen mit den angeregten Elektronen und daraus resultierenden Änderungen in den chemischen Bindungen entstehen [83]. Für Festkörper liegen typische Wechselwirkungszeiten hierfür im Bereich weniger Pikosekunden [15, 34, 38]. Werden Laserpulse mit Pulsdauern im Femtosekundenbereich eingesetzt, erfolgt die Materialmodifikation erst, nachdem der Laserpuls an diesem Ort bereits abgeklungen ist. Gleichzeitig ist aus Messungen die mittlere Rekombinationszeit des Elektronen-Loch-Plasmas, welche auch in der Ratengleichung (2.22) berücksichtigt wird, bekannt. Für Kieselglas sind Werte zwischen $\tau_{\text{rek}} = 150\text{fs}$ [72, 74] und $\tau_{\text{rek}} = 170\text{fs}$ [73] experimentell bestimmt worden. Eine mögliche Erklärung für den auf den ersten Blick auftretenden Widerspruch bezüglich der Zeitskalen dieser beiden Prozesse bieten Martin *et al.* an [74]. Parallel zu den Messungen der Rekombinationszeiten haben sie mit Monte Carlo Simulationen das Verhalten des Elektron-Loch-Plasmas nachgebildet. Durch die Annahme der Ausbildung von Exitonen (*self-trapped excitons* - STE's) knapp unterhalb der Bandkante, konnte das experimentell gefundene Verhalten am besten in den numerischen Simulationen reproduziert werden. Der Übergang vom Elektron-Loch-Plasma in solche STE's ist strahlend und entspricht der in den obigen Messungen beobachteten Plasmastrahlung. Beim Abregen der STE's geht die noch vorhandene Energie strahlungsfrei auf das Gitter über und kann es so aufheizen.

3 Methodische Entwicklungen und numerische Umsetzung

In Kapitel 2.2 wurde bereits die Vorgehensweise bei der Berechnung der linearen Propagation ultrakurzer Laserpulse erläutert. Für die speziell gewählte Aufteilung in die Behandlung des optischen Systems mit Methoden der geometrischen Optik und der Fokussierung mit wellenoptischen Methoden gibt es keine kommerziell erhältliche Software, die allen Aspekten der numerischen Berechnungen gerecht wird. Basierend auf den Ergebnissen der vorangegangenen Diplomarbeit [11] wurden alle notwendigen numerischen Berechnungsschritte programmiert. Dabei erfolgen alle geometrisch-optischen Berechnungen im Optikdesignprogramm ZEMAX [86]. Die lineare und nichtlineare wellenoptische Ausbreitung in die Fokusumgebung und die Überlagerung aller spektralen Komponenten wird anschließend mit eigens hierfür in den Programmiersprachen C++ und C# programmierter Software berechnet. Alle Parameter und deren (eventuelle) Abschätzungen für die numerischen Simulationen sind in Anhang C aufgeführt.

Die Schwierigkeiten bei der Wahl geeigneter Materialparameter für Kieselglas in den numerischen Simulationen zur Erzeugung freier Ladungsträger wurden bereits in Kapitel 2.4 bei der Vorstellung der jeweiligen Modelle offensichtlich. Im letzten Abschnitt dieses Kapitels wird daher versucht eine für alle verwendete Modelle konsistente Abschätzung der Materialparameter zu treffen. Nachfolgend ist in Abb. 3.1 die Kombination und Abfolge der Simulationsschritte für die Berechnung der Feldverteilungen in der Fokusumgebung im Material dargestellt, welche im Einzelnen in den nachfolgenden Abschnitten erläutert werden.

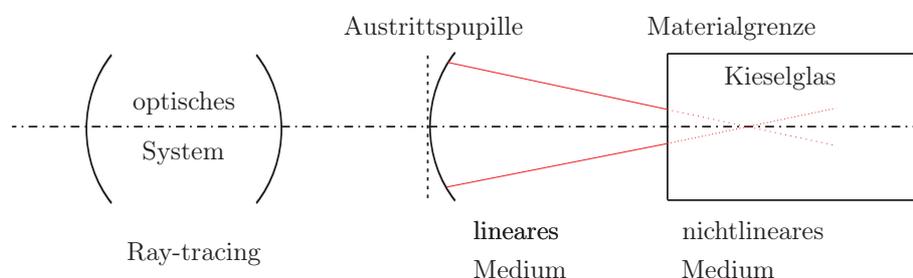


Abbildung 3.1: Schematische Darstellung der Kombination (v.l.n.r.) der einzelnen Simulationsschritte für die Berechnung der Feldverteilungen in der Fokusumgebung im Material. Alle Einflüsse des optischen Systems werden mit Ray-tracing zwischen Ein- und Austrittspupille berechnet. Anschließend erfolgt die lineare wellenoptische Propagation zwischen Austrittspupille und der Materialgrenze. Ab dieser beginnt die schrittweise nichtlineare Ausbreitung im Material unter Berücksichtigung eines räumlich variierenden Brechungsindex und Absorption.

3.1 Geometrische Optik-Berechnungen

Bei allen nachfolgend betrachteten optischen Systemen (siehe Kapitel 5) ist es ausreichend, die orts aufgelöste Spektralphase $\phi_{Ab}(\nu, p_x, p_y, z_a)$ in der Austrittspupille zu berechnen und die Amplitudenverteilung erst beim Übergang zur wellenoptischen Propagation zu berücksichtigen. Da alle spektralen Komponenten unabhängig von einander durch das optische System propagieren, kann die Spektralphase sehr einfach durch Ray-tracing gewonnen werden. Damit wird die absolute Phasenfront der jeweiligen spektralen Komponente auf der Referenzsphäre in der Austrittspupille berechnet. Kann zusätzlich Rotationssymmetrie angenommen werden, ist es ausreichend, die Spektralphase nur entlang einer Koordinatenachse in der Austrittspupille zu berechnen. Der absolute und der lineare Term in der TAYLOR-Entwicklung der Spektralphase haben keinen Einfluss auf die Pulsform [11, 13, 56] und können daher beliebig gewählt werden. Für die numerische Handhabung ist es von Vorteil, diese Freiheit auszunutzen, um Abtastprobleme zu vermeiden. Berechnet wird daher die um den linearen Anteil bereinigte orts aufgelöste Spektralphase in der Austrittspupille. Sind im betrachteten optischen System Elemente vorhanden, die eine Umverteilung der Amplitudenverteilung verursachen, wie z.B. ein Axikon, so muss zusätzlich die Amplitudenverteilung jeder spektralen Komponente in der Austrittspupille berechnet werden. Auch dies kann mit Hilfe von ZEMAX durchgeführt werden.

3.2 Wellenoptische Berechnungen

Im zweiten Schritt der Berechnungen erfolgt die wellenoptische Propagation von der Austrittspupille in die Fokusumgebung. An dieser Schnittstelle kann zusätzlich die (beliebige) Spektralphase des Eingangspulses $\phi(\omega, p'_x, p'_y, z_e)$ mit berücksichtigt werden, da sie bei linearer Ausbreitung im optischen System nicht verändert wird. Der Einfachheit halber und um auftretende Effekte bei der Fokussierung besser identifizieren zu können, wird im Rahmen dieser Arbeit immer von transformlimitierten Laserpulsen in der Eintrittspupille des optischen Systems ausgegangen. Eventuelle Ausnahmen sind bei den entsprechenden Berechnungen extra vermerkt.

Die drei nachfolgend beschriebenen Propagationmethoden für lineare und nichtlineare Materialwechselwirkungen können miteinander kombiniert werden. Dadurch kann die Freiraumausbreitung von der Austrittspupille des optischen Systems bis zur Materialgrenze als ein Propagationsschritt berechnet werden (siehe Abb. 3.1). Dies senkt zusätzlich den numerischen Aufwand, da die Propagationsstrecke mit linearer Materialwechselwirkung im Allgemeinen ein bis zwei Größenordnungen länger ist als die im Material. Zudem sind die Wellenfronten in der Nähe des Fokus nicht mehr so stark gekrümmt wie in der Austrittspupille und können daher in einer Ebene - anstelle der Abtastung auf einer Referenzsphäre wie in der Austrittspupille - mit verhältnismäßig wenigen Punkten (siehe Abschnitt 3.2.2) abgetastet werden.

3.2.1 Propagation mit linearer Materialwechselwirkung

Die lineare, wellenoptische Ausbreitung von der Austrittspupille der optischen Systems bis zur Materialgrenze erfolgt in einem Schritt mit dem nachfolgend beschriebenen Algorithmus. Das vollständige Spektrum des Laserpulses in der Austrittspupille setzt sich aus der mit Hilfe von ZEMAX berechneten Spektralphase $\phi_{Ab}(\omega, p_x, p_y, z_a)$, der entsprechenden Amplitudenverteilung in der Austrittspupille und gegebenenfalls der spektralen Phase des Eingangspulses zusammen. Durch die aplanatische Projektion der Amplitudenverteilung auf die Referenzsphäre ist eine zusätzliche Multiplikation mit einer Apodisationsfunktion $A(\alpha)$ nach Gl. (2.12) notwendig. Für die Ausbreitung in die Fokusumgebung erfolgt eine Multiplikation mit einer entsprechenden Phasenfunktion $\hat{\mathbf{P}}_u$ nach Gl. (2.13) und eine anschließende räumliche FOURIER-Transformation¹ aller spektraler Komponenten (siehe Abschnitt 2.2.2). Aus dem so entstandenen Spektrum $E(\omega, x, y, z)$ geht nach einer zeitlichen FOURIER-Transformation das gesuchte elektrische Feld $E(t, x, y, z)$ hervor. Die Abfolge der Berechnungsschritte ist in Abb. 3.2 schematisch dargestellt.

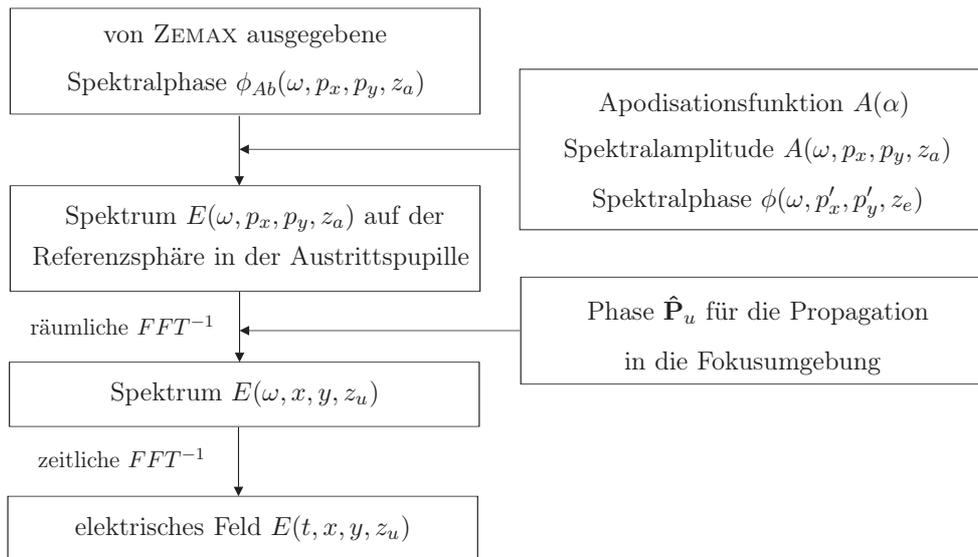


Abbildung 3.2: Darstellung der Berechnungsschritte für die wellenoptische Propagation des elektrischen Feldes zum Ort (x, y, z_u) in der Fokusumgebung für den Fall der linearen Materialwechselwirkung. Durch die Beschränkung auf lineare Materialwechselwirkungen kann das elektrische Feld an jedem Ort (x, y, z_u) in der Fokusumgebung separat berechnet werden.

3.2.2 Propagation mit nichtlinearer Materialwechselwirkung

Sollen nichtlineare Materialwechselwirkungen in der wellenoptischen Ausbreitung berücksichtigt werden, kann das elektrische Feld des Laserpulses $E(t, x, y, z + \delta z)$ im Allgemeinen nicht mehr ohne die Kenntnis des Feldes am Ort (x, y, z) berechnet werden, da dieses den Brechungsindex am Ort (x, y, z) bestimmt. Daher erfolgt die wellenoptische Berechnung mit Hilfe eines

¹Die FOURIER-Transformationen werden mit Hilfe der FFTW-Bibliothek berechnet [87].

sogenannten SPLIT-STEP-Algorithmus² beginnend an der Materialgrenze in Schritten δz unter Verwendung der WPM (siehe Abschnitt 2.2.3). Wird der optische KERR-Effekt als nichtlineare Materialwechselwirkungen zwischen Laserpuls und Kieselglas berücksichtigt, führt dies nach Gl. (2.17) zu einer intensitätsabhängigen Brechungsindexverteilung, welche im Falle von Laserpulsen zusätzlich zeitabhängig ist. Das heißt, während der Propagation des Laserpulses im Material ändert sich fortlaufend die lokale Brechungsindexverteilung durch die in Kapitel 2.3 beschriebenen Prozesse und Effekte.

Das gebräuchlichste Verfahren zur Berechnung der Ausbreitung von Laserpulsen in Medien mit einem zeitlich variierenden Brechungsindexprofil ist das Lösen der nichtlinearen SCHRÖDINGER-Gleichung [15–27]. In dieser speziellen Form der nichtlinearen Wellengleichung werden die zuvor in Abschnitt 2.3 beschriebenen Effekte durch zusätzliche Terme in der nichtlinearen Polarisation beschrieben und können einzeln berücksichtigt oder vernachlässigt werden.

In dieser Arbeit wird bezüglich der Berechnung der nichtlinearen Ausbreitung ein anderer Weg gegangen. Die räumliche Ausbreitung des Laserpulses wird durch die dreidimensionale Propagation des Spektrums beschrieben und der zeitliche Verlauf des Laserpulses in jeder z-Ebene im Material durch FOURIER-Transformation aus dem Spektrum gewonnen. Mit dieser Vorgehensweise knüpft die Berechnung mit nichtlinearer Materialwechselwirkung nahtlos an die lineare Propagation des Laserpulses bis zur Materialgrenze an. Insbesondere werden die lineare und nichtlineare Dispersion, und alle Effekte, die auf einer Änderung des Brechungsindexprofils beruhen, auf natürliche Weise und in realistischer Mischung automatisch in der Ausbreitung mit berücksichtigt. Der raum-zeitliche Verlauf des Laserpulses in einer z-Ebene entsteht hierbei aus der Überlagerung aller spektraler Komponenten, die sowohl die Phaseninformationen der Aberrationen, Dispersion und Beugungseffekte des optischen Systems beinhalten, als auch die zusätzlichen Modifikationen aufgrund der nichtlinearen Brechungsindexänderung.

Die Verwendung der WPM ermöglicht die numerische Simulation der Ausbreitung monochromatischer Wellen in Medien mit transversal variierendem Brechungsindexprofil mit hoher Genauigkeit (siehe Abschnitt 2.2.3). Um diese Methode zur Berechnung der Propagation ultrakurzer Laserpulse und einem zusätzlich zeitlich variierendem Brechungsindexprofil verwenden zu können, muss die WPM um die Zeitabhängigkeit erweitert werden. Das heißt im Speziellen, dass das elektrische Feld des Laserpulses $E(t, x, y, z + \delta z)$ aufgrund der Zeitabhängigkeit des Brechungsindexprofils nicht durch eine einzelne zeitliche FOURIER-Transformation gewonnen werden kann. Das raum-zeitliche Profil des Laserpulses in einer Ebene $(x, y, z + \delta z)$ muss stattdessen stückchenweise in *Zeitschnitten* δT berechnet werden. Der komplette Algorithmus zur Berechnung der Ausbreitung des elektrischen Feldes $E(t, x, y, z)$ um einen Propagationsschritt δz ist im Flussdiagramm 3.3 dargestellt und wird nachfolgend erläutert. Zunächst muss ein Schwellwert für die Brechungsindexänderung, ab der diese in den numerischen Simulationen

²SPLIT-STEP steht für schrittweise.

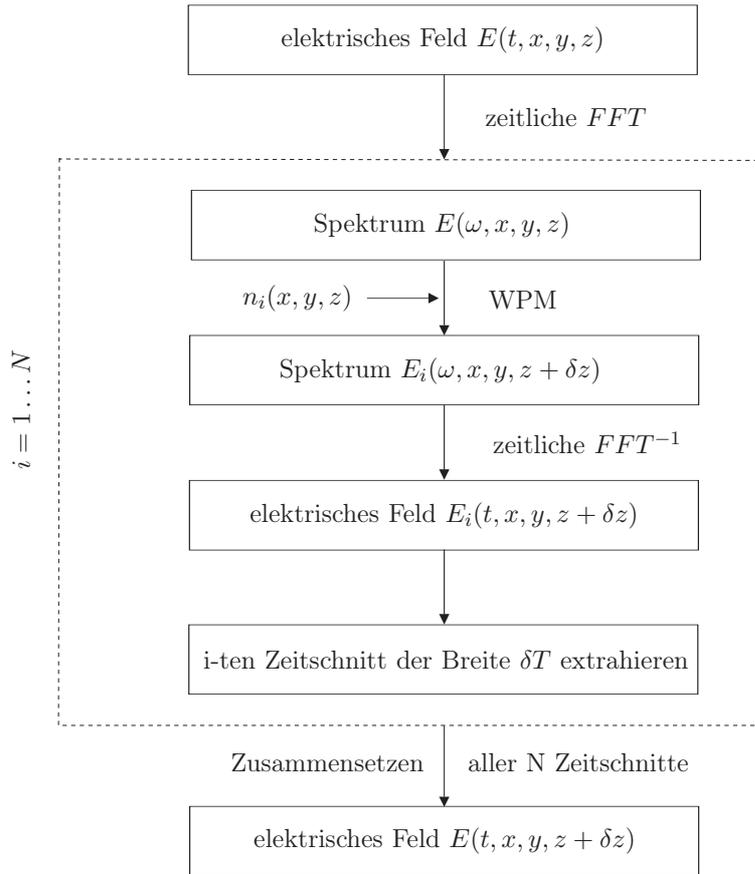


Abbildung 3.3: Darstellung der Berechnungsschritte für die Ausbreitung des Laserpulses um einen Propagationsschritt δz unter Berücksichtigung nichtlinearer Materialwechselwirkungen. Hierfür wird jede spektrale Komponente N -fach mittels WPM und dem aktuellen Brechungsindexprofil $n_i(x, y, z)$ ausgebreitet. Das elektrische Feld $E(t, x, y, z)$ wird anschließend aus den N Zeitschnitten zusammengesetzt.

berücksichtigt werden soll, festgelegt werden. Im Rahmen dieser Arbeit werden Änderungen im Brechungsindex ab 10^{-4} berücksichtigt³. Im Fall von Kieselglas und der alleinigen Berücksichtigung des KERR-Effekts bedeutet dies eine Schwellintensität von 10^{12}W/cm^2 (Gl. (2.17)) oder höher. Im Folgenden sei zusätzlich δT zunächst als konstant angenommen

Anhand des zeitlichen Profils des Laserpulses am Ort (x, y, z) wird mit dem gewählten Schwellwert für die Brechungsindexerhöhung die Anzahl N der Zeitschnitte δT ermittelt. Nun erfolgt die N -fache Berechnung der Propagation des Pulsspektrums $E(\omega, x, y, z)$ um einen Propagationsschritt δz mittels der WPM mit dem jeweiligen Brechungsindexprofil $n_i(x, y, z)$, welches durch den zeitlichen Verlauf des Laserpulses in der Ebene (x, y, z) bestimmt wird. Daran anschließend wird, wie in Abb. 3.4 schematisiert dargestellt, aus den jeweiligen zeitlichen Verläufen des Laserpulses in der Ebene $(x, y, z + \delta z)$ der aktuell behandelte Zeitschnitt extrahiert. Alle N Zeitschnitt aneinandergereiht ergeben den vollständigen zeitlichen Pulsverlauf in der Ebene $(x, y, z + \delta z)$ unter Berücksichtigung der nichtlinearen Materialwechselwirkung. Im einfachsten Fall werden die Zeitschnitte δT gleich groß gewählt. Um den Rechenaufwand der Simulationen so weit wie möglich zu reduzieren, ist es möglich, die Größe des jeweiligen Zeitschnittes δT der tatsächlichen zeitlichen Pulsform anzupassen. In (zeitlichen) Regionen niedriger Intensität

³Dieser Schwellwert wurde anhand von Konvergenztests ermittelt.

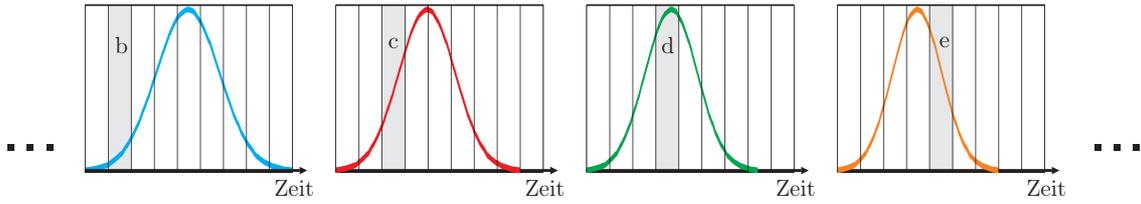


Abbildung 3.4: Dargestellt ist der zeitliche Intensitätsverlauf für vier verschiedene Laserpulse, die alle den selben Ausgangspuls hatten und durch vier verschiedene räumliche Brechungsindexprofile propagiert sind. Die angedeuteten Veränderungen sind dabei nur exemplarisch und zur Verdeutlichung des Prinzips gedacht. Der grau hinterlegte Bereich entspricht jeweils dem extrahierten Zeitschnitt δT .

sind die Modifikationen des Brechungsindexprofils gering und somit vernachlässigbar. Erst wenn die Intensität den gewählten Schwellwert übersteigt, muss die Größe der Zeitschnitte entsprechend verkleinert werden. Dieses Verfahren wird im Rahmen dieser Arbeit verwendet und ist in Abb. 3.5 schematisch dargestellt.

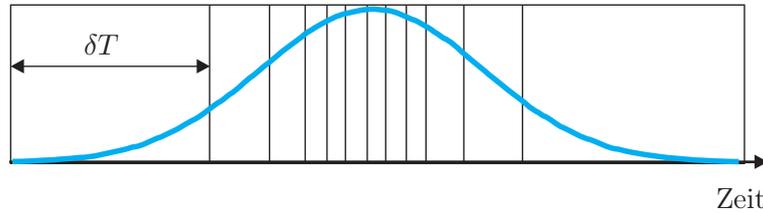


Abbildung 3.5: Darstellung der angepassten Zeitschnittgröße δT . In (zeitlichen) Gebieten niedriger Intensitäten kann der Zeitschnitt größer sein, als in Gebieten, in denen der KERR-Effekt Auswirkungen auf das Brechungsindexprofil haben. Die Größe des Zeitschnittes δT wird individuell über Schwellwerte der Änderung des lokalen Brechungsindex ermittelt.

Bei der Simulation der Fokussierung in ein Material muss noch ein weiteres numerisches Problem gelöst werden. Der überwiegende Teil der im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Fälle beinhaltet die Fokussierung mit $NA = 0,5$, wodurch die Feldausdehnung an der Materialgrenze (Abb. 3.1) etwa zwei Größenordnungen höher als im Fokus ist. Um die Amplituden- und Phasenverteilungen in jeder z -Ebene gut abtasten zu können, muss die Pixelgröße während der Berechnung der Propagation im Material nachgeführt werden. Dies geschieht in folgender Art und Weise: Nach der linearen Propagation von der Austrittspupille an die Materialgrenze ist die Pixelgröße Δp_2 durch folgende Relation der FOURIER-Transformation bestimmt:

$$\underbrace{N \cdot \Delta p_1}_{d_{AP}} \cdot \Delta p_2 = \lambda f. \quad (3.1)$$

Dabei ist f der Krümmungsradius der Referenzsphäre, Δp_1 die Pixelgröße in der Austrittspupille, N die Anzahl der Pixel und λ die entsprechende Wellenlänge. Die Pixelgröße Δp_2 ist dabei eine allein durch die NA des optischen Systems bestimmte Größe, welche zudem wellenlängenabhängig ist. Das Angleichen der Pixelgrößen der einzelnen spektralen Komponenten erfolgt durch FOURIER-Interpolation in der Austrittspupille. Bei der anschließenden Propagation im Material

wird die Pixelgröße schrittweise in ausgezeichneten Ebenen, abhängig von der Fokussieroptik, ebenfalls durch FOURIER-Interpolation nachgeführt, so dass das physikalische Feld stets gut abgetastet ist. Die Zahl der Pixel bleibt hierbei konstant und beschränkt auf typischerweise 1001x1001 pro spektraler Komponente. In Anhang C finden sich die genauen Werte der nachgeführten Pixelgrößen unter Angabe der Propagationsebenen, in denen FOURIER-interpoliert wird. Für die graphische Darstellung in Abschnitt 5 werden die unterschiedlichen Pixelgrößen ebenfalls durch FOURIER-Interpolation wieder aneinander angepasst.

3.2.3 Nichtlineare Propagation und Absorption im Material

Im Rahmen dieser Arbeit wird neben dem optischen KERR-Effekt auch die Erzeugung freier Ladungsträger als nichtlineare Wechselwirkung zwischen Laserpuls und Kieselglas berücksichtigt. Beide Effekte gemeinsam führen nach Gl. (2.17), Gl. (2.29) und Gl. (2.33) sowohl zu einer intensitätsabhängigen Brechungsindexverteilung und als auch zur ortsabhängigen Absorption des Laserfeldes. Im Falle ultrakurzer Laserpulse sind diese Prozesse zusätzlich zeitabhängig. Das heißt, während der Propagation des Laserpulses im Material ändert sich nicht nur fortlaufend die Brechungsindexverteilung sondern auch die lokale Absorption durch die in Kapitel 2.3 und Kapitel 2.4 beschriebenen Prozesse und Effekte.

Um die Vorteile der schnellen numerischen Berechnung der Propagation mit der WPM beibehalten zu können⁴, erfolgt die Propagation und Dämpfung des elektrischen Feldes hierfür in zwei getrennten Schritten. Die Absorption wird nach Gl. (2.31) für jede spektrale Komponente berechnet und damit gleichzeitig als isotrop genähert. Das heißt im Speziellen, dass die zunehmende Dämpfung bei höheren Ortsfrequenzen vernachlässigt wird⁵. Die getroffene Erweiterung des Algorithmus für die Berücksichtigung der Absorption ist in Abb. 3.6 schematisch dargestellt. Bei Elektronendichten nahe der kritischen Dichte ρ_{krit} ist die Absorption des Laserfeldes durch das Plasma sehr stark. Daher ist es an Orten mit hoher Plasmadichte notwendig, die Propagationsdistanz δz eines Schrittes weiter zu reduzieren, um den aus der Absorption resultierenden Dämpfungsprozess richtig zu modellieren. Die maximale Absorption wird hierbei auf 10% pro Propagations(zwischen)schritt begrenzt.

Wird zur Modellierung der nichtlinearen Photoionisation das Modell von Gruzdev (siehe Abschnitt 2.4.3) verwendet, erfolgt an der Polstelle der Photoionisationsrate zusätzlich eine Begrenzung dieser, wenn vollständige Ionisierung eingetreten ist, das heißt eine Elektronendichte von $\rho_{\text{max}} = 3,2 \cdot 10^{23} \text{cm}^{-3}$ erreicht wird. Aufgrund der Mittelung über eine Schwingungsperi-

⁴Feldpunkte mit dem gleichen Brechungsindex haben aber nicht zwingend dieselbe Extinktion κ , da diese sowohl intensitätsabhängig ist, als auch durch das MRE-Modell von der "Vorgeschichte" bzgl. der Erzeugung freier Ladungsträger an diesem Ort abhängt.

⁵Würde die Dämpfung im Ortsfrequenzraum behandelt werden, würden höhere Ortsfrequenzen ebenen Wellen mit größerem Winkel α zur optischen Achse entsprechen. Dadurch würde der effektive Absorptionsweg bei einem Propagationsschritt δz um den Faktor $(1/\cos \alpha)$ ansteigen und so die Dämpfung für höhere Ortsfrequenzen erhöhen. Da im Rahmen dieser Arbeit nur die Fokussierung bis zu einer NA= 0,5 betrachtet wird, beträgt die maximale Streckenverlängerung nur etwa 15%, was die obige Näherung rechtfertigt.

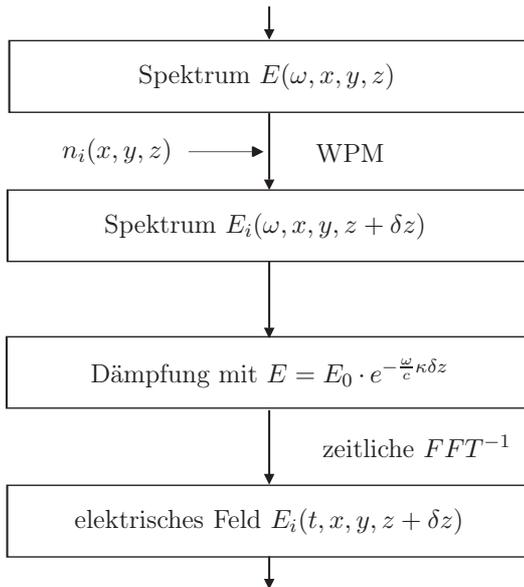


Abbildung 3.6: Schematische Darstellung der Erweiterung des Algorithmus aus Abb. 3.3 zur Berechnung der Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse unter der zusätzlichen Berücksichtigung der Absorption des Elektron-Loch-Plasmas. Die Dämpfung ist wellenlängenabhängig und wird für jede spektrale Komponente separat ausgeführt.

ode des elektrischen Feldes in den Ableitungen von Keldysh und Gruzdev für die nichtlineare Photoionisationsrate läuft auch der Prozess der vollständigen Ionisation auf dieser Zeitskala ab und wird daher an der Polstelle mit einer Dauer von 2fs genähert.

3.3 Abschätzung der Materialparameter von Kieselglas

Kieselglas ist die amorphe Materialform von SiO_2 , welches in seiner kristallinen Form Quarz heißt. Um die Eigenschaften von Kieselglas mit Methoden der Festkörperphysik beschreiben zu können, wird es oft als isotropes Medium mit den Materialeigenschaften von $\alpha\text{-SiO}_2$ angenähert. Trotzdem bleibt es schwierig, geeignete Parameter für die numerischen Simulationen auszuwählen, da zum Beispiel die Gitterkonstante d , die effektive Masse m_e^* und die effektive reduzierte Elektronen-Loch-Masse m_{el}^* für Glas keine wohl definierten Größen sind. Für die Berechnung der nichtlinearen Photoionisationsraten $\dot{\rho}_{pi}$ gibt es derzeit nur die Möglichkeit, das Material als kristallinen Festkörper zu beschreiben, weshalb nachfolgend die dafür notwendigen und geeigneten Materialparameter für Kieselglas abgeschätzt werden. Im Rahmen dieser Arbeit erfolgen die einzelnen Abschätzungen unabhängig von einander anhand geeigneter Vergleichsgrößen, experimentellen Messungen und numerischen Simulationen. Daher weichen die ermittelten Größen mitunter von den in der Literatur gebräuchlichen Werten ab. Zudem ist das vorrangige Ziel dieser Abschätzungen bestimmte Materialeigenschaften nachzubilden, weshalb die ermittelten effektiven Materialparameter für einen realen kristallinen Festkörper mitunter nicht konsistent wären.

Abschätzung der Gitterkonstanten

Die Elementarzelle von α -SiO₂ ist hexagonal mit den zwei Kantenlängen $a = 4,9138\text{\AA}$ und $c = 5,4052\text{\AA}$. Bei Kieselglas wird von einer statistisch unkorrelierten Verteilung der Elementarzellen und von einer daraus resultierenden Isotropie des Materials ausgegangen. Basierend auf dieser Annahme wird für die Gitterkonstante d der Mittelwert aus a und c verwendet. Daraus ergibt sich $d = 5,159\text{\AA}$.

Abschätzung der effektiven Elektronenmasse im Leitungsband von Kieselglas

Die Wahl der effektiven Elektronenmasse im Leitungsband gestaltet sich schwierig, da diese zum einen nur für kristalline Festkörper wohl definiert ist und zum anderen stark von der Wahl des Bandstrukturmodells abhängt. Aus diesem Grund wird meist $m_e^* = m_e$ (Elektronenruhemasse) angenommen [41, 42, 63, 76, 88]. Im Rahmen dieser Arbeit wird die effektive Elektronenmasse passend zum Bandmodell der KELDYSH-Theorie [30] abgeschätzt und dieser Wert auch für Berechnungen mit dem erweiterten Modell nach Gruzdev [31, 32] verwendet. In den Ableitungen zur Berechnung der nichtlinearen Ionisationsrate für Materialien mit großer Bandlücke verwendet Keldysh die sogenannte KANE-Typ Energie-Impuls-Beziehung, welche für ein isotropes Material die Form

$$E_{\text{kane}}(\mathbf{k}) = \Delta \sqrt{1 + \frac{\hbar^2 k^2}{m_e^* \Delta}} \quad (3.2)$$

hat. Im Fall von Glas kann die effektive Masse m_e^* als frei wählbarer Parameter zur Anpassung der Materialeigenschaften in der Modellierung verstanden werden. Hier soll der Wert von m_e^* für Kieselglas über den Vergleich der Zustandsdichten [75] ermittelt werden, welche für die Bandstruktur nach Gl. (3.2) durch

$$D(E_{\text{kane}}) = \frac{1}{\pi^2} \left(\frac{m_e^*}{\hbar^2 \Delta} \right)^{\frac{3}{2}} E_{\text{kane}} \sqrt{E_{\text{kane}}^2 - \Delta^2} \quad (3.3)$$

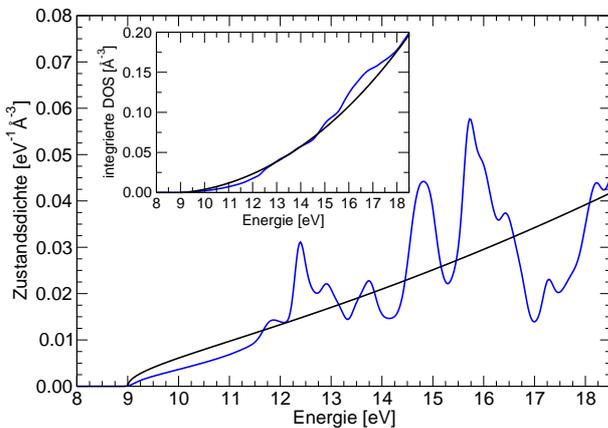


Abbildung 3.7: Graphische Darstellung der Zustandsdichten des Elektronengases, welche zum einen im Rahmen der DFT für kristallines SiO₂ (blaue Kurve) und zum anderen mit Gl. (3.3) für die KANE-Typ Bandstruktur (schwarze Kurve) des isotropen Materials berechnet wurde. Die Einfügung zeigt die jeweils integrierten Zustandsdichten. Durch den graphischen Vergleich wurde $m_e^* = 0,85 \cdot m_e$ ermittelt.

gegeben ist. In Abb. 3.7 sind die mittels Dichte-Funktional-Theorie (DFT) berechnete Zustandsdichte [80] für kristallines SiO₂ und die Zustandsdichte nach Gl. (3.3) in Abhängigkeit von der Elektronenenergie dargestellt. Zusätzlich zeigt die Einfügung die integrierten Zustandsdichten. Mittels graphischem Vergleich der jeweiligen Kurven wurde die beste Übereinstimmung für $m_e^* = 0,85 \cdot m_e$ gefunden. Dieser Wert ist in sehr guter Übereinstimmung mit dem von Wu *et al.* [70] in deren Simulationen verwendeten $m_e^* = 0,86 \cdot m_e$.

Abschätzung der 1-Photonen-Absorptionswahrscheinlichkeit

Für die Wahrscheinlichkeit der 1-Photonen-Absorption $W_{1\text{pt}}$ in Kieselglas wurde nur ein Literaturwert gefunden (Rethfeld [41, 42]), welcher jedoch leider nicht zu den restlich Annahmen bzgl. der hier gewählten Materialparameter passt. Daher wird $W_{1\text{pt}}$ im Rahmen dieser Arbeit über die selbstkonsistente Lösung des MRE-Modells gekoppelt mit der Absorption nach dem LAMBERT-BEERSchen-Gesetzes (2.31) in Abhängigkeit von der Intensität für den stationären Grenzfall bestimmt. Als stationär wird die Verteilung angesehen, wenn sich der prozentuale Anteil der zur Stoßionisation fähigen Elektronen an der Gesamtelektronendichte, entsprechend $\frac{d}{dt}(\rho_K/\rho) = 0$, nicht mehr verändert. Mit den gewählten Parametern wurde die Zeitdauer bis zum Einstellen der Stationarität zu $T_{\text{MRE}} = 800\text{fs}$ bestimmt⁶. Für die Berechnung der 1-Photonen-Absorptions-Wahrscheinlichkeit wird das Material nur über die DRUDE-Stoßzeit τ_e und die effektive Elektronenmasse m_e^* beschrieben, weshalb diese Werte sorgfältig gewählt werden müssen. Erstere wurde von Bloembergen 1974 für Festkörper auf 1fs geschätzt [71]. Eine Messung von Sun *et al.* bestätigte dies mit $\tau_e = 1,7\text{fs}$ für Kieselglas [89]. Dieser Wert wird für die nachfolgenden Berechnungen verwendet. Die effektive Elektronenmasse des Leitungsbandes entspricht, wie direkt vorausgehend diskutiert, $m_e^* = 0,85 \cdot m_e$.

Die Änderung der Intensität des Laserfeldes aufgrund von Intrabandabsorption ist nach Gl. (2.31) und (2.30) durch

$$\left(\frac{dI}{dz}\right)_{\text{intra}} = -2\frac{\omega}{c}k_{\text{intra}}I = -\frac{1}{n_0c} \frac{\omega_p^2\tau_e}{(1+\omega^2\tau_e^2)}I = -\sigma_s n_0 \rho I \quad (3.4)$$

gegeben, wobei erneut $n \approx n_0$ angenommen wird und σ_s der Stoßquerschnitt für das Einfangen inverser Bremsstrahlung mit $\sigma_s = \frac{e^2}{n_0^2 m_e^* \epsilon_0} \cdot \frac{\tau_e}{1+\omega^2\tau_e^2}$ ist [63, 88]. Für obige Materialparameter ergibt sich $\sigma_s = 5,9 \cdot 10^{-18}\text{cm}^2$ bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$. Die von den Elektronen absorbierte Energie kann wiederum in zwei Kanäle fließen. Zum einen können Elektronen mit einer Energie $E > E_{\text{krit}}$ mit Elektronen aus dem Valenzband stoßen und so ihre gesamte Energie abgeben⁷. Zum

⁶Das Lösen der MRE-Differentialgleichungen für längere Zeiten bis 5ps brachte keine weitere Veränderung.

⁷Im MRE-Modell steht das Niveau mit $E_K > E_{\text{krit}}$ stellvertretend für alle höheren virtuellen Energieniveaus. Die Elektronen dort können sowohl mit der Wahrscheinlichkeit W_{st} stoßionisieren, als auch ein weiteres Photon absorbieren oder aber wie die Elektronen in allen Niveaus rekombinieren. Der Einfachheit halber werden die virtuellen Energieniveaus weitergezählt. Kommt es zu einem Stoß eines Elektrons aus einem höheren Niveau als E_K , so geht die Energiedifferenz auf das Gitter über (siehe Abschnitt 2.4.2).

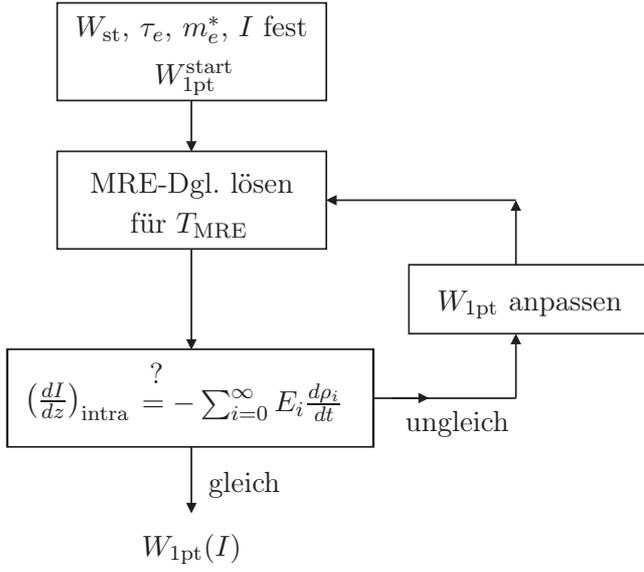


Abbildung 3.8: Graphische Darstellung der Berechnungsschritte für die selbstkonsistente Lösung des MRE-Modells gekoppelt an die Absorption des Laserfeldes. Die jeweilige Berechnung des $W_{1\text{pt}}$ erfolgt für fixierte Werte von W_{st} , τ_e , m_e^* und I . Nach dem Lösen des Differentialgleichungssystems des MRE-Modells für die Dauer T_{MRE} sind die Elektronendichten in den einzelnen Energieniveaus bekannt. Damit wird $(dI/dz)_{\text{intra}}$ nach Gl. (3.4) und Gl. (3.5) berechnet und verglichen. Sind die Terme gleich, hat man $W_{1\text{pt}}$ für die gewählte Intensität gefunden. Sind sie ungleich, muss die Rechnung mit einem angepassten Wert für $W_{1\text{pt}}$ wiederholt werden.

anderen rekombinieren Elektron-Loch-Paare miteinander, was sich in einer charakteristischen Abklingzeit τ_{rek} des Elektronenplasmas widerspiegelt,

$$\left(\frac{dI}{dz}\right)_{\text{intra}} = - \sum_{k=0}^{\infty} E_k \frac{d\rho_k}{dt} = - \sum_{k=K}^{\infty} E_k W_{\text{st}} \rho_k - \sum_{k=0}^{\infty} \frac{1}{\tau_{\text{rek}}} E_k \rho_k \quad \text{mit} \quad \rho = \sum_{k=0}^{\infty} \rho_k. \quad (3.5)$$

Um nun die 1-Photonen-Absorptions-Wahrscheinlichkeit $W_{1\text{pt}}$ im Zuge einer selbstkonsistenten Lösung des MRE-Modells (Gl. (2.34)) und obiger Absorptionsgleichung zu berechnen, wird wie folgt vorgegangen: Die Materialparameter τ_e und W_{st} werden bei den zuvor angegebenen Werten fixiert. Dann wird $W_{1\text{pt}} = W_{1\text{pt}}^{\text{start}}$ gewählt, mit welchem das Differentialgleichungssystem des MRE-Modells für die Dauer T_{MRE} gelöst wird. Damit steht die stationäre Elektronenverteilung in den einzelnen Energieniveaus und die Gesamtelektronendichte zur Verfügung. Durch die Kenntnis der Elektronenverteilung kann die rechte Seite von Gl. (3.5) und mit Hilfe der Gesamtelektronendichte die rechte Seite von Gl. (3.4) berechnet werden. Stimmen beide Terme überein, so ist $W_{1\text{pt}}$ für die gewählte Intensität gefunden. Stimmen sie nicht überein, erfolgt eine erneute Berechnung mit einem entsprechend veränderten Wert für $W_{1\text{pt}}$. Die Vorgehensweise ist in Abb. 3.8 noch einmal graphisch dargestellt. Dabei hängt das Verhältnis der zur Stoßionisation fähigen Elektronen zur Gesamtelektronendichte $(\sum_{k=K}^{\infty} E_k W_{\text{st}} \rho_k) / \rho$ nur von der 1-Photonen-Absorptions-Wahrscheinlichkeit $W_{1\text{pt}}$, der Wahrscheinlichkeit für Stoßionisation W_{st} , der DRUDE-Stoßzeit τ_e und der Intensität I ab. Damit ist die Berechnung von $W_{1\text{pt}}$ unabhängig von der Photoionisationsrate $\dot{\rho}_{\text{pi}}$ und somit auch von der effektiven reduzierten Elektronen-Loch-Masse m_{el}^* , welche nachfolgend erst mit der Kenntnis von $W_{1\text{pt}}$ berechnet wird.

Die 1-Photonen-Absorptions-Wahrscheinlichkeit wurde für den Intensitätsbereich von $(10^9 - 10^{13}) \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ berechnet und in Abb. 3.9 sind die Ergebnisse für $W_{1\text{pt}}$ in Abhängigkeit von der Intensität für die Berechnung mit einer konstanten effektiven Bandlücke von $\Delta = 9\text{eV}$ und der effekti-

ven Bandlücke des KELDYSH-Modells dargestellt. Letztere zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit der ebenfalls eingezeichneten linearen Interpolation bis zum Ordnungswechsel und der damit verbundenen Erhöhung von E_{krit} bei etwa $I = 7 \cdot 10^{12} \frac{\text{cm}^2}{\text{Ws}}$, was eine Parallelverschiebung der Kurve zur Folge hat. Aus der linearen Interpolation konnte der Wert $W_{1\text{pt}} = 35,3766 \frac{\text{cm}^2}{\text{Ws}} \cdot I$ bestimmt werden, welcher in allen numerischen Simulationen und Berechnungen in dieser Arbeit verwendet wird.

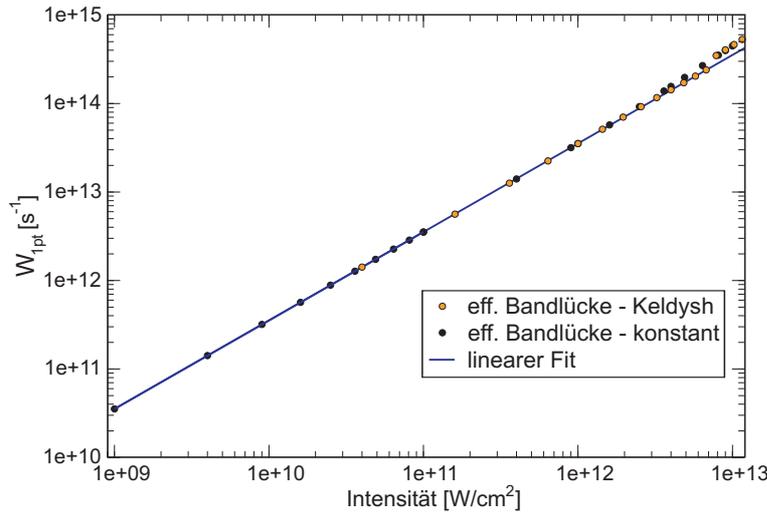


Abbildung 3.9: Graphische Darstellung der berechneten Werte für $W_{1\text{pt}}$ für eine konstante effektive Bandlücke (schwarze Punkte) und der effektiven Bandlücke des KELDYSH-Modells (orange Punkte). Die lineare Interpolation (blaue Kurve) ergibt den Wert $W_{1\text{pt}} = 35,3766 \frac{\text{cm}^2}{\text{Ws}} \cdot I$ und zeigt eine sehr gute Übereinstimmung mit den Werten mit variierender Bandlücke bis zum Ordnungswechsel bei etwa $I = 7 \cdot 10^{12} \frac{\text{cm}^2}{\text{Ws}}$.

Abschätzung der effektiven reduzierten Elektronen-Loch-Masse

Die effektive reduzierte Elektron-Loch-Masse m_{el}^* ist nicht so leicht abschätzbar wie die effektive Masse m_e^* eines Elektrons im Leitungsband. Das hat im Wesentlichen zwei Gründe. Zum einen ist auch m_{el}^* in einem amorphen Festkörper wie Kieselglas keine wohldefinierte Größe und zum anderen ändern sich während der nichtlinearen Photoionisation die Besetzungszustände von Valenz- und Leitungsband drastisch, da Elektronendichten bis zu 10^{21}cm^{-3} erzeugt werden können. Die Wahl des Wertes für m_{el}^* bestimmt maßgeblich die Höhe der Ionisationsrate $\dot{\rho}_{\text{pi}}$. So hat eine Erhöhung um den Faktor zwei eine Verringerung der Ionisationsrate um ein bis zwei Größenordnungen zur Folge. In der Literatur wird meist zwischen den zwei Werten $m_{el}^* = 0,5 \cdot m_e$ [27, 40, 41] und $m_{el}^* = 0,64 \cdot m_e$ [16, 32, 63] gewählt. Der zweite Wert resultiert aus einer Messung von Fischetti *et al.* [90] für kristallines SiO_2 . Im Rahmen dieser Arbeit wird der Wert von m_{el}^* ebenfalls abgeschätzt. Dies erfolgt anhand von Messdaten aus [69], welche Pulsdauern für einen optischen Durchbruch (LIB) der notwendigen Fluenz gegenüberstellt. In [69] wurde von Lenzner *et al.* mit Hilfe einer einfachen Ratengleichung versucht, die Koeffizienten für die Stoßionisation und die Multiphotonenabsorption in Form von Fitparametern zu bestimmen. Ein Jahr später zeigten Li *et al.* anhand der selben Messwerte, dass sich diese Koeffizienten stark verändern, wenn die Rekombination der Elektron-Loch-Paare, wie in Gl. (2.22), mit berücksichtigt wird [36]. In beiden Fällen wurde die Multiphotonenabsorption

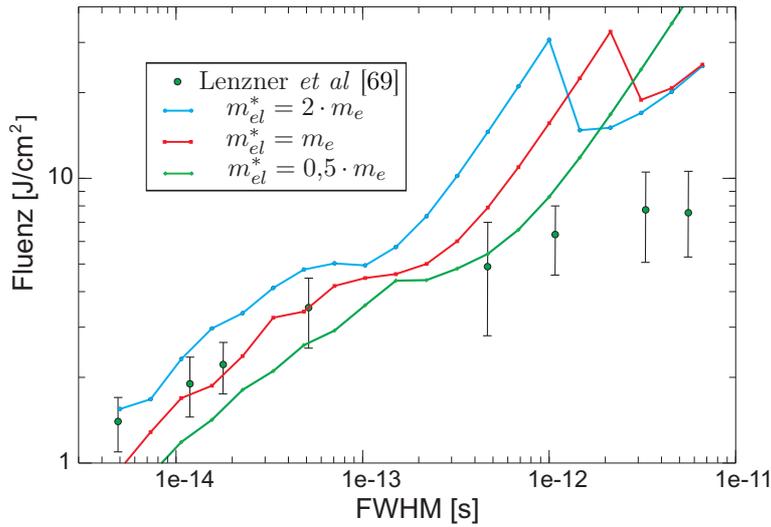


Abbildung 3.10: Graphische Darstellung der mit drei verschiedenen effektiven reduzierten Elektron-Loch-Massen berechneten Schwellfluenzen für das Erreichen einer Elektronendichte von $\rho = 10^{21} \text{cm}^{-3}$. Die Berechnungen wurden auf Basis des KELDYSH-Modells kombiniert mit der erweiterten Ratengleichung (2.22) und dem MRE-Modell. Die eingezeichneten Messwerte sind inklusive ihrer Fehlerbalken der Messung von Lenzner *et al.* [69] entnommen.

durch den vereinfachten Zusammenhang $\dot{\rho}_{\text{pi}} = \sigma_K \cdot I^K$ genähert. Berechnet wurde jeweils die benötigte Schwellfluenz zum Erreichen einer Elektronendichte von $\rho = 10^{21} \text{cm}^{-3}$, welche als Schwellelektronendichte für einen optischen Durchbruch angenommen wurde. Nachfolgend wird diese Rechnung wiederholt, wobei das MRE-Modell, die vollständige KELDYSH-Theorie und die Ratengleichung mit Abklingzeit (2.22) zur Berechnung der Elektronendichte verwendet werden. Die effektive reduzierte Elektron-Loch-Masse m_{el}^* ist dabei der freie Parameter. Für die Werte $m_{el}^* = \alpha \cdot m_e$ mit $\alpha = \frac{1}{2}, 1$ und 2 wurde für verschiedenen Pulsdauern (FWHM) die benötigte Fluenz berechnet, um eine maximale Elektronendichte von $\rho = 10^{21} \text{cm}^{-3}$ zu erhalten. Auch diese Rechnung erfolgt iterativ, bis die jeweilige Fluenz gefunden ist, wobei ein relativer Fehler von 5% für die erreichte maximale Elektronendichte zugelassen wird. In Abb. 3.10 sind die berechneten Fluenzen in Abhängigkeit von der Pulsdauer (FWHM) gemeinsam mit den Messwerten aus [69] graphisch dargestellt. Im Rahmen dieser Arbeit werden Pulsdauern zwischen 30fs und 150fs betrachtet. In diesem Bereich werden die Messwerte aus [69] am besten durch $m_{el}^* = m_e$ (rote Kurve) repräsentiert, weshalb dieser Wert auch für alle nachfolgenden Berechnungen gewählt wurde. Für größere Pulsdauern passt keine der drei Kurven zu den Messwerten. Ein Grund hierfür könnte die fehlende Berücksichtigung von Effekten durch Mehrfachpulse sein.

Der Bereich ab etwa 100fs bis zum Einbruch der Kurven zeichnet sich durch eine konstante maximale Intensität der Laserpulse aus, wobei die Fluenz aufgrund der zunehmenden Pulsdauern steigt. Der plötzliche Abfall der blauen und roten Kurve ist durch den Ordnungswechsel im MRE-Modell bedingt. Bei langen Pulsdauern verringert sich die maximale Intensität so weit, dass die effektive Bandlücke abnimmt und ab dem Unterschreiten einer gewissen Grenze ein Photon weniger absorbiert werden muss, um $E > E_{\text{krit}}$ zu erreichen. Gleichzeitig steigt an diesem Punkt auch die Photoionisationsrate wieder sprunghaft an (siehe Abb. 2.5). Anzumerken bleibt außerdem, dass die Details zur Berechnung der Fluenz in [69] nicht näher beschrieben sind und diese natürlich stark von der Fokusgeometrie abhängt, was wiederum

auch eine Ursache für die Abweichungen hier sein kann. Gleiches trifft auf die Messwerte für die drei kürzesten Laserpulse zu, bei welchen die Bandbreite des Spektrums auf bis zu 100nm ansteigt und damit Aberrationen eine nicht zu vernachlässigende Rolle bei der Fokussierung spielen. Zusätzlich sollte insbesondere bei diesen Laserpulsen bedacht werden, dass die Ableitungen von Keldysh nur für monochromatische elektrische Felder streng gültig sind. Daher ist die Abweichung zwischen den Messwerten und den berechneten Kurven möglicher Weise auch ein Effekt, der aus der zunehmenden, aber nicht berücksichtigten Bandbreite der Laserpulse im verwendeten KELDYSH-Modell resultiert.

Abschließend sei darauf hingewiesen, dass durch die Wahl von $m_{el}^* = m_e$ die Photoionisationsraten um etwa 1-2 Größenordnungen kleiner sind als bei Veröffentlichungen, welche die zwei Werte $m_{el}^* = 0,5 \cdot m_e$ [27, 40, 41] und $m_{el}^* = 0,64 \cdot m_e$ [16, 32, 63] gewählt haben. Wie sich dies auf die Ergebnisse der numerischen Simulationen auswirkt, wird sich an späterer Stelle zeigen.

4 Optische Eigenschaften von ionisiertem Kieselglas

Nachdem in den vorangegangenen zwei Kapiteln die Modelle zur Erzeugung freier Elektronen in Dielektrika vorgestellt und die entsprechenden Materialparameter für Kieselglas abgeschätzt wurden, folgt nun die Betrachtung der Wechselwirkung von Laserpulsen mit dem Material unter Berücksichtigung des optischen KERR-Effekts sowie der Erzeugung und Anwesenheit freier Ladungsträger. Hierfür werden transformlimitierte Pulse mit gaußförmigem Spektrum und Zeitverlauf verwendet. Die Brechungsindexerhöhung in Kieselglas, welche durch den optischen KERR-Effekt hervorgerufen wird, ist nach Gl. (2.17) linear proportional zur Intensität und instantan, womit der Verlauf direkt dem Intensitätsverlauf des Laserpulses folgt. Wird zusätzlich die Erzeugung und Anwesenheit freier Ladungsträger mit berücksichtigt, so ergibt sich eine komplexe dielektrische Funktion (Gl. (??) mit Gl. (2.29)) und ein stark von der Pulsdauer und der Spitzenintensität des Laserpulses abhängiger zeitlicher Verlauf des Brechungsindexes und der Absorption. Darüber hinaus spielt die Wahl der Modelle zur Beschreibung der nichtlinearen Photoionisation und der Stoßionisation sowie die Abschätzung der verwendeten Materialparameter eine große Rolle bezüglich der jeweils erreichbaren Absorptionsraten und Elektronendichten. Wie sich in den nachfolgenden Betrachtungen der zeitlichen Verläufe des Brechungsindexes n und des Extinktionskoeffizienten κ zeigen wird, werden die zeitlichen Änderungen dieser beiden Größen neben dem optischen KERR-Effekt auch durch das Wechselspiel zwischen der Photoionisationsrate $\dot{\rho}_{\text{pi}}$ und der Elektronendichte ρ bestimmt, da das Anwachsen der Elektronendichte eine zeitliche Verzögerung gegenüber dem Laserpuls aufweist. Die maximal erzielten Elektronendichten dienen zusätzlich der Identifizierung von Gebieten, in denen permanente Materialmodifikationen zu erwarten sind.

Um den Einfluss der Photoionisationsrate und der Dichte der freien Elektronen auf den zeitlichen Verlauf des Brechungsindexes n und des Extinktionskoeffizienten κ zu analysieren, werden nachfolgend diese Größen für zwei verschiedene Pulsdauern mit unterschiedlichen Spitzenintensitäten mit- und untereinander verglichen. Zusätzlich werden hierfür die resultierenden Elektronendichten mit zwei verschiedenen Modellen zur nichtlinearen Photoionisation berechnet, wobei zusätzlich die Stoßionisation in allen Fällen durch das MRE-Modell berücksichtigt wird. Die Berechnung der nichtlinearen Photoionisationsraten erfolgt mit den zwei in Abschnitt 2.4.3 vorgestellten Modellen von Keldysh und Gruzdev. Begonnen wird mit den experimentellen Pul-

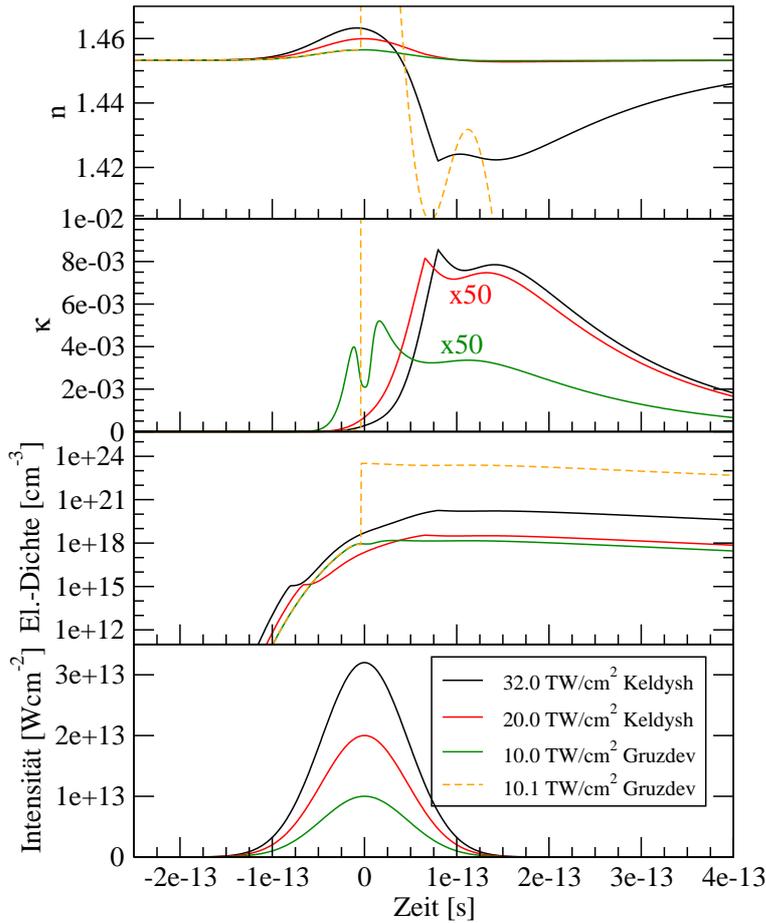


Abbildung 4.1: Graphische Darstellung des zeitlichen Verlaufs des Brechungsindex n (oben) und des Extinktionskoeffizienten κ (darunter), sowie der zugrundeliegenden freien Elektronendichte. Gegenübergestellt werden hierbei die Ergebnisse der Berechnungen der nichtlinearen Photoionisation mit den Modellen nach Keldysh und Gruzdev. Die Stoßionisation wird in beiden Fällen mit dem MRE-Modell beschrieben. Zur besseren Orientierung ist das zeitliche Profil der 110fs-Laserpulse bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ (unten) für vier verschiedene Spitzenintensitäten mit eingezeichnet (siehe Legende). Für die schwarze Kurve wurden die experimentellen Parameter der Laserpulse, wie sie von Schaffer *et al.* in [65] bei der Bestimmung der Schwellintensität für einen optischen Durchbruch angegeben sind, verwendet. Alle Erläuterungen zum spezifischen Verlauf der Kurven finden sich im Text. Da die Extinktionskoeffizienten bei der roten und grünen Kurve sehr viel schwächer sind, wurden sie für die graphische Darstellung mit dem Faktor 50 multipliziert.

sparametern von Schaffer *et al.* entsprechend ihrer Messung der Durchbruchintensität für LIB in Kieselglas [65]. Dort wurden 110fs-Laserpulse bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ mit einer berechneten Spitzenintensität¹ von $I_{\text{th}} = 3,2 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ verwendet. Abbildung 4.1 zeigt den obigen Fall (*schwarz*) im Vergleich zu einem 110fs-Laserpuls mit einer Spitzenintensität $I_{\text{max}} = 2 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*rot*). In beiden Fällen sind die Elektronendichten mit der Kombination aus dem KELDYSH-Modell für die Photoionisation und dem MRE-Modell für die Stoßionisation berechnet. Aufgrund der Polstelle in der Photoionisationsrate nach Gruzdev ist es sinnvoller, Laserpulse mit geringeren Mittenintensitäten, das heißt, einmal kurz vor der Polstelle mit $I_{\text{max}} = 1 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*grün*) und einmal mit $I_{\text{max}} = 1,01 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*orange*), bei welcher die Polstelle gerade überstrichen wird, für den Vergleich zu verwenden.

Als erstes werden die beiden mit dem KELDYSH-Modell berechneten Fälle miteinander verglichen (*rot* und *schwarz*). Die in den Kurven der zeitlichen Entwicklung der Elektronendichte auftretenden *Knicke* lassen sich mit den Stufen in der Photoionisationsrate bei dortigen Ordnungswechseln in der Multiphotonenabsorption assoziieren. Wird die Intensität einer solchen Stufe im zeitlichen Pulsverlauf erreicht, verringert sich schlagartig die Photoionisationsrate und

¹Die Fokussierung erfolgte mit verschiedenen Mikroskopobjektiven und es wurde die jeweils für LIB benötigte Pulsenergie für 3000 Laserpulse bestimmt. Anschließend wurden diese Werte interpoliert, wobei die Durchbruchintensität als freier Parameter diente. Diese Berechnungen basieren auf Gaußscher Optik.

das Anwachsen der Gesamtelektronendichte ρ verlangsamt sich dort kurzzeitig. Ist der Laserpuls zeitlich abgeklungen, verändert sich die Gesamtelektronendichte in allen Fällen nur noch durch die Rekombination des Elektronen-Loch-Plasmas mit der Abklingzeit τ_{rek} .

Im Vergleich der zeitlichen Verläufe des Brechungsindex n und des Extinktionskoeffizienten κ werden auf den ersten Blick deutliche Unterschiede in der Stärke der Änderung offensichtlich. Schon die geringe Erhöhung der Mittenintensität um den Faktor 1,6 von $I_{\text{max}} = 2 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*rot*) auf $I_{\text{max}} = 3,2 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*schwarz*) führt zu einer signifikanten Erhöhung des Extinktionskoeffizienten κ um gut Faktor 50. Ursächlich hierfür ist die I^7 -Abhängigkeit der Photoionisationsrate $\dot{\rho}_{\text{pi}}$, wodurch sowohl der entsprechende Absorptionsterm in der dielektrischen Funktion (??) steigt, also auch die maximale Elektronendichte knapp zwei Größenordnungen höher ist ($\rho = 3,5 \cdot 10^{18} \text{cm}^3$ (*rot*) und $\rho = 1,8 \cdot 10^{20} \text{cm}^3$ (*schwarz*)). Der zeitliche Verlauf der beiden Extinktionskoeffizienten ist zum einen durch die starke Intensitätsabhängigkeit der Photoionisation geprägt, weshalb es erst ab $t \approx -50 \text{fs}$ zu einer merklichen Erhöhung der Absorption kommt. Zum anderen spielt die zeitlich verzögert einsetzende Erhöhung der Elektronendichte aufgrund von Stoßionisation eine große Rolle und dominiert die Absorption für Zeiten $t > 0 \text{fs}$, da dort nach Überschreiten der maximalen Intensität zusätzlich die Photoionisationsraten stark sinken. Die *Spitze* bei $t \approx 75 \text{fs}$ im zeitlichen Verlauf des Extinktionskoeffizienten (*schwarz*) koinzidiert mit einem Ordnungswechsel in der Photoionisationsrate und damit auch mit dem entsprechenden *Knick* in der Elektronendichte, welche ab diesem Zeitpunkt nur noch sinkt. Bei dem Laserpuls mit der geringeren Mittenintensität (*rot*) ist das identische Verhalten an der Stelle des Ordnungswechsels zu beobachten.

Der zeitliche Verlauf des Brechungsindex n steigt in beiden Fällen zunächst mit der Intensität an und erfährt bei einer ausreichend hoher Elektronendichte eine Absenkung unter das Niveau des linearen Brechungsindex n_0 . Bei dem Laserpuls mit der höheren Mittenintensität (*schwarz*) steigt die Gesamtelektronendichte so stark an, dass es zu einer deutlichen Absenkung des Brechungsindex von $\Delta n \approx -3 \cdot 10^{-2}$ kommt, was in der Wechselwirkung mit dem Laserpuls sogenannte Plasmadefokussierung hervorruft. Dies betrifft aber nur den zeitlich hinteren Teil des Laserpulses, da erst dort die erforderlichen Elektronendichten erreicht werden. Gleichzeitig nimmt die Erhöhung des Brechungsindex aufgrund des optischen KERR-Effekts zu diesem Zeitpunkt schon wieder ab. Die zuvor erreichten maximalen Brechungsindexerhöhungen betragen $\Delta n \approx 6,4 \cdot 10^{-3}$ (*rot*) und $\Delta n \approx 10^{-2}$ (*schwarz*) und werden quasi vollständig durch den optischen KERR-Effekt ($n_2 = 3,2 \cdot 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$) hervorgerufen. Der aus den Absorptionstermen des Elektronenplasmas und der Photoionisationsrate in der dielektrischen Funktion (??) resultierende Anteil ist in beiden Fällen vernachlässigbar gering. Die Absenkung des Brechungsindex für den Laserpuls mit der niedrigeren Mittenintensität (*rot*) ist mit $\Delta n \approx -5,4 \cdot 10^{-4}$ zwei Größenordnungen schwächer als bei dem Laserpuls mit der höchsten Mittenintensität (*schwarz*) ausgeprägt und deshalb sind zur besseren Veranschaulichung der

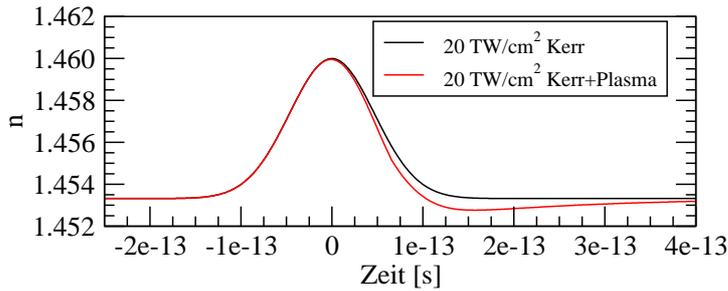


Abbildung 4.2: Dargestellt ist der zeitliche Verlauf des Brechungsindex unter alleiniger Berücksichtigung des optischen KERR-Effekts und in der Kombination optischer KERR-Effekt (schwarz) mit der Erzeugung und Anwesenheit freier Elektronen (rot) für den Laserpuls mit einer Mittenintensität von $I_{\max} = 2 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$.

entsprechende Brechungsindex für die zwei Fälle KERR-Effekt mit (rot) und ohne (schwarz) Berücksichtigung des Elektronenplasmas in Abb. 4.2 dargestellt.

Abschließend lässt sich für die Propagation des Laserpulses, der dem Experiment von Schaffer *et al.* nachempfunden wurde (*schwarz*), folgendes Verhalten festhalten: Die Ausbreitung des zeitlich vorderen Teils des Laserpulses wird durch den erhöhten Brechungsindex und die damit verbundenen Effekte (siehe Abschnitt 2.3) geprägt. Der zeitlich hintere Teil des Laserpulses erfährt dagegen zunehmende Absorption und Plasmadefokussierung. Der maximale Extinktionskoeffizient der Absorption beträgt dabei $\kappa = 8 \cdot 10^{-3}$, was für die Intensität einer $1/e$ -Absorptionslänge durch das Plasma von $z_{1/e} = 8 \mu\text{m}$ entspricht. Die Ausbreitung des schwächeren Laserpulses (*rot*) wird dagegen viel weniger durch Absorptionseffekte beeinflusst, hier beträgt die intensitätsbezogene $1/e$ -Absorptionslänge durch das Plasma schon $z_{1/e} = 400 \mu\text{m}$.

Als nächstes werden die beiden mit dem erweiterten Modell von Gruzdev berechneten Fälle (*grün* und *orange*) miteinander und mit den beiden vorangegangenen Fällen verglichen. Die Photoionisationsraten $\dot{\rho}_{\text{pi}}$ nach Gruzdev weisen für die gewählten Materialparameter bei $\lambda_0 = 800 \text{ nm}$ keine durch Ordnungswechsel bedingten Stufen auf, weshalb die Abflachung im zeitlichen Verlauf der Gesamtelektronendichte hier eine andere Ursache haben muss. Beim ersten Laserpuls (*grün*) ist die Mittenintensität so gewählt, dass die Polstelle in der Photoionisationsrate gerade nicht erreicht wird. Allerdings fällt die Photoionisationsrate vor der Polstelle sehr stark bis auf Null ab, weshalb die Gesamtelektronendichte ρ quasi auf dem bis dahin erreichten Niveau bleibt und dann langsam abklingt. Die maximal erreichte Elektronendichte beträgt hierbei $\rho = 1,5 \cdot 10^{18} \text{ cm}^3$ und ist damit nur einen Faktor 2,3 geringer als bei dem zuvor mit dem KELDYSH-Modell betrachteten Laserpuls (*rot*), obwohl dieser eine um gut den Faktor zwei höhere Mittenintensität hat. Die Ursache hierfür liegt sowohl in der grundsätzlich höheren Photoionisationsrate im Modell von Gruzdev gegenüber dem KELDYSH-Modell (Abb. 2.5), als auch im fehlenden Ordnungswechsel in der Multiphotonenabsorption, wodurch die Photoionisation nach Gruzdev bei diesem Laserpuls (*grün*) hauptsächlich bei der Ordnung $K = 6$ stattfindet und bei dem mit dem KELDYSH-Modell betrachteten Laserpuls (*rot*) größtenteils schon bei $K = 7$. Da letzteres zunächst eine niedrigere Photoionisationsrate bedingt, werden über weite Bereiche bei dem ersten Laserpuls (*grün*) mehr freie Elektronen erzeugt. Das plötzliche starke Absinken der Photoionisationsrate nach Gruzdev vor der 1. Polstelle hat auch entscheidende

Auswirkungen auf den zeitlichen Verlauf des Extinktionskoeffizienten. Da dieser auch vom Absorptionsterm der nichtlinearen Photoionisation in der dielektrischen Funktion (??) abhängt, sinkt κ mit der Photoionisationsrate in zeitlichen Regionen mit entsprechend hohen Intensitäten ebenfalls stark ab. Aufgrund der durchweg höheren Photoionisationsraten steigt der Extinktionskoeffizient früher als bei den nach Keldysh berechneten Laserpulsen (*rot* und *schwarz*) an. Für den Laserpuls (*grün*) bedeutet dies vergleichsweise starke Absorption für den vorderen und hinteren zeitlichen Flügel und quasi keinerlei Veränderungen für die zeitliche Pulsmitte. Die gleichzeitige Brechungsindexerhöhung ist dabei vollständig durch den optischen KERR-Effekt bestimmt und beträgt maximal $\Delta n = 3,2 \cdot 10^{-3}$. Wie sich das in der Propagation und den zeitlichen Pulsverlauf auswirkt, wird sich an späterer Stelle in Abschnitt 5 zeigen.

Beim letzten Laserpuls in Abb. 4.1 wird die Mittenintensität mit $I_{\max} = 1,01 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*orange*) so gewählt, dass die Intensität der 1. Polstelle in der Photoionisationsrate nach Gruzdev erreicht wird. Hierbei nimmt man an, dass beim Erreichen der Polstelle in kurzer Zeit (etwa 2fs) alle verbliebenen Valenzelektronen ionisiert werden [31, 32, 82]. Die maximal erreichbare Elektronendichte beträgt für Kieselglas hierbei etwa $\rho = 3,2 \cdot 10^{23} \text{cm}^{-3}$. Einmal erreicht, bleibt diese während der Anwesenheit des Laserpulses quasi konstant und klingt dann mit der Rekombinationszeit τ_{rek} , wie in den drei anderen Fällen auch, ab. Mit der plötzlich ansteigenden Photoionisationsrate steigen auch der Brechungsindex und der Extinktionskoeffizient stark an. Dabei wird die Brechungsindexerhöhung, im Gegensatz zu den drei vorangegangenen Fällen, von der Photoionisationsrate dominiert. In diesem Fall ist die zeitliche Pulsmitte von extrem hoher Absorption betroffen, welche die Intensität auf einer Strecke von etwa 100nm um gut zwölf Größenordnungen dämpft. Die Gebiete, in denen diese starke Absorption herrscht, werden in den nachfolgenden Betrachtungen in Abschnitt 5 mit dem Auftreten von permanenten Materialmodifikationen (Typ II) gleichgesetzt. Aufgrund der nahezu konstanten, hohen Elektronendichte bleibt auch der Extinktionskoeffizient während der Anwesenheit des Laserpulses konstant hoch und folgt in seinem zeitlichen Verlauf der Elektronendichte. Erst bei abklingendem Laserfeld wird der Absorptionsterm der nichtlinearen Photoionisation in der dielektrischen Funktion (??) so klein, dass die Brechungsindexabsenkung aufgrund der hohen Elektronendichte in Erscheinung tritt. Auch in diesem Fall erfährt nur der zeitlich hintere Teil (etwa ab $t \approx 50\text{fs}$) des Laserpulses Plasmadefokussierung.

Abschließend lässt sich zusammenfassend feststellen, dass die zeitlichen Verläufe des Brechungsindex und des Extinktionskoeffizienten in zwei Regime unterschieden werden können. Während der Anwesenheit des Laserpulses dominiert die Photoionisationsrate zusammen mit dem optischen KERR-Effekt die Änderung dieser beiden Größen. Ist der Laserpuls zeitlich abgeklungen, spielen obige Effekte keine Rolle mehr und die Änderungen in der dielektrischen Funktion (??) werden nur noch durch die Anwesenheit des Elektronenplasmas bestimmt.

Die im Rahmen dieser Arbeit mit den numerischen Simulationen erzielten Ergebnisse wer-

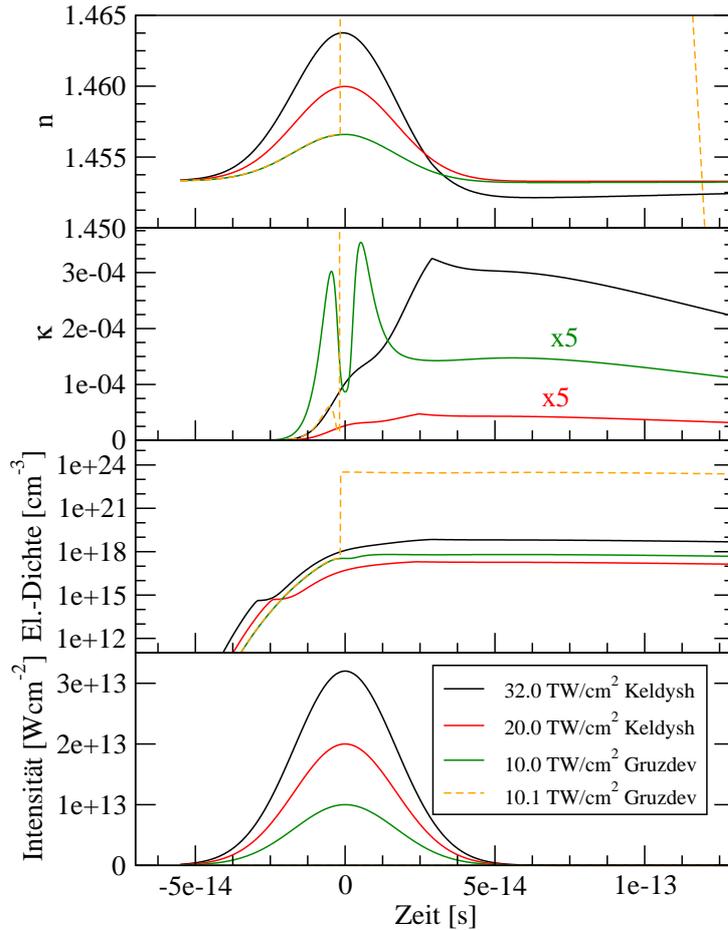


Abbildung 4.3: Graphische Darstellung des zeitlichen Verlaufs des Brechungsindex n (oben) und des Extinktionskoeffizienten κ (darunter), sowie der zugrundeliegenden freien Elektronendichte. Gegenübergestellt werden hierbei die Ergebnisse der Berechnungen der nichtlinearen Photoionisation mit den Modellen nach Keldysh und Gruzdev. Die Stoßionisation wird in beiden Fällen mit dem MRE-Modell beschrieben. Zur besseren Orientierung ist das zeitliche Profil der 40fs-Laserpulse bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ (unten) für vier verschiedene Spitzenintensitäten mit eingezeichnet (siehe Legende). Alle Erläuterungen zum spezifischen Verlauf der Kurven finden sich im Text. Zur besseren graphischen Darstellung wurden die Extinktionskoeffizienten der roten und grünen Kurve mit einem Faktor 5 multipliziert.

den auch mit den experimentell erzeugten Strukturen in Kieselglas aus der vorangegangenen Diplomarbeit [11] verglichen (siehe Anhang *F*). In diesen Experimenten kamen vorrangig 40fs-Laserpulse mit einer Zentralwellenlänge bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ zum Einsatz, weshalb nachfolgend die entsprechenden zeitlichen Verläufe von Brechungsindex n , Extinktionskoeffizient κ und der Elektronendichte ρ betrachtet und zusätzlich mit denen der 110fs-Laserpulse verglichen werden sollen. Die Laserpulse haben für einen besseren Vergleich die selben Mittenintensitäten wie bei der vorangegangenen Betrachtung in Abb. 4.1. Der zeitliche Verlauf der Elektronendichten zeigt daher auch die *Knicke* bei den Ordnungswechseln in der Photoionisationsrate nach Keldysh (*rot* und *schwarz*). Die erreichten Gesamtelektronendichten ($\rho = 2,0 \cdot 10^{17}\text{cm}^{-3}$ (*rot*) und $\rho = 7,0 \cdot 10^{18}\text{cm}^{-3}$ (*schwarz*)) liegen aber aufgrund der kürzeren Pulsdauer in diesen beiden Fällen gut eine Größenordnung unter denen der 110fs-Laserpulse. Bei letzteren werden sowohl mehr freie Elektronen aufgrund von Photoionisation, als auch durch Stoßionisation erzeugt. Im Gegensatz dazu ist die maximal erreichte Elektronendichte beim Laserpuls (*grün*), welcher mit dem Modell nach Gruzdev berechnet wurde, mit $\rho = 6,4 \cdot 10^{17}\text{cm}^{-3}$ nur um etwa einen Faktor 2,3 gesunken. Als eine direkte Folge hiervon ist die nach Gruzdev berechnete Elektronendichte (*grün*) ab dem Ordnungswechsel im KELDYSH-Modell höher als die des Laserpulses nach dem KELDYSH-Modell (*rot*), obwohl dieser eine um Faktor zwei höhere Mittenintensität aufweist. Dies liegt unter anderem auch an dem durch die kürzere Pulsdauer bedingten geringeren

Beitrag der Stoßionisation zur Gesamtelektronendichte. Der zeitliche Verlauf der Elektronendichte für den Laserpuls mit der Mittenintensität $I_{\max} = 1,01 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*orange*) ist sehr ähnlich zu dem des entsprechenden 110fs-Laserpulses – sobald die Intensität der 1. Polstelle erreicht wird, setzt sehr schnell die vollständige Ionisierung ein, gefolgt vom oben diskutierten Abklingverhalten.

Für die zwei mit dem KELDYSH-Modell berechneten Laserpulse (*rot* und *schwarz*) sinkt der Extinktionskoeffizient im selben Maße wie die Elektronendichte um gut eine Größenordnung im Vergleich zu den 110fs-Laserpulsen ab. Das zeitliche Verhalten bleibt jedoch erhalten, das heißt, nur der zeitlich hintere Teil des Laserpuls ist von der ansteigenden Absorption betroffen. Die Brechungsindexerhöhung erfolgt bei beiden Laserpulsen nur aufgrund des optischen KERR-Effekts und lediglich beim Laserpuls mit der höheren Mittenintensität (*schwarz*) tritt eine merkliche Brechungsindexabsenkung von $\Delta n \approx -1,2 \cdot 10^{-3}$ auf. Zu dem Zeitpunkt ($t \approx 35\text{fs}$) der Unterschreitung von n_0 ist der Laserpuls zeitlich bereits so stark abgesunken, dass die Plasmadefokussierung faktisch keinen nennenswerten Einfluss auf den zeitlichen Verlauf des Laserpulses hat.

Aufgrund der höheren Photoionisationsraten im Modell nach Gruzdev ist der Einfluss dieser auf den zeitlichen Verlauf und die maximal erreichte Stärke des Extinktionskoeffizienten deutlich stärker als bei dem KELDYSH-Modell. Deshalb ist dessen zeitlicher Verlauf für den 40fs-Laserpuls mit $I_{\max} = 1 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*grün*) sehr ähnlich zu dem des entsprechenden 110fs-Laserpulses und auch die maximal erreichten Werte sind nahezu identisch. Der zeitliche Verlauf des Brechungsindex wird auch für diesen 40fs-Laserpuls nur durch den optischen KERR-Effekt bestimmt. Bei dem zweiten nach dem Modell von Gruzdev berechneten 40fs-Laserpuls wird mit $I_{\max} = 1,01 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*orange*) wieder die 1. Polstelle der Photoionisationsraten erreicht und das einsetzende Verhalten für die Elektronendichte, den Extinktionskoeffizienten und den Brechungsindex sind ebenfalls nahezu identisch zu dem des entsprechenden 110fs-Laserpulses, lediglich die zeitliche Dynamik ist entsprechend der kürzeren Pulsdauer verändert. Die Absenkung des Brechungsindex unterhalb von n_0 (*orange*) aufgrund der Dichte der freien Elektronen erfolgt wegen der zeitlichen Dynamik der Stoßionisation verzögert. Zu diesem Zeitpunkt ($t \approx 120\text{fs}$) ist der Laserpuls bereits so stark abgeklungen, dass keine Plasmadefokussierung des Laserpulses zu erwarten ist.

Abschließend lässt sich im Vergleich der zwei verschiedenen Pulsdauern folgendes feststellen: Bei kürzer werdenden Pulsdauern nimmt der Anteil der durch Stoßionisation entstehenden Elektronen, aufgrund der durch das MRE-Modell vorgegebenen zeitlichen Dynamik, stark ab. Bei der Verwendung des KELDYSH-Modells sinkt hierbei nicht nur die resultierende Gesamtelektronendichte, sondern der zeitliche Verlauf und die Stärke des Extinktionskoeffizienten und des Brechungsindex sind unmittelbar mit betroffen und sinken im selben Maße ab. Wird dagegen das Modell von Gruzdev zur Beschreibung der nichtlinearen Photoionisation verwendet, sind bei

Verwendung des selben Parametersatzes wie bei Keldysh nicht nur die Photoionisationsraten höher, sondern gleichzeitig auch der Beitrag dieser zum Extinktionskoeffizienten. Damit unterliegt dieser nicht so stark einer Veränderung der Pulsdauer. Wird zusätzlich noch die Intensität der 1. Polstelle, wie bei den Laserpulsen mit $I_{\max} = 1,01 \cdot 10^{13} \text{W/cm}^2$ (*orange*) erreicht, ist der Verlauf obiger Größen sehr ähnlich und nur die zeitliche Dynamik variiert mit der Pulsdauer.

In Abschnitt 2.5 wurden bereits die Schwierigkeiten diskutiert, welche auftreten, wenn man aus den experimentellen Parametern und den damit erzeugten permanenten Materialmodifikationen auf die Intensitäten im Fokusgebiet bzw. auf die dort herrschenden Elektronendichten schließen möchte. Der in diesem Abschnitt vollzogene Vergleich der Gesamtelektronendichten lässt bereits folgende Schlussfolgerungen zu: Legt man für die Erzeugung der freien Elektronen durch nichtlineare Photoionisation das Modell von Keldysh zu Grunde und fordert gleichzeitig eine bestimmte Gesamtelektronendichte für das Auftreten eines optischen Durchbruchs (permanente Materialmodifikationen vom Typ II), dann muss mit sinkender Pulsdauer die Spitzenintensität stark ansteigen. Legt man dagegen das Modell von Gruzdev den Berechnungen zugrunde, so erfolgt der optische Durchbruch für Laserpulse im Femtosekundenbereich immer, wenn eine bestimmte Intensität erreicht oder überschritten wurde, da dort das Material vollständig ionisiert wird. Bei Pulsdauern im Pikosekundenbereich nähert sich der zeitliche Verlauf der Erzeugung freier Elektronen nach Gruzdev stark dem Verhalten an, welches man auch bei Verwendung des KELDYSH-Modells erhält, da dann geringere Spitzenintensitäten zum Erreichen einer bestimmten Gesamtelektronendichte ausreichen. Dadurch wird die Intensität der 1. Polstelle nicht mehr erreicht und die Photoionisationsrate $\dot{\rho}_{\text{pi}}$ wird im Wesentlichen, wie bei Keldysh in diesem Intensitätsbereich auch, durch reine Multiphotonenabsorption bestimmt. Die Photoionisationsraten nach Gruzdev sind dabei zwischen einer und drei Größenordnungen höher als bei Keldysh (siehe Abschnitt 2.4.3), weshalb sich damit auch im Pikosekundenbereich niedrigere Schwellfluenzen für einen optischen Durchbruch ergeben.

In den meisten experimentellen Untersuchungen zu LIB in Kieselglas wird nicht die Zerstörschwelle für einen einzelnen Laserpuls, sondern für multiplen Beschuss bestimmt [65], was eine gegenüber dem ersten Fall niedrigere Zerstörschwelle zur Folge hat. Die Ursache hierfür liegt wahrscheinlich im Einbringen kleinster Defekte ins Material mit jedem Laserpuls und einer daraus resultierenden geringeren Zerstörschwelle, da das Elektronenplasma selbst bei vollständiger Ionisation mit $\rho = 3,2 \cdot 10^{23} \text{cm}^{-3}$ nach 8ps bereits um 23 Größenordnungen abgeklungen ist und damit nicht mehr mit dem nachfolgenden Laserpuls wechselwirken kann. Typische Wiederholraten von Oszillatoren liegen bei 80MHz und der zeitlichen Abstand zweier Laserpulse damit bei 12,5ns. Werden die Experimente mit einem Verstärker durchgeführt, ist der zeitliche Abstand der Laserpulse aufgrund der geringeren Wiederholrate noch größer.

5 Betrachtungen zur Wechselwirkung fokussierter Laserpulse mit Kieselglas

Im vorangehenden Kapitel 4 wurden die Eigenschaften von ionisiertem Kieselglas anhand der Betrachtung der entstehenden Elektronendichten ρ , des Brechungsindex n und des Extinktionskoeffizienten κ für zwei verschiedene Pulsdauern näher untersucht. Zuvor wurden in Abschnitt 2.3 die aus dem optischen KERR-Effekt resultierenden Modifikationen für kollimierte Laserpulse mit einem gaußförmigen Strahlprofil diskutiert. Aufgrund der Fokussierung der Laserpulse durch ein optisches System sind die resultierenden Deformationen der Pulsfront jedoch stark abhängig von der verwendeten Fokussieroptik und nicht pauschal vorhersagbar. Wird zusätzlich zur Berücksichtigung des optischen KERR-Effekts die nichtlineare Photoionisation mit dem KELDYSH-Modell beschrieben, resultiert die intensitätsabhängige Brechungsindexerhöhung in den hier betrachteten Intensitätsbereichen dennoch fast ausschließlich aus dem optischen KERR-Effekt, welcher hauptsächlich eine leichte zusätzliche laterale Verengung des fokalen Gebietes bedingt. Nachfolgend wird auf eine gesonderte Betrachtung der Wechselwirkung des Laserpulses mit dem Material unter alleiniger Berücksichtigung des optischen KERR-Effekts verzichtet und gleich die vollständige Wechselwirkung mit den Absorptionsprozessen betrachtet. Zusätzlich erfolgt der Vergleich mit dem zweiten Modell für die nichtlineare Photoionisation nach Gruzdev. In diesem Fall kommt es beim Erreichen der Intensität der 1. Polstelle in der Photoionisationsrate (Abb. 2.5) sowohl zu starker Absorption, als auch zu einer starken Erhöhung des Brechungsindex, was einen wesentlichen Unterschied zur Behandlung im Rahmen des KELDYSH-Modells darstellt. Für niedrigere Intensitäten gleichen sich die Verläufe der Photoionisationsraten beider Modelle, allerdings ist die nach Gruzdev stets etwa eine Größenordnung höher. Damit sind auch die Materialwechselwirkungen in den Bereichen niedriger Intensitäten sehr ähnlich, zumal die plasmainduzierte Änderungen im Brechungsindex und im Extinktionskoeffizienten sehr gering ausfallen. Daher wird die Betrachtung hier auch auf den interessanten Teil, das heißt das Erreichen der Polstelle, beschränkt. Nachfolgend wird zunächst die raumzeitliche Verzerrung der fokussierten Laserpulse durch die nichtlineare Wechselwirkung mit dem Material betrachtet und anschließend die daraus resultierenden Elektronendichteverteilungen in Kieselglas analysiert. Abschließend erfolgt der Vergleich mit experimentell erzeugten Materialmodifikationen.

5.1 Fokussierung aberrierter ultrakurzer Laserpulse in Kieselglas

Die in Kapitel 2.2 eingeführten Methoden bilden die Grundlage der Simulation der Fokussierung ultrakurzer Laserpulse mit realen optischen Systemen in transparente Materialien. Dies ermöglicht erst die nachfolgende Analyse der Wechselwirkungen zwischen aberrierten Laserpulsen und nichtlinearen Materialresponen. Darüber hinaus können diese Ergebnisse zu Experimenten, die mit genau diesen Fokussieroptiken durchgeführt wurden, verglichen werden. Begonnen wird mit Betrachtungen zur idealen Fokussierung und dem gleichzeitigen Einfluss von Dispersion auf die raum-zeitliche Form der Pulsfront unter Berücksichtigungen nichtlinearer Materialwechselwirkungen. Anschließend werden die zusätzlichen Einflüsse von chromatischen und sphärischen Aberrationen anhand der Fokussierung mit zwei verschiedenen realen Optiken untersucht. Die genaue Spezifikation der drei Fokussieroptiken befindet sich im Anhang *E*, wobei alle Optiken für einen besseren Vergleich der Effekte eine numerische Apertur im Bereich von 0,45 aufweisen. Für den Vergleich der linearen und nichtlinearen Fokussierung mit dem Mikroskopobjektiv und der Asphäre wird eine Pulsenergie von 57nJ gewählt, da im Experiment bei dieser Energie jeweils ein optischer Durchbruch (LIB) im Material erzeugt wurde (siehe Anhang *F*). Für alle nachfolgenden Darstellungen der Pulsfronten werden diese in jeder Ebene separat normiert. Die eigentlichen Verhältnisse der Spitzenintensitäten in den jeweiligen Ebenen werden durch die Flächeninhalte der roten Quadrate am unteren Bildrand repräsentiert. Es werden immer der lineare Fall und die zwei nichtlinearen Fälle mit der jeweiligen Modellierung der Photoionisation nach Keldysh oder Gruzdev für eine Pulsdauer von 40fs (FWHM) miteinander verglichen.

Es wird, wie in Abschnitt 2.5 bereits diskutiert, im Allgemeinen davon ausgegangen, dass permanente Materialmodifikationen durch eine bestimmte Elektronendichte im Material hervorgerufen werden. Da diese Dichte keine im Experiment zugängliche Größe ist, kann sie nur über den Vergleich zwischen Experiment und numerischer Simulation bestimmt werden. Nachfolgend werden daher die jeweiligen maximalen Elektronendichten im Material systematisch für die drei betrachteten Fokussieroptiken mit verschiedenen Pulsenergien untersucht und mit experimentell erzeugten Strukturen verglichen. Dabei werden die Ergebnisse, welche mit den zwei Modellen zur Photoionisation nach Keldysh und Gruzdev berechnet wurden, miteinander verglichen.

5.1.1 Dispersions- und Beugungseffekte

Im Fall idealer Fokussierung gibt es keine Aberrationen und keine Dispersionseffekte seitens der Fokussieroptik. Unter Laborbedingungen und der Verwendung realer Optiken kommt ein Mikroskopobjektiv, welches für den verwendeten Wellenlängenbereich korrigiert ist, bei gleichzeitiger externer Kompensation der Dispersionseffekte diesem idealen Fall am nächsten. Für die numerischen Simulationen im Rahmen dieser Arbeit wird in Anlehnung an das Experiment (siehe

Anhang F) die Fokussierung mit einem Mikroskopobjektiv $185\mu\text{m}$ tief in Kieselglas¹ ohne externe Kompensation der Dispersion untersucht. Neben den Dispersionseffekten der Optik, welche den Eingangspuls zeitlich auf etwa 81fs (FWHM) verlängern, kommen noch leichte sphärische und chromatische Aberrationen hinzu, da das Mikroskopobjektiv nicht für den Einsatz bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ konzipiert wurde, sondern für den sichtbaren Wellenlängenbereich korrigiert ist. Trotzdem bleibt die Dispersion in diesem Fall der dominante Effekt der Pulsfrontverzerrung.

In Abb. 5.1 sind der lineare Fall (oben) und die zwei nichtlinearen Fälle (Mitte und unten) einander gegenübergestellt. Im Bereich vor der Brennebene bei $z = 185\mu\text{m}$ erfolgt keine nennenswerte Veränderung des raum-zeitlichen Verlaufs der Pulsfront gegenüber dem linearen Fall, da hier die Modifikationen im Brechungsindex aufgrund der niedrigen Intensität zu gering sind und auch Absorption keine Rolle spielt. In unmittelbarer Fokusumgebung führt der optische KERR-Effekt zu einer lateralen räumlichen Verengung der Intensitätsverteilung², welche zusammen mit der zusätzlich in Erscheinung tretenden Absorption den raum-zeitlichen Pulsverlauf modifiziert. Erkennen kann man dies am besten an den aus dem Fokus herauslaufenden Pulsfronten, die durch die Störungen im Fokusgebiet gegenüber dem linearen Fall verändert sind. Die während der Propagation erreichte maximale Intensität beträgt im Fall des KELDYSH-Modells $5,27 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. Dies ist leicht höher als bei der linearen Fokussierung, bei welcher eine maximale Intensität von $4,73 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ erreicht wird. Begrenzt durch das Erreichen der 1. Polstelle in der Ionisationsrate bei Gruzdev beträgt dort die maximale Intensität $1 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. Der Vergleich der beiden nichtlinearen Fälle zeigt vor allem die Auswirkungen der zuvor in Kapitel 4 diskutierten unterschiedlichen zeitlichen Verläufe des Extinktionskoeffizienten (siehe Abb. 4.3). Legt man den Berechnungen das KELDYSH-Modell zugrunde (Abb. 5.1 (Mitte)), ist hauptsächlich der zeitlich hintere Teil des Laserpulses von Absorption betroffen. Daher ist die Deformation der auslaufenden Pulsfront nur sehr gering. Der markanteste Unterschied zum linearen Fall ist die Energieumverteilung in Richtung der optischen Achse, was dort zu einem raum-zeitlichen Maximum der Pulsfront führt. Bei den Berechnungen mit dem Modell von Gruzdev sind die raum-zeitlichen Verzerrungen der Pulsfront viel stärker ausgeprägt (Abb. 5.1 (unten)), da in diesem Fall der gesamte Laserpuls ab dem Erreichen der Schwellintensität von starker Absorption betroffen ist. Dies gilt insbesondere für das Gebiet der höchsten Intensitäten um die optische Achse, wo es zusätzlich zur Ausbildung eines zeitlichen Doppelpulses kommt. Die räumliche Gesamtausdehnung der auslaufenden Pulsfronten bleibt hingegen in beiden nichtlinearen Fällen nahezu unverändert gegenüber der der linearen Fokussierung.

¹Dieses Mikroskopobjektiv ist für die Fokussierung in $170\mu\text{m}$ BK7 im VIS korrigiert. Da in den Experimenten die Fokussierung in einer Tiefe von etwa $185\mu\text{m}$ erfolgte, sind auch die numerischen Simulationen für diese Tiefe durchgeführt worden und ermöglichen somit einen besseren Vergleich.

²In Abb. 5.1 ist diese Verengung aufgrund der Darstellungsweise nicht sichtbar. Sie macht sich aber in einer Erhöhung der Spitzenintensität um gut 11% bemerkbar.

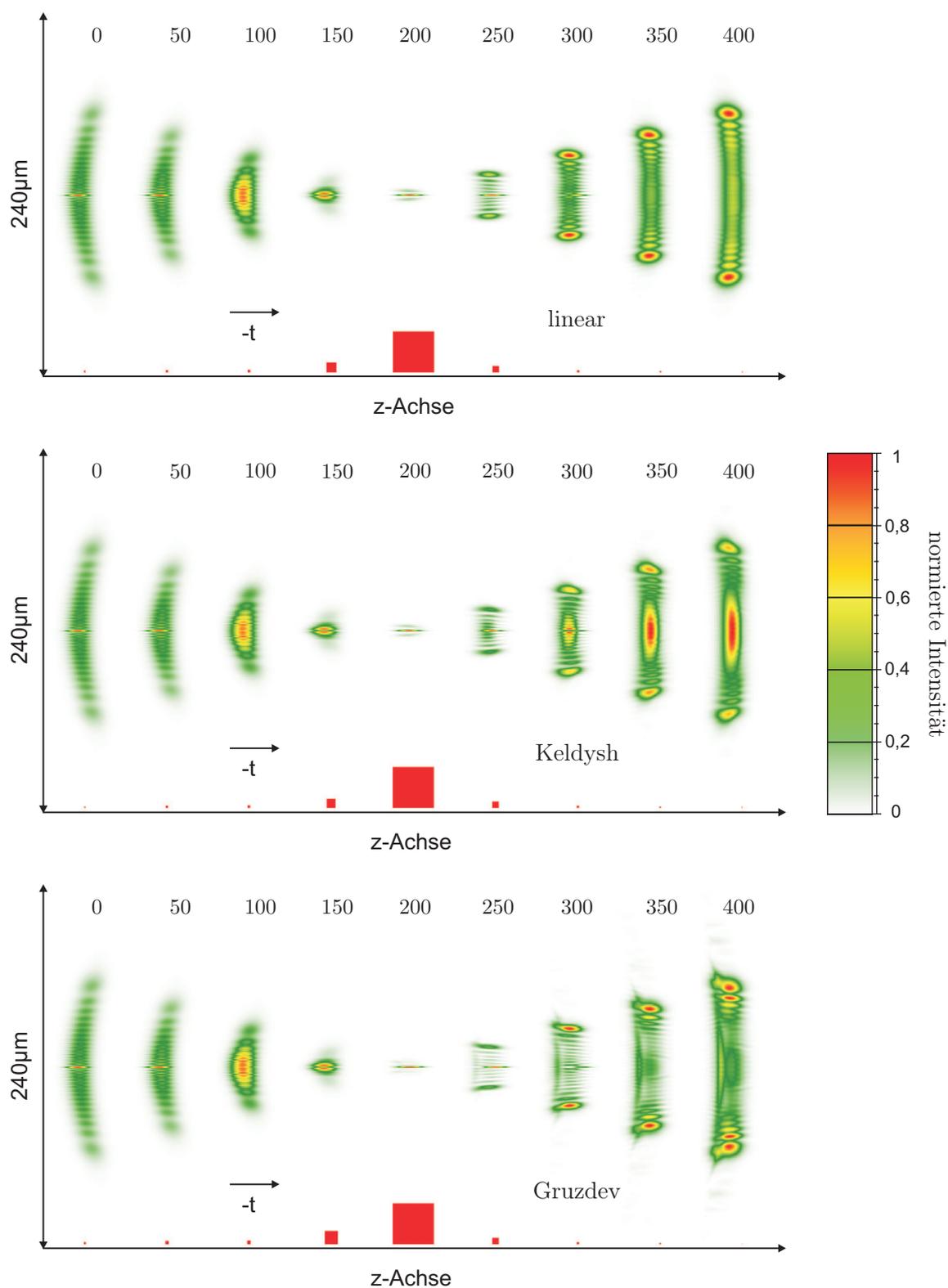


Abbildung 5.1: Dargestellt sind die zeitlichen (normierten) Intensitätsverläufe der Laserpulse bei der Fokussierung eines 40fs -Laserpulses mit dem Mikroskopobjektiv in verschiedenen Ebenen, wobei die Materialgrenze durch $z = 0\mu\text{m}$ gekennzeichnet ist und die Abstände der Ebenen in μm angegeben sind. Die Erläuterungen zu den speziellen Verläufen der linearen Fokussierung (oben) und der nichtlinearen Fälle nach Keldysh (Mitte) und Gruzdev (unten) finden sich im Text. Die Pulsenergie beträgt 57nJ .

Besonders hervorzuheben ist auch, dass der raum-zeitliche Verlauf des BESSEL-Begleitpulses aufgrund seines besonderen Ursprungs, der Beugung an der Apertur des optischen Systems [11, 13, 91], in den nichtlinearen Fällen kaum Veränderung erfährt und auch nach der Brennebene in beiden nichtlinearen Fällen noch sichtbar ist (Abb. 5.1). Absorption und Brechungsindexmodifikationen am Ort (x, y, z) lassen die raum-zeitliche Struktur dieses speziellen X-Pulses am Ort $(x, y, z + \delta z)$ im Wesentlichen unberührt.

In Abb. 5.2 sind die maximalen Elektronendichten für sechs verschiedene Pulsenergien für die Fokussierung mit dem Mikroskopobjektiv in $185\mu\text{m}$ Kieselglas dargestellt. Die Darstellung ist für eine bessere Übersicht logarithmisch und für alle Bilder gleich mit der abgebildeten Skala. Dabei muss angemerkt werden, dass bei dem Modell für die nichtlineare Photoionisation nach Gruzdev die vollständige Ionisierung der Valenzelektronen schlagartig einsetzt und durch die dunkelroten Gebiete gekennzeichnet ist. Die maximale Elektronendichte beträgt dort $\rho_{\text{max}} = 3,2 \cdot 10^{23} \text{cm}^{-3}$, entsprechend 16 Valenzelektronen pro Formeleinheit SiO_2 . Die dargestellten REM-Aufnahmen der Materialmodifikationen sind ausführlich im Anhang *F* erläutert und dienen hier dem Größenvergleich und der Abschätzung der Schwelldichte. Die unterschiedlichen Auswirkungen der Modellierung der nichtlinearen Photoionisation mit den Modellen nach Keldysh und Gruzdev zeigten sich bereits in den modifizierten raum-zeitlichen Verläufen der Pulsfronten in Abb. 5.1. Dies setzt sich bei den maximal an einem Ort (x, y, z) erreichten Elektronendichten fort. Wird das Keldysh-Modell verwendet (Abb. 5.2 (oben)), resultieren glatte Verteilungen in der Elektronendichte, welche für steigende Pulsenergien sukzessive höhere maximale Dichten erreichen, wie es nach dem Verlauf der Photoionisationsrate in Abb. 2.5 mit steigenden Intensitäten im fokalen Gebiet zu erwarten ist. Die numerischen Simulationen sind mit den im Experiment verwendeten Pulsenergien durchgeführt worden und sollten daher einen Vergleich der Materialmodifikationen mit den berechneten maximalen Elektronendichten zulassen. Begonnen wird mit der Betrachtung der im Rahmen des KELDYSH-Modells berechneten Elektronendichten. Bei einer Pulsenergie von 28nJ treten im Experiment zum ersten Mal nachweisbare Materialmodifikationen vom Typ I auf. Die berechnete maximal erreichte Elektronendichte beträgt hierfür etwa $7 \cdot 10^{18} \text{cm}^{-3}$. In den Fällen höherer Energie ist die Ausdehnung der Materialmodifikation größer und die maximal erreichten Elektronendichten steigen auf $7,5 \cdot 10^{19} \text{cm}^{-3}$ (38nJ) und $2,1 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-3}$ (47nJ) an. Bei einer noch höheren Pulsenergie von 57nJ kommt es im Experiment zu einem optischen Durchbruch im Material (LIB), wobei die Dichte in der Simulation nur geringfügig um einen Faktor zwei auf $4,2 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-3}$ ansteigt. Im letzten betrachteten Fall (66nJ) kam es im Experiment zu einem doppelten optischen Durchbruch mit einem Abstand von etwa $2\mu\text{m}$. Die in den numerischen Simulationen für diesen Fall berechnete maximale Elektronendichte beträgt etwa $6 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-3}$. Der qualitative Vergleich der numerischen Simulationen mit den im Experiment erzeugten Strukturen zeigt gute Übereinstimmungen bezüglich der Form und der Ausdehnung der Verteilung der maximalen Elektronendichten mit den im Experiment

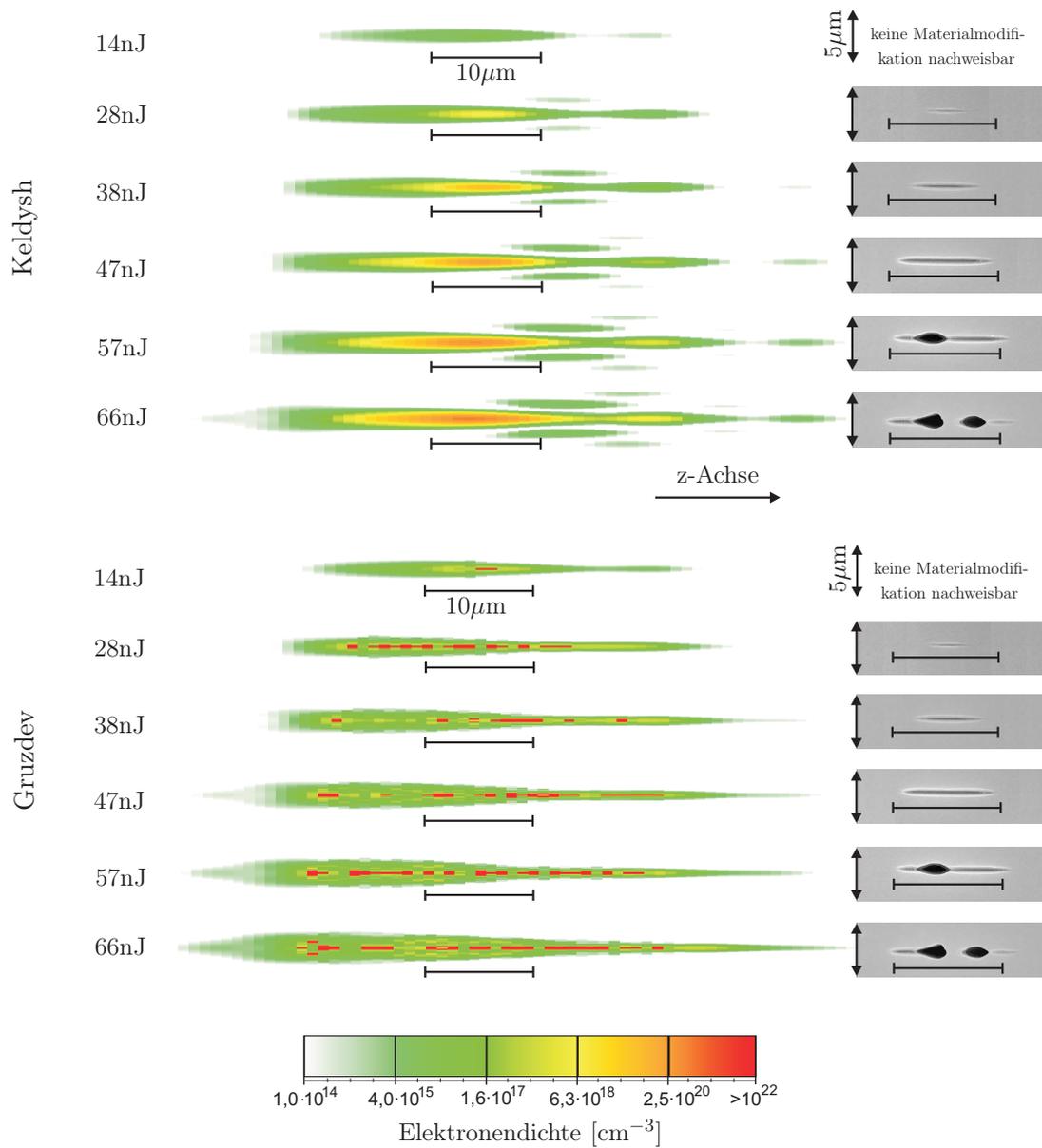


Abbildung 5.2: Übersicht der für die beiden Modelle der nichtlinearen Photoionisation von Keldysh (oben) und Gruzdev (unten) berechneten maximalen Elektronendichten im fokalen Gebiet des Mikroskopobjektives für die Fokussierung in 185µm Kieselglas und sechs verschiedene Pulsenergien. Zum Vergleich sind REM-Aufnahmen experimentell erzeugter Materialmodifikationen mit dargestellt, welche vollständig in Anhang *F* erläutert sind. Alle Darstellungen besitzen den selben Maßstab. Die Erläuterungen zum speziellen Verlauf der Elektronendichteverteilungen befinden sich im Text. Die Darstellung sind bzgl. ihrer räumlichen Lage im Fokusgebiet zueinander ausgerichtet.

erzeugten Materialmodifikationen vom Typ I. Die Gebiete der optischen Durchbrüche für höhere Pulsenergien spiegeln sich dagegen nicht in den berechneten Verteilungen wieder. Es kann lediglich eine leicht erhöhte maximale Elektronendichte beobachtet werden. Diese liegt auch noch einen Faktor zweieinhalb unterhalb der kritischen Elektronendichte $\rho_{\text{krit}} = 1,48 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$, bei welcher starke Absorption seitens des Plasmas auftritt.

Legt man den numerischen Simulationen dagegen das Modell von Gruzdev zur Beschreibung der nichtlinearen Photoionisation zu Grunde, ergeben sich signifikant andere Verteilungen der maximalen Elektronendichten im fokalen Gebiet des Mikroskopobjektivs. Ab einer Pulsenergie von 10nJ wird im fokalen Gebiet die Intensität der 1. Polstelle in der Photoionisationsrate (Abb. 2.5) erreicht. Mit steigender Pulsenergie erfolgt sowohl lateral als auch in Ausbreitungsrichtung des Laserpulses eine Ausdehnung dieser Gebiete, welche in Abb. 5.2 rot dargestellt sind. Zusätzlich weisen die hochionisierten Gebiete vollständiger Ionisierung eine Art Substruktur mit schwankender lateraler Breite und Unterbrechungen in z-Richtung auf. Auffällig ist zudem die starke Lokalisierung dieser hohen Elektronendichten gegenüber den umgebenen Dichten, welche fünf bis sechs Größenordnungen niedriger sind. Bei einer Pulsenergie von 14nJ ist experimentell keine Materialmodifikation nachgewiesen worden. Die berechnete Verteilung der maximalen Ionisierung ist in diesem Fall auch nur etwa 200nm breit und $2\mu\text{m}$ lang. Bei der nächsthöheren Pulsenergie von 28nJ beträgt die maximale Breite des Gebietes bereits etwa 400nm und es entstehen längere zusammenhängende Gebiete. Bei einer Pulsenergie von 57nJ tritt im Experiment ein optischer Durchbruch auf und das berechnete Gebiet vollständiger Ionisierung weist eine deutlich größere Breite von etwa 600nm auf. Analoges gilt für die Pulsenergie von 66nJ, bei welcher die numerisch berechnete Struktur der maximalen Elektronendichteverteilung besser zum experimentell erzeugten doppelten optischen Durchbruch passt. Obwohl es sich bei der Beschreibung der nichtlinearen Photoionisation nach Gruzdev um ein noch sehr einfaches Modell handelt, so zeigt sich an obigen Vergleichen doch schon sehr deutlich das Potential der verbesserten Beschreibung der Materialeigenschaften durch die modifizierte Bandstruktur. Vollständige Übereinstimmungen zum Experiment sind aber aufgrund der recht einfachen Beschreibung von Kieselglas als genäherter periodischer Festkörper mit einem kleinen Satz von Materialparametern nicht zu erwarten. Zudem wurden auch weitere Wechselwirkungen mit dem Material, wie zum Beispiel die Streuung an Defekten, die Reflektion an der Oberfläche und die Erzeugung höherer Harmonischer, nicht in den Simulationen berücksichtigt, weshalb die Pulsenergie im Material aller Wahrscheinlichkeit nach stets geringer ist, als die im Experiment gemessene Pulsenergie am Laserausgang.

Vergleicht man die numerischen Ergebnisse mit der Modellierung der Photoionisation nach Gruzdev mit den experimentell erzeugten Strukturen, kann eine mögliche Erklärung für deren Entstehung wie folgt lauten: Es scheint weder sinnvoll eine Schwelldichte, wie im Fall der üblichen Interpretation des KELDYSH-Modells, anzunehmen, noch das Überschreiten der 1. Polstelle in der Ionisationsrate des Modells von Gruzdev und die daraus resultierende Ionisierung sofort mit einem optischen Durchbruch (LIB) zu assoziieren. Vielmehr bestimmt wahrscheinlich die laterale Ausdehnung, sowie die Länge der hochionisierten Gebiete (Volumen und Form) über die Entstehung einer Materialmodifikation vom Typ I oder Typ II. Ab einer gewissen lateralen Ausdehnung, welche in den obigen Simulationen mit etwa 400nm (Durchmesser) angegeben werden

kann, entstehen Modifikationen vom Typ I. Übersteigt das generierte Plasma eine laterale Ausdehnung von etwa 600nm (Simulation), so treten permanente Materialmodifikationen (Typ II) auf. Es ist bekannt, dass sich das im Material entstehende Elektronenplasma ausdehnt [83]. Daher kann man vermuten, dass beim Überschreiten eines kritischen Volumens kein ausreichender Energieabtransport mehr möglich ist und somit, statt der Umordnung chemischer Bindungen (Typ I), Materialzerstörung auftritt. Die hier angegebenen Ausdehnungen sind zum jetzigen Zeitpunkt als grobe Orientierung anzusehen, da wie bereits erwähnt, die exakte Pulsenergie im experimentellen Fokus nicht genau genug bekannt ist.

5.1.2 Chromatische Aberrationen

Wird für die Fokussierung eines 40fs-Laserpulses eine Asphäre verwendet, so treten aufgrund der chromatischen Aberrationen auch im linearen Fall raum-zeitliche Verzerrungen der Pulsfront auf, welche die Pulsdauer im Fokus auf etwa 89fs (FWHM) verlängern und oft als hufeisenförmig beschrieben werden. In Abb. 5.3 (oben) sind die Pulsfronten für den linearen Fall der Fokussierung mit einer Asphäre (siehe Anhang E) in Kieselglas in einer Tiefe von $260\mu\text{m}$ dargestellt. Detaillierte Betrachtungen zu den Auswirkungen chromatischer Aberrationen finden sich in [2, 4, 5, 11, 13, 91].

Im Falle der nichtlinearen Materialwechselwirkungen zeigt sich ein ähnliches Verhalten wie bei dem Mikroskopobjektiv. Unter Verwendung des KELDYSH-Modells erleidet die Pulsfront kaum zusätzliche Verzerrungen (Abb. 5.3 (Mitte)). Die Veränderungen machen sich lediglich als schwache zusätzliche Pulsfront vor der Hauptpulsfront bemerkbar, enthalten aber deutlich weniger Energie als diese. Die maximal erreichte Intensität im Material beträgt hierbei $5,91 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$, was etwas niedriger als bei der linearen Fokussierung ist, bei welcher $6,16 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ erreicht werden. Allerdings sind diese Intensitäten etwa 10% höher als bei der Fokussierung mit dem Mikroskopobjektiv. Dies liegt an der speziellen Wahl der Asphäre, welche für die Fokussierung bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ und einer Tiefe von $250\mu\text{m}$ konzipiert wurde. Durch die vorhandenen chromatischen Aberrationen kommt es im Fokus zu einer Überkreuzung der äußeren Flügel der Pulsfront, was zu einem schmalen fokalen Gebiet hoher Intensität führt. Wird das Modell nach Gruzdev verwendet (Abb. 5.3 (unten)), ändern sich die raum-zeitlichen Verläufe der auslaufenden Pulsfront gänzlich gegenüber der linearen Fokussierung. Die ursprüngliche Form der Pulsfront ist in diesem Falle noch als schwacher Intensitätsverlauf erkennbar. Der Hauptanteil der Energie steckt aber in einem zeitlich dazu verzögerten Teil der Pulsfront, welcher stark um die optische Achse konzentriert ist und während der Propagation nur langsam seine Form verändert. Die maximal erreichte Intensität im Material wird durch die 1. Polstelle in der Ionisationsrate auf etwa $1 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ beschränkt. Auch unter Anwesenheit chromatischer Aberrationen wird in beiden Fällen der BESSEL-Begleitpuls in seiner Form und Position zur Pulsfront kaum von den nichtlinearen Materialwechselwirkungen beeinflusst.

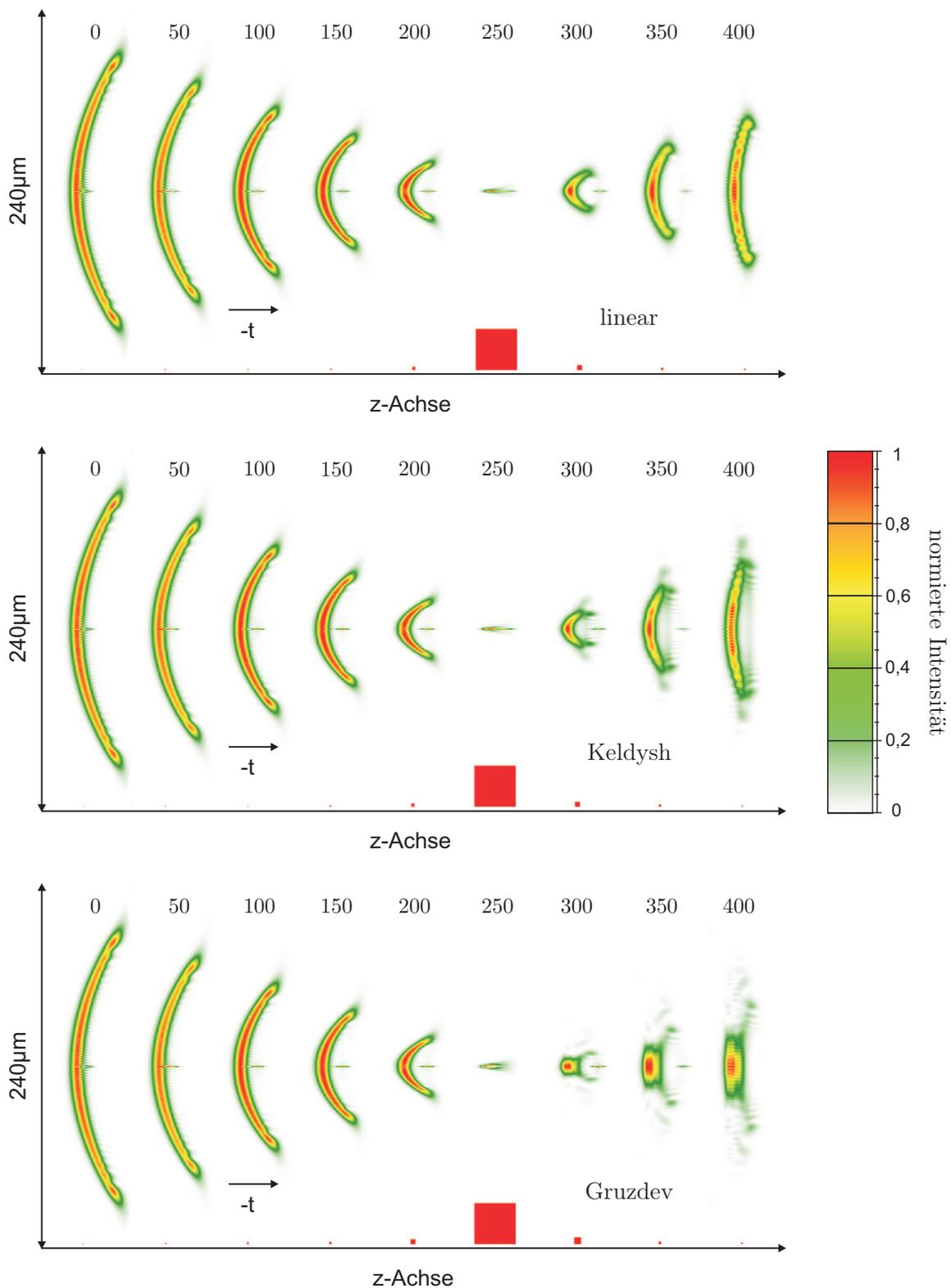


Abbildung 5.3: Dargestellt sind die zeitlichen Intensitätsverläufe der Laserpulse bei der Fokussierung eines 40fs-Laserpulses mit der Asphäre in verschiedenen Ebenen, wobei die Materialgrenze durch $z = 0\mu\text{m}$ gekennzeichnet ist und die Abstände der Ebenen in μm angegeben sind. Die Erläuterungen zu den speziellen Verläufen der linearen Fokussierung (oben) und der nichtlinearen Fälle nach Keldysh (Mitte) und Gruzdev (unten) finden sich im Text. Die Pulsenergie beträgt 57nJ.

Die Betrachtung der Verteilungen der maximal erreichten Elektronendichten im fokalen Gebiet der Asphäre in Abb. 5.4 zeigt ein ähnliches Verhalten bei dem Mikroskopobjektiv. Bei den Berechnungen mit dem KELDYSH-Modell entstehen wieder glatt verlaufende Elektronendichteverteilungen, die in ihrer Ausdehnung in z-Richtung allerdings kürzer sind als beim Mikroskopobjektiv. Aufgrund der leicht höheren Intensität und der I^7 -Abhängigkeit der Photoionisationsrate in diesem Intensitätsbereich, sind die erreichten maximalen Elektronendichten durchweg höher als bei dem Mikroskopobjektiv. Für die Pulsenergien 28nJ ($1,11 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-3}$), 38nJ ($4,18 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-3}$) und 47nJ ($7,18 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-3}$) beträgt dieser Unterschied etwa eine Größenordnung. Dies steht im Widerspruch zu den experimentellen Ergebnissen, bei welchen für das Mikroskopobjektiv ab einer Pulsenergie von 28nJ bereits Materialmodifikationen nachweisbar waren (Abb. 5.2), bei der Asphäre hingegen nicht. Mit beiden Fokussieroptiken kommt es im Experiment bei einer Pulsenergie von 57nJ zu einem optischen Durchbruch (LIB). Die hierbei erreichte maximale Elektronendichte beträgt $8,51 \cdot 10^{20} \text{cm}^{-3}$ und ist damit einen Faktor zwei höher als beim Mikroskopobjektiv. Dieser Unterschied schrumpft für eine Pulsenergie von 66nJ ($1,06 \cdot 10^{21} \text{cm}^{-3}$) weiter zusammen.

Unter Verwendung des Modells nach Gruzdev ergeben sich wieder signifikant andere Verteilungen der maximalen Elektronendichten im fokalen Gebiet. Diese sind modellbedingt den

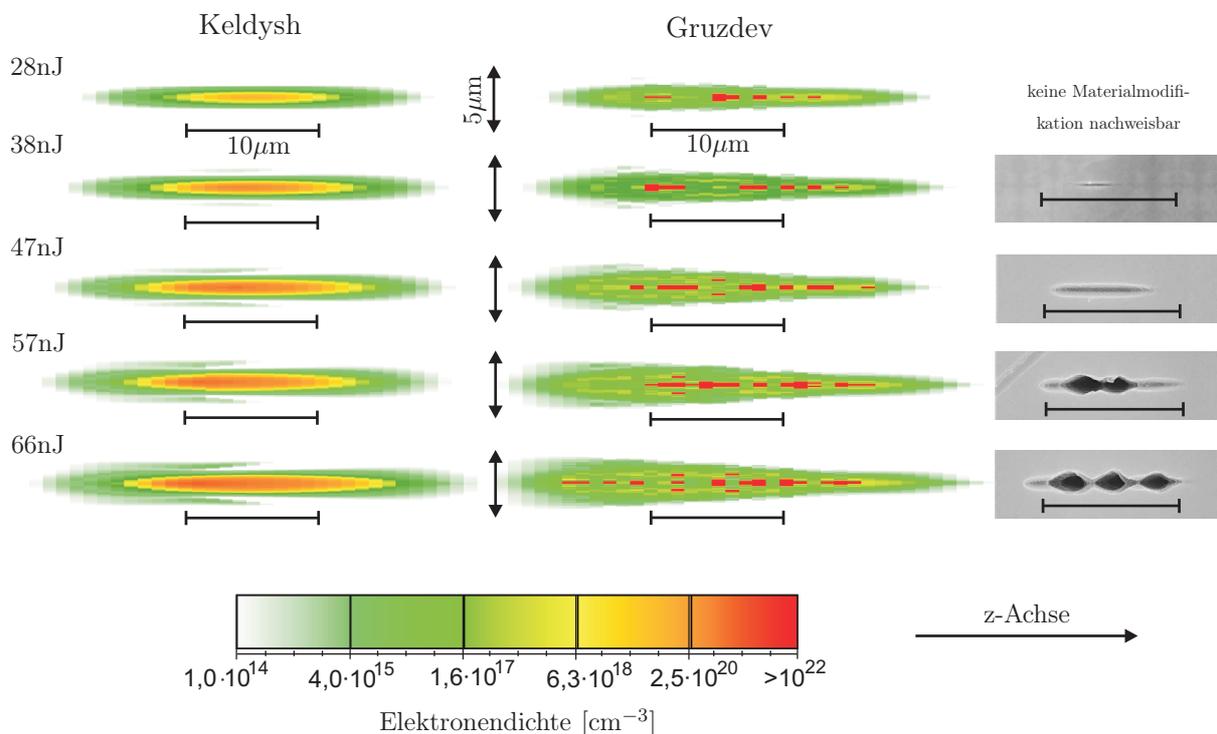


Abbildung 5.4: Übersicht der für die beiden Modelle der nichtlinearen Photoionisation von Keldysh (links) und Gruzdev (rechts) berechneten maximalen Elektronendichten im fokalen Gebiet der Asphäre für die Fokussierung in $260 \mu\text{m}$ Kieselglas für fünf verschiedene Pulsenergien. Zum Vergleich sind REM-Aufnahmen von experimentell erzeugten Materialmodifikationen mit dargestellt, welche vollständig in Anhang F erläutert sind. Alle Darstellungen sind im selben Maßstab. Die Erläuterungen zum speziellen Verlauf der Elektronendichteverteilungen befinden sich im Text. Die Darstellung sind bzgl. ihrer räumlichen Lage im Fokusgebiet zueinander ausgerichtet.

berechneten Verteilungen des Mikroskopobjektivs sehr ähnlich. Es entstehen schmale hochionierte Gebiete, welche in Ausbreitungsrichtung Unterbrechungen aufweisen. Für Pulsenergien ab 38nJ lassen sich die entstehenden Materialmodifikationen vom Typ I und II mit der beim Mikroskopobjektiv erläuterten Hypothese erklären. Für die niedrigere Pulsenergie von 28nJ sagt die Simulation mit obiger Erklärung eine Materialmodifikation vom Typ I voraus, welche sich über ein Gebiet von etwa 500nm Breite und $2\mu\text{m}$ Länge erstreckt. Experimentell konnte dies jedoch nicht nachgewiesen werden. Eine mögliche Ursache hierfür wäre eine niedrigere experimentelle Pulsenergie aufgrund unberücksichtigter Verlustprozesse. Bei den zwei höchsten Energien (57nJ und 66nJ) kommt es zu einem doppelten bzw. dreifachen optischen Durchbruch. Aufgrund der einfachen Modellannahmen zur Beschreibung der Photoionisation sind die numerisch berechneten Gebiete, die eine für LIB notwendige laterale Ausdehnung besitzen, nicht identisch mit den experimentellen Strukturen. Es kann aber unter Verwendung des Modells nach Gruzdev eine sehr gute Übereinstimmung bezüglich des Auftretens multipler Gebiete mit der notwendigen Größe ($> 600\text{nm}$ breit) und ungefährtem Abstand ($\approx 2\mu\text{m}$) zueinander festgestellt werden. Daher ergibt sich auch wieder der Gesamteindruck, dass mit dem KELDYSH-Modell zwar die experimentellen Materialmodifikationen vom Typ I in ihrer Form und Ausdehnung in der Simulation nachgebildet werden können, sich aber kein einheitliches Kriterium für das Auftreten optischer Durchbrüche ableiten lässt. Zudem weichen die berechneten Dichten für die Durchbruchenergie bei Verwendung der beiden Optiken um bis zu eine Größenordnung voneinander ab, so dass die übliche Definition einer Schwelldichte zu einem Widerspruch führt.

5.1.3 Sphärische Aberrationen

Durch die Verwendung einer plankonvexen Sammellinse mit einer numerischen Apertur von 0,4 für die Fokussierung ultrakurzer Laserpulse kommt es zur Ausbildung sogenannter Pseudo-Bessel-Pulse aufgrund der starken sphärischen Aberrationen [11, 13, 91]. Dies hat wiederum sowohl eine starke Lokalisierung der Pulsenergie um die optische Achse, als auch gleichzeitig eine relativ stark ausgedehnte Pulsfront zur Folge. Letztere ist dabei jedoch viel schwächer in der Intensität als das Zentrum um die optische Achse. Abbildung 5.5 zeigt die raum-zeitliche Pulsfront für lineare Fokussierung in einigen Ebenen zwischen dem marginalen und paraxialen Brennpunkt der Linse, welcher in diesem Fall etwa $1400\mu\text{m}$ tief im Material liegt. Aufgrund der speziellen Intensitätsverteilung der Pseudo-Bessel-Pulse erfolgen nichtlineare Materialwechselwirkungen nur in unmittelbarer Nähe um die optische Achse. Zusätzlich war die für Materialmodifikationen notwendige Pulsenergie im Experiment um gut eine Größenordnung höher als bei den zwei vorangehend diskutierten Fokussieroptiken (siehe Anhang *F*). Aufgrund der Entstehungsart der Pseudo-Bessel-Pulse haben die nichtlinearen Materialwechselwirkungen bei der gewählten Energie von 300nJ kaum Einfluss auf die Intensitätsverteilung der Pulsfronten im fokalen Gebiet. Lediglich eine leichte Erhöhung der maximalen Intensität gegenüber dem linearen

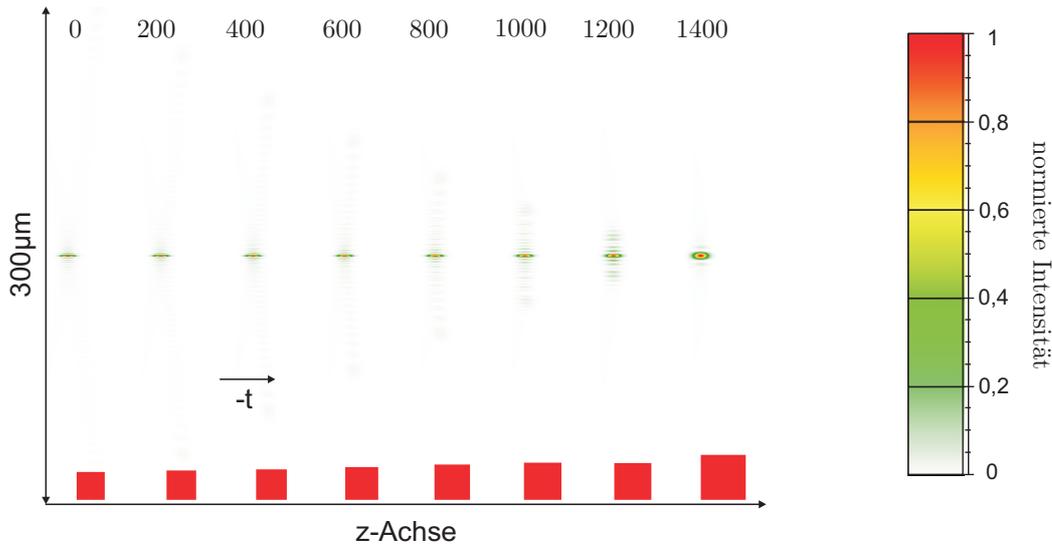


Abbildung 5.5: Dargestellt sind die zeitlichen Intensitätsverläufe der Laserpulse bei der linearen Fokussierung eines 40fs-Laserpulses mit der plankonvexen Sammellinse in verschiedenen Ebenen, wobei die Materialgrenze durch $z = 0\mu\text{m}$ gekennzeichnet ist und die Abstände der Ebenen in μm angegeben sind. Die Erläuterungen zum speziellen Verlauf der linearen Fokussierung befinden sich im Text.

Fall ist zu verzeichnen, was wiederum einer Aufsteilung des lateralen, räumlichen Pulsprofils durch den optischen KERR-Effekt zugeschrieben wird. Aus diesem Grund wird zur besseren Übersicht eine leicht abgewandelte Variante der bisherigen Darstellung, welche sich zudem auf die unmittelbare Fokusumgebung beschränkt, gewählt. In Abb. 5.6 ist die maximale erreichte Intensität an jedem Ort für den linearen Fall für die gesamte Strecke von $1500\mu\text{m}$ zwischen dem marginalen und dem paraxialen Fokus dargestellt. Bei einer Pulsenergie von 300nJ beträgt die maximal erreichte Intensität $7,1 \cdot 10^{12} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$. Bei dieser Energie konnten im Experiment erstmals Materialmodifikationen vom Typ I nachgewiesen werden (siehe Anhang *F*). Auch eine Erhöhung der Pulsenergie auf knapp $1\mu\text{J}$ reichte im Experiment nicht aus, um Materialzerstörung hervorzurufen. Aufgrund der großen lateralen Ausdehnung der Pseudo-Bessel-Pulse und der gleichzeitig starken Lokalisierung der Intensität um die optische Achse wurden die numerischen Simulationen auf die Pulsenergie von 300nJ beschränkt, da weitere Rechnungen bei höheren Pulsenergien mit einem sehr hohen numerischen Aufwand verbunden wären.

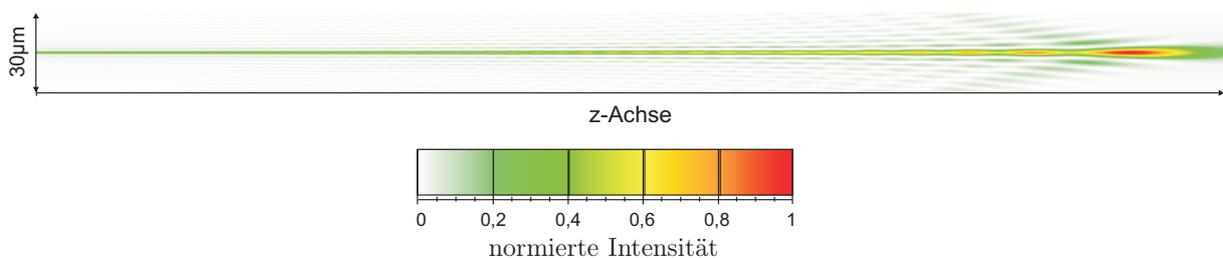


Abbildung 5.6: Dargestellt ist die maximal erreichte Intensität an jedem Ort für den Fall der linearen Fokussierung ab der Materialgrenze bis $z = 1500\mu\text{m}$ für einen 40fs-Laserpuls. $I_{\text{max}} = 7,9 \cdot 10^{12} \text{W}/\text{cm}^2$ bei 300nJ .

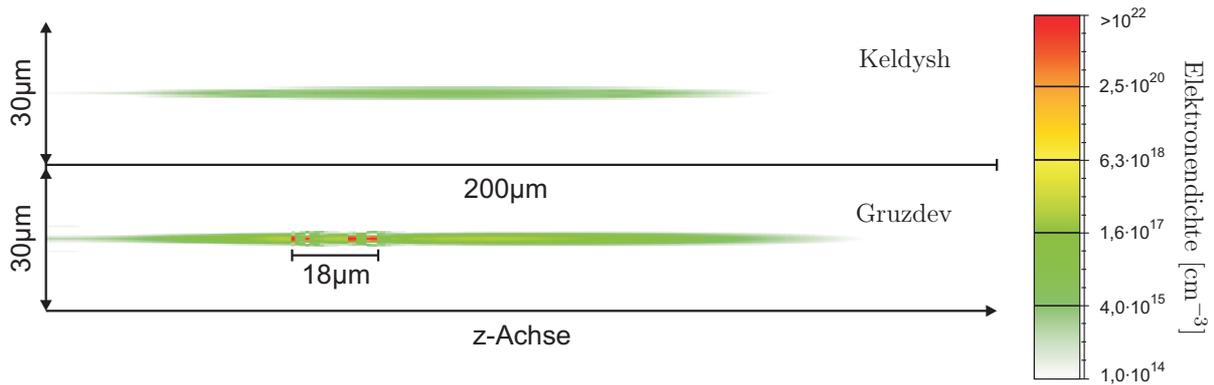


Abbildung 5.7: Dargestellt sind die maximal erreichten Elektronendichten bei der Fokussierung eines 40fs-Laserpulses mit der plankonvexen Sammellinse und einer Pulsenergie von 300nJ unter Verwendung des KELDYSH-Modells (oben) und des Modells nach Gruzdev (unten). Der Bildausschnitt zeigt die letzten 200µm bezogen auf die Darstellung in Abb. 5.6. Die Darstellungen sind bzgl. ihrer räumlichen Lage im Fokusbereich zueinander ausgerichtet.

Wie man an der Übersicht der maximalen Intensitäten im linearen Fall bereits erkennen kann, entstehen erst im Gebiet um den paraxialen Fokus höhere Intensitäten. Daher beschränken sich die Darstellungen der Elektronendichten in Abb. 5.7 auf diesen Bereich. Bei der Simulation der nichtlinearen Propagation mit dem KELDYSH-Modell werden Elektronendichten von maximal 10^{16} cm^{-3} ($I_{\text{max}} = 1,37 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$) erreicht. Dies ist fast drei Größenordnungen geringer als bei der Fokussierung mit dem Mikroskopobjektiv und dem dortigen Auftreten von Materialmodifikationen vom Typ I. Unter Verwendung des Modells nach Gruzdev hingegen treten erste kleine Gebiete vollständiger Ionisierung auf, welche auch von ihrer lateralen Ausdehnung her (300nm) nach den zuvor gewählten Kriterien für eine Entstehung der in Anhang *F* gezeigten feinen Strukturen in Frage kommen. Lediglich die Ausdehnung in Propagationsrichtung ist in den numerischen Simulationen mit 18µm etwa nur ein Drittel so lang wie im Experiment. Eine mögliche Ursache für diese Abweichung könnten die im Experiment verwendeten Mehrfachpulse sein. Dort wurden aufgrund des Prozesses des Wellenleiterschreibens im Durchschnitt drei Laserpulse pro 1µm Verfahrensweg eingebracht (siehe Abb. F.1).

Zusammenfassend sei betont, dass für die plankonvexe Sammellinse das KELDYSH-Modell der nichtlinearen Photoionisation erneut in Widerspruch zu den experimentellen Resultaten steht. Durch die Verwendung des Modells nach Gruzdev ist es möglich die im Experiment erzeugten Materialmodifikationen zumindest qualitativ zu beschreiben.

5.2 Ausbildung von Streaks bei niedriger numerischer Apertur

Die bisher im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Optiken weisen alle eine numerische Apertur um 0,45 auf und sind in Anlehnung an die Experimente zum direkten dreidimensionalen Wellenleiterschreiben ausgewählt worden (Anhang *F*). Bei der Verwendung von Fokussieroptiken

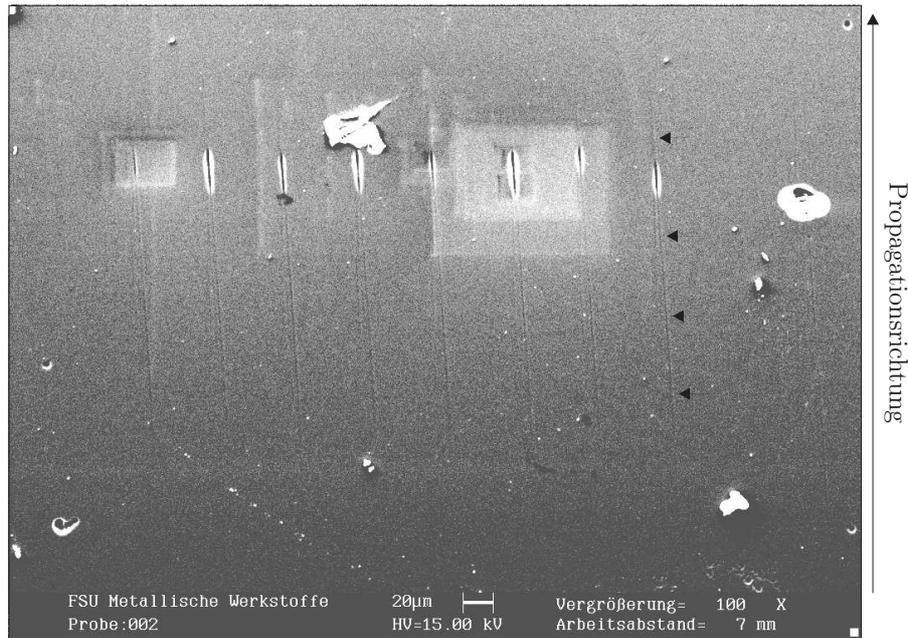


Abbildung 5.8: REM-Aufnahme von Wellenleiterstrukturen, welche mit einem Mikroskopobjektiv mit $NA=0,1$ in Kieselglas erzeugt wurden. Deutlich zu erkennen sind feine, streifenförmige Strukturen vor und hinter dem Wellenleiter. Dabei handelt es sich um sogenannte *streaks* oder auch Graukanäle. Diese Strukturen entstanden im Rahmen der Arbeiten zur Dissertation von M. Will am IAP [83].

mit niedriger NA im Bereich von $0,1$, wie sie zum Beispiel für Femto-LASIK³ verwendet werden, wird immer wieder vom Auftreten sogenannter *streaks* (Graukanäle) berichtet [24]. Dies sind feine, streifenförmige Materialmodifikationen vor und hinter der eigentlich beabsichtigten Materialmodifikation, welche zu unerwünschten Nebeneffekten führen können. Abbildung 5.8 zeigt eine REM-Aufnahme von Schnitten durch Wellenleiterstrukturen, welche mit einem Mikroskopobjektiv mit $NA = 0,1$ im Rahmen der Promotion von Matthias Will [83] am IAP erzeugt und nach dem in Anhang *F* beschriebenen Verfahren präpariert wurden. Die Graukanäle sind deutlich vor und hinter der Wellenleiterstruktur erkennbar und weisen eine Ausdehnung in Propagationsrichtung von etwa $150\mu\text{m}$ auf. Da der einzige bisherige Erklärungsversuch für die Entstehung derartiger Materialmodifikationen nur für die Strukturen hinter der eigentlich gewünschten Materialmodifikation erfolgt ist [24] und zudem deren Ausdehnung nicht vollständig erklären kann, wird nachfolgend die Fokussierung mit einer idealen Linse mit $NA = 0,1$ $200\mu\text{m}$ tief in Kieselglas untersucht. Es wird in den Berechnungen bewusst auf zusätzliche Dispersions- und Aberrationseffekte verzichtet, um auftretende Effekte besser zuordnen zu können. In den Arbeiten der Autorin [11, 91, 92] wurde bereits die Vermutung geäußert, dass die Entstehung der Graukanäle mit den beugungsbedingten Dauerinterferenzstrukturen auf der optischen Achse in Zusammenhang stehen, welche im Fall linearer Fokussierung zu einer schmalen Intensitätsüberhöhung entlang der Ausbreitungsrichtung der Laserpulse führen. Dieser Hypothese soll nun mit der Berechnung der dadurch resultierenden lokalen Elektronendichten nachgegangen werden.

³Laser-Assisted In Situ Keratomileusis

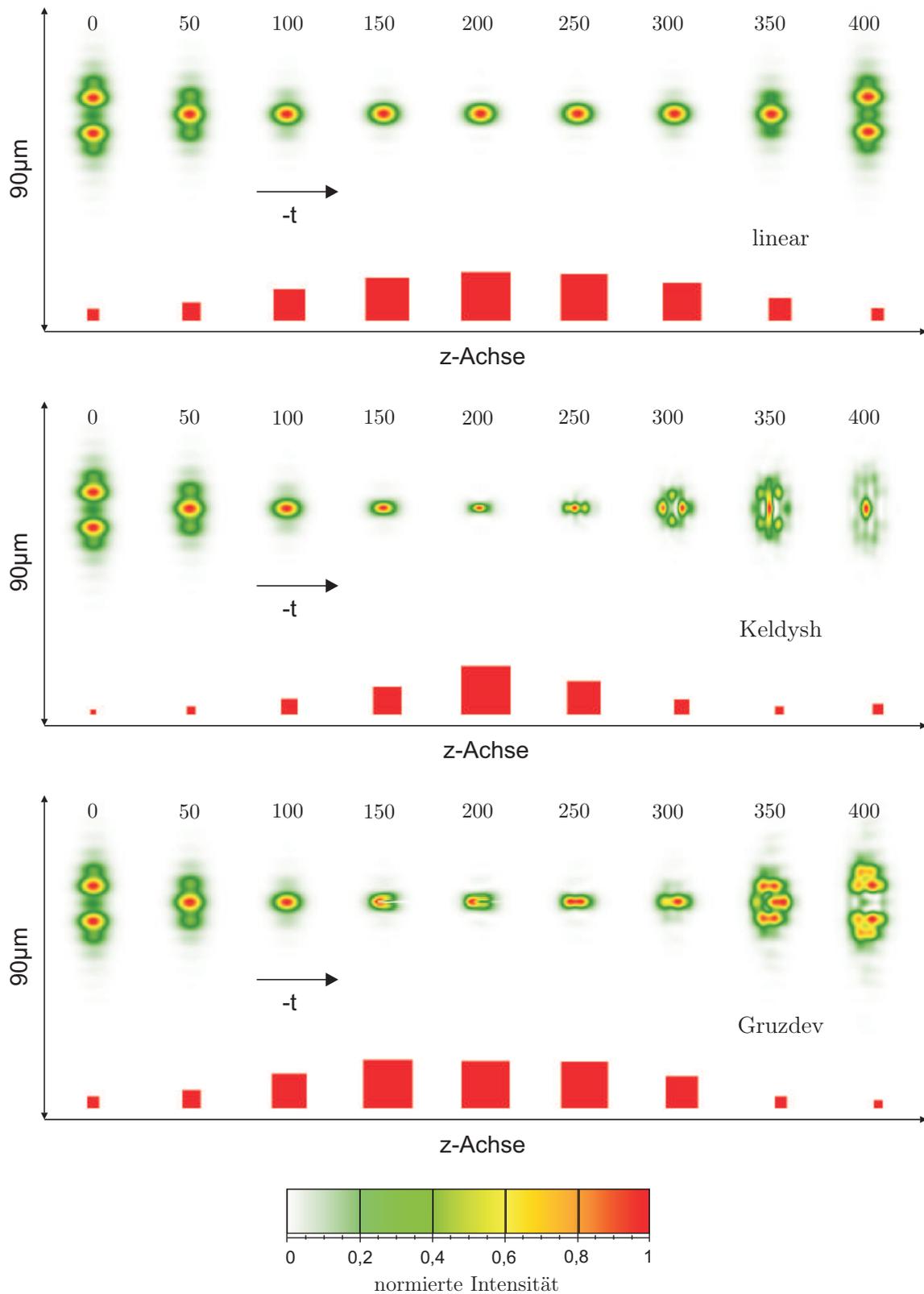


Abbildung 5.9: Dargestellt sind die zeitlichen Intensitätsverläufe der Pulsfronten bei der Fokussierung eines 40fs-Laserpulses und einer Pulsenergie von 50nJ mit einer idealen Linse mit $NA = 0,1$ $200 \mu\text{m}$ tief in Kieselglas in verschiedenen Ebenen, wobei die Materialgrenze durch $z = 0 \mu\text{m}$ gekennzeichnet ist und die Abstände der Ebenen in μm angegeben sind. Die Erläuterungen zu den speziellen Verläufen der linearen Fokussierung (oben) und der nichtlinearen Fälle nach Keldysh (Mitte) und Gruzdev (unten) finden sich im Text.

In Abb. 5.9 sind die zeitlichen Intensitätsverläufe der Pulsfronten für die lineare Fokussierung (oben) und die beiden nichtlinearen Fälle nach Keldysh (Mitte) und Gruzdev (unten) für eine Pulsenergie von 50nJ dargestellt. Aufgrund der geringen numerischen Apertur ist der Einfluss des optischen KERR-Effekts auf die Propagation der Laserpulse viel stärker ausgeprägt als in den zuvor diskutierten Fällen höherer NA. Anhand der in Abb. 5.9 eingezeichneten roten Quadrate kann man den Unterschied der zwei nichtlinearen Fälle untereinander und zum linearen Fall abschätzen. Die Größe der Quadrate bezieht sich in jedem Bild auf die maximale Intensität bei $z = 200\mu\text{m}$, wodurch ersichtlich wird, dass im Fall des KELDSYH-Modells die Intensität gegenüber dem linearen Fall erhöht ist.⁴ Im Fall des Modells nach Gruzdev sind die relativen maximalen Intensität in den Ebenen quasi identisch zum linearen Fall, da hier wieder zusätzlich starke Absorption auftritt und die maximale Intensität somit begrenzt ist. Durch diese Begrenzung der maximalen Intensität ist auch der optische KERR-Effekt schwächer als bei der Simulation mit dem KELDYSH-Modell ausgeprägt. Die raum-zeitlichen Pulsverläufe sind aber in beiden nichtlinearen Fällen nach dem Fokus von starken Verzerrungen betroffen und weisen nur noch geringfügige Ähnlichkeit mit dem linearen Fall auf.

Die in der Arbeit von M. Will [83] zum direkten Schreiben von Wellenleitern verwendeten Pulsenergien liegen im Bereich von 100nJ bis 500nJ. Oberhalb von $1\mu\text{J}$ traten Materialzerstörungen auf. Die Verfahrensgeschwindigkeit betrug $25\mu\text{m/s}$ bei einer Wiederholrate der Laserpulse von 1kHz, woraus sich eine resultierende Pulsdichte von 40 Pulsen pro $1\mu\text{m}$ Verfahrensweg ergibt. Nachfolgend werden nur die numerisch berechneten Elektronendichten für Pulsenergien im Bereich des Wellenleiterschreibens betrachtet, um einen Vergleich mit Abb. 5.8 zu ermöglichen⁵. In Abb. 5.10 sind die mit dem KELDYSH-Modell (oben) und mit dem Modell nach Gruzdev (unten) berechneten maximalen Elektronendichten im fokalen Gebiet für zwei bzw. drei Pulsenergien logarithmisch dargestellt. Wie nach den vorangegangenen Simulationen zu erwarten, sind die mit dem KELDYSH-Modell berechneten Elektronendichteverteilungen glatt und ohne Substruktur, die eine Entstehung der Graukanäle vermuten lassen würde. Insbesondere scheint die beugungsbedingte Intensitätsüberhöhung entlang der optischen Achse, wie sie für lineare Fokussierung beobachtet wird [11, 91, 92], bei dieser Simulation nicht für eine signifikante Überhöhung in den lokalen Elektronendichten auszureichen. Bei einer Pulsenergie von 100nJ beträgt die maximal erreichte Elektronendichte $2,5 \cdot 10^{20}\text{cm}^{-3}$. Dies ist vergleichbar mit den berechneten Dichten für das Entstehen von Materialmodifikation vom Typ I bei der Fokussierung mit dem Mikroskopobjektiv. Das heißt für diesen Fall könnte zwar das Auftreten eines Wellenleiters im Material mit der berechneten Elektronendichteverteilung erklärt werden,

⁴Dies wird klar wenn man bedenkt, dass die drei gezeigten Fälle bei $z = 0\mu\text{m}$ identisch sind.

⁵Die in Abb. 5.8 eingezeichnete Propagationsrichtung entspricht der von M. Will angegebenen. Der Vergleich mit den Simulationsergebnissen in Abb. 5.10 legt allerdings die Vermutung nahe, dass diese vertauscht wurde, denn der längere Teil der Graukanäle scheint hinter der eigentlich beabsichtigten Materialmodifikation (Wellenleiter) zu entstehen. Die Graukanäle davor haben eine viel kürzere Länge, was bei Umkehrung der Propagationsrichtung in Abb. 5.8 ebenfalls der Fall wäre.

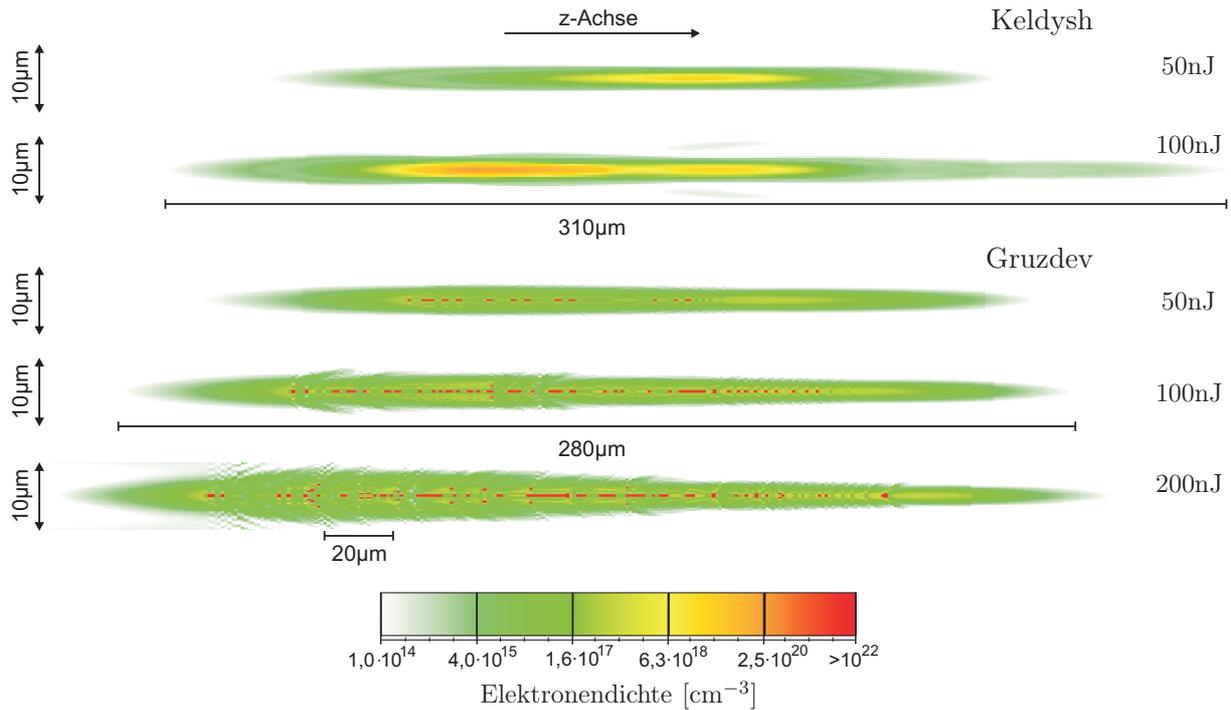


Abbildung 5.10: Logarithmische Darstellung der maximalen Elektronendichten im fokalen Gebiet bei der Fokussierung eines 40fs-Laserpulses mit einer idealen Linse mit $NA=0,1$ für zwei bzw. drei verschiedene Pulsenergien und der Berechnung mit dem Modell nach Keldysh (oben) und nach Gruzdev (unten). Da der darzustellende Bereich in Ausbreitungsrichtung sehr lang ist, wurde die Bilder im Verhältnis 1 : 2 (x:y-Richtung) gestaucht. Die Darstellung sind bzgl. ihrer räumlichen Lage im Fokusbereich zu einander ausgerichtet.

jedoch nicht das gleichzeitige Erscheinen der lateral extrem feinen Graukanäle. Aufgrund des hohen numerischen Aufwandes wurde auf weitere Simulationen mit noch höheren Pulsenergien für das KELDYSH-Modell verzichtet, da auch die Intensitätsabhängigkeit der Photoionisationsrate (Abb. 2.5) keine plötzliche Strukturänderung der berechneten Dichteverteilungen vermuten lässt. Bei der Modellierung nach Gruzdev treten bei allen drei Pulsenergien hochionisierte Gebiete auf. Bei einer Pulsenergie von 100nJ weisen diese bereits eine laterale Ausdehnung von 300nm auf und kommen somit als Ursache der Graukanäle in Frage. Auch die Gesamtausdehnung in Ausbreitungsrichtung gleicht mit etwa $150\mu\text{m}$ der im Experiment erzeugten Struktur. In der Simulation weisen diese Gebiete eine Substruktur mit Unterbrechungen entlang der z-Achse auf. Die in Abb. 5.8 gezeigten experimentell erzeugten Strukturen weisen keine derartigen Unterbrechungen auf. Dies kann mehrere Ursachen haben, da zum einen multipler Laserpulsbeschuss stattgefunden hat und aufeinanderfolgende Laserpulse aufgrund der niedrigen NA im fokalen Bereich stark lateral überlappen, so dass die Entstehung der Gesamtstruktur durch den Mehrfachbeschuss entstanden sein könnte. Zum anderen fand bei der Probenpräparation eine chemische Umwandlung der Brechungsindexmodifikationen in ein Höhenprofil statt (Anhang F), was die eventuell vorhandene Substruktur ausgewaschen haben könnte. Die Klärung der genauen Ursache bedarf aber weiterer experimenteller Untersuchungen und möglicherweise der Simulation von Mehrfachbeschuss.

Bei einer weiteren Erhöhung der Pulsenergie auf 200nJ zeigen die berechneten maximalen Elektronendichten nach wie vor schmale, fadenförmige Gebiete höchster Ionisierung entlang der optischen Achse. Zusätzlich treten vermehrt solche Gebiete auf, die nicht auf der optischen Achse liegen oder eine größere laterale Ausdehnung aufweisen. Die im Experiment erzeugten Wellenleiterstrukturen (Abb. 5.8) sind etwa $2\mu\text{m}$ breit und $20\mu\text{m}$ lang. Ein hochionisiertes Gebiet mit solchen Abmaßen kann in den Simulationen mit 200nJ Pulsenergie nicht ausgemacht werden. Jedoch liegt die Vermutung nahe, dass aufgrund der geringen Verfahrensgeschwindigkeit im Experiment, sowohl die Wellenleiterstruktur als auch die Graukanäle in ihrer endgültigen Form durch multiple Laserpulse entstanden sind. Da der lineare Fokus einen Durchmesser von $d_{\text{Airy}} = 9,7\mu\text{m}$ aufweist und durchschnittlich 40 Laserpulse pro $1\mu\text{m}$ Verfahrensweg ins Material eingebracht wurden, besteht für zwei aufeinander folgende Laserpulse ein Abstand der jeweiligen optischen Achsen von nur etwa 25nm. Darüber hinaus fungieren die bereits erzeugte Materialmodifikation aufgrund ihrer Brechungsindexerhöhung als wellenleitende Strukturen, was sowohl die Ausbildung der kontinuierlichen Verläufe der Graukanäle als auch das Entstehen eines größeren zusammenhängenden Gebietes vollständiger Ionisierung für den Wellenleiter in Abb. 5.8 erklären könnte, welcher eine Materialmodifikation vom Typ I ist. Dies steht nicht in Widerspruch zu der zuvor in Abschnitt 5.1.1 vorgestellten Hypothese eines kritischen Volumens für das Entstehen eines optischen Durchbruchs, da hier schrittweise sehr kleine Gebiete modifiziert werden und somit das resultierende Gesamtgebiet mit einer Materialmodifikation vom Typ I langsam anwächst. Die Bestätigung dieser Vermutung bedarf allerdings der systematischen Untersuchung mit numerischen Simulationen zur Wechselwirkung fokussierter Laserpulse mit bereits erzeugten Materialmodifikationen. Dies übersteigt allerdings den Rahmen dieser Arbeit, da es unter anderem notwendig wäre neue Materialparameter für die Gebiete der Materialmodifikationen zu ermitteln.

5.3 Sättigung der maximalen Intensität und Elektronendichte

In Abschnitt 2.5 wurden die verschiedenen in der Literatur existierenden Varianten einen Schwellwert für das Auftreten eines optischen Durchbruchs (LIB) in Kieselglas zu definieren, bereits vorgestellt und diskutiert. Da die Annahme einer bestimmten Schwelldichte der freien Elektronen vielfach zitiert wird [15, 33–40], soll an dieser Stelle noch einmal die Abhängigkeit der Elektronendichte von der Pulsenergie für die Verwendung des KELDYSH-Modells untersucht werden. Für das Modell der nichtlinearen Photoionisation nach Gruzdev erübrigt sich diese Diskussion, da dort die maximale Intensität durch das Erreichen der 1. Polstelle in der Photoionisationsrate auf $1 \cdot 10^{13}\text{W}/\text{cm}^2$ beschränkt wird (Abb. 2.5). Zugleich entspricht die dortige Elektronendichte einer vollständigen Ionisierung der Valenzelektronen mit $\rho_{\text{max}} = 3,2 \cdot 10^{23}\text{cm}^{-3}$. Eine Erhöhung der Pulsenergie führt lediglich zu einer Veränderung der Form und Ausdehnung der Gebiete vollständiger Ionisierung.

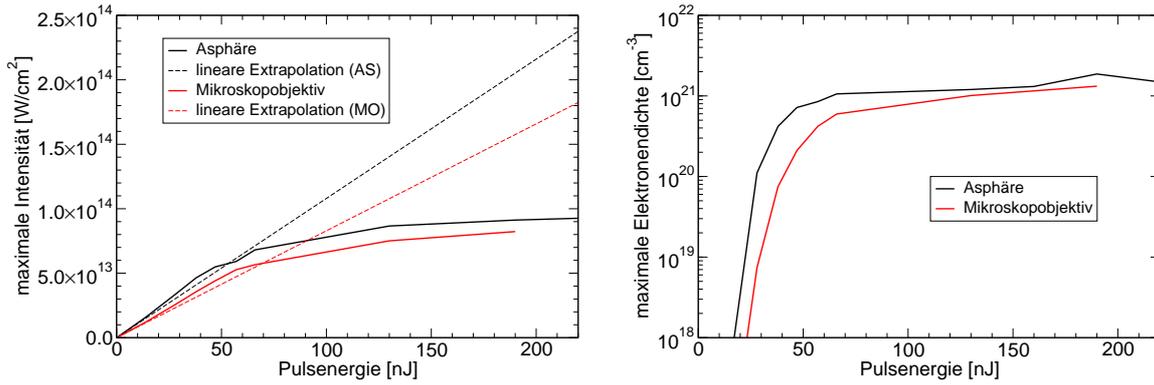


Abbildung 5.11: Dargestellt sind die mit dem KELDYSH-Modells in den numerischen Simulationen berechneten maximal erreichte Intensität (links) und Elektronendichte (rechts) im fokalen Gebiet für das Mikroskopobjektiv (rot) und die Asphäre (schwarz) in Abhängigkeit von der Eingangspulsenergie. Zum Vergleich ist für beide Optiken die maximale Intensität bei linearer Fokussierung mit eingezeichnet.

Unter Verwendung des KELDYSH-Modells existiert keine derartige Beschränkung seitens der Photoionisationsrate. Trotzdem ist es durch Erhöhung der Pulsenergie nicht möglich Elektronendichten, welche signifikant größer als die kritische Dichte $\rho_{\text{krit}} = 1,48 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ sind im Material zu erzeugen⁶, da ab dieser Dichte das Plasma für die elektromagnetische Welle undurchdringlich wird und somit keine weiteren Elektronen in diesem Gebiet erzeugt werden können. Diese Sättigung der Elektronendichte ist unabhängig von der gewählten Fokussieroptik, lediglich die für das Erreichen benötigte Pulsenergie variiert. In Abb. 5.11 (links) sind für die Fokussierung mit dem Mikroskopobjektiv und der Asphäre die maximal erreichten Intensitäten im fokalen Gebiet im Vergleich zur linearen Fokussierung in Abhängigkeit der Pulsenergie dargestellt. Zusätzlich zeigt Abb. 5.11 die korrespondierenden maximal erreichten Elektronendichten. Für beide Optiken existiert ein gewisser Energiebereich, in welchem eine gegenüber dem linearen Fall erhöhte maximale Intensität erreicht wird. Dies resultiert aus der Aufsteilung und Verengung des räumlichen Pulsprofils aufgrund des optischen KERR-Effekts. Die Pulsenergie, ab welcher ein Abknicken der Kurven unterhalb der Kurven der linearen Fälle zu verzeichnen ist, korrespondiert mit den Energien (57nJ (schwarz) und 66nJ (rot)) bei denen im Experiment optische Durchbrüche (LIB) erzeugt wurden. Die dazugehörigen maximalen Intensitäten⁷ liegen mit $I_{\text{max}} = 5,9 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ (Asphäre) und $I_{\text{max}} = 5,7 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ (Mikroskopobjektiv) allerdings bereits fast beim Doppelten des höchsten in der Literatur angegebenen Wertes der Schwellintensität von $I_{\text{LIB}} = 3,2 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ [65] für LIB. Die korrespondierenden maximalen Elektronendichten sind dagegen mit $\rho_{\text{max}} = 8,5 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ (Asphäre) und $\rho_{\text{max}} = 4,2 \cdot 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ (Mikroskopobjektiv) noch deutlich unterhalb der kritischen Elektronendichte, deren Erreichen gerne als Kriterium

⁶Gewisse kleine Schwankungen um den Wert von ρ_{krit} resultieren aus der endlichen Schrittgröße in der numerischen Berechnung der Propagation.

⁷Die maximale Intensität ist bei der Fokussierung mit der Asphäre, wie schon zuvor erwähnt, aufgrund der Überlappung der äußeren Flügel der Pulsfront und dem zusätzlichen Maximum des Begleitpulses im Fokus gegenüber der Fokussierung mit dem Mikroskopobjektiv leicht erhöht. Das betroffene Gebiet im Fokus der Asphäre ist jedoch sehr klein.

für LIB angegeben wird [35–40]. Wird die Pulsenergie weiter erhöht, so steigt die maximal erreichte Intensität nur noch sehr langsam an und ist wesentlich kleiner als im linearen Fall. Bei einer Pulsenergie von 220nJ beträgt die maximale Intensität im Fall der Fokussierung mit der Asphäre etwa $I_{\max} = 9,3 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ und ist damit gegenüber 57nJ nur um einen Faktor 1,6 angestiegen. Das Erreichen der kritischen Elektronendichte limitiert aufgrund der starken Absorption damit auch die maximal erreichbare Intensität im fokalen Gebiet. Analoges gilt für das Mikroskopobjektiv, wo sich bei hohen Pulsenergien die maximale Elektronendichte auch dem Wert von ρ_{krit} annähert.

Diese Betrachtungen zeigen aber noch einmal deutlich, wie wenig sinnvoll eine Abschätzung der maximalen Intensitäten im fokalen Gebiet auf der Grundlage der linearen Fokussierung ist. Legt man den Berechnungen das KELDYSH-Modell zugrunde, so gibt es sowohl Bereiche in denen die Intensität unterschätzt wird⁸, als auch einen weiten Energiebereich, in welchem die Intensität weit hinter dem linearen Fall zurückbleibt. Ersteres ist auf den im Bereich niedriger Pulsenergien vernachlässigbaren Einfluss des Elektronenplasmas gegenüber der KERR-Linse zurückzuführen. Im zweiten Energiebereich tritt mit zunehmender Pulsenergie vermehrt die Wechselwirkung des Laserpulses mit dem Elektronenplasma in den Vordergrund. Daher können Aussagen zu Intensitäts- und Elektronendichteverteilungen im Zusammenhang mit experimentellen Untersuchungen nur anhand gleichzeitiger numerischer Simulationen getroffen werden. Erfolgen die numerischen Vergleichsrechnungen mit dem erweiterten Modell von Gruzdev, so ist eine Angabe der Schwellintensität, aufgrund der Beschränkung durch die 1. Polstelle in der Ionisationsrate, hinfällig. Vielmehr kann hier für vergleichbare experimentelle Bedingungen bezüglich der Fokussierung und Wiederholrate der Laserpulse nur eine Pulsenergie für das Erzeugen von Materialmodifikationen vom Typ I und II sinnvoll angegeben werden, da die im Fokusbereich erzeugte Intensitätsverteilung stark von der Fokussieroptik abhängt. Auch bestimmt die numerische Apertur der Optik maßgeblich über die Auswirkungen der zusätzlichen KERR-Linse auf das raum-zeitliche Pulsprofil. Darüber hinaus wäre es für die Untersuchung der Entstehung von Materialmodifikationen von großem Vorteil, die Wechselwirkung des Elektronenplasmas mit dem Material und auch auftretende thermische Diffusionsprozesse näher zu untersuchen. Nur so ist es möglich, eine Aussage über die Form und Größe solcher modifizierter Gebiete in Abhängigkeit der zuvor berechneten Elektronendichteverteilungen zu treffen.

⁸Dies resultiert hauptsächlich aus der begleitenden Wirkung der KERR-Linse.

6 Ortsaufgelöste Charakterisierung fokussierter Laserpulse – SEA TADPOLE

In den meisten Anwendungen, wie zum Beispiel Multiphotonenmikroskopie [93–95] und Mikromaterialbearbeitung [84, 85, 96–99], werden die ultrakurzen Laserpulse fokussiert, um möglichst hohe Intensitäten bei niedrigen Pulsenergien zu erzielen. Aufgrund von Dispersion, Beugung, Aberrationen und Polarisierungseffekten können Laserpulse im Fokus einer Optik vielfältige raum-zeitliche Verzerrungen erleiden [1–14]. Kommen zu diesen noch nichtlineare Materialwechselwirkungen, wie sie in Kapitel 5 diskutiert werden, hinzu, verkompliziert sich der Pulsverlauf durch die raum-zeitliche Kopplung aller Effekte stark. Daher ist es von großer Wichtigkeit, eine Messmethode zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse in der Fokusergebung beliebiger Fokussieroptiken zu haben. Erst die Analyse und das Verständnis der linearen raum-zeitlichen Wechselwirkungen ermöglicht die gezielte Untersuchung der nichtlinearen Wechselwirkungen fokussierter Laserpulse mit verschiedensten Materialien.

Messmethoden, welche auf FROG [45] und SPIDER [46] basieren, können nur den zeitlichen Pulsverlauf über einen gemittelten Fokus messen und daher keine Information über die raum-zeitliche Kopplung liefern. Mittels zweidimensionaler spektraler Interferometrie (2DSI) und abgewandelten holographischen Methoden ist es möglich, den raum-zeitlichen Feldverlauf eines Laserpulses zu messen [47–51]. Allerdings können diese Messungen nicht direkt im Fokus durchgeführt werden und eignen sich daher nur zur indirekten Charakterisierung von fokussierten Laserpulsen. Hierbei wird zum Beispiel das raum-zeitliche Feld des rekollimierten Strahls vermessen und numerisch zurückpropagiert [50]. Erste Ansätze, fokussierte ultrakurze Laserpulse zu vermessen, liefern entweder den räumlich gemittelten Zeitverlauf oder andersherum [52–54] und eignen sich daher auch nicht zur ortsaufgelösten Vermessung des zeitlichen Pulsverlaufs. Durch Verwendung von *Interferometric Photon Scanning Tunneling Microscopy* kann das raum-zeitlich Feld eines ultrakurzen Laserpulses mit hoher räumlicher Auflösung gemessen werden [100–102], was bislang aber noch nicht für die Fokussierung in Luft durchgeführt wurde. Ein Nachteil dieser Methode besteht allerdings in der Notwendigkeit des zeitlichen Scannens, da sie auf zeitlicher Interferenz basiert.

In diesem Kapitel wird zunächst das Prinzip der spektral-aufgelösten räumlichen Interferometrie vorgestellt, welches die Basis von SEA TADPOLE bildet [43]. Daran anschließend erfolgt die Dimensionierung von *scanning* SEA TADPOLE für die raum-zeitliche Charakterisierung von

fokussierten 30fs Laserpulsen bei einer Zentralwellenlänge von 800nm. Ein Ziel dieser Arbeit ist, die sehr begrenzte Ortsauflösung dieser Grundvariante zu erhöhen, um Laserpulse, die mit Optiken hoher NA fokussiert werden, charakterisieren zu können. Nachfolgend werden hierfür zwei Lösungsansätze aufgezeigt und die damit erzielten Messergebnisse vorgestellt.

6.1 Das Messprinzip von scanning SEA TADPOLE

Die Verwendung von Spektraler Interferometrie zur Pulsvermessung hat zwei entscheidende Vorteile. Zum einen ist sie inhärent ein *single-shot*-Messverfahren und eignet sich damit hervorragend für Echtzeitmessungen. Zum anderen ist es eine lineare Messmethode und daher sehr empfindlich, das heißt, es können Laserpulse vermessen werden, die bis zu neun Größenordnungen schwächer sind als solche, die für nichtlineare Messmethoden benötigt werden [103]. Andererseits ist das begrenzte spektrale Auflösungsvermögen ein entscheidender Nachteil der herkömmlichen spektralen Interferometrie. Als Folge der Verwendung des Algorithmus der *Fourier-transform spectral interferometry* (FTSI) zur Rekonstruktion der Laserpulse kann nur etwa ein Fünftel des Auflösungsvermögens des verwendeten Spektrometers genutzt werden [104]¹. Dadurch ist das Vermessen von komplizierten zeitlichen Pulsverläufen oder Laserpulsen mit Pulslängen von einigen Pikosekunden nicht mehr möglich.

Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Messverfahren zur ortsaufgelösten Vermessung fokussierter ultrakurzer Laserpulse basiert auf dem Prinzip der spektral-aufgelösten räumlichen Interferenz und wird als SEA TADPOLE (*Spatial Encoded Arrangement for Temporal Analysis by Dispersing a Pair of Light E-fields*) bezeichnet [43]. Damit lassen sich die oben beschriebenen Probleme der begrenzten spektralen Auflösung umgehen. Zur Erzeugung der Interferenzstruktur werden die Wellenfronten der beiden Laserpulse räumlich gegeneinander um einen Winkel θ verkippt und haben keine zeitliche Verschiebung gegeneinander [105–110]. Senkrecht zu dieser Verkipfung erfolgt die spektrale Aufspaltung durch ein Gitterspektrometer. Aufgenommen wird das zweidimensionale spektral aufgelöste Interferogramm, welches in der horizontalen Richtung wellenlängenabhängig ist und in der vertikalen Richtung entlang x_{kam} Interferenzstreifen aufweist:

$$S(\lambda, x_{kam}) = S_{ref}(\lambda) + S_{unb}(\lambda) + 2\sqrt{S_{ref}(\lambda) S_{unb}(\lambda)} \cos \left[\frac{4\pi}{\lambda} x_{kam} \sin \Theta + \varphi_{unb}(\lambda) - \varphi_{ref}(\lambda) \right]. \quad (6.1)$$

Dabei sind S_{ref} und S_{unb} die Betragsquadrate der Pulsspektren im Referenz- und Messarm

¹Das spektrale Auflösungsvermögen und die zeitliche Auflösung sind über eine FOURIER-Transformation miteinander verknüpft. Steigt das spektrale Auflösungsvermögen, sinkt der Abstand der Seitenbänder im Zeitraum. Um diesen zu erhöhen, muss der Laufzeitunterschied beider Pulse vergrößert werden, was ein Absinken des Streifenkontrastes zur Folge hat. Die spektrale Auflösung des Messverfahrens ist also durch die Anforderungen des Rekonstruktionsalgorithmus beschränkt.

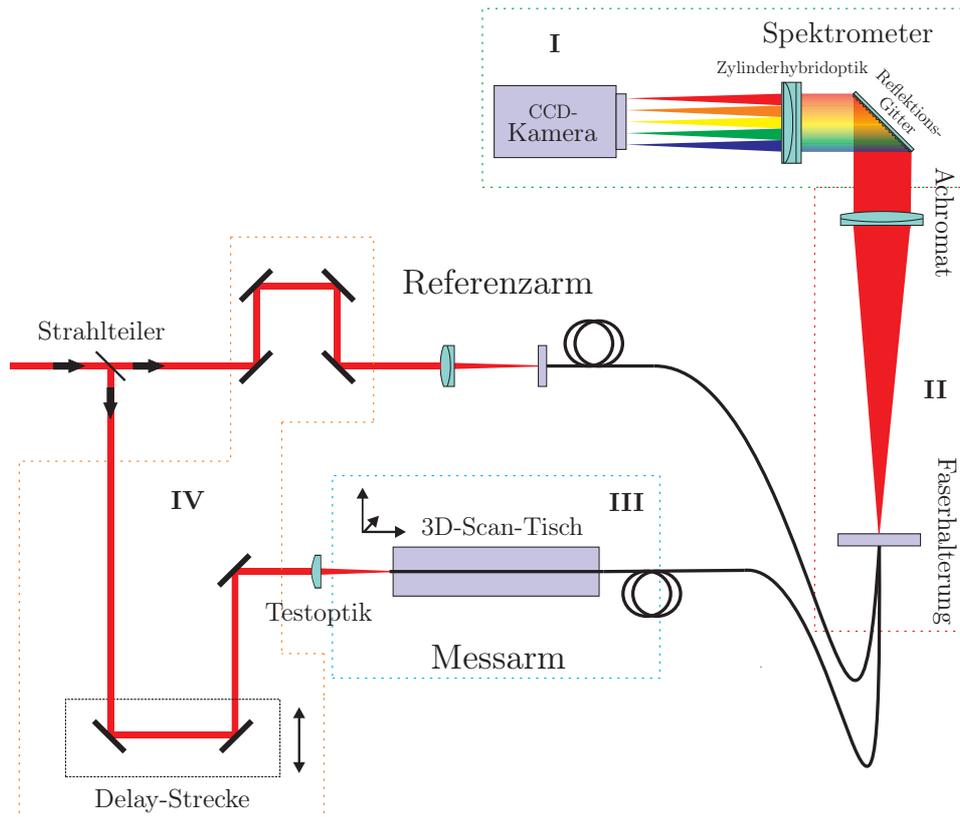


Abbildung 6.1: Schematische Darstellung des experimentellen Aufbaus von SEA TADPOLE (Draufsicht) in seiner Grundvariante mit zwei Single-Mode Fasern. Das Spektrometer (I) spaltet das Pulsspektrum horizontal auf und bildet es auf eine CCD-Kamera ab. Ein Achromat (II) dient zur Kollimation zweier vertikal versetzter Strahlenbündel aus zwei Single-Mode Fasern und verkippt diese dabei um den Winkel θ gegeneinander. Durch geeignete Wahl der Brennweite überkreuzen sich beide Strahlen genau in der Kameraebene, in welcher dann das Interferenzmuster entsteht. Das Faserende im Messarm (III) kann mittels zweier Mikrolinientische in x- und y-Richtung bewegt werden, was die Abtastung des Fokusbereiches der zu untersuchenden Optik ermöglicht. Die Höhenanpassung auf die optische Achse erfolgt durch einen mechanischen Hubtisch. Die Delay-Strecken (IV) werden benötigt, um Laufzeitunterschiede der beiden Laserpulse auszugleichen.

mit den entsprechenden Spektralphasen φ_{ref} und φ_{unb} (siehe Anhang D.2). Anders als bei der herkömmlichen spektralen Interferometrie wird dieses Spektrogramm bzgl. der Ortskoordinate x_{kam} und nicht bzgl. der Frequenz ν FOURIER-transformiert. Das Spektrum und die Phase des unbekanntes Pulses können damit aus Gl. (6.1) durch FOURIER-Filtern des Interferogramms entlang der x_{kam} -Achse mit der vollen spektralen Auflösung des Spektrometers gewonnen werden [108]. Die Rekonstruktion des zeitlichen Pulsverlaufs ist ausführlich in Anhang D.2 und in Ref. [44, 111] beschrieben. Der so charakterisierte Laserpuls enthält aber noch keine Information über seine räumliche Gestalt. Zur orts aufgelösten Vermessung fokussierter Laserpulse ist es zusätzlich notwendig, den unbekanntes Laserpuls räumlich abzutasten. In diesem Zusammenhang spricht man von *scanning* SEA TADPOLE. Die vollständige Rekonstruktion des orts aufgelösten zeitlichen Pulsverlaufs ist in Anhang D.3 erläutert.

Abbildung 6.1 zeigt schematisch die experimentelle Umsetzung der Grundvariante von SEA TADPOLE. Der Messaufbau besteht aus vier Funktionsgruppen. Zum einen bildet ein Spektro-

meter, bestehend aus einem Beugungsgitter und einer Zylinderhybridoptik, das Pulsspektrum horizontal auf eine CCD-Kamera ab. Zum anderen kollimiert ein Achromat zwei senkrecht zur Abbildungsebene gegenüber der optischen Achse um $\pm d$ vertikal versetzte Strahlenbündel und erzeugt damit eine Verkipfung der kollimierten Strahlen um den Winkel $\theta = 2d/f_K$ (f_K ist die Brennweite des Kollimationsachromaten) zueinander. Der Kreuzungspunkt beider Strahlenbündel liegt wiederum genau in der Ebene der CCD-Kamera. Eine Verkipfung von einigen Milliradian reicht zur Erzeugung der Interferenzstreifen aus. Daher müssen die beiden Strahlenbündel nur etwa $200\mu\text{m}$ gegenüber der optischen Achse versetzt sein. Um solch kleine Abstände zu realisieren, werden in SEA TADPOLE Single-mode Fasern verwendet, die präzise im gewünschten Abstand gehalten werden können. Der Referenzpuls und der unbekannte Laserpuls werden, wie in Abb. 6.1 dargestellt, in die jeweiligen Fasern eingekoppelt. Die dritte Funktionsgruppe in SEA TADPOLE ist der Messarm, in welchem zur ortsaufgelösten Vermessung fokussierter Laserpulse das Faserende präzise mit zwei Mikrolineartischen und einem mechanischen Hubtisch bewegt werden kann, um eine Abtastung der Fokusumgebung zu ermöglichen [44, 112]. Die Ortsauflösung in der Grundvariante ist dabei vom Modenfelddurchmesser ($5,6\mu\text{m}$) bzw. der numerischen Apertur der Faser ($\text{NA} = 0,12$) begrenzt. Daher lassen sich mit dieser Variante von SEA TADPOLE nur Fokussieroptiken mit einer $\text{NA} \leq 0,12$ vermessen. Des Weiteren verfügt SEA TADPOLE über zwei Delay-Strecken, die für die Kompensation der Laufzeitunterschiede der beiden Laserpulse wichtig sind. Zum einen garantieren sie den Grundabgleich der Weglängen von Referenz- und Messarm, zum anderen kann der bewegliche Teil im Messarm (siehe Abb. 6.1) während einer Messreihe mit Hilfe eines weiteren Mikrolineartisches automatisch nachgeführt werden. So werden auftretende Laufzeitunterschiede durch die Positionsänderung des Faserendes entlang der z-Richtung kompensiert.

Das Messprinzip von SEA TADPOLE ist über weite Wellenlängenbereiche und unterschiedliche Pulsdauern einsetzbar. Alle nachfolgend beschriebenen Varianten des Aufbaus sind für die Charakterisierung von Femtosekundenpulsen mit Pulsdauern um 30fs bei einer Zentralwellenlänge von 800nm gedacht, wie sie im Experiment zur Verfügung stehen. Die Wahl der optischen Komponenten ist daher speziell auf diesen Wellenlängenbereich abgestimmt. Die technischen Details der verwendeten optischen und mechanischen Komponenten finden sich im Anhang D.1.

6.2 Optimierung des spektralen und zeitlichen Auflösungsvermögens

Bis auf wenige Ausnahmen ist das spektrale Auflösungsvermögen von SEA TADPOLE besser als das des verwendeten Spektrometers alleine [44]. Das Auflösungsvermögen eines Gitterspektrometers kann zum Beispiel mit Hilfe von Spektrallinien (bzw. Doppellinien) gemessen werden [113] und stellt eine gute Abschätzung für SEA TADPOLE dar, dessen Auflösungsvermögen

über ein strukturiertes Pulsspektrum erheblich schwerer zu messen ist. Das theoretisch zu erwartende Auflösungsvermögen des Spektrometers lässt sich unter der Annahme idealer Linsen aus dem Produkt der Interferenzordnung m und der Zahl der beleuchteten Gitterfurchen N mit

$$\frac{\lambda}{\Delta\lambda} \leq m \cdot N \quad (6.2)$$

berechnen [113]. Gleichzeitig ist die laterale Dispersion durch

$$\Delta x = f_{Sp} \cdot \frac{m \cdot \Delta\lambda}{d \cdot \cos\beta} \quad (6.3)$$

bestimmt. Dabei ist $\Delta\lambda$ der Abstand zweier Wellenlängen, die um den Abstand Δx getrennt werden, f_{Sp} die Brennweite der Linse im Spektrometer, m die verwendete Beugungsordnung des Gitters, d dessen Gitterkonstante und β der Ausfallswinkel der gebeugten Strahlen. Die Parameter der Kollimations- und der Zylinderoptik im Spektrometer können, wie bereits in Abschnitt 6.1 beschrieben, nicht unabhängig von einander gewählt werden, da ihre Brennebenen beide in der Ebene der CCD-Kamera liegen müssen. Zusätzlich bestimmt die Kombination aus Beugungsgitter und Zylinderoptik die laterale Dispersion nach Gl. (6.3). Nachfolgend wird die Dimensionierung von SEA TADPOLE für die Vermessung von Laserpulsen mit einer Dauer von 30 – 50fs bei einer Zentralwellenlänge von 800nm kurz skizziert. Um die Kosten für den Aufbau nicht zu hoch werden zu lassen, soll dabei möglichst auf Standardoptiken zurückgegriffen werden.

Die spektrale Intensität eines 30fs Laserpulses (mit in Abb. 6.3 (rechts) dargestellt) ist an den Rändern des betrachteten Wellenlängenintervalls (760 – 840nm) auf $\leq 1\%$ der Mittenintensität abgeklungen, weshalb ein Messbereich von $\Delta\lambda = 100\text{nm}$ ausreichend ist. Dieser soll auf eine

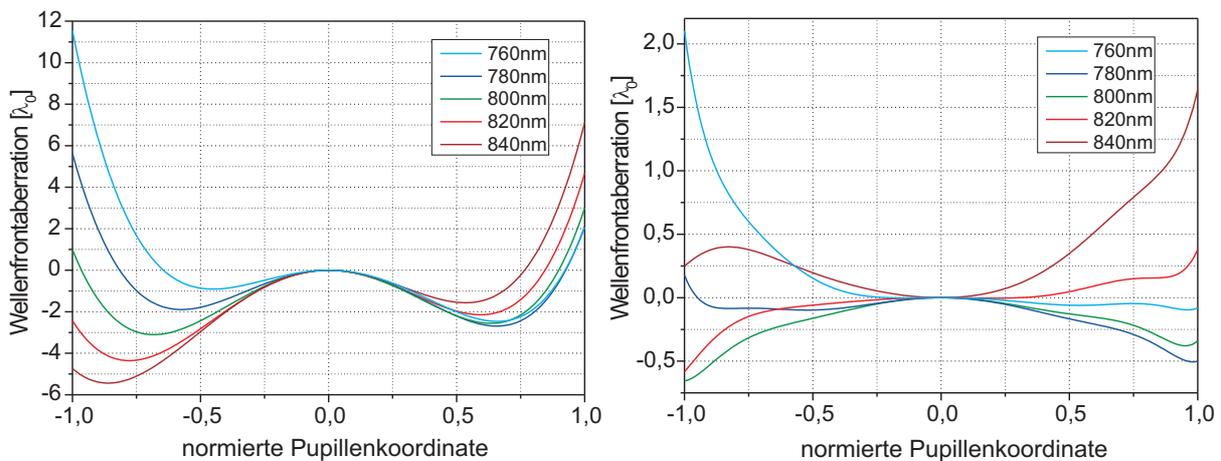


Abbildung 6.2: Dargestellt sind die Wellenfrontaberrationen in der Ebene der CCD-Kamera für die unkorrigierte (links) und mit dem DOE korrigierte Zylinderlinse (rechts). Im unkorrigierten Fall treten starke sphärische Aberrationen und Astigmatismus auf, welche durch den Einsatz des DOE erheblich reduziert werden.

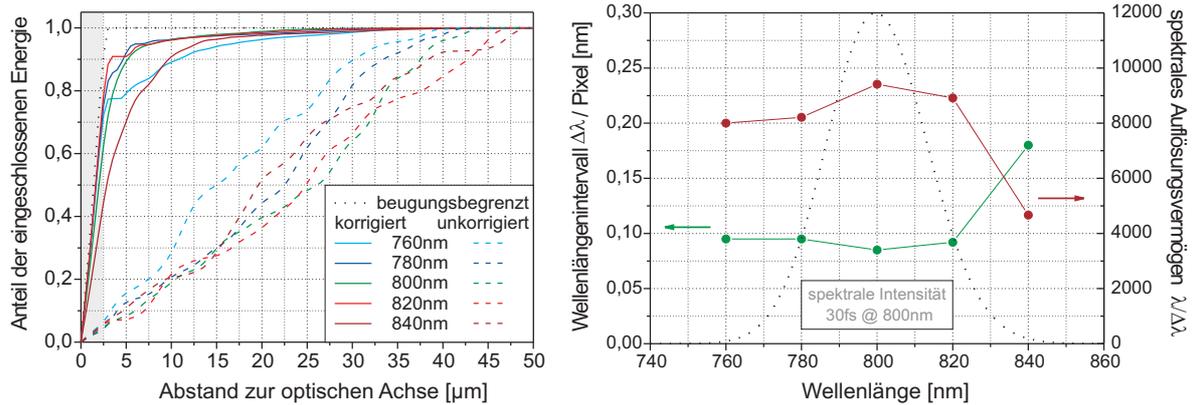


Abbildung 6.3: Dargestellt sind die berechneten Anteile der eingeschlossenen Energie für beide Fälle, unkorrigiertes und korrigiertes Spektrometer, in Abhängigkeit vom Abstand zur jeweiligen optischen Achse (links). Durch den Einsatz der hybriden Zylinderlinse werden große Anteile der Energie jeder Farbe auf die $4,7\mu\text{m}$ breiten Pixel konzentriert. Das damit erreichbare theoretische Auflösungsvermögen wurde mit Hilfe von Zemax berechnet und ist rechts graphisch dargestellt. Details zur Berechnung befinden sich im Anhang D.3.

CCD-Kamera mit $\Delta x = 4,81\text{mm}$ Breite abgebildet werden. Bei Beugung in die erste Ordnung unter einem Ausfallswinkel von $\beta = 45^\circ$ durch ein Bragg-Gitter mit 300 Linien/mm ergibt sich nach Gl. (6.3) $f_{\text{Sp}} = 113\text{mm}$. Damit fällt die Wahl auf eine Standardzylinderlinse mit einer nominellen Brennweite von $f_{\text{Sp}} = 100\text{mm}$. Dadurch ist gleichzeitig auch die spektrale Abtastung auf der CCD-Kamera mit $\Delta\lambda_{\text{Pixel}} = 0,055\text{nm}$ pro Pixel ($\Delta x = 4,7\mu\text{m}$) festgelegt. Für die Kollimationen der aus den Fasern austretenden Bündel wurde ein entsprechender IR-Achromat mit $f_{\text{K}} = 200\text{mm}$ ausgewählt, womit dazwischen ausreichend Platz für das Reflektionsgitter (Abb. 6.1) bleibt. Aus dieser Wahl ergibt sich der Strahldurchmesser nach der Kollimationsoptik zu etwa 40mm. Mit diesem können zwei weitere Größen zur Überprüfung der Dimensionierung berechnet werden. Zum einen ist das spektrale Auflösungsvermögen nach Gl. (6.2) $\lambda/\Delta\lambda \leq 12000$, womit bei 800nm $\Delta\lambda \geq 0,06\text{nm}$ gilt. Zum anderen kann für den beugungsbegrenzten Fall die Abbildung auf die CCD-Kamera berechnet werden. Es zeigt sich, dass für $\lambda = 800\text{nm}$ nahezu 100% der Energie auf einem Pixel der Breite $4,7\mu\text{m}$ abgebildet werden (Abb. 6.3 (links)). Somit ist die prinzipielle Wahl der optischen Komponenten gut an die Messaufgabe angepasst.

Ist die Abbildung auf der CCD-Kamera nicht beugungsbegrenzt, sinkt das spektrale Auflösungsvermögen, welches daher maßgeblich von den Abbildungseigenschaften der optischen Komponenten im Aufbau mitbestimmt wird. Aus diesem Grund weist dieser Aufbau der Grundvariante von SEA TADPOLE bereits einige Veränderungen gegenüber [112] auf. Die Abbildungseigenschaften des Messaufbaus wurden mit Hilfe der Optikdesignsoftware ZEMAX eingehend untersucht und durch geeignete Wahl der optischen Komponenten optimiert. Abbildung 6.2 (links) zeigt die Wellenfrontaberrationen der obigen Kombination optischer Elemente. Da die Wellenfrontaberrationen unakzeptabel hoch sind, wurde für die Zylinderlinse im Spektrometer zusätzlich ein diffraktiv optisches Element (DOE) berechnet und hergestellt². Das DOE achromati-

²Das DOE wurde am Fraunhofer IOF mit Hilfe von Laserstrahlolithographie und UV-Abformung eines Polymers

siert die Zylinderlinse und korrigiert zusätzlich den Astigmatismus, welcher durch den schiefen Einfall der Bündel nach dem Beugungsgitter hervorgerufen wird, wodurch bereits eine erhebliche Reduktion der Wellenfrontaberrationen erzielt werden kann (Abb. 6.2 (rechts)). Mit dem gewählten Ansatz, einer symmetrischen Phasenfunktion im DOE, lässt sich die Abbildungsqualität nicht weiter als in Abb. 6.2 (rechts) dargestellt verbessern, da aufgrund des Gitters jede spektrale Komponente einen anderen Einfallswinkel auf die Zylinderlinse hat. Hierfür wäre eine zusätzliche prismatische Korrektur notwendig. Da in dieser Aufbauvariante von *scanning* SEA TADPOLE aber die Pixelgröße der CCD-Kamera ($4,7\mu\text{m}$) die spektrale Auflösungsgrenze bestimmt, ist die obige Korrektur völlig ausreichend, wie Abb. 6.3 zeigt. Im Grenzfall von 30fs sind an den Rändern des betrachteten Wellenlängenintervalls ($760 - 840\text{nm}$) die spektralen Intensitäten auf $\leq 1\%$ der Mittenintensität abgeklungen, womit die dort auftretende Verschlechterung der Abbildungsqualität und das damit verbundene Absinken der spektralen Auflösung vertretbar ist. Experimentell wurde das Wellenlängenintervall pro Pixel zu $\Delta\lambda = (0,1284 \pm 0,0004)\text{nm}$ bestimmt (siehe Anhang D.3) und ist in guter Übereinstimmung mit den mit ZEMAX berechneten Werten. Die verbleibenden Wellenfrontaberrationen verdoppeln den Wert gegenüber dem beugungsbegrenzten Fall.

Abbildung 6.3 (links) zeigt den Anteil der eingeschlossenen Energie in Abhängigkeit vom Abstand zur optischen Achse für die drei Fälle: beugungsbegrenzte Abbildung bei 800nm , Korrektur der Zylinderlinse mit dem DOE und die unkorrigierte Variante. Im beugungsbegrenzten Fall wird nahezu 100% der Energie bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ auf einen Pixel der Breite $4,7\mu\text{m}$ abgebildet. Durch die vorhandenen Restaberrationen im korrigierten Fall sinkt der Anteil auf etwa 80% für $\pm 20\text{nm}$ und fällt auf 40% für 840nm . Ohne DOE ist die Energie einer spektralen Komponente auf 16–21 Pixel verteilt, was erhebliche Einbußen in der spektralen Auflösung nach sich zieht.

Die zeitliche Auflösung von SEA TADPOLE ist durch eine diskrete FOURIER-Transformation direkt mit der spektralen Abtastung über

$$\delta t = \frac{1}{M \cdot \Delta\nu_{\text{Pixel}}} \quad (6.4)$$

verbunden, wobei M die Anzahl der Messpunkte (beleuchtete Pixel) im Frequenzraum und $\Delta\nu_{\text{Pixel}}$ der Frequenzbereich pro Pixel ist. Da die oben beschriebene Dimensionierung der optischen Komponenten in SEA TADPOLE auf eine gute Ausleuchtung der CCD-Kamera abgestimmt ist, kann die zeitliche Auflösung einfach mit Gl. (6.4) berechnet werden. Sie beträgt für den Fall der 30fs (FWHM) Laserpulse $\delta t = 16\text{fs}$ (siehe Anhang D.3)³.

hergestellt.

³Der zeitliche Laserpulsverlauf kann durch eine FOURIER-Interpolation mit mehr Punkten dargestellt werden. Dies erhöht jedoch nicht den Informationsgehalt der Abtastung. Da das Pulsspektrum und der zeitliche Verlauf des Laserpulses ebenfalls über eine FOURIER-Transformation miteinander verknüpft sind, gibt es keine zeitlichen Details, die kürzer als die zeitliche Auflösung δt sind.

Prinzipiell ist die zeitliche Auflösung δt konstant für die verwendeten Laserpulse bei SEA TADPOLE. Diese Tatsache lässt sich unter anderem an Gl. (6.4) ablesen, denn eine bessere zeitliche Auflösung δt ist nur durch eine Erhöhung des Produktes aus beleuchteten Pixeln M und der spektralen Abtastung $\Delta\nu_{\text{Pixel}}$ zu erreichen. Gleichzeitig ist die Größe dieses Produktes aber fest vom Spektrum des Laserpulses vorgegeben. Eine stärkere spektrale Aufspaltung durch ein anderes Beugungsgitter zum Beispiel würde zwar die Anzahl der beleuchteten Pixel M erhöhen, aber gleichzeitig auch im gleichen Maße die spektrale Abtastung $\Delta\lambda/\text{Pixel}$ herabsetzen. Auch die Verwendung anderer Zylinderoptiken im Spektrometer würde nur die Ausleuchtung der CCD-Kamera verändern.

Aufgrund dieser Tatsache sollten in SEA TADPOLE die optischen Komponenten passend zum jeweiligen Pulsspektrum für eine optimale Ausleuchtung der verwendeten CCD-Kamera gewählt werden. Allein die gewünschte spektrale Abtastung $\Delta\lambda/\text{Pixel}$ entscheidet damit über die Dimensionierung von Reflektionsgitter, Zylinderoptik und CCD-Kamera. Da nur beleuchtete Pixel in die Umrechnung nach Gl. (6.4) einfließen dürfen, ist die direkte Messung der zeitlichen Auflösung für die jeweils zum Einsatz kommenden Laserpulse genauer. Dies kann zum Beispiel über die Analyse des Streifenkontrastes bei Doppelpulsen mit unterschiedlicher Verzögerung, wie in [44], geschehen.

Zusammen mit Dipl.-Phys. Frank Burmeister wurde im Rahmen seiner Diplomarbeit [111] diese verbesserte Grundvariante von *scanning* SEA TADPOLE mit den zuvor beschriebenen Komponenten am IAP aufgebaut, die Funktionsweise systematisch untersucht und die gute Übereinstimmung mit den Ergebnissen der numerischen Simulationen nachgewiesen.

6.3 Verbesserung der Ortsauflösung

Ein Ziel dieser Arbeit besteht in der Verbesserung der Ortsauflösung von *scanning* SEA TADPOLE gegenüber der Grundvariante, bei welcher die Ortsauflösung durch den Modenfelddurchmesser der Single-Mode-Faser auf $5,6\mu\text{m}$ begrenzt ist. Zur Verbesserung der Ortsauflösung ist es notwendig, mit kleineren Sonden zu messen. Ein Ansatz besteht darin, eine SNOM-Faser⁴ im Messarm zu verwenden [114]. Die Vorgehensweise hierfür und die damit erzielten Ergebnisse werden nachfolgend vorgestellt. Ein zweiter Ansatz orientiert sich am Prinzip der *lensed fibers* und verwendet ein Hoch-NA Mikroskopobjektiv zum Abtasten der fokussierten Laserpulse. Mit dieser Variante lassen sich theoretisch Optiken bis zu einer $\text{NA} \leq 0,95$ untersuchen. Das Messprinzip und die damit erzielten Ergebnisse sind im zweiten Teil dieses Abschnittes zusammengefasst.

⁴SNOM - Scanning Nearfield Optical Microscopy

6.3.1 SNOM-Fasern

Die Verwendung von SNOM-Fasern zur Erhöhung der Ortsauflösung kann ohne größere Umbauten am Versuchsaufbau von SEA TADPOLE erfolgen, da die Fasern mit den SNOM-Spitzen aus entsprechenden Single-Mode-Fasern hergestellt werden. Es ist ausreichend, lediglich die Single-Mode-Faser im Messarm gegen eine passende SNOM-Faser auszutauschen. Mit einem derart erweiterten *scanning* SEA TADPOLE war es bereits möglich, Strukturen $\leq 1\mu\text{m}$ aufzulösen und damit numerisch vorhergesagte Effekte, wie den Begleitpuls und die Ausbildung von BESSEL-ähnlichen Pulsen durch sphärische Aberrationen, erstmals direkt experimentell nachzuweisen. Die Weiterentwicklung des Messaufbaus von *scanning* SEA TADPOLE mit SNOM-Fasern erfolgte in enger Kooperation mit der Gruppe von Rick Trebino in Atlanta, USA. Die damit erzielten Ergebnisse sind in [114] veröffentlicht und in Abb. 6.8 und Abb. 6.9 dargestellt.

Allerdings bringt die Verwendung von SNOM-Fasern zusätzliche Probleme mit sich. Bei der Herstellung der SNOM-Fasern wird ein Faserende erhitzt und gleichzeitig langgezogen, um so eine Spitze zu formen. Anschließend wird diese mit einer Chrom- und Goldschicht überzogen, in die nachträglich das Blendenloch eingebracht wird. Auf diese Weise soll sichergestellt werden, dass nur durch das Blendenloch Licht in die Faser einkoppeln kann und dieses die räumliche Auflösung bestimmt. Aufgrund der Herstellungsweise ist jede SNOM-Spitze anders bzgl. Lochgröße und Einkoppelverhalten und muss daher vor der Messung hinsichtlich ihrer Winkel- und Wellenlängentransferfunktion charakterisiert werden. In Abb. 6.4 sind zwei Messungen der Winkeltransferfunktion dargestellt. Für diese Messungen wurde, wie in [115] vorgeschlagen, die SNOM-Spitze mit einem kollimierten Gaußstrahl beleuchtet und die transmittierte Intensität in Abhängigkeit vom Einfallswinkel gemessen. Da der Durchmesser des Gaußstrahls etwa 1000-fach größer ist als der Lochdurchmesser, kann man von einer Beleuchtung mit einer ebenen Welle ausgehen und alle winkelabhängigen Intensitätsänderungen der Transferfunktion der SNOM-Spitze zuschreiben. Die Transferfunktionen der Spitzen wurden unter der Annahme von Rotationssymmetrie nur eindimensional bestimmt.

Abbildung 6.4 (links) zeigt die gemessene Winkeltransferfunktion einer SNOM-Spitze, die vom Hersteller *Nanonics* mit einem Lochdurchmesser von $1\mu\text{m}$ ausgewiesen wurde. Diese Spitze ist für Messungen gänzlich ungeeignet, da sie als starker Raumfrequenzfilter wirkt. Eventuell sind Beschädigungen an der Spitze oder ein kleinerer Lochdurchmesser die Ursache hierfür. Da keine REM-Aufnahmen der SNOM-Spitzen gemacht wurden, bleibt die genaue Ursache der obigen Transferfunktion aber unbekannt. Die rechte Messkurve in Abb. 6.4 zeigt dagegen einen glatten und breiteren Verlauf der Winkeltransferfunktion für eine SNOM-Faser mit einem nominellen Lochdurchmesser von 500nm . Über die FWHM-Breite der Intensitätsverteilung wurde die maximale numerische Apertur (NA) der zu untersuchenden Optiken auf $NA = 0,5$ abgeschätzt. Die gemessene Winkeltransferfunktion legt zusätzlich die Vermutung nahe, dass das Loch einen größeren Durchmesser hatte als die vom Hersteller angegebenen 500nm .

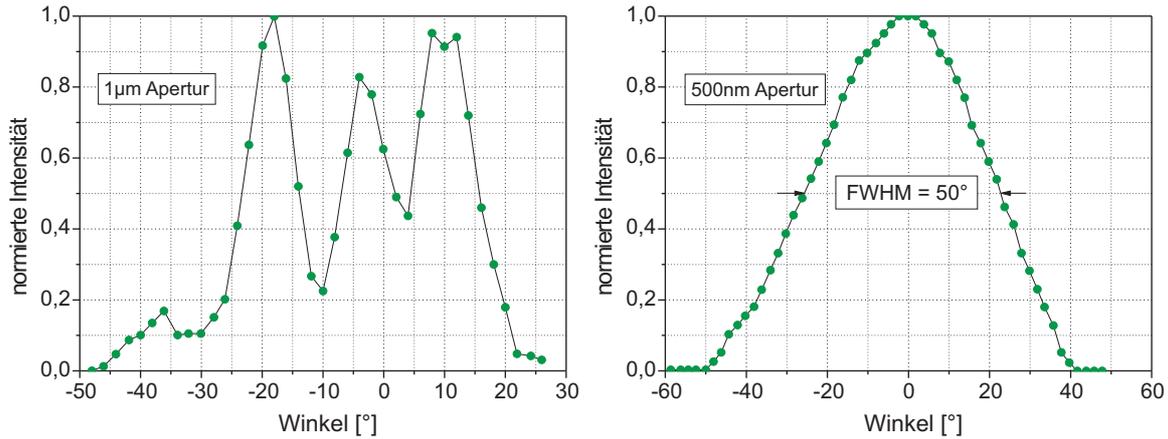


Abbildung 6.4: Dargestellt sind die gemessenen Winkeltransferkurven zweier SNOM-Fasern. Die SNOM-Fasern haben einen nominellen Aperturdurchmesser von (links) $1\mu\text{m}$ und (rechts) 500nm . Die Winkeltransferfunktion links zeigt eine komplizierte Abhängigkeit der transmittierten Intensität vom Einfallswinkel und eignet sich nicht für die Vermessung fokussierter Laserpulse. Verwendet wurde die SNOM-Faser, deren Winkeltransferfunktion rechts dargestellt ist, da diese einen glatten und breiteren Verlauf aufweist.

Da die Messung der Transferfunktion intensitätsbasiert ist, können keine Rückschlüsse darüber gezogen werden, ob eventuell eine zusätzliche winkelabhängige Phase eingebracht wird. Der Vergleich zwischen den mit dieser SNOM-Faser vermessenen Pulsfronten und den numerischen Simulationen fokussierter Laserpulse legt den Schluss nahe, dass dies hier nicht der Fall ist [114]. Um außerdem eine Aussage über eine eventuelle Wellenlängenselektivität treffen zu können, wurden die verwendeten Laserpulse bei dieser Messung zusätzlich spektral analysiert. Bei dieser Messung konnte keine Abhängigkeit festgestellt werden.

Mit der oben beschriebenen Vorgehensweise, der Messung der Winkeltransferfunktion und zusätzlicher spektraler Analyse, können geeignete SNOM-Fasern zur Vermessung fokussierter ultrakurzer Laserpulse gefunden werden. Allerdings erweist sich diese Vorgehensweise als sehr aufwändig. Um die Ortsauflösung weiter zu erhöhen, müsste man SNOM-Fasern mit kleineren Lochdurchmessern verwenden. Kukhlevsky *et al.* haben diesbezüglich numerische Simulationen am Beispiel eines eindimensionalen Metallschlitzes durchgeführt [116] und schlagen SNOM-Fasern mit wenigen Nanometern Lochdurchmesser in Kombination mit Femtosekundenpulsen für Messungen mit sehr hoher räumlicher und zeitlicher Auflösung vor. Aber auch in ihren Simulationen zeigen sich starke Dispersionseffekte in der Transmissionfunktion. Zudem scheint die Transmission stark vom Verhältnis des Lochdurchmessers zur Metallschichtdicke abzuhängen. Des Weiteren ist unklar, in wie weit sich die Ergebnisse auf den zweidimensionalen Fall übertragen lassen. Die Arbeit von Radko *et al.* [115] zeigt auch die Abhängigkeit der Winkeltransferfunktion von der Spitzengeometrie, insbesondere von deren Öffnungswinkel. Hierbei können sehr komplizierte Verläufe entstehen, die die Vermessung der fokussierten ultrakurzen Laserpulse unnötig erschweren. Daher wird der Ansatz, SNOM-Fasern mit noch kleineren Lochdurchmessern zur Erhöhung der Ortsauflösung zu verwenden, hier nicht weiter verfolgt.

6.3.2 Hoch-NA-Mikroskopobjektiv

Im Rahmen dieser Arbeit wird ein weiterer Ansatz untersucht, mit welchem Fokussieroptiken bis zu einer numerischen Apertur von $NA \leq 0,95$ vermessen werden können. Als Messsonde wird hierfür der Fokus eines Hoch-NA-Mikroskopobjektivs verwendet. Dies erfolgt in Anlehnung an das Prinzip einer *lensed fiber*, bei welcher ein Faserende speziell strukturiert wird, um so den Akzeptanzwinkel der Einkopplung zu erhöhen. Allerdings ist aufgrund der Herstellungsweise solcher Fasern dort die NA auf etwa 0,5 beschränkt und das Einkoppelverhalten stark von der Spitzegeometrie abhängig⁵. Im nachfolgend vorgestellten Aufbau übernimmt ein Mikroskopobjektiv die Rolle des strukturierten Faserendes und erhöht somit den Akzeptanzwinkel der Einkopplung. Um das vom Mikroskopobjektiv kollimierte Licht effizient in die Single-Mode-Faser einzukoppeln ist noch eine zusätzliche, speziell angepasste Koppeloptik notwendig. Abbildung 6.5 zeigt schematisch den erweiterten Aufbau des Messarms im SEA TADPOLE. Es werden weiterhin die Single-Mode-Fasern der Grundvariante verwendet, da sie den präzisen Versatz der Strahlbündel gegenüber der optischen Achse gewährleisten, welcher der Erzeugung der Interferenzstruktur dient.

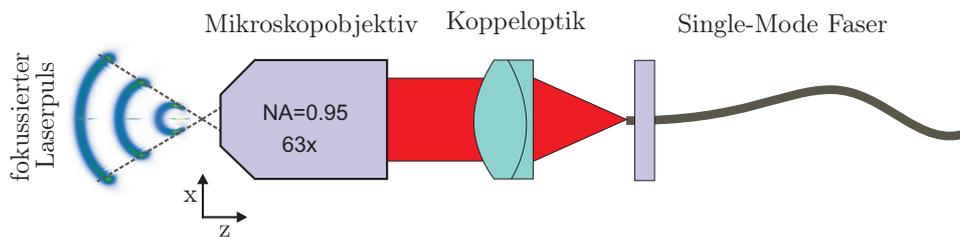


Abbildung 6.5: Schematische Darstellung des erweiterten Messarms von SEA TADPOLE bestehend aus einem Hoch-NA Mikroskopobjektiv, einem Koppelachromaten und einer Single-Mode-Faser zur Feldabtastung.

Die NA der zu untersuchenden Testoptik bestimmt den Durchmesser des kollimierten Bündels am Ausgang des Mikroskopobjektivs. Für größer werdende numerische Aperturen muss daher auch die Brennweite der Koppeloptik steigen, da die konstante NA der Faser Kompensation erfordert. Diese Variante von SEA TADPOLE soll für einen weiten NA-Bereich einsetzbar sein, wodurch die Kopplung in die Faser nicht durch eine einzelne Koppeloptik erfolgen kann. Für fünf verschiedene IR-Achromaten wurde die Koppelleffizienz in Abhängigkeit von der zu untersuchenden NA mit Hilfe von ZEMAX berechnet. Wie in Abb. 6.6 dargestellt, kann jeweils nur ein kleiner Teil des abzutastenden NA-Bereiches abgedeckt werden. Zusätzlich muss ein gewisser Mindestdurchmesser der Achromaten gegeben sein, um den Strahl nicht unnötig zu beschneiden. Für die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Optiken reichen zwei verschiedene Koppeloptiken aus. Sie sind jeweils im Diagramm hervorgehoben (grüne und blaue Linie).

Der Aufbau des Messarms mit Mikroskopobjektiv und Koppeloptik gleicht prinzipiell einem

⁵Solche speziellen Fasern können zum Beispiel über nanonics (Israel) oder O/E LAND Inc. (Kanada) bezogen werden.

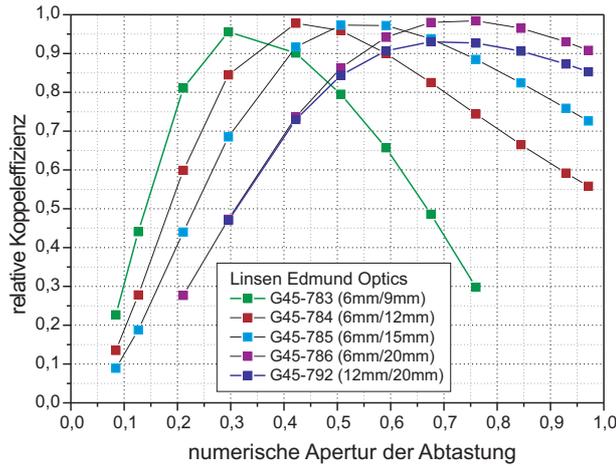


Abbildung 6.6: Auswahl der Koppeloptiken anhand der graphisch dargestellten Koppel-effizienzen für Gaußbündel. Zum Einsatz kommen die Optiken des grünen ($NA \leq 0,4$) und dunkelblauen ($NA > 0,4$) Graphen. In der Legende sind jeweils noch der Durchmesser und die nominale Brennweite der Achromaten angegeben.

Mikroskop mit Tubuslinse, wobei die Koppeloptik die Rolle der Tubuslinse übernimmt. Der Durchmesser des Objektfeldesausschnittes h_{OF} , der auf die Faser abgebildet wird, kann für ein Objektiv mit unendlicher Bildweite und einer nachgeordneten Tubuslinse durch

$$h_{\text{OF}} = \frac{h_{\text{FB}}}{V_{\text{Obj}} \cdot q_{\infty}} \quad (6.5)$$

berechnet werden [117]. Dabei ist h_{FB} der Durchmesser der Feldblende, welche hier durch den Modenfelddurchmesser der Faser gegeben ist, V_{Obj} ist der Abbildungsmaßstab des Mikroskopobjektivs und $q_{\infty} = f_{\text{tub}}/165$ [in mm] der Tubusfaktor, welcher eine Korrektur zur Brennweite der Tubuslinse im Mikroskop darstellt. Für die Charakterisierung von Fokussieroptiken mit einer $NA = 0,5$ ($f_{\text{Kop}} = 20\text{mm}$) bedeutet dies nach Gl. (6.5) einen Objektfelddurchmesser von 733nm . Bei einer beugungsbegrenzten Abbildung des Mikroskopobjektivs bei 800nm hat das entstehende Airy-Scheibchen einen Durchmesser von $1,95\mu\text{m}$. Unter Verwendung des RAYLEIGH-Auflösungskriteriums, der noch möglichen Trennung zweier Airy-Scheibchen [113], entspricht dies einer kleinsten Detailgröße von 975nm . Da dies größer ist als der Durchmesser des Objektfeldes, entsteht kein Informationsverlust bei der Abtastung durch die gewählte Kombination aus Mikroskopobjektiv und Koppeloptik.

Als Mikroskopobjektiv wurde ein ZEISS *Achroplan* (63x/0,95, ohne Deckglaskorrektur) ausgewählt, welches im Normalgebrauch für Zweiphotonenmikroskopie verwendet wird. Damit ist es auch im nahen IR einsetzbar und für das Abtasten in Luft optimal geeignet. Nachfolgend werden die Abbildungseigenschaften für den Wellenlängenbereich von $760 - 840\text{nm}$ speziell für die Verwendung dieses Mikroskopobjektivs in *scanning* SEA TADPOLE näher betrachtet. In Abb. 6.7 (oben links) sind die Wellenfrontaberrationen des Mikroskopobjektivs für eine Beleuchtung mit kollimiertem Licht entsprechend einer numerischen Apertur der Fokussierung von $NA = 0,95$ (voll ausgeleuchtet) und $NA = 0,5$ (grau hinterlegt) dargestellt. Wie man dort sieht, hat das Mikroskopobjektiv geringe Restaberrationen, welche hauptsächlich aus der chromatischen Längsaberration resultieren. Das hat eine Defokussierung der Wellenfronten der anderen

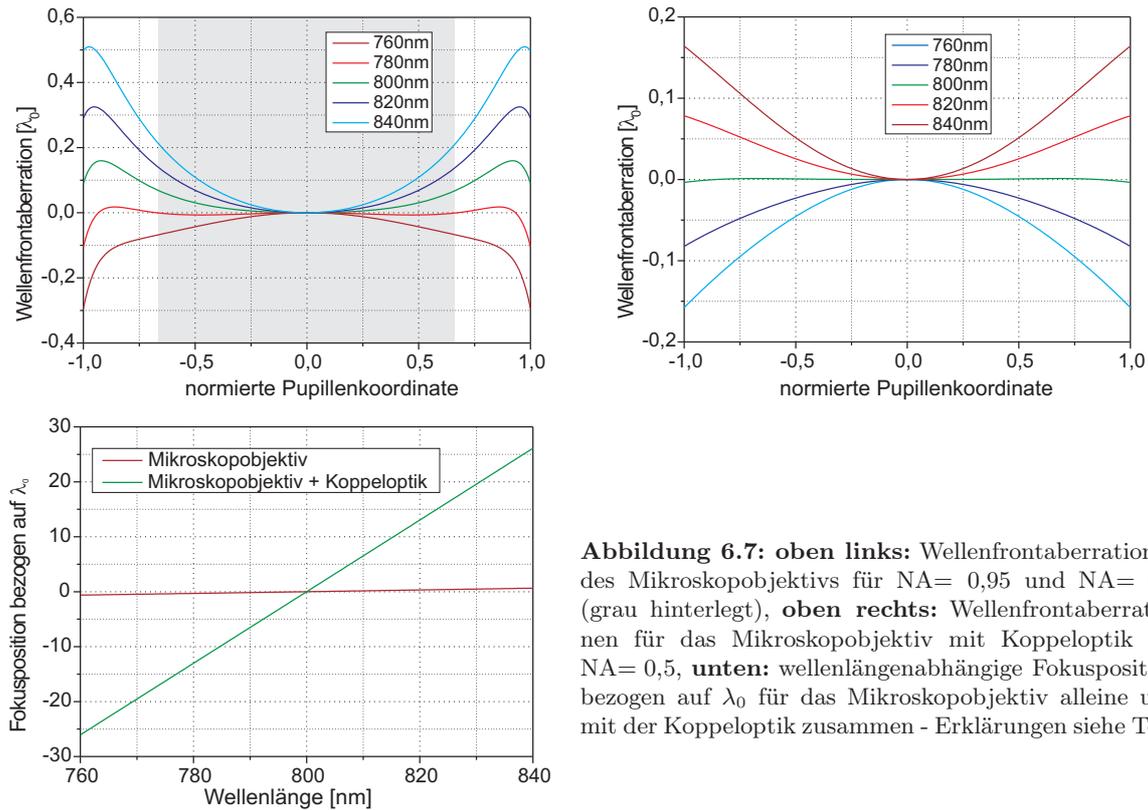


Abbildung 6.7: oben links: Wellenfrontaberrationen des Mikroskopobjektivs für $NA=0,95$ und $NA=0,5$ (grau hinterlegt), oben rechts: Wellenfrontaberrationen für das Mikroskopobjektiv mit Koppeloptik bei $NA=0,5$, unten: wellenlängenabhängige Fokussposition bezogen auf λ_0 für das Mikroskopobjektiv alleine und mit der Koppeloptik zusammen - Erklärungen siehe Text

Farben in der Brennebene der Zentralwellenlänge zur Folge. Die mit ZEMAX berechnete Strehlzahl ist $S = 0,98$ bei $NA=0,95$ und $\lambda_0 = 800\text{nm}$, weshalb von einer beugungsbegrenzten Abbildung ausgegangen werden kann. Durch die Kombination des Mikroskopobjektivs mit der Koppeloptik (G45-792 für $NA=0,5$) ändert sich das Vorzeichen der Restaberrationen (Abb. 6.7 (oben rechts)). Sie bleiben aber in der selben Größenordnung, das heißt, die monochromatischen Abbildungseigenschaften werden nicht verschlechtert. Um die Abbildungseigenschaften und das Einkoppelverhalten in die Faser für einen Laserpuls beurteilen zu können, muss zusätzlich noch die Auswirkung der chromatischen Längsaberration betrachtet werden. Diese ist in Form der Fokussposition der einzelnen Wellenlängen in Abb. 6.7 (unten) graphisch dargestellt. Das Mikroskopobjektiv alleine hat einen geringen Farblängsfehler von etwa $1,3\mu\text{m}$ im betrachteten Intervall. In Kombination mit der Koppeloptik vergrößert sich dieser auf $52\mu\text{m}$, liegt damit aber immer noch unterhalb der wellenoptischen Schärfentiefe $\delta z_F = \lambda/NA^2 = 83\mu\text{m}$ der Fasereinkopplung. Damit ist das Einkoppeln aller spektralen Komponenten in die Faser gewährleistet und diese wirkt nicht als spektraler Filter, was die Messung verfälschen würde. Die chromatische Längsaberration bleibt während aller Messungen konstant und wirkt sich auf das Interferogramm wie ein spektraler Chirp aus, welcher durch die Kalibrierung von SEA TADPOLE herausgerechnet wird (siehe Anhang D.2).

Die Form und Größe des Volumens, über welches der Laserpuls bei der Abtastung gemittelt wird, wird sowohl von der NA der zu charakterisierenden Optik, als auch von der Vergrößerung

im Messarm mitbestimmt. Erstere bestimmt die Schärfentiefe und damit die z-Ausdehnung des Abtastvolumens, welche bei $NA = 0,5$ $\delta z_F = 3,2\mu\text{m}$ beträgt. Die Vergrößerung, die durch die Wahl der Koppeloptik zum Mikroskopobjektiv festgelegt wird, bestimmt die x-y-Ausdehnung, welche der Objektfeldgröße $h_{OF} = 733\text{nm}$ nach Gl. (6.5) entspricht. Licht außerhalb dieses Bereiches wird zwar von der Abtastoptik abgebildet, kann aber nicht in die Faser einkoppeln. Bei steigender NA ist das Abtastvolumen in der x-y-Richtung nicht mehr rotationssymmetrisch, sondern elliptisch deformiert, da Polarisations Effekte zum tragen kommen (siehe Anhang A). Zusätzlich verringert sich dabei auch die z-Ausdehnung des Abtastvolumens mit $1/NA^2$.

6.4 Experimentelle Charakterisierung fokussierter Laserpulse

Die experimentelle Charakterisierung fokussierter Laserpulse wurde mit zwei verschiedenen Versuchsaufbauten von *scanning* SEA TADPOLE durchgeführt. Die erste Variante wurde in enger Zusammenarbeit mit der Autorin in Atlana, GA (USA) durch die Gruppe von Rick Trebino realisiert und verwendet zur räumlichen Abtastung die in Abschnitt 6.3 diskutierten SNOM-Fasern. Die zweite Variante des *scanning* SEA TADPOLE, welches das Hoch-NA-Mikroskopobjektiv zur Abtastung beinhaltet, wurde im Rahmen dieser Arbeit am Institut für Angewandte Physik der FSU Jena in Zusammenarbeit mit der Gruppe von Stefan Nolte aufgebaut. Nachfolgend werden die experimentellen Ergebnisse beider Varianten vorgestellt.

6.4.1 Messung mit einer SNOM-Faser

In Abschnitt 5, sowie in [11, 13, 91], sind die Effekte der raum-zeitlichen Verzerrung aberrierter ultrakurzer Laserpulse bei der Fokussierung erläutert und graphisch dargestellt. Besonderes Interesse bei der ortsaufgelösten Charakterisierung fokussierter Laserpulse mit *scanning* SEA TADPOLE gilt dem direkten Nachweis des Auftretens des Begleitpulses, welcher in der Literatur häufig als *forerunner pulse* bezeichnet wird [2], da er in Anwesenheit starker chromatischer Aberrationen die Pulsfront vor dem Fokus überholt. Obwohl der Begleitpuls aus der Beugung an der Apertur des optischen Systems resultiert, ist er in Kombination mit chromatischen Aberrationen besonders stark ausgeprägt, weshalb für den experimentellen Nachweis die Fokussierung mit einer Asphäre ($NA = 0,44$) ausgewählt wurde. Abbildung 6.8 zeigt den gemessenen Intensitätsverlauf in der fokalen Umgebung dieser Asphäre im Vergleich zu entsprechenden numerischen Ergebnissen für die Fokussierung eines 47fs-Laserpulses (FWHM) mit einer Zentralwellenlänge von $\lambda_0 = 800\text{nm}$. Diese Messung entstammt der Messreihe zu den Ergebnissen in der Veröffentlichung [114], in welcher erstmals der direkte Nachweis des Begleitpulses vorgestellt wurde. Man sieht die bereits sehr gute Übereinstimmung zwischen dem gemessenen und den numerisch berechneten Verläufen der Pulsfronten. Darüber hinaus stimmt auch die räumliche und zeitliche Ausdehnung des Begleitpulses, sowie dessen Position zur Pulsfront sehr gut mit den

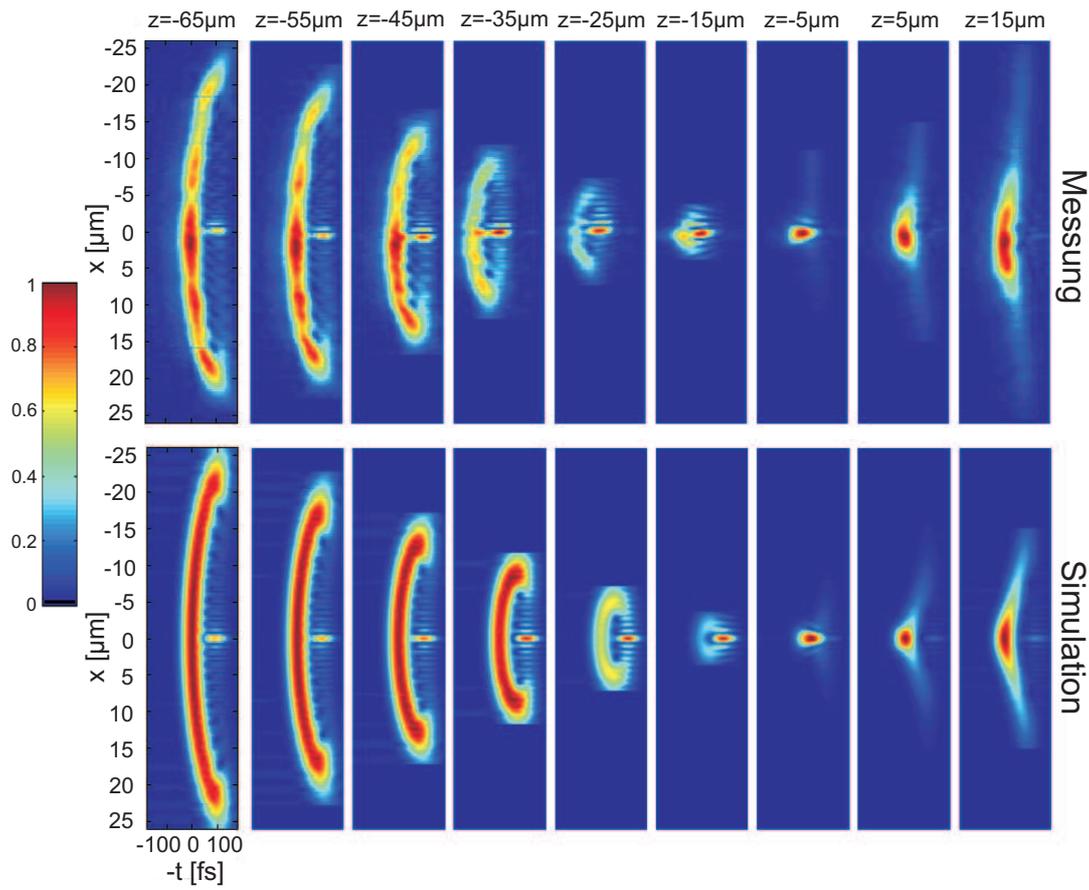


Abbildung 6.8: Dargestellt sind die gemessenen Intensitätsverteilungen einer Messung mit einer SNOM-Spitze und der dazugehörigen Simulation, wie sie in [114] publiziert worden. Fokussiert wurde ein 47fs-Laserpuls (FWHM) bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ mit einer Asphäre und einer $\text{NA} = 0,44$. Die Normierung erfolgt in jeder Ebene einzeln auf das jeweilige Maximum.

numerischen Vorhersagen überein. Allerdings sieht man anhand der inhomogenen Intensitätsverteilung der gemessenen Pulsfront auch, dass die Faser während der Messung nicht exakt auf die optischen Achse ausgerichtet war. Dies ist ein prinzipielles Problem bei der Verwendung der SNOM-Fasern, da auch bei einer glatten Transferfunktion, wie in Abb. 6.4 (rechts), die Spitze nicht zwingend vollständig gerade und das Aperturloch nicht im Zentrum der Spitze liegen muss. Dies bedingt meist ein leichtes Schielen der Abtastung und ist einer der Gründe, warum nach einer alternativen Variante für eine hochaufgelöste räumliche Abtastung gesucht wurde.

In Abb. 6.9 sind die gemessenen Intensitätsverläufe für die Fokussierung mit zwei verschiedenen plankonvexen Sammellinsen dargestellt. Auch diese sind während den Messungen für [114] entstanden, zeigen aber nicht die identischen Fälle. Fokussiert wird jeweils ein 19fs-Laserpuls (FWHM) mit einer Zentralwellenlänge von $\lambda_0 = 800\text{nm}$. Aufgrund der starken sphärischen Aberrationen kommt es zur Ausbildung von Pseudo-X-Pulsen, welche in Annäherung an den geometrischen Fokus (in Abb. 6.9 (oben) etwa bei $z = -200\mu\text{m}$ ⁶) immer schmaler werden und schließlich verschwinden.

⁶Die Wahl der Bezeichnung der z-Ebenen ist hier willkürlich und dient lediglich der Orientierung und Angabe der Abstände der Ebenen untereinander.

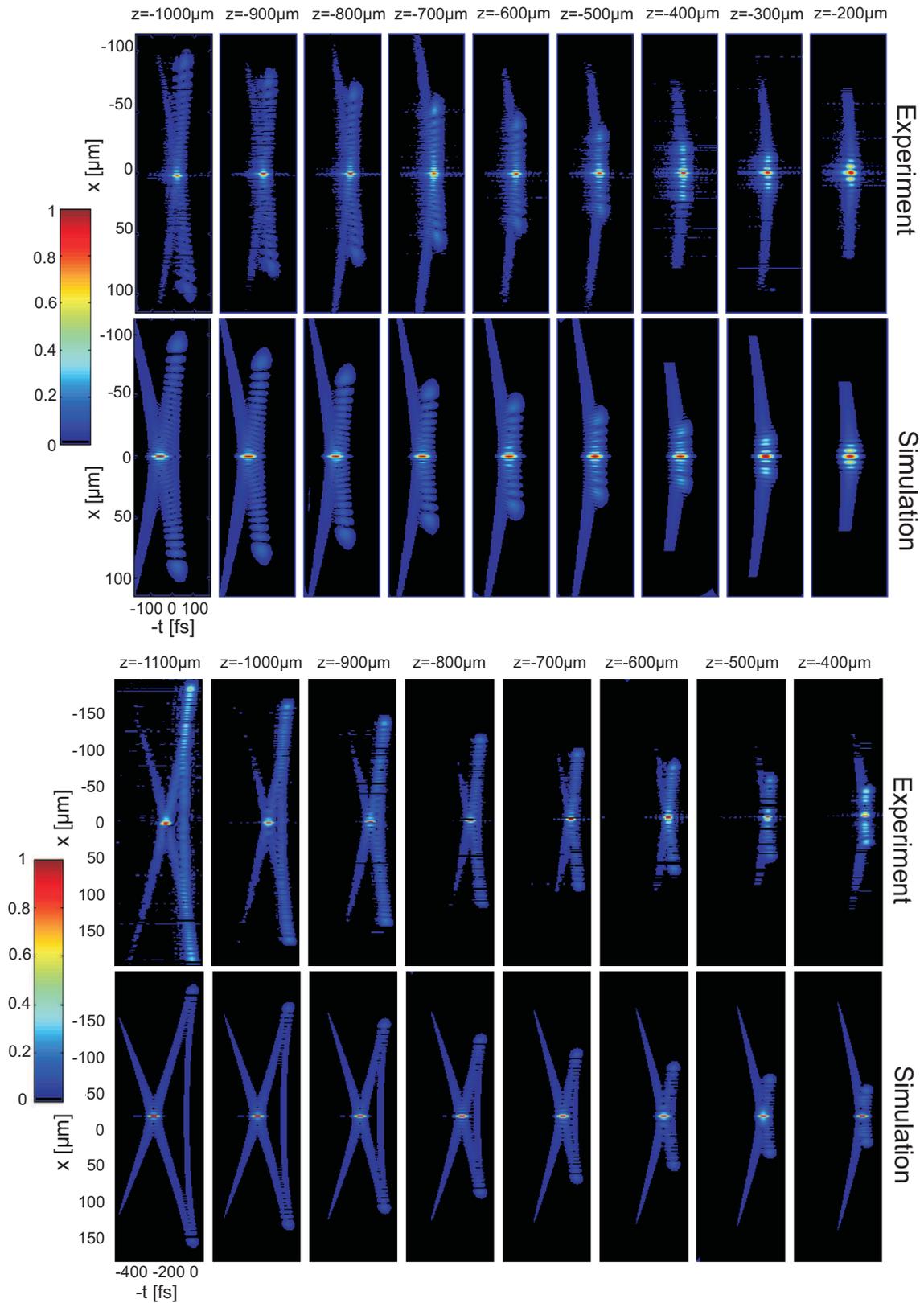


Abbildung 6.9: Dargestellt sind jeweils die gemessenen Intensitätsverteilungen von Messung mit einer SNOM-Spitze und der dazugehörigen Simulation wie sie in [114] publiziert worden. Fokussiert wurden 19fs-Laserpulse (FWHM) bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$. **oben:** Fokussierung mit einer plankonvexen Sammellinse aus SF11 und einer $NA = 0,28$. **unten:** Fokussierung mit einer plankonvexen Sammellinse aus BK7 und einer $NA = 0,5$.

Dadurch ist über die gesamte Propagationsstrecke zwischen dem marginalen und paraxialen Fokus die Energie stark um die optische Achse konzentriert. Auch hier ist die Übereinstimmung der gemessenen und numerisch berechneten Verläufe sehr gut. Bei der zweiten Messung ist es in den Ebenen $z = -1100\mu\text{m}$ und $z = -1000\mu\text{m}$ sogar möglich, gleichzeitig die Pulsfront und den Pseudo-X-Puls zu sehen. Daher sei hervorgehoben, dass dies der erste direkte experimentelle Nachweis der numerisch vorhergesagten Ausbildung von Pseudo-X-Pulsen aufgrund von starken sphärischen Aberrationen bei der Fokussierung ultrakurzer Laserpulse ist.

6.4.2 Messung mit einem Hoch-NA-Mikroskopobjektiv

Für den Nachweis der Funktionsweise von *scanning* SEA TADPOLE unter Verwendung des Hoch-NA-Mikroskopobjektivs zur raum-zeitlichen Charakterisierung fokussierter Laserpulse wurde ebenfalls die Fokussierung mit einer Asphäre mit $\text{NA} = 0,5$ ausgewählt. Dabei handelt es sich um die selbe Linse, welche als Grundlage für die numerischen Simulationen in Abschnitt 5.1.2 dient. Die Messung erfolgte am IAP mit 25fs-Laserpulsen bei einer Zentralwellenlänge von $\lambda_0 = 800\text{nm}$ (Anhang C). Abbildung 6.10 zeigt ein erstes Ergebnis dieser Messung, bei welchem bereits die verbesserte räumliche Abtastung gegenüber der Verwendung der SNOM-Faser deutlich wird. Der rekonstruierte raum-zeitliche Pulsverlauf ist wesentlich symmetrischer bezüglich der optischen Achse der Asphäre, da das Mikroskopobjektiv zuverlässiger auf diese justiert werden kann. Dieser Vorteil resultiert direkt aus der Funktionsweise eines Mikroskopobjektivs, dessen optische Achse bei entsprechender mechanischer Ausrichtung automatisch parallel zu der optischen Achse der zu untersuchenden Fokussieroptik ist. Dies ist bei SNOM-Fasern, wie bereits erwähnt, aufgrund der unterschiedlichen Lochpositionen nicht gegeben.

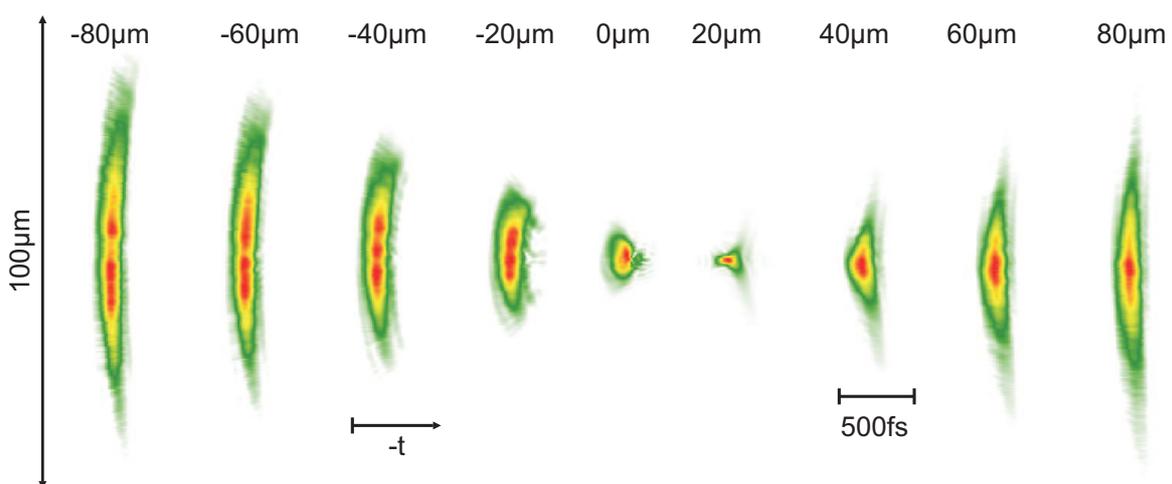


Abbildung 6.10: Dargestellt sind die gemessenen Feldverteilungen einer Messung mit dem Hoch-NA-Mikroskopobjektiv. Fokussiert wurde ein 25fs-Laserpuls (FWHM) bei $\lambda_0 = 800\text{nm}$ mit einer Asphäre und einer $\text{NA} = 0,5$. Die Normierung erfolgt in jeder Ebene einzeln auf das jeweilige Maximum. Die Wahl der Ebenenbezeichnung ist willkürlich. Die Ebene $z = 0\mu\text{m}$ bezeichnet den Ort höchster Intensität im Experiment.

In den Ebenen $z = -20\mu\text{m}$ und $z = 0\mu\text{m}$ ist andeutungsweise sogar der Begleitpuls bzw. dessen Nebenmaxima zu erkennen. Auch die verbleibende konvexe Krümmung der Pulsfront nach Durchlaufen der Brennebene ist sichtbar. Aufgrund mechanischer Probleme in der Höhenjustage des Messarms im Aufbau wurde in der in Abb. 6.10 gezeigten Messung leider nicht exakt entlang der optischen Achse gemessen, sondern leicht darüber oder darunter. Trotz dieser Einschränkung ist die Verbesserung in der räumlichen Abtastung in dieser Variante von *scanning* SEA TADPOLE bereits gut sichtbar. Diese Erweiterung der Versuchsaufbaus bildet die Basis für die raum-zeitliche Charakterisierung fokussierter Laserpulse mit noch höherer numerischer Apertur.

Zusammenfassung und Ausblick

Motiviert durch die rasant wachsende Zahl der Anwendungsgebiete von Mikro-Materialbearbeitung mit ultrakurzen Laserpulsen, beschäftigt sich die vorliegende Arbeit mit der Wechselwirkung fokussierter ultrakurzer Laserpulse mit Kieselglas, welches exemplarisch als Dielektrikum ausgewählt wurde. Untersucht werden hierbei zum einen die raum-zeitlichen Verzerrungen aberrierter Laserpulse unter zusätzlicher Berücksichtigung eines intensitätsabhängigen Brechungsindex. Zum anderen wird das durch die Fokussierung im Material entstehende Elektronenplasma berechnet und die Wechselwirkung des Laserpulses mit diesem analysiert. Daran anschließend erfolgt der Vergleich der Elektronendichteverteilungen mit experimentell in Kieselglas erzeugten Strukturen. Eine wichtige Grundlage der numerischen Simulationen zur nichtlinearen Wechselwirkung fokussierter Laserpulse bildet die genaue Kenntnis der raum-zeitlichen Verzerrung der Pulsfronten durch das verwendete (reale) optische System. Daher ist es essentiell eine Messmethode zu besitzen, mit welcher die orts aufgelöste Charakterisierung fokussierter Laserpulse möglich ist. In Zusammenarbeit mit der Gruppe um Prof. Rick Trebino wurde mit *scanning* SEA TADPOLE erstmals ein derartiges Messverfahren realisiert, dessen Weiterentwicklung zu verbesserter spektraler Auflösung und höherer Ortsauflösung im letzten Teil dieser Arbeit vorgestellt wird.

Um bei den numerischen Simulationen der Propagation fokussierter Laserpulse im Material die durch die Fokussieroptiken bedingten Aberrationen, Dispersions- und Beugungseffekte berücksichtigen zu können, erfolgt die Berechnung im Rahmen dieser Arbeit nicht wie allgemein üblich durch das Lösen der nichtlinearen SCHRÖDINGER-Gleichung. Vielmehr wird die dreidimensionale Ausbreitung jeder spektralen Komponente einzeln, zunächst mittels Ray-tracing durch das optische System und daran anschließend mit wellenoptischen Methoden, berechnet. Für die Simulation der Ausbreitung in Kieselglas unter Berücksichtigung der nichtlinearen Materialwechselwirkung wurde die von W. Singer [28] für monochromatische Wellenausbreitung mit variierendem lateralen Brechungsindexprofil eingeführte WAVE PROPAGATION METHOD (WPM) für die Berechnung mit Laserpulsen erweitert. Diese erweist sich auch bei hohen numerischen Aperturen als sehr genau. Als natürliche Folge dieser Art der Berechnung werden neben den obigen linearen Propagationseffekten auch automatisch alle nichtlinearen Effekte, welche aus dem zeitlich variierenden Brechungsindexprofil und der Absorption folgen, ohne zusätzliche Näherung mit berücksichtigt.

Werden freie Elektronen in Dielektrika aufgrund der Einstrahlung eines starken elektroma-

gnetischen Feldes erzeugt, so können diese zum einen durch nichtlineare Photoionisation und zum anderen mittels Stoßionisation vom Valenz- ins Leitungsband übergehen. Ersteres wird meistens mit der Theorie von Keldysh [30], welche die Prozesse der Multiphotonen- und Tunnelionisation sowie eventuelle Mischprozesse beinhaltet, beschrieben. Im Rahmen dieser Arbeit wird neben dem KELDYSH-Modell noch das kürzlich bezüglich der Bandstrukturbeschreibung erweiterte Modell von Gruzdev [31] verwendet. Die Stoßionisation wird in beiden Fällen mit dem von Rethfeld vorgeschlagenen MRE-Modell berechnet [41, 42], um der zeitlichen Dynamik dieses Prozesses für ultrakurze Laserpulse Rechnung zu tragen. Im Rahmen dieser Arbeit werden erstmalig die Elektronendichteverteilungen durch die Kombination obiger Modelle berechnet. Darüber hinaus erfolgt die Simulation mit realen raum-zeitlichen Pulsgeometrien in der Fokussungsumgebung, was die Basis für exaktere Aussagen über auftretende Intensitätsverteilungen ist, da schon geringe Aberrationen bei der Fokussierung zu Unterschieden in den maximal erreichten Intensitäten im Bereich von einer Größenordnung führen.

Der Vergleich der mit den zwei verschiedenen Modellen berechneten Elektronendichteverteilungen in den fokalen Gebieten der Optiken offenbart auf den ersten Blick fundamentale Unterschiede. Während sich bei den Berechnungen mit dem KELDYSH-Modell für alle Pulsenergien immer glatte, kontinuierlich verlaufende Verteilungen ergeben, weisen die mit dem Modell nach Gruzdev berechneten Verteilungen zusätzliche Strukturen auf, welche hochionisierten Gebieten entsprechen und aus der veränderten Intensitätsabhängigkeit der nichtlinearen Photoionisationsrate resultieren. Der Vergleich der experimentell in Kieselglas erzeugten Strukturen zu den berechneten Verteilungen zeigt mit dem Modell nach Gruzdev bessere Übereinstimmung. Bei den Berechnungen mit dem KELDYSH-Modell konnte dagegen kein einheitliches Kriterium der Elektronendichte für das Auftreten von Materialmodifikationen vom Typ I (Brechungsindexmodifikationen) und Typ II (Materialzerstörung) gefunden werden. Daher wird in dieser Arbeit, basierend auf dem Modell von Gruzdev, die Hypothese aufgestellt, dass das Auftreten von Materialmodifikationen vom Typ I oder II stark von der Form und Ausdehnung der hochionisierten Gebiete im Material abhängt. Entsprechende Kriterien zur Unterscheidung der Art der Modifikation konnten anhand der numerischen Simulationen abgeleitet werden. Darüber hinaus ist es in den Berechnungen mit dem Modell von Gruzdev gelungen, das Auftreten sogenannter Graukanäle bei Fokussierung mit niedrigen numerischen Aperturen erstmals zu simulieren und schlüssig zu erklären sowie die sehr gute Übereinstimmung zu den experimentell erzeugten Strukturen zu zeigen.

Durch die gewählte Art der Berechnung der Propagation ultrakurzer Laserpulse konnten erstmalig experimentelle Bedingungen bei der Erzeugung von Materialmodifikationen realitätsnah in den Simulationen nachempfunden und so auftretende Effekte besser zugeordnet werden. Für ein tieferes Verständnis der beteiligten Prozesse ist es allerdings unumgänglich weitere systematische experimentelle Untersuchungen durchzuführen, welche zudem eng an die Erkenntnisse aus

den numerischen Simulationen gekoppelt sind. Die in dieser Arbeit vorgestellten Modelle sowie insbesondere deren Kombination bilden dafür eine solide Basis. Die von Gruzdev eingeführte Erweiterung des Bandstrukturmodells bei der Berechnung der nichtlinearen Photoionisation ist nach wie vor sehr einfach und bedarf weiterer Modifikationen, vor allem im Hinblick auf die Verbesserung der Beschreibung amorpher Materialien wie Kieselglas.

Im zweiten Teil dieser Arbeit stand die experimentelle, räumliche Charakterisierung fokussierter Laserpulse im Mittelpunkt. Die Kenntnis der Feldverteilungen im Fall linearer Fokussierung ist die Voraussetzung für die realistische Bestimmung der Eingangsparameter des Laserpulses in den numerischen Simulationen der nichtlinearen Materialwechselwirkung mit den vorgestellten Modellen. Das ursprünglich in der Gruppe um Rick Trebino entwickelte Verfahren *scanning SEA TADPOLE* ermöglicht erstmals eine solche raum-zeitliche Charakterisierung fokussierter Laserpulse, ist in seiner Grundvariante aber auf die Vermessung von Optiken mit $NA < 0,12$ beschränkt. In enger Zusammenarbeit erfolgte unter Verwendung von SNOM-Fasern die Erhöhung der Ortsauflösung auf $NA < 0,5$. Damit gelang der weltweit erste direkte Nachweis des sogenannten *fore-runner* Pulses und von Pseudo-Bessel-Pulsen bei der Fokussierung mit starken sphärischen Aberrationen. Zur weiteren Verbesserung der Ortsauflösung wird in dieser Arbeit noch die Abtastung mittels eines Hoch-NA-Mikroskopobjektivs vorgestellt, mit welchem theoretisch Fokussieroptiken bis $NA < 0,95$ untersucht werden können und dessen prinzipielle Funktionsweise nachgewiesen werden konnte.

Die Berechnung der durch Wechselwirkung mit ultrakurzen Laserpulsen im Material entstehenden Elektronendichten bildet ohne Zweifel die Grundlage der Untersuchungen zur Entstehung von permanenten Materialmodifikationen in Form von Brechungsindexänderungen und Materialzerstörung. Wie die Untersuchungen in dieser Arbeit zeigen, ist die systematische Verknüpfung von Experiment und numerischer Simulation unerlässlich. Angefangen von einer möglichst genauen Charakterisierung der fokussierten Laserpulse, über die sorgfältige Auswahl der Modelle zur Beschreibung des Materials, bis hin zur realistischen Simulation der nichtlinearen Ausbreitung der Laserpulse im Material, haben alle Teilaspekte einen mitunter starken Einfluss auf die berechneten Elektronendichteverteilungen und damit auf die Vergleichbarkeit zu experimentell erzeugten Strukturen. Um eine zuverlässigere Aussage über die Form und Größe von eingebrachten Modifikationen treffen zu können, reicht die Betrachtung der hochionisierten Gebiete natürlich nicht aus. Diese geben zwar einen Anhaltspunkt, vielmehr ist aber eine zusätzliche Betrachtung der Wechselwirkung zwischen dem Elektronenplasma und dem Festkörper notwendig.

A Skalare Wellenausbreitung

In den Abschnitten 2.1 und 2.2.2 wird die Beschreibung der Ausbreitung und Fokussierung ultrakurzer Laserpulse diskutiert. In diesem Zusammenhang wird dort skalare Wellenausbreitung angenommen. Diese Näherung der HELMHOLTZ-Gleichung (Gl. (2.6)) soll gerechtfertigt werden.

Aufgrund der spektralen Zerlegung nach Gl. (2.9) kann die Behandlung der Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse für jede spektrale Komponente einzeln erfolgen. Diese sind, in Anlehnung an das Experiment, linear polarisiert. Ohne Beschränkung der Allgemeinheit wird eine lineare Polarisation in x-Richtung angenommen. Das elektrische Feld hat damit die Form

$$\mathbf{E}(\nu, x, y, z) = [E_x(\nu, x, y, z), E_y(\nu, x, y, z), E_z(\nu, x, y, z)] = [E_x(\nu, x, y, z), 0, 0]. \quad (\text{A.1})$$

Bei der Fokussierung von linear polarisierten Feldern tritt der Effekt der Depolarisation, das heißt, eine Veränderung der Polarisation des elektrischen Feldes, auf. Die Stärke dieses Effektes ist abhängig von der numerischen Apertur der Optik und resultiert aus dem Übergang der ebenen Welle in eine Kugelwelle. Dies ist schematisch in Abb. A.1 dargestellt. Die Transformation einer ebenen Eingangswelle in eine Kugelwelle ist im Detail in [57, 118] vollzogen.

Für ein in x-Richtung linear polarisiertes elektrisches Feld konnte der Effekt der Depolarisation durch Fokussierung mit einem Mikroskopobjektiv bei einer $NA = 1,4$ [119] experimentell nachgewiesen werden - 1,5% der Energie sind in die y-Komponente des Feldes übergegangen. Die Verzerrung des Fokus aufgrund der linearen Polarisation des Eingangsfeldes hin zu einem elliptischen Spot wurde von Dorn *et al.* [120] 2003 erstmal experimentell nachgewiesen. Das dabei verwendete Mikroskopobjektiv hat bei voller Ausleuchtung eine $NA = 0,9$. Das experimentell bestimmte Verhältnis der Halbachsen des elliptischen Fokus ist 0,83. Die Verzerrung ist damit selbst bei dieser hohen NA nur minimal. Die schrittweise Verringerung der NA in [120] zeigt das nahezu vollständige Verschwinden der Anisotropie unterhalb von $NA = 0,4$ und ein Verhältnis der Halbachsen von 0,95 bei $NA = 0,55$ (Abb. 5 in [120]). Diese Ergebnisse legen den Schluss nahe, dass die skalare Näherung der HELMHOLTZ-Gleichung bei Behandlung der Fokussierung mit numerischen Apertur $\leq 0,5$ noch gerechtfertigt ist.

Anzumerken bleibt jedoch, dass der skalare Fokus immer die untere Abschätzung der Fokusgröße ist, da stillschweigend vorausgesetzt wurde, dass im Fokus alle Komponenten des elektrischen Feldes parallel zueinander sind. Vektoriell berechnet verbreitert sich der fokale Spot.

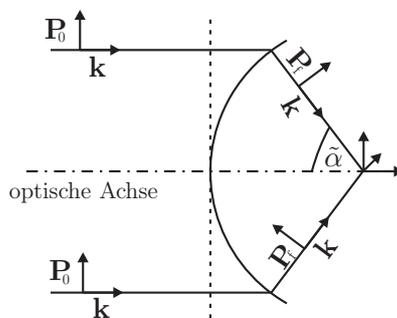


Abbildung A.1: Schematisch Darstellung der Änderung der Polarisationsrichtung einer linear polarisierten ebenen Wellenfront durch Fokussierung.

B Berechnung der nichtlinearen Photoionisationsraten

Die Ionisationsraten der nichtlinearen Photoionisation $\dot{\rho}_{\text{pi}}$ werden im Rahmen dieser Arbeit mit zwei verschiedenen Modellen berechnet. Zum einen mit der sehr häufig verwendeten Modellierung nach Keldysh [30] und zum anderen mit einem durch Gruzdev kürzlich bzgl. der verwendeten Energie-Impuls-Relation erweitertern Variante [31, 32]. Nachfolgend sind die dafür notwendigen mathematischen Beschreibungen aufgeführt. Im Anschluss daran werden auffällige Unterschiede in den mit beiden Modellen berechneten Ionisationsraten diskutiert.

Bei der Modellierung der nichtlinearen Photoionisation werden im Rahmen dieser Arbeit bei beiden Ansätzen immer die vollständigen Modelle verwendet und nicht durch reine Multiphotonenabsorption einer bestimmten Ordnung genähert. Daher werden nicht nur alle Prozesse der nichtlinearen Photoionisation (Multiphotonenionisation, Tunnelionisation und der entsprechende Mischprozess) berücksichtigt, sondern auch das gleichzeitige Auftreten von Multiphotonenabsorption höherer Ordnung. Bei der Erhöhung der Anzahl der zu absorbierenden Photonen um ein Photon sinkt die Photoionisationsrate für diesen Prozess um zwei bis drei Größenordnungen. Deshalb kann die Berücksichtigung auch als Korrektur höherer Ordnung verstanden werden.

B.1 Keldysh-Modell

Zur Berechnung der nichtlinearen Photoionisationsrate für Materialien mit großer Bandlücke, das heißt $\Delta \gg \hbar\omega$, hat Keldysh [30] für die Energie-Impuls-Relation nach Gl. (3.2) folgende Formeln abgeleitet:

$$\dot{\rho}_{\text{pi,K}} = \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{\sqrt{1 + \gamma_k^2} m_{\text{el}}^* \omega}{\gamma_k \hbar} \right)^{\frac{3}{2}} Q \left(\gamma, \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} \right) \exp \left[-\pi \left\langle \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} + 1 \right\rangle \frac{K_1 - E_1}{E_2} \right]. \quad (\text{B.1})$$

Durch die effektive Bandlücke

$$\tilde{\Delta} = \frac{2}{\pi} \Delta \frac{\sqrt{1 + \gamma_k^2}}{\gamma_k} E_2 \quad (\text{B.2})$$

wird neben der Bandlücke Δ des Materials auch die Schwingungsenergie des Elektrons im äußeren elektrischen Feld E_L berücksichtigt. Der KELDYSH-Parameter γ_k bietet dabei die Möglichkeit zur Unterscheidung der beiden Ionisationsregime - Multiphotonenionisation ($\gamma_k \gg 1$) und Tunnelionisation ($\gamma_k \ll 1$) - und ist durch

$$\gamma_k = \frac{\omega}{eE_L} \sqrt{m_{\text{el}}^* \Delta} \quad (\text{B.3})$$

gegeben. Für den Fall reiner Multiphotonenionisation mit $\gamma_k \gg 1$ vereinfacht sich der Ausdruck der effektiven Bandlücke zu $\tilde{\Delta} = \Delta + \frac{e^2}{4\mu\omega^2} \cdot |E_L|^2$. Weitere Faktoren von Gl. (B.1) sind die

unendliche Summe

$$Q\left(\gamma, \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega}\right) = \sqrt{\frac{\pi}{2K_2}} \sum_{n=0}^{\infty} \exp\left[-\pi n \frac{K_1 - E_1}{E_2}\right] \Phi\left(\pi \sqrt{\frac{2\left\langle \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} + 1 \right\rangle - 2\frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} + n}{2K_2}} E_2\right), \quad (\text{B.4})$$

und die Integrale

$$E_1 = E\left(\frac{\gamma_k}{\sqrt{1 + \gamma_k^2}}\right), \quad E_2 = E\left(\frac{1}{\sqrt{1 + \gamma_k^2}}\right), \quad (\text{B.5})$$

$$K_1 = K\left(\frac{\gamma_k}{\sqrt{1 + \gamma_k^2}}\right), \quad K_2 = K\left(\frac{1}{\sqrt{1 + \gamma_k^2}}\right), \quad (\text{B.6})$$

mit den elliptischen Integralen der ersten (K) und der zweiten Art (E) [121]. Des Weiteren bezeichnet Φ in Gl. (B.4) das sogenannte DAWSON-Integral [121]. Die darin und in Gl. (B.1) enthaltene Bezeichnung $\left\langle \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} + 1 \right\rangle$ meint den ganzzahligen Anteil dieser Summe.

B.2 erweitertes Modell nach Gruzdev

Bei der Berechnung der nichtlinearen Photoionisationsraten folgt Gruzdev [31, 32] im Wesentlichen der Vorgehensweise von Keldysh. Durch die Wahl der kosinusförmigen Energie-Impuls-Relation für einen isotropen Festkörper

$$E_{\text{cos}}(\mathbf{p}) = \Delta \left[1 + \frac{\hbar^2}{m_{el}^* \Delta d^2} \left(1 - \cos^3 \left(\frac{d}{\hbar} p \right) \right) \right] \quad (\text{B.7})$$

ergibt sich für die Ionisationsrate

$$\begin{aligned} \dot{\rho}_{\text{pi,cos}} = & 2 \frac{2\omega}{9\pi} \sqrt{\frac{\omega^3}{\hbar\Delta}} \frac{m_{el}^*}{dJ_0(\chi)} \exp\left[-2 \frac{u_c - 1}{J_0(\chi)} \left(\left\langle \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} + 1 \right\rangle - \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} \right) f_2(\chi)\right] \times \\ & \exp\left[-2 \frac{\Delta}{\hbar\omega} \frac{u_c}{u_c - 1} \left\{ \sinh^{-1} \left(\frac{u_0}{\chi} \right) - \frac{u_0}{u_c} f_1(\chi) \right\}\right] Q\left(\chi, \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega}\right). \end{aligned} \quad (\text{B.8})$$

Gruzdev führt dabei einen abgewandelten Parameter zur Unterscheidung der Ionisationsregime ein. Dieser lautet

$$\chi = \frac{eE_L d}{\hbar\omega} \quad (\text{B.9})$$

und die Grenzfälle sind mit $\chi \gg 1$ für Tunnelionisation und $\chi \ll 1$ für Multiphotonenabsorption angebar. Die effektive Bandlücke ist dabei durch

$$\tilde{\Delta} = \Delta \left(1 + \frac{\hbar^2}{m_{el}^* d^2 \Delta} [1 - J_0(\chi)] \right) \quad (\text{B.10})$$

gegeben. Nachfolgend sind alle zur Berechnung von Gl. (B.8) notwendigen Funktionen aufgeführt:

$$u_0 = \cosh^{-1} u_c \quad \text{und} \quad u_c = 1 + \frac{m_{el}^* d^2 \Delta}{\hbar^2} \quad (\text{B.11})$$

und die Integrale

$$f_1(\chi) = \int_0^1 \frac{\cosh(u_0 \xi)}{\sqrt{\chi^2 + u_0^2 \xi^2}} d\xi \quad \text{und} \quad f_2(\chi) = \frac{u_0}{u_c - 1} f_1(\chi) - \sqrt{\frac{u_c + 1}{(u_c - 1)(\chi^2 + u_0^2)}}, \quad (\text{B.12})$$

sowie die unendliche Summe

$$Q_{\cos} \left(\chi, \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} \right) = \left(\frac{u_c - 1}{u_c + 1} (\chi^2 + u_0^2) \right)^{\frac{1}{4}} \sum_{n=0}^{\infty} \exp \left[-2n \frac{u_c - 1}{J_0(\chi)} f_2(\chi) \right] \times \Phi \left(\sqrt{\frac{2(u_c - 1)}{J_0(\chi)} \left(\left\langle \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} + 1 \right\rangle - \frac{\tilde{\Delta}}{\hbar\omega} + n \right) \sqrt{\frac{u_c + 1}{(u_c - 1)(\chi^2 + u_0^2)}}} \right), \quad (\text{B.13})$$

worin Φ wieder das DAWSON-Integral bezeichnet.

B.3 Vergleich der Photoionisationsraten

An dieser Stelle soll noch einmal der Unterschied der mit den zwei verschiedenen Modellen berechneten Ionisationsraten diskutiert werden. Die dafür in den nachfolgenden Betrachtungen gezeigten Abbildungen und die dazugehörigen Erläuterungen entstammen der persönlichen Kommunikation mit Dr. Vitaly Gruzdev, Assistant Research Professor, an der University of Missouri, USA [82]. Zwischenzeitlich sind Teile hiervon von ihm zur Veröffentlichung eingereicht worden [122].

Beim Vergleich der in Abb. 2.5 dargestellten Photoionisationsraten fällt auf, dass diese trotz gleicher Materialparameterwahl auf weiten Teilen um etwa ein Größenordnung differieren und kurz vor Erreichen der Polstelle bis zu drei Größenordnungen auseinander liegen. Wie bereits in Abschnitt 2.4.3 angedeutet, hat die Wahl der Energie-Impuls-Beziehung entscheidenden Einfluss auf den intensitätsabhängigen Verlauf der Ionisationsraten. Dies soll nachfolgend näher erläutert werden.

Für die nichtlineare Photoionisation wird der Übergang eines Elektrons vom Valenz- ins Leitungsband betrachtet. Die Wahrscheinlichkeit eines solche Übergangs hängt exponentiell von der Energielücke zwischen den beiden Bändern ab. Wenn es also einen Punkt im k-Raum gibt, an dem ein Minimum der Bandlücke erreicht wird, trägt dieser Punkt am meisten zum Interband-Übergang der Elektronen bei. Alle anderen Punkte im k-Raum tragen entsprechend der exponentiellen Abhängigkeit wenig bei und können daher als eine Art Korrektur höherer Ordnung verstanden werden. Bei den beiden hier in der Arbeit diskutierten Bandstrukturmodellen handelt es sich jeweils um eine Näherung durch nur ein Valenz- und ein Leitungsband mit direkter Bandlücke. Daher tragen zunächst hauptsächlich die Elektronen am Γ -Punkt zur Photoionisation bei.

Dieses allgemeine Konzept der Photoionisation bedeutet, dass, je kleiner die zu überwindende Bandlücke ist, desto größer ist die Ionisationsrate. Im KELDYSH-Modell mit der KANE-Typ Bandstruktur steigt die effektive Bandlücke $\tilde{\Delta}$ stark mit der Intensität an und das Leitungsband zeigt nur sehr leichte Abflachung für hohe Intensitäten. Das heißt insbesondere, dass auch bei

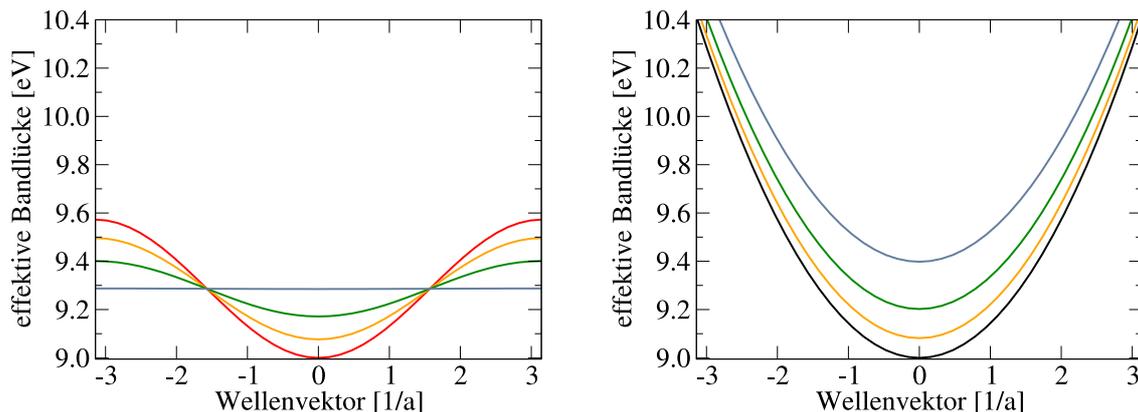


Abbildung B.1: Dargestellt sind die berechneten Variationen der effektiven Bandstruktur für die kosinusförmige (links) und KANE-Typ (rechts) Energie-Impuls-Relation für Kieselglas mit $\lambda_0 = 800\text{nm}$. Die rote (links) und schwarze (rechts) Kurve zeigen jeweils den ursprünglichen Bandverlauf ohne äußeres elektrisches Feld. Die anderen Kurven zeigen die effektiven Bandstrukturen mit einem äußeren Feld mit verschiedenen maximalen Intensitäten: gelbe Kurve $2 \cdot 10^{12}\text{W/cm}^2$, grüne Kurve $5 \cdot 10^{12}\text{W/cm}^2$ und blaue Kurve $10 \cdot 10^{12}\text{W/cm}^2$ (Singularität).

hohen Intensitäten hauptsächlich Elektronen in der Nähe des Γ -Punktes zur Photoionisationsrate beitragen. Das erweiterte Modell von Gruzdev führt eine kosinusförmige Energie-Impuls-Beziehung (Gl. (2.40)) zur besseren Beschreibung von Dielektrika mit großer Bandlücke ein. Eine direkte Folge davon ist die limitierte Amplitude der effektiven Bandlücke bei steigenden Intensitäten. Daher ist die Ionisationsrate nach Gruzdev immer größer als die im KELDYSH-Modell. Verstärkt wird dieser Effekt zusätzlich, wenn die Anzahl der zu absorbierenden Photonen unterschiedlich ist, da die Wahrscheinlichkeit der Photoionisation bei einem solchen Ordnungswechsel signifikant absinkt und die Ionisationsraten um zwei bis drei Größenordnungen fallen (siehe Abb. 2.5). Der Verlauf der effektiven Bandstruktur (Differenz aus Valenz- und Leitungsband in Abhängigkeit vom k -Vektor) ist für beide Fälle und verschiedene Intensitäten in Abb. B.1 dargestellt. Zusätzlich kommt es bei der kosinusförmigen Bandstruktur bei einer bestimmten Intensität zu einem völlig flachen und konstanten Verlauf. Diese Intensität entspricht dem Wert an der 1. Polstelle der Photoionisationsrate, deren Auftreten hier auch näher beleuchtet werden soll.

Dem plötzlichen Ansteigen der Photoionisationsrate an der Singularität geht für Kieselglas mit den gewählten Parametern ein starker Abfall voraus. Bei einigen Materialien fehlt bei bestimmten Wellenlängen dieser Abfall, was genauer in [122] diskutiert wird. Hier soll nur der für diese Arbeit relevante Fall, Kieselglas und eine Zentralwellenlänge von $\lambda_0 = 800\text{nm}$, diskutiert werden.

In beiden hier diskutierten Modellen ist aus Gründen der Energieerhaltung eine exakte Übereinstimmung der absorbierten Photonenenergie $K \cdot \hbar\omega$ und der effektiven Bandlücke notwendig. Abbildung. B.2 (links) zeigt schematisch einen solchen Übergang (1) und auch den notwendigen Ordnungswechsel (2), wenn aufgrund der durch das äußere elektrische Feld veränderten Bandstruktur (rote Kurve) ein Photon mehr absorbiert werden muss. Wie bereits zuvor erwähnt, führt die steigende Intensität zu einem Abflachen der effektiven Bandstruktur, bis hin zu einem konstanten Verlauf im k -Raum. Während dieses Übergangs kann es nun passieren, dass es für eine bestimmte Intensität keine ganzzahligen Vielfachen von $\hbar\omega$ gibt, die gleich dem momentanen Wert der effektiven Bandlücke sind. Dieser Fall ist in Abb. B.2 (rechts) dargestellt und führt zu einem schnellen Absinken der Photoionisationsraten in diesem Intensitätsbereich. Gruzdev bezeichnet diesen Vorgang als *photoionization suppression* (Unterdrückung der Photoionisation). Beim Erreichen der Intensität, die zu einer flachen, konstanten effektiven Bandstruktur

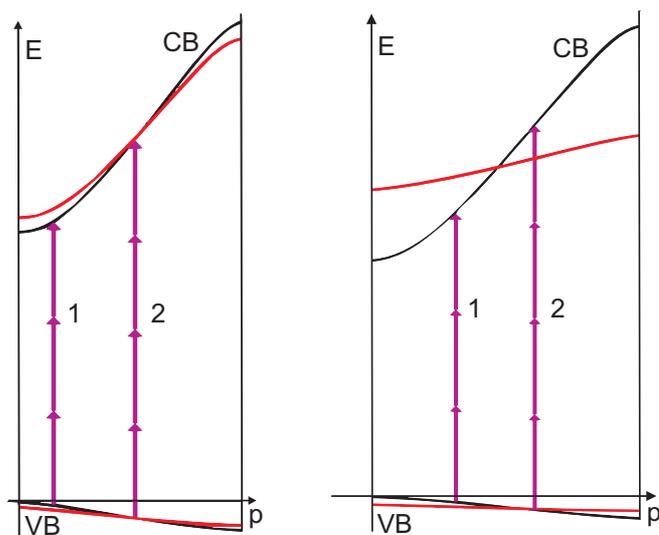


Abbildung B.2: Schematische Darstellung der ursprünglichen Bandstruktur (schwarz) und einer durch ein äußeres Feld modifizierten (rot.) Die Bandstruktur ist durch ein Valenzband (VB) und ein Leitungsband (CB) mit direkter Bandlücke genähert. **links:** Ordnungswechsel bei der Multiphotonenabsorption - es muss ein Photon mehr für den Übergang absorbiert werden. **rechts:** Schematische Darstellung der *photoionization suppression* (Unterdrückung der Photoionisation), wenn es für eine bestimmte Intensität keine ganzzahligen Vielfachen von $\hbar\omega$ gibt, die gleich dem momentanen Wert der effektiven Bandlücke sind. Abbildungen übernommen von [82].

führt, werden schlagartig quasi alle Valenzelektronen ionisiert, da sich an diesem Punkt für alle Elektronen die gleiche Wahrscheinlichkeit für einen Übergang einstellt. Zudem kennzeichnet die 1. Polstelle einen Phasenübergang, bei welchem das Material anschließend und bei noch höheren Intensitäten mit völlig neuen Parametern beschrieben werden muss. Die vollständig ionisierten Dielektrika haben an diesem Punkt stark metallischen Charakter.

Das Modell von Gruzdev stellt auch nur eine Näherung der Bandstruktur dar und kann daher nicht alle auftretenden Effekte zufriedenstellend erklären. Das Auftreten der Polstellen gibt aber einen Hinweis darauf, dass sich die Materialeigenschaften an diesem Punkt völlig ändern und bei höheren Intensitäten eventuell mit andern Modellen beschrieben werden sollten. Im Rahmen dieser Arbeit wird das Hauptaugenmerk in der Verwendung des Modells von Gruzdev hauptsächlich auf die Verortung des Auftretens permanenter Materialmodifikationen vom Typ II gelegt, da die Intensität an der Polstelle gut zu den gemessenen Schwellintensitäten [65, 66] für einen optischen Durchbruch passt.

C Numerik

Die Berechnung der elektrischen Felder $E(t, x, y, z)$ der Laserpulse erfolgt numerisch und unterliegt daher einigen Randbedingungen. Zum einen müssen die unendlichen Integrationsgebiete der in Kapitel 2 angegebenen Integrale beschränkt werden, was zu einer zusätzlichen Periodizität der Ergebnisse führt. Zum anderen können alle kontinuierlichen Funktionen nur auf einem Satz Stützstellen abgetastet werden, welcher jeweils angepasst gewählt werden muss.

C.1 Samplingparameter

Im Fall der linearen Propagation zwischen Austrittspupille und Materialgrenze wird das Integrationsgebiet der räumlichen FOURIER-Transformation bereits durch die Größe der Austrittspupille bestimmt und beschränkt. Diese ist allein durch das optische System und dessen NA vorgegeben. Die Anzahl der Abtastpunkte auf der Referenzsphäre in der Austrittspupille muss entsprechend der Stärke der vorhandenen Aberrationen gewählt werden, damit eine kontinuierliche Abtastung der Phasenfront möglich ist. Für die im Rahmen dieser Arbeit betrachteten Systeme reichen 1001 radiale Pixel aus.

Im SPLIT-STEP-Algorithmus für die Berechnungen mit nichtlinearer Materialwechselwirkung muss zum einen darauf geachtet werden, die Feldverteilungen genügend stark einzubetten, damit es nicht zu unerwünschten Effekten, wie z.B. durch eine zusätzliche Apertur, kommt. Zum anderen ist die Pulsfront an der Materialgrenze um gut zwei Größenordnungen stärker ausgehnt als im Fokusgebiet, weshalb die Pixelgröße während der Propagation nachgeführt werden muss, um so immer eine ausreichende Abtastung des elektrischen Feldes zu gewährleisten. Daher wird in verschiedenen Propagationsebenen die Pixelgröße durch FOURIER-Interpolation zuerst verringert und nach der Brennebene spiegelsymmetrisch wieder schrittweise vergrößert. Diese Anpassung erfolgt für die einzelnen Fokussieroptiken analog zu dem in Tab. C.1 exemplarisch für das Mikroskopobjektiv angegebenen Schema.

Ebene ab MG [μm]	20	40	60	80	100	120	140	160	200
Pixelgröße [nm]	450	400	350	300	250	200	150	100	150

Tabelle C.1: Ebenen ab der Materialgrenze (MG) im Falle des Mikroskopobjektivs, in denen die Pixelgröße auf den angegebenen Wert mittels FOURIER-Interpolation angepasst wird.

Das Integrationsgebiet der zeitlichen FOURIER-Transformation Γ wird durch die Anzahl und den Frequenzabstand $\delta\nu$ der berücksichtigten spektralen Komponenten begrenzt. Dies bestimmt auch gleichzeitig die Zeitauflösung von $E(t, x, y, z)$ über

$$\delta t = \Gamma^{-1}. \quad (\text{C.1})$$

Soll die Darstellung des zeitlichen Pulsverlaufs besser abgetastet sein, muss das Integrationsgebiet Γ vergrößert werden. Eine zusätzliche Einbettung führt zu einer besseren Abtastung entsprechend der FOURIER-Interpolation, erhöht aber nicht die zeitliche Auflösung. Die Berechnungen im Rahmen dieser Arbeit sind angepasst an das zur Verfügung stehende Lasersystem

Puls nach Oszillator		
Mittenfrequenz ν_0	$3,75 \cdot 10^{14}$ Hz	800nm
Halbwertsbreite $\Delta\nu$	$1,9 \cdot 10^{13}$ Hz	40nm
Pulsdauer $\Delta\tau$ (FWHM)	24fs	
Wiederholrate	80MHz	
Puls nach Verstärker		
Mittenfrequenz ν_0	$3,70 \cdot 10^{14}$ Hz	810nm
Halbwertsbreite $\Delta\nu$	$8,7 \cdot 10^{12}$ Hz	19nm
Pulsdauer $\Delta\tau$ (FWHM)	45fs	
Wiederholrate	1kHz	
Pulsform		
zeitliche & spektrale Pulsform	Gauß	
Spektralphase ϕ_0	const.	
Strahlprofil	Gauß	
Strahldurchmesser (FWHM)	3mm	
Strahldurchmesser $1/e^2$	5mm	

Tabelle C.2: Wichtige Kenngrößen der ultrakurzen Laserpulse in den numerischen Simulationen. Aufgeführt sind die Daten für den Oszillator und den Verstärker. Sie entsprechen denen für das Kurzpulslasersystem *Spitfire* von der Firma *Spectra-Physics* im Institut für Angewandte Physik (IAP) der FSU Jena.

am Institut für Angewandte Physik der FSU Jena (IAP), dessen Kenngrößen in Tabelle C.2 angegeben sind. Mit Hilfe der maximalen Bandbreite $\Delta\nu_{max} = 1,9 \cdot 10^{13}$ Hz eines transformlimitierten Laserpulses aus dem Oszillatorsystem wird nachfolgend die Größe des Integrationsgebietes abgeschätzt. Das Profil des Laserspektrums kann gut mit einem Gaußprofil genähert werden. Durch numerische Konvergenztests bzgl. der Veränderung des zeitlichen Laserpulsprofils konnte die Größe des Integrationsgebietes auf $\Gamma \approx 8 \cdot 10^{13}$ Hz mit einer Abtastung von 101 spektralen Komponenten (Stützstellen) festgelegt werden. Die spektrale Amplitude ist am Rand des Integrationsgebietes Γ auf $4 \cdot 10^{-5}$ des Wertes bei der Mittenfrequenz ν_0 abgeklungen. Für die zeitliche Abtastung folgt nach Gl. (C.1) $\delta t = 12,5$ fs. Diese wird in den numerischen Simulationen durch FOURIER-Interpolation auf 2fs gesenkt. Durch die diskrete Abtastung des Integrationsgebietes Γ in Schritten von $\delta\nu$ entsteht eine künstliche Periodizität im Ergebnis der zeitlichen FOURIER-Transformation mit einer Periodizität von

$$\Delta T = \delta\nu^{-1} = 1,26\text{ps} . \quad (\text{C.2})$$

Innerhalb des zeitlichen Gebietes ΔT gehören alle auftretenden Effekte zur Propagation des

Samplingparameter	
spektrales Samplingintervall Γ	$8 \cdot 10^{13}$ Hz
resultierende zeitliche Abtastung δt	12,5fs
Anzahl der Abtastpunkte in Γ	101
Frequenzabstand für Sampling $\delta\nu$	$3,2 \cdot 10^{11}$ Hz
resultierende Periodizität ΔT	1,26ps
Anzahl der radialen Abtastpunkte in der Austrittspupille	1001

Tabelle C.3: Samplingparameter für die ultrakurzen Laserpulse in den numerischen Simulationen.

Laserpulses durch das abbildende optische System. Alle für die numerischen Simulationen relevanten Parameter sind noch einmal in Tabelle C.3 zusammengefasst.

C.2 Überprüfung der Rechengenauigkeit der WPM

Ein wichtiger Aspekt der numerischen Simulationen ist die Möglichkeit, die Wellenausbreitung in transversal inhomogenen Medien berechnen zu können, da nur so die Änderung des Brechungsindex durch den optischen KERR-Effekt und die Erzeugung freier Ladungsträger berücksichtigt werden kann. Hierfür wird die Genauigkeit der verwendeten numerischen Methode, der WAVE PROPAGATION METHOD, anhand von zwei Testsystemen überprüft.

gekippte Glasplatte

Als erster Test wird die Brechung aus Vakuum in eine gekippte Glasplatte, wie in Abb. C.1 (links) dargestellt, untersucht. Dies ist das einfachste Beispiel für eine lateral variierende Brechungsindexverteilung und die Ergebnisse lassen sich zudem auch analytisch durch das Brechungsgesetz leicht überprüfen. Hierfür wird jeweils die Propagation eines Eingangsfeldes mit den nachfolgenden Parametern durch die gekippte Glasplatte berechnet:

- 401 x 401 Pixel der Größe 200nm x 200nm
- Schrittweite $\delta z = 20\text{nm}$
- Amplitudenverteilung: Gauss mit $16\mu\text{m}$ FWHM
- ebene Phasenfront mit $\lambda = 800\text{nm}$
- Kieselglas ($n_{\text{Glas}} = 1,4533173$).

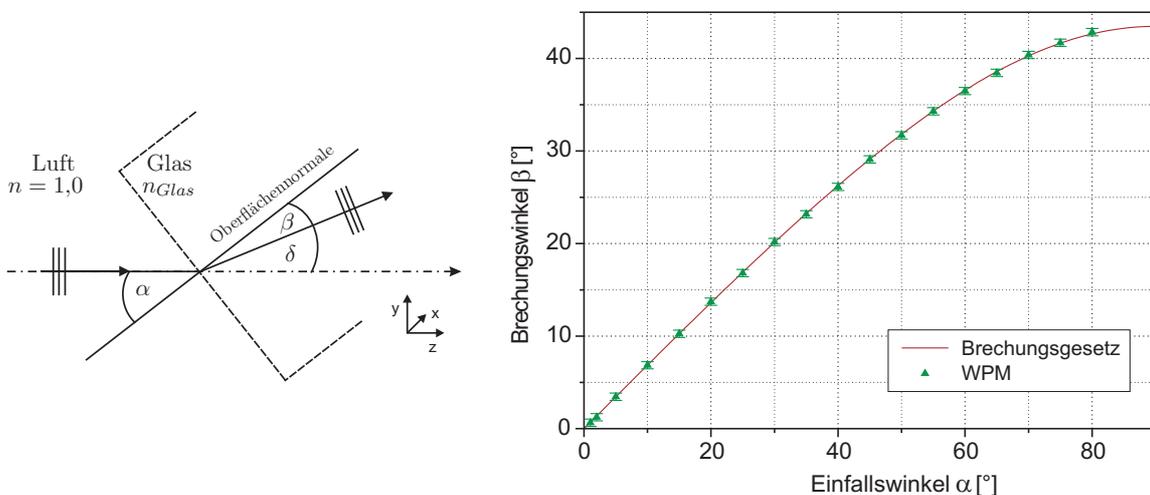


Abbildung C.1: links: Geometrie der Untersuchung zum Brechungsgesetz, rechts: Darstellung des Brechungswinkels β_i in Abhängigkeit vom Einfallswinkel α_i für das Brechungsgesetz nach Snellius (Linie) und die mittels der WPM berechneten Werte (Dreiecke).

Zur Bestimmung des Brechungswinkels β_i für einen gegebenen Einfallswinkel α_i wird die Feldverteilung nach der Brechung in die Glasplatte FOURIER-transformiert und der Winkel der geänderten Ausbreitungsrichtung δ_i über den lateralen Versatz der Raumfrequenzkomponente bestimmt,

$$\beta_i = \alpha_i - \delta_i = \alpha_i - \arcsin \left[\frac{\lambda}{n} \cdot N_i \cdot \Delta f_x \right] = \alpha_i - \arcsin \left[\frac{\lambda}{n} \cdot \frac{N_i}{N \cdot \Delta x} \right]. \quad (\text{C.3})$$

Dabei ist N_i die Pixelnummer der Frequenzkomponente zum Propagationswinkel δ_i , N die Gesamtzahl der Pixel und Δx die Abtastung im Ortsraum, λ die Wellenlänge und n die Brechzahl des Mediums. Der Fehler $\Delta\beta$ ergibt sich aus der Ablesegenauigkeit von einem Pixel im Raumfrequenzspektrum. Das Ergebnis dieser Untersuchung ist in Abb. C.1 (rechts) dargestellt. Die mit der WPM ermittelten Brechungswinkel stimmen auch bei großen Einfallswinkeln noch sehr gut mit dem Brechungsgesetz nach Snellius überein.

Rod-Linse

Als zweiten Test für die Rechengenauigkeit der WPM wird die Propagation durch eine Gradientenindex-Linse (Rod-Linse) untersucht. Der Verlauf des Brechungsindexprofils kann dabei durch

$$n(r) = \frac{n_{max}}{\cosh(g \cdot r)} \quad (\text{C.4})$$

beschrieben werden. Durch diese spezielle Verteilung ergibt sich ein sinusförmiger Strahlverlauf, dessen Periode durch $p = 2\pi/g$ gegeben ist und in der numerischen Simulation gut überprüft werden kann. Die Daten für die Berechnungen sind dem Datenblatt der Firma GrinTech entnommen [123]. Die in den numerischen Simulationen nachempfundene rod-Linse ist für eine Verwendung bei $\lambda = 810\text{nm}$ konzipiert und hat einen Durchmesser von $d = 500\mu\text{m}$, einen maximalen Brechungsindex $n_{max} = 1,624$ und eine Gradientenkonstante von $g = 1,354\text{mm}^{-1}$. Die zu erwartende Periode des Strahlverlaufs ist damit $p = 4640,5\mu\text{m}$. Der mit der WPM berechnete Feldverlauf für die Abbildung einer Punktlichtquelle ist in Abb. C.2 dargestellt. Die theoretisch berechnete Periode des Strahlverlaufs konnte in der numerischen Simulation reproduziert werden. Der Feldverlauf ist vollkommen symmetrisch und die Punktlichtquelle wird auch wieder als Punkt abgebildet. Dies stellt die Leistungsfähigkeit der WPM bezüglich der Ausbreitung in lateral inhomogenen Medien sehr gut unter Beweis.

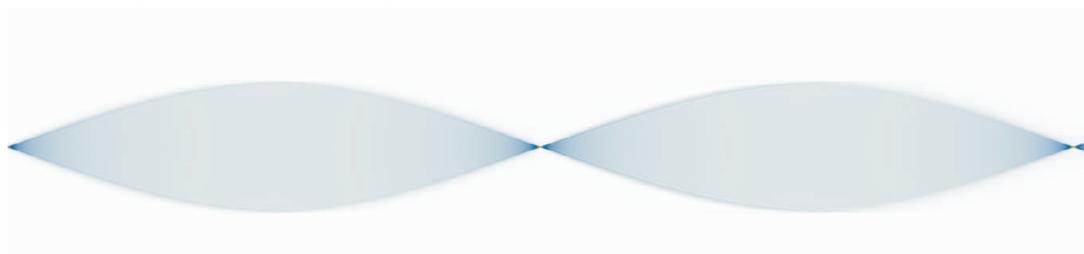


Abbildung C.2: Feldverlauf der Abbildung einer Punktlichtquelle mit einer rod-Linse. Die Gesamtausdehnung des Feldes beträgt $4701\mu\text{m} \times 801\mu\text{m}$.

D Sea Tadpole

D.1 Technische Daten

In der nachfolgenden Tabelle *D.1* sind die technischen Daten der verwendeten optischen und mechanischen Komponenten von SEA TADPOLE zur Vermessung von Laserpulsen mit Pulsdauern von 30 – 40fs bei einer Zentralwellenlänge von 800nm angegeben.

CCD-Kamera von Basler	
Pixelanzahl	728 x 1024
Pixelgröße	4,7 μ m x 4,7 μ m
Single-mode Fasern	
Länge	ca. 50cm
numerische Apertur	NA = 0,12
Modenfelddurchmesser	5,6 μ m
Faserhalterung	
Durchmesser	25mm
Lochabstand zur optischen Achse d	200 μ m (Fasern fest verklebt)
Verkipfung gegenüber optischer Achse θ	0,002rad
Kollimationsoptik - Achromat	
Brennweite	200mm
Durchmesser	50mm
Spektrometer	
Gitter mit Blaze	300Linien/mm
Zylinderachromat	hybrid (Erläuterungen im Text)
Brennweite	100mm
Größe	60mm x 50mm
Mikropositioniertische von PI	
Verfahrweg (Positioniergenauigkeit)	5mm (100nm)
kleinstes Inkrement	50nm
mechanischer Hubtisch (OWIS) - kleinstes Inkrement	500nm
Abtastoptik	
Mikroskopobjektiv	ZEISS <i>Achroplan</i> 63x/0,95
Koppelachromat für NA \leq 0,4	G45-783 (Edmund Optics)
Koppelachromat für NA $>$ 0,4	G45-792 (Edmund Optics)
Delay-Strecke	
Goldspiegel	$d_{Sp} = 25$ mm
NIR Strahlteilerplatte 50/50	$d_{NIR} = 25$ mm
Wellenlängenkalibrierung	
Argon Niederdruck-Dampflampe	Linienstrahler (<i>pen-ray</i>) von Oriel

Tabelle D.1: Optische und mechanische Komponenten von SEA TADPOLE zur Vermessung von Laserpulsen mit Pulsdauern von 25 – 40fs bei einer Zentralwellenlänge von 800nm und numerischen Aperturen bis NA \leq 0,95.

Im Spektrometer kommt eine spezielle Hybridoptik, bestehend aus einer Zylinderlinse und einem diffraktiv optischen Element (DOE), zum Einsatz. Dieses DOE wurde, wie in Abschnitt 6.2 beschrieben, speziell für die Anforderungen des SEA TADPOLE berechnet und am Fraunhofer IOF mittels Laserlithographie und UV-Abformung hergestellt. Die Phasenfunktion des DOEs wird durch

$$\Phi = M \sum_{i=1}^N A_i E_i(x, y) \quad (\text{D.1})$$

beschrieben [86]. Dabei ist M die Beugungsordnung, N die Anzahl der Polynomkoeffizienten, A_i der Koeffizient des i -ten Polynomterms und E_i der entsprechende Polynomterm einer Reihenentwicklung in x und y . Die Koeffizienten des DOEs sind in Tab. D.2 angegeben und auf einen Strahlradius von 25mm normiert.

$y^0 x^2$	$y^0 x^4$	$y^0 x^6$	$y^0 x^8$	$y^0 x^{10}$
-1073.03	814.09	-206.93	3065.89	-5834.91

Tabelle D.2: Koeffizienten der Phasenfunktion des DOEs nach Gl. (D.1) bezogen auf einen normierten Strahlradius von 25mm

Abbildung D.1 zeigt ein 3D-CAD-Zeichnung des Versuchsaufbaus von *scanning* SEA TADPOLE in der Grundvariante ohne eingezeichnete Glasfasern mit allen optischen und mechanischen Komponenten, wie sie auch in Abb. 6.1 gezeigt sind.

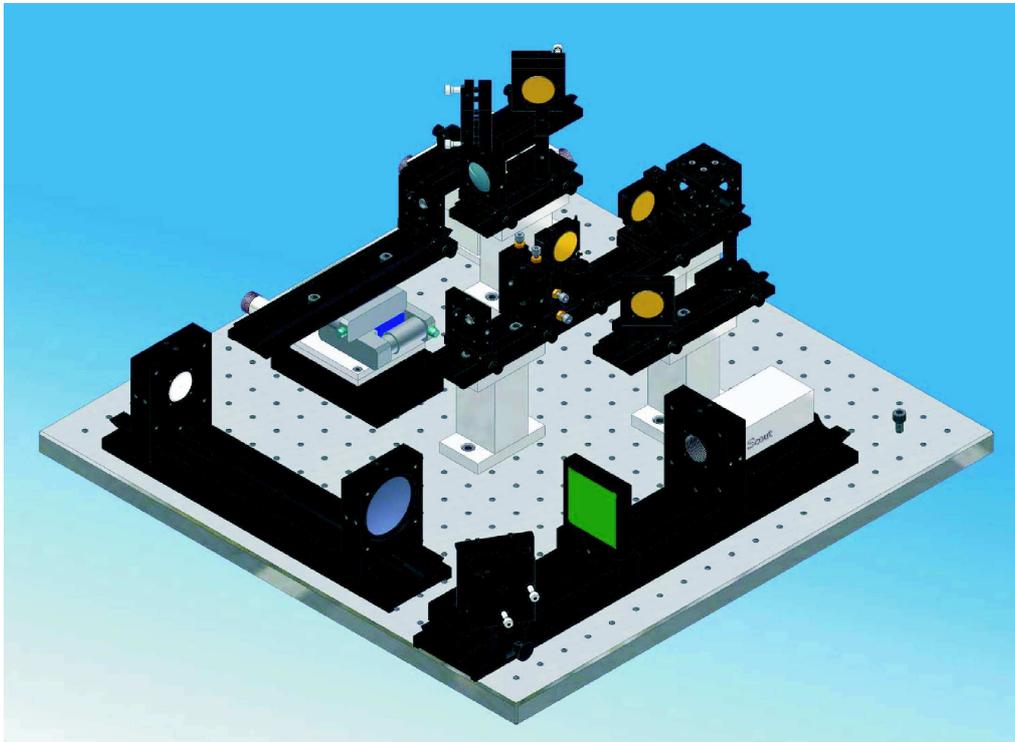


Abbildung D.1: 3D-CAD-Zeichnung des Versuchsaufbaus von *scanning* SEA TADPOLE in der Grundvariante, wobei die Glasfasern nicht dargestellt sind. Die Bezeichnungen aller Komponenten sind in Abb. 6.1 aufgeführt. Die 3D-CAD-Zeichnung ist dabei so orientiert, dass das Beugungsgitter in der vorderen Mitte der Abbildung zu sehen ist.

D.2 Rekonstruktion des zeitlichen Pulsverlaufs

Zur Rekonstruktion des zeitlichen Pulsverlaufes $E(t, x, y, z)$ wird zunächst das zweidimensionale Interferenzsignal aus Gl. (6.1),

$$S(\lambda, x_{\text{kam}}) = S_{\text{ref}}(\lambda) + S_{\text{unb}}(\lambda) + 2\sqrt{S_{\text{ref}}(\lambda) S_{\text{unb}}(\lambda)} \cos[2kx_{\text{kam}} \sin \Theta + \varphi_{\text{unb}}(\lambda) - \varphi_{\text{ref}}(\lambda)], \quad (\text{D.2})$$

bezüglich der Kamerakoordinate x_{kam} eindimensional FOURIER-transformiert und man erhält im Ortsfrequenzraum:

$$\begin{aligned} \mathfrak{F}_{x_{\text{kam}}}[S(\lambda, x_{\text{kam}})] &= S_{\text{ref}}(\lambda) + S_{\text{unb}}(\lambda) + E_{\text{ref}}^*(\lambda) E_{\text{unb}}(\lambda) \delta\left(k_{\text{kam}} + \frac{4\pi}{\lambda} \sin \Theta\right) \\ &\quad + E_{\text{ref}}(\lambda) E_{\text{unb}}^*(\lambda) \delta\left(k_{\text{kam}} - \frac{4\pi}{\lambda} \sin \Theta\right). \end{aligned} \quad (\text{D.3})$$

Dabei sind S_{ref} und S_{unb} die Betragsquadrate der Pulsspektren E_{ref} und E_{unb} im Referenz- und Messarm mit den entsprechenden Spektralphasen φ_{ref} und φ_{unb} . Wie in Abb. D.2 rechts oben dargestellt, entsteht durch diese FOURIER-Transformation ein Signal mit zwei Seitenbändern, die die Information über das komplexe Feld des Laserpulses enthalten. Eines dieser Seitenbänder wird ausgeschnitten, zentriert auf die Originalfeldgröße eingebettet und zurück in den Ortsraum bzgl. k_{kam} invers FOURIER-transformiert:

$$\tilde{S}(\lambda) = |E_{\text{ref}}(\lambda)| |E_{\text{unb}}(\lambda)| \exp\{-i[\varphi_{\text{ref}}(\lambda) - \varphi_{\text{unb}}(\lambda)]\}. \quad (\text{D.4})$$

Nach der Rücktransformation in den Ortsraum enthalten alle Zeilen die in Gl. (D.4) angegebene Information. Wie man aber leicht in Abb. D.2 rechts unten sehen kann, variiert das Signal immer noch mit x_{kam} , was zum einen an der Wellenlängenabhängigkeit des Streifenabstandes und zum

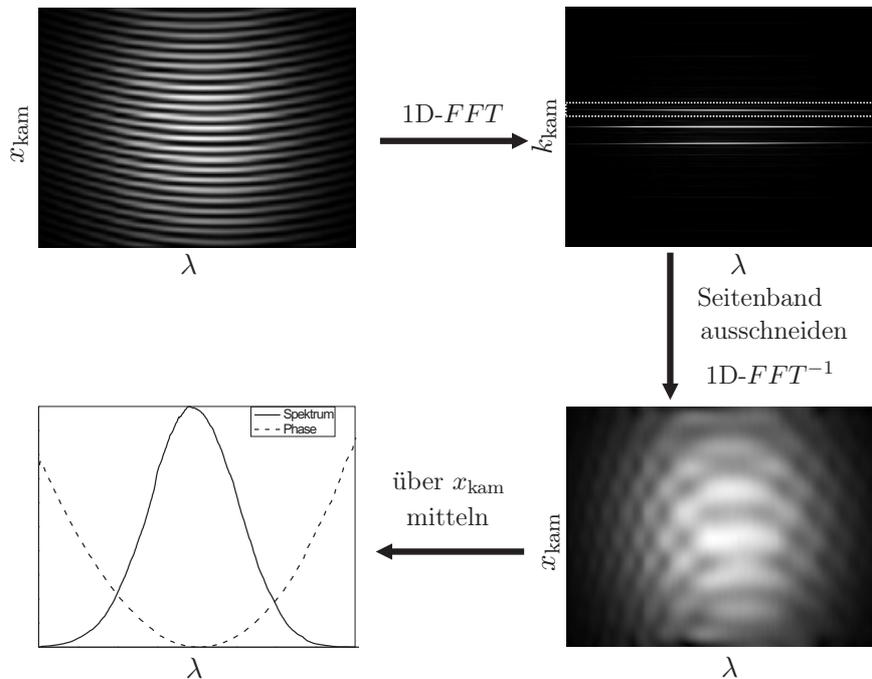


Abbildung D.2: Graphische Darstellung der Vorgehensweise zur Rekonstruktion des zeitlichen Verlaufs des Laserpulses aus dem Interferogramm.

anderen am Rauschen des Detektorsignals liegt. Um ein stabileres Ergebnis zu erhalten, wird daher zusätzlich über x_{kam} gemittelt, um $\tilde{S}(\lambda)$ zu erhalten. Durch vorheriges Bestimmen des Referenzpulses durch ein zusätzliches absolutes Messverfahren, wie FROG oder SPIDER, kann aus Gl. (D.4) nun sofort der Betrag und die Phase des unbekanntes Pulses bestimmt werden. Ist der Referenzpuls nicht bekannt, läßt sich der zu charakterisierende unbekanntes Laserpuls nur bis auf eine Phasendifferenz $\Delta\varphi(\lambda)$ bestimmen. Hierfür wird das Spektrum des Referenzpulses mit Hilfe des Spektrometers im SEA TADPOLE bestimmt, indem der Messarm im Aufbau blockiert wird. Nach der Division von Gl. (D.4) mit dem Spektrum des Referenzpulses ergibt sich

$$E(\lambda) = |E_{\text{unb}}(\lambda)| e^{-i\Delta\varphi(\lambda)} \quad (\text{D.5})$$

für den unbekanntes Puls. Die Phasendifferenz $\Delta\varphi(\lambda)$ ist dabei die von der zu untersuchenden Fokussieroptik eingebrachte Phasenänderung. Das heißt insbesondere, dass eine ursprüngliche spektrale Phase des Laserpulses bei dieser Art von Messung unberücksichtigt bleibt und nur die Änderung eines transformlimitierten Laserpulses durch die Fokussierungsoptik gemessen wird. Für die Charakterisierung einer Fokussieroptik ist dies sehr von Vorteil, da auftretende Effekte besser den vorhandenen Aberrationen, der Dispersion und Beugungseffekten der Optik zugeordnet werden können.

Vor jeder Messreihe muss zunächst die intrinsische Phase $\Delta\varphi_{ST}$ des SEA TADPOLE bestimmt werden. Diese resultiert aus der Dispersion der einzelnen optischen Bauelemente und aus dem Längenunterschied der Single-mode Fasern. Die Phase $\Delta\varphi_{ST}$ kann sehr einfach gemessen werden, indem die Fokussieroptiken im Referenz- und Messarm identisch gewählt werden. Zusätzlich wird angenommen, dass die intrinsische Phase des SEA TADPOLE während einer Messung (etwa 45min) konstant bleibt und sich eventuelles Driften durch Luft- oder Wärmeschwankungen gleichzeitig und im gleichen Maße auf Mess- und Referenzarm auswirken. Im Rekonstruktionsalgorithmus wird $\Delta\varphi_{ST}$ erst am Ende (siehe Abb. D.2) von der Spektralphase $\Delta\varphi(\lambda)$ abgezogen.

Nach dem Durchlaufen der Pulsrekonstruktion, wie sie in Abb. D.2 dargestellt ist, hat man bereits eine eindeutige Darstellung des Laserpulses über sein Spektrum und die Spektralphase gewonnen. Da eine zeitliche Darstellung in fast allen Fällen anschaulicher ist, erfolgt nun noch die Beschreibung der zeitlichen Rekonstruktion. Zunächst muss $E(\lambda)$ auf $E(\nu)$ umgerechnet werden. Anschließend wird $E(t)$ durch eine eindimensionale diskrete FOURIER-Transformation von $E(\nu)$ gewonnen. Für die Rekonstruktion des gesamten raum-zeitlichen elektrischen Feldes des Laserpulses $E(t, x, y)$ muss der obige Rekonstruktionsalgorithmus für jeden Punkt der räumlichen Abtastung (siehe Anhang D.3) angewandt werden. Um den Messaufwand gering zu halten, wird meistens nur entlang der x-Achse für verschiedene z-Positionen gemessen. Aufgrund der beschränkten zeitlichen Auflösung δt (siehe Abschnitt 6.2) werden die zeitlichen Feldverteilungen $E(t)$ bzgl. t FOURIER-interpoliert, um sie besser graphisch darstellen zu können.

D.3 Spektrale, zeitliche und räumliche Auflösung

Theoretisch berechnete spektrale Auflösung

In Abschnitt 6.2 werden die Wellenfrontaberration des Messaufbaus von SEA TADPOLE mit und ohne DOE mit Hilfe von Zemax analysiert. In Abb. 6.3 (rechts) ist die berechnete spektrale Auflösung anhand der ermittelten spektralen Abtastung dargestellt. Nachfolgend wird kurz erläutert, wie diese mit Zemax bestimmt wurde.

Berechnet wurde jeweils das Wellenlängenintervall $\Delta\lambda$, das einer räumlichen Trennung Δx von einem bzw. zwei Pixeln auf der CCD-Kamera entspricht. Hierfür wurde zunächst die Punktbildverwaschungsfunktion (PSF) der Linienfoki auf dem Detektor für fünf Wellenlängen im Intervall 760 – 840nm berechnet. Um die spektrale Auflösung bestimmen zu können, wurden jeweils zwei gleiche Beugungsfiguren gegeneinander verschoben, wobei das erste Minimum der einen Beugungsfigur mindestens an der Position des Maximums der anderen liegen muss, um räumlich aufgelöst zu werden [113]. Bei $\lambda = 840\text{nm}$ reichte der Abstand von einem Pixel nicht für eine Trennung aus und wurde deshalb auf zwei Pixel erhöht. Die Ergebnisse hiervon sind in Abb. D.3 dargestellt. Zusätzlich zu diesen Abschätzungen zeigen die Beugungsbilder in Abb. D.3 auch sehr deutlich die Auswirkungen der verbleibenden Restaberrationen im System. Insbesondere der Astigmatismus für die Wellenlängen an den Rändern des betrachteten Intervalls ist gut zu erkennen.

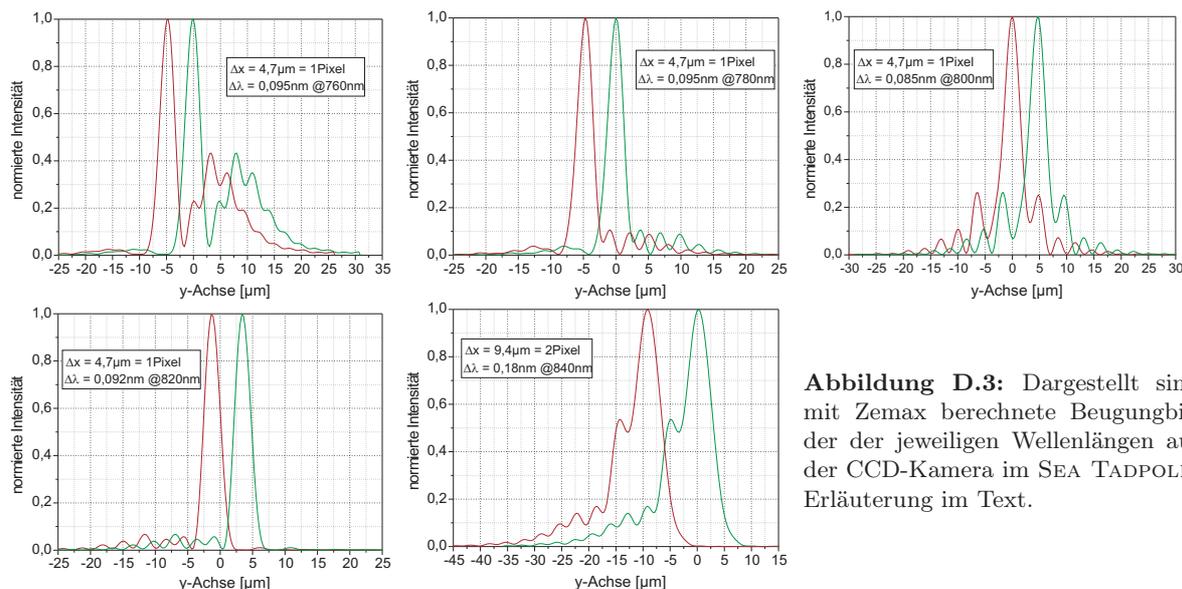


Abbildung D.3: Dargestellt sind mit Zemax berechnete Beugungsbilder der jeweiligen Wellenlängen auf der CCD-Kamera im SEA TADPOLE. Erläuterung im Text.

Experimentell bestimmte spektrale Auflösung

Die experimentelle Bestimmung des Auflösungsvermögens erfolgt durch die Verwendung einer Laserdiode mit einer Zentralwellenlänge um $\lambda_0 = 782\text{nm}$. Das Laserlicht wird in die Faser des Referenzarms eingekoppelt und durch das Gitter erfolgt eine Aufspaltung der unterschiedlichen Longitudinalmoden (siehe Abb. D.4). Die drei stärksten Moden werden auf nur je ein Pixel abgebildet, wie Abb. D.4 zeigt. Dies zeigt, dass die CCD-Kamera in dieser Aufbauvariante von SEA TADPOLE der limitierende Faktor für die spektrale Auflösung ist und diese gleichzeitig mit der spektralen Abtastung übereinstimmt, welche zu Beginn jeder Messung mit der Kalibrierung neu vermessen wird.

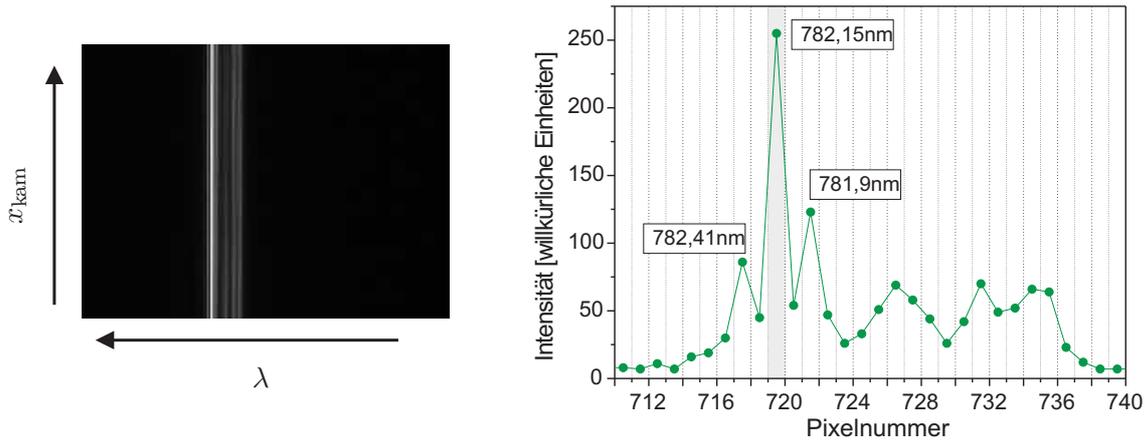
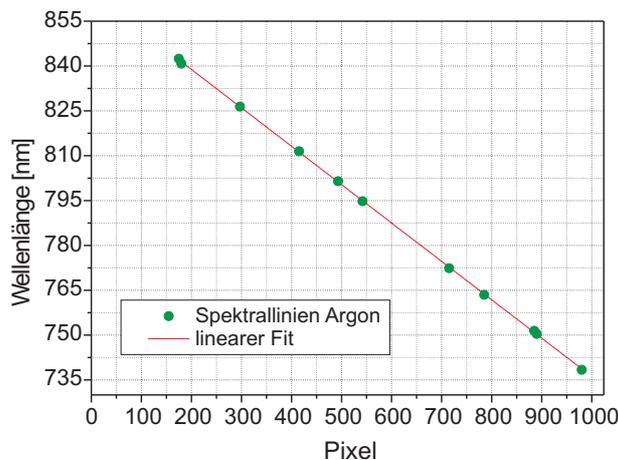


Abbildung D.4: links: Das mit der CCD-Kamera aufgenommene Bild zeigt die verschiedenen Longitudinalmoden der Laserdiode bei der Auflösungsbestimmung von SEA TADPOLE. rechts: Schnittbild des Kamerabildes mit Wellenlängen- und Pixelnummerzuordnung der Spektrallinien.

Kalibrierung und Bestimmung der zeitlichen Auflösung

Die Wellenlängenkalibrierung von SEA TADPOLE erfolgt vor jeder Messung unter Verwendung einer Argon Niederdruck-Dampflampe, das heißt anhand der abgebildeten Spektrallinien werden den einzelnen Pixeln Wellenlängen zugeordnet. Abbildung D.5 (links) zeigt diese Zuordnung und die lineare Interpolation zwischen den einzelnen Spektrallinien. Der Betrag der Steigung dieser Geraden gibt den Wert für die spektrale Abtastung mit $\Delta\lambda = (0,1284 \pm 0,0004)\text{nm}/\text{Pixel}$ an. Die experimentell bestimmte spektrale Abtastung stimmt damit gut mit den theoretisch berechneten Werten überein. Damit kann sofort die zeitliche Auflösung nach Gl. (6.4) abgeschätzt werden. Es ergibt sich, unter der Annahme, dass alle Pixel beleuchtet sind

$$\delta t = \frac{1}{M \cdot \Delta\nu_{\text{Pixel}}} = \frac{\lambda_0^2}{M \cdot c \cdot \Delta\lambda} = \frac{(800\text{nm})^2}{1024 \cdot 300 \frac{\text{nm}}{\text{fs}} \cdot 0,13\text{nm}} = 16\text{fs}. \quad (\text{D.6})$$



Spektrallinien von Ar	
738,40nm	801,48nm
750,39nm	811,53nm
751,47nm	826,45nm
763,51nm	840,82nm
772,40nm	842,46nm
794,82nm	

Abbildung D.5: links: Kalibrierung von Sea Tadpole mit Hilfe einer Argon Niederdruck-Dampflampe. rechts: Wellenlängen der Spektrallinien dieser Argon Niederdruck-Dampflampe - Angaben laut Herstellerdatenblatt.

Räumliche Abtastung fokussierter Laserpulse

In Abschnitt 6.3 wird die Abhängigkeit der räumlichen Auflösung der Abtastung fokussierter Laserpulse mit SEA TADPOLE von den verwendeten Sonden diskutiert. Unabhängig davon folgt das ortsauflösende Messverfahren, bei welchem die einzelnen Schnittbilder aufgenommen und anschließend zusammengefügt werden, immer demselben Muster. In jeder Messebene z wird der fokussierte Laserpuls eindimensional in x -Richtung abgetastet. Als Messsonde können dabei die Single-mode Faser (Grundvariante), eine SNOM-Faser oder ein hoch-NA Mikroskopobjektiv zum Einsatz kommen. In Abb. D.6 ist das Verfahren mit der Single-mode Faser exemplarisch dargestellt. Für jede x -Position wird ein spektrales Interferogramm aufgenommen und der zeitliche Pulsverlauf rekonstruiert (siehe Anhang D.2). Diese Einzelbilder werden anschließend zu einem Gesamtbild zusammengesetzt, welches den ortsauflösenden zeitlichen Pulsverlauf zeigt.

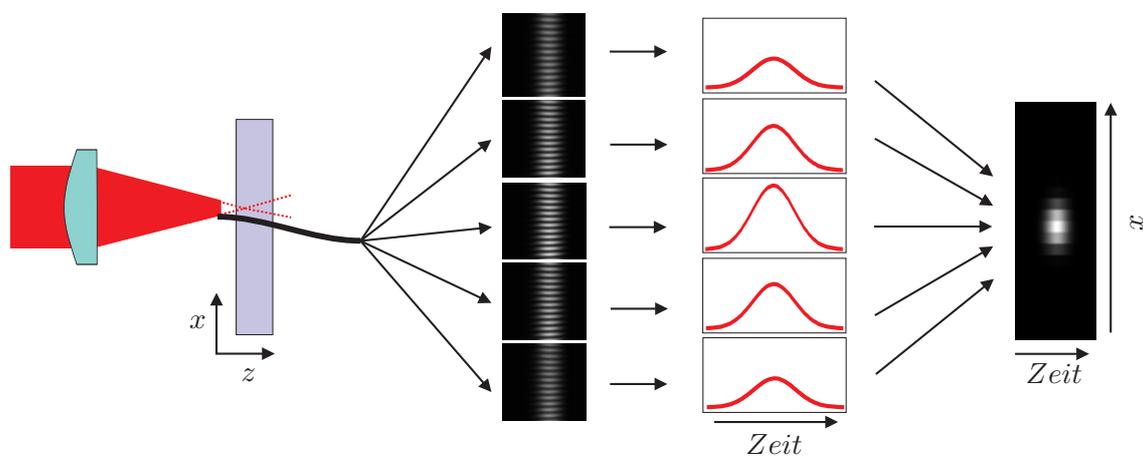


Abbildung D.6: Graphische Darstellung der Vorgehensweise zur Rekonstruktion des zeitlichen Verlaufs des Laserpulses aus den spektralen Interferogrammen.

E Fokussieroptiken

Die numerischen Simulationen im Rahmen dieser Arbeit wurden für die Fokussierung mit realen optischen Systemen durchgeführt. Im speziellen ist diese Auswahl identisch zu den Fokussieroptiken, die für die experimentellen Untersuchungen zur Entstehung permanenter Materialmodifikationen im Rahmen der Diplomarbeit [11] verwendet wurden. Das hat zum einen den Vorteil der direkten Vergleichbarkeit zwischen Experiment und den Ergebnissen der numerischen Simulationen und zum anderen handelt es sich um reale Fokussieroptiken. Dadurch bedingt tritt immer eine Mischung von Dispersions-, Beugungs- und Aberrationseffekten auf, die zugleich eine realistische Mischung haben und kein Modellsystem widerspiegeln. Die drei für die Untersuchungen ausgewählten Fokussieroptiken weisen alle jeweils einen dominanten Effekt auf: Das Mikroskopobjektiv ist bezüglich Aberrationen gut korrigiert und verursacht aufgrund des langen Glaswegs merkbare Dispersionseffekte. Die Asphäre dagegen ist eine Einzellinse bei welcher die Dispersionseffekte nur eine minimale Pulsdauerverlängerung verursachen. Zusätzlich ist sie gut bezüglich sphärischen Aberrationen, das heißt für das Fokussieren monochromatischer Wellen, korrigiert. Bei dieser Linse überwiegen deshalb die chromatischen Aberrationen. Als drittes kommt eine plankonvexe Sammellinse zum Einsatz, welche starke sphärische Aberrationen aufweist. Eine wichtige Voraussetzung für den Vergleich der Fokussierungseigenschaften ist die möglichst gute Übereinstimmung der Brennweiten bei der Zentralwellenlänge $\lambda_0 = 800\text{nm}$ und der numerischen Apertur (NA). In der Mikro-Materialbearbeitung werden sehr häufig Mikroskopobjektive zur Fokussierung in das Material verwendet. Daher orientiert sich dieser Vergleich an einem im IAP zum direkten Wellenleiterschreiben in Glas verwendeten Mikroskopobjektiv¹. Die Vergleichslinsen werden nach obigen Kriterien ausgesucht, wobei es schwierig ist, eine vollständige Übereinstimmung der Parameter herbeizuführen. Bei den plankonvexen Sammellinsen werden nur Exemplare mit kleinerer NA im Bereich von 0,4 angeboten. Außerdem sind keine plankonvexen Sammellinsen mit einer Brennweite kleiner als 10mm und ausreichendem Durchmesser verfügbar. Die Tabelle E.1 enthält alle Attribute der zum Vergleich ausgewählten Fokussierungsoptiken und die dort aufgeführten Bezeichnungen der Optiken werden im weiteren Verlauf dieser Arbeit als Abkürzungen für diese verwendet.

Bezeichnung	$f(\lambda_0)$	NA	d_{AP}	D_0	Material	Anbieter	Bestnr.
plankonvexe Sammellinse	10,1	0,4	9,0	5,0	BK7	LINOS	312011
Asphäre	8,0	0,5	8,0	3,7	C0550	THORLABS	350240
Mikroskopobjektiv	9,2	0,45	10,0	13	BK6, BK7, SF3, NSL2, BASF2	LINOS	038723

Tabelle E.1: Auflistung aller Kenngrößen der zum Vergleich ausgewählten Fokussierungsoptiken. Es sind die Werte für die Brennweiten $f(\lambda_0)$ bei der Zentralwellenlänge von 800nm, der Durchmesser der freien Apertur d_{AP} und die Mittendicke D_0 alle in mm angegeben. Zusätzlich sind die Glassorten und die Anbieter, von denen die Optiken bezogen werden, aufgeführt. Der Wert für die Mittendicke des Mikroskopobjektivs entspricht dem Gesamtglasweg und dient nur als Anhaltspunkt für den Vergleich.

¹Es wird ein ZEISS Achroplan 20x 0.45 verwendet. Da die spezifischen Designparameter nicht zur Verfügung stehen, erfolgen die numerischen Simulationen mit einem vergleichbaren Objektiv der Firma LINOS.

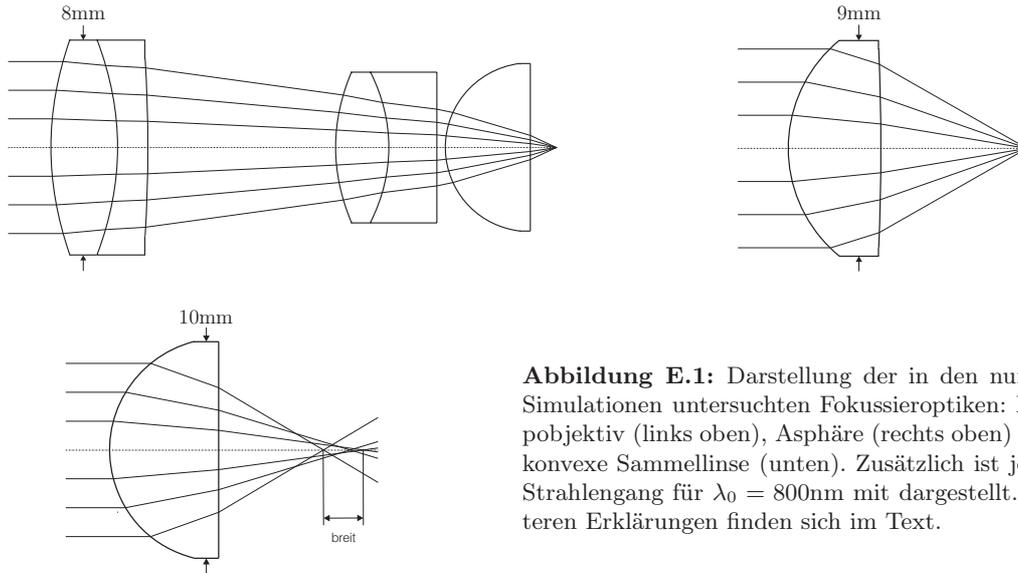


Abbildung E.1: Darstellung der in den numerischen Simulationen untersuchten Fokussieroptiken: Mikroskopobjektiv (links oben), Asphäre (rechts oben) und plankonvexe Sammellinse (unten). Zusätzlich ist jeweils der Strahlengang für $\lambda_0 = 800\text{nm}$ mit dargestellt. Alle weiteren Erklärungen finden sich im Text.

In Abb. E.1 sind die einzelnen Fokussieroptiken mit dem Strahlengang für $\lambda_0 = 800\text{nm}$ dargestellt. Man erkennt sofort Unterschiede in der Größe der fokalen Bereiche. Dies lässt bereits auf ein sehr unterschiedliches Verhalten bei der Fokussierung schließen. Bei der plankonvexen Sammellinse erstreckt sich der Abstand zwischen dem marginalen und paraxialen Brennpunkt über etwa 2 mm. Bei der Asphäre und dem Mikroskopobjektiv dagegen ist der fokale Bereich auf einige Mikrometer beschränkt. Genauere Aussagen über die Stärke der auftretenden Aberrationen, welche die Ursachen für diese Unterschiede sind, werden nachfolgend anhand der orts aufgelösten Spektralphase in den Austrittspupillen getroffen.

Mit dem Optikdesignprogramm ZEMAX wird die orts aufgelöste Spektralphase $\phi(\nu, p'_x, p'_y, z_a)$ in der jeweiligen Austrittspupille berechnet. Da im Rahmen dieser Arbeit nur rotationssymmetrische Optiken betrachtet werden, genügt es, radiale Schnitte der Spektralphase zu erstellen. Diese werden für alle drei betrachteten Fokussieroptiken in Abb. E.2 für den Frequenzbereich Γ gezeigt. Durch diese spezielle Darstellung der Spektralphase lassen sich einfach und schnell Rückschlüsse auf die Stärke und Art von Aberrationen und Dispersionseffekten ziehen. An dieser Stelle werden nur die Art und die Größenordnungen der Effekte diskutiert und miteinander verglichen. Die genauen Auswirkungen auf das Fokussierungsverhalten der ultrakurzen Laserpulse werden in der Diplomarbeit [11] und in [12, 13] ausführlich diskutiert.

In der gewählten Darstellung der orts aufgelösten Spektralphase $\phi(\nu, p'_x, p'_y, z_a)$ sind in der horizontalen Richtung die Aberrationen über in Abhängigkeit der radialen Pupillenkoordinate p'_x und in der vertikalen Richtung die Dispersionseffekte erkennbar. Die Spektralphase ist modulo 2π aufgetragen. Somit ist die Anzahl der Stufen in horizontaler Richtung ein Maß für die Stärke der Deformation der Phasenfront in Einheiten von λ . Die Anzahl der Stufen in vertikaler Richtung gibt die Variation der Spektralphase mit der Frequenz an. Die plankonvexe Sammellinse zeigt starke sphärische Aberrationen der Phasenfronten im Bereich von 50λ (Abb. E.2 (unten)). Sie sind über den gesamten betrachteten Frequenzbereich Γ gleich stark ausgeprägt. Darauf ist auch die große Ausdehnung des fokalen Bereiches bei dieser Linse zurückzuführen (vgl. Abb. E.1(unten)). Die Fokussierung ultrakurzer Laserpulse in ein räumlich eng begrenztes Gebiet ist bei dieser Sammellinse nicht zu erwarten.

Die Asphäre dagegen weist in Abb. E.2 (oben) nur sehr geringe sphärische Aberrationen auf. Die Phasenfronten zeigen eine Krümmung in p_p -Richtung, welche zu beiden Grenzen des Intervalls Γ hin stärker wird. Für die äußeren Frequenzen ν weisen die Phasenfronten damit

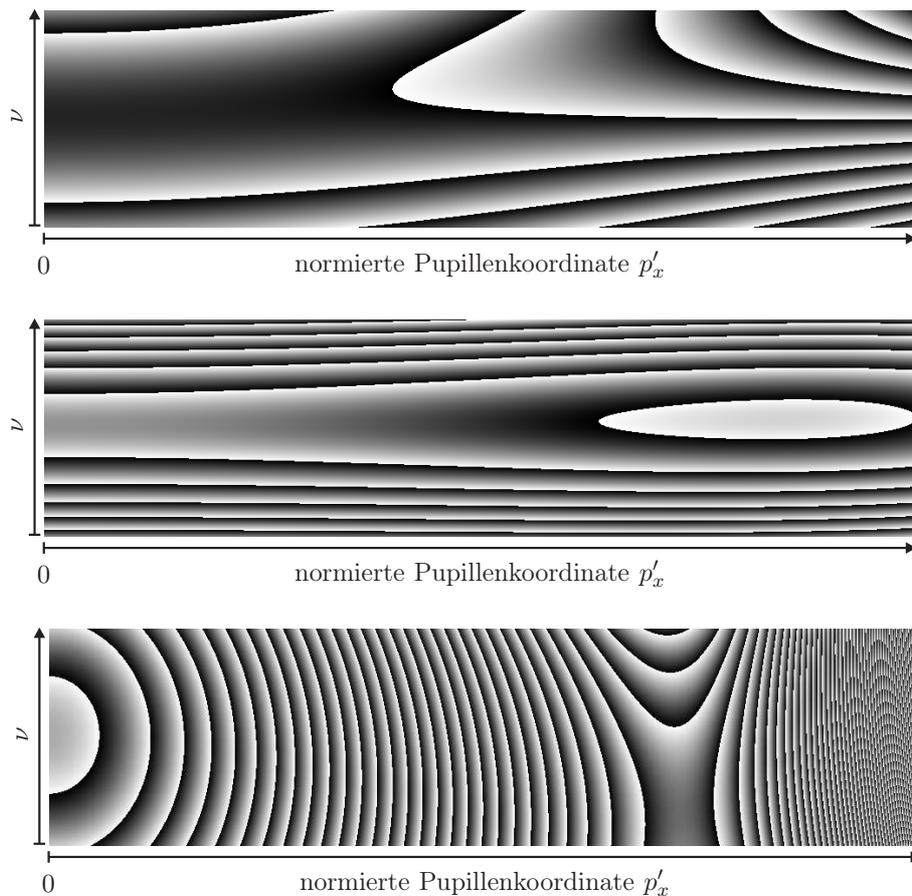


Abbildung E.2: Graphische Darstellung der ortsaufgelösten Spektralphasen $\phi(\nu, p'_x, z_a)$ in den Austrittspupillen der jeweiligen Fokussieroptiken: Asphäre (oben), Mikroskopobjektiv (Mitte) und plankonvexe Samellinse (unten) für den spektralen Bereich Γ .

eine Defokussierung gegenüber der Mittenfrequenz $\nu_0 = c/\lambda_0$ auf. Dies ist gleichbedeutend mit chromatischen Aberrationen, welche im Bereich von $\pm 3\lambda$ für Frequenzen innerhalb von Γ liegen. Überlagert wird dies von der Dispersion, das heißt, der Variation der Spektralphase mit der Frequenz ν .

Die Phasenfronten in der Austrittspupille des Mikroskopobjektivs sind nahezu eben (Abb. E.2 (Mitte)). Die sphärischen Aberrationen liegen für alle Frequenz in Γ unterhalb von $\frac{1}{2}\lambda$. Betrachtet man den frequenzabhängigen Verlauf der Spektralphasen, kann man über die Dispersionseffekte auf die Pulsverlängerung im jeweiligen optischen System Rückschlüsse ziehen. Da die Berechnung über die Absolutphasen der spektralen Komponenten erfolgt, sind auch Dispersionseffekte höherer Ordnungen berücksichtigt. Die größte Variation in vertikaler Richtung weist das Mikroskopobjektiv auf, was sowohl aus dem verhältnismäßig langen Materialweg als auch aus den verschiedenen Glassorten resultiert.

F Experimente zu permanenten Materialmodifikationen in Kieselglas

Die nachfolgend gezeigten Ergebnisse sind im Rahmen der Diplomarbeit der Autorin [11] entstanden und werden hier zum Vergleich mit den Ergebnissen der numerischen Simulationen verwendet. Es wurden dabei wie beim dreidimensionalen Wellenleiterschreiben [84] mit den in Tab. F.1 aufgelisteten Parametern vorgegangen. Die Vorgehensweise ist in Abb. F.1 skizziert. Die dafür verwendeten Laserpulse aus dem Kurzpulslasersystem *Spitfire* am IAP hatten dabei eine Pulsdauer von $\Delta\tau = (42 \pm 2)\text{fs}$. Untersucht wurden jeweils die Querschnitte der im Kieselglas erzeugten Strukturen. Dafür wurde das Substrat senkrecht zur Schreibrichtung gebrochen, die Stirnflächen poliert. Mit Hilfe von Flusssäure erfolgte die Umwandlung der Strukturen im Kieselglas in ein Höhenprofil. Die Ätzdauer hierfür beträgt zwei Stunden für die Strukturen, die mit dem Mikroskopobjektiv und der Asphäre erzeugt wurden. Bei der plankonvexen Sammellinse waren dagegen acht Stunden notwendig. Anschließend wurde die Probe mit Gold beschichtet um REM-Aufnahmen zu machen.

Pulsdauer $\Delta\tau$	$(42 \pm 2)\text{fs}$
Schreibgeschwindigkeit	$300\mu\text{m/s}$
Pulswiederholrate	1kHz
resultierende Pulsdichte	$3,3\mu\text{m}^{-1}$
Linienabstand Δx	$50\mu\text{m}$

Tabelle F.1: Parameter für das Erzeugen der Linienstrukturen in Quarzglas.

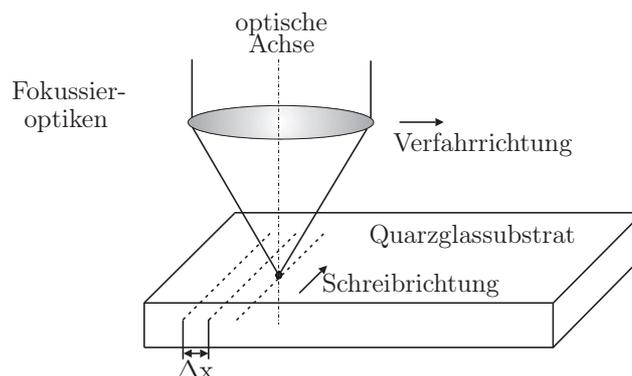


Abbildung F.1: Schematische Darstellung der Vorgehensweise beim direkten Wellenleiterschreiben mit ultrakurzen Laserpulsen in Kieselglas.

Während der Experimente wurde die Pulsenergie schrittweise in äquidistanten Schritten erhöht, um herauszufinden bei welcher Pulsenergie Materialmodifikationen vom Typ I (für Wellenleiterschreiben geeignet) und ab wann ein optischer Durchbruch, das heißt eine Materialmodifikation vom Typ II auftritt. In den nachfolgenden Abbildungen sind REM-Aufnahmen von den Querschnitten der Linienstrukturen, welche mit dem Mikroskopobjektiv und der Asphäre erzeugt wurden, zu sehen. Die eingestellten Pulsenergien sind in Tab. F.2 aufgelistet. Zur

besseren Übersicht werden die Linien durchnummeriert. Bei der Erzeugung von Materialmodi-

Liniennummer	1	2	3	4	5	6
Pulsenergie [nJ]	19	28	38	47	57	66

Tabelle F.2: Eingestellte Pulsenergien für das Erzeugen der Linienstrukturen in Quarzglas.

fikationen handelt es sich um einen Schwellwertprozess, daher sind unterhalb einer bestimmten Pulsenergie überhaupt keine Veränderungen im Material zu beobachten. Die Grenze zum Erzeugen von Materialmodifikationen vom Typ I und Typ II sind abhängig von der jeweiligen Fokussieroptik. Für alle Optiken wurden die gleichen experimentellen Einstellungen verwendet, wobei die Pulsenergieschwankungen bei gleicher Einstellung weniger als 5% betragen.

Gezeigt sind hier die für die numerischen Simulationen im Rahmen dieser Arbeit relevanten Liniensets, die in etwa in der Materialtiefe erzeugt wurden für welche die Optiken korrigiert sind. Das Mikroskopobjektiv ist für eine Deckglasdicke von $170\mu\text{m}$ BK7 und die Asphäre für $250\mu\text{m}$ BK7 korrigiert. Strukturen wurden in den Tiefen $185\mu\text{m}$ mit dem Mikroskopobjektiv und $260\mu\text{m}$ mit der Asphäre erzeugt.

In Abb. F.2 sind die Querschnitte der Linienstrukturen in der Nähe der jeweiligen Korrekturtiefen von $185\mu\text{m}$ und $240\mu\text{m}$ von Mikroskopobjektiv und Asphäre zu sehen. Bei beiden Optiken ist die fünfte Linie die erste, bei welcher Materialzerstörung zu beobachten ist. Man erkennt dies an dem Auftreten der schwarzen kreisförmigen Einbuchtungen im Material. Bei dem Mikroskopobjektiv sind außerdem noch die zweite, dritte und vierte Linie als Materialmodifikation vom Typ I erkennbar. Bei der Asphäre dagegen sind nur die dritte und vierte Struktur sichtbar. Die Pulsenergie von 19nJ hat auch mit dem Mikroskopobjektiv keine mit der oben beschriebenen Vorgehensweise nachweisbare Materialmodifikation hervorgerufen.

Bei den obigen Experimenten wurden aufgrund der Wiederholrate des Lasersystems und der gewählten Schreibgeschwindigkeit (siehe Tab. F.2) durchschnittlich $3,3$ Laserpulse pro $1\mu\text{m}$ Wegstrecke in das Material eingebracht. Damit können Effekte, die aus der Wechselwirkung von Laserpulsen mit zuvor bereits eingebrachten Materialmodifikationen nicht mehr ausgeschlossen bzw. eindeutig zugeordnet werden. Allerdings sind die Zerstörungen im Material, wie sie in Abb. F.2 zu sehen sind, sehr unregelmäßig in ihrer Struktur und auch in etwa so breit wie der fokussierte Laserpuls an diesem Ort. Daher ist es sehr wahrscheinlich, dass starke Streuung an diesen Strukturen für nachfolgende Laserpulse auftritt und der Hauptanteil der Materialmodifikationen nur durch die Wechselwirkung mit einem Laserpuls entstanden ist. Zudem ist die Pulsdichte drei Größenordnungen niedriger als bei den in der Literatur zitierten Untersuchungen zur Wechselwirkung multipler Laserpulse mit Dielektrika (siehe Referenzen in [65]). Schaffer *et al.* [65] zum Beispiel verwendeten 3000 Laserpulse pro Ort bei der Fokussierung in Kieselglas.

Unter Verwendung der plankonvexen Sammellinse konnten bei den ersten sechs in Tab. F.2 aufgeführten Energien keine permanenten Materialmodifikationen in Kieselglas erzeugt werden. Deshalb wurde die Pulsenergie erhöht und fünf Linien mit Pulsenergien zwischen 260nJ und 800nJ geschrieben. Die genauen Werte sind in Tab. F.3 aufgeführt. Die dabei erzeugten Ände-

Liniennummer	1	2	3	4	5	6
Pulsenergie [nJ]	141	304	494	664	819	988

Tabelle F.3: Eingestellte Pulsenergien für das Erzeugen der Linienstrukturen in Kieselglas mit der plankonvexen Sammellinse.

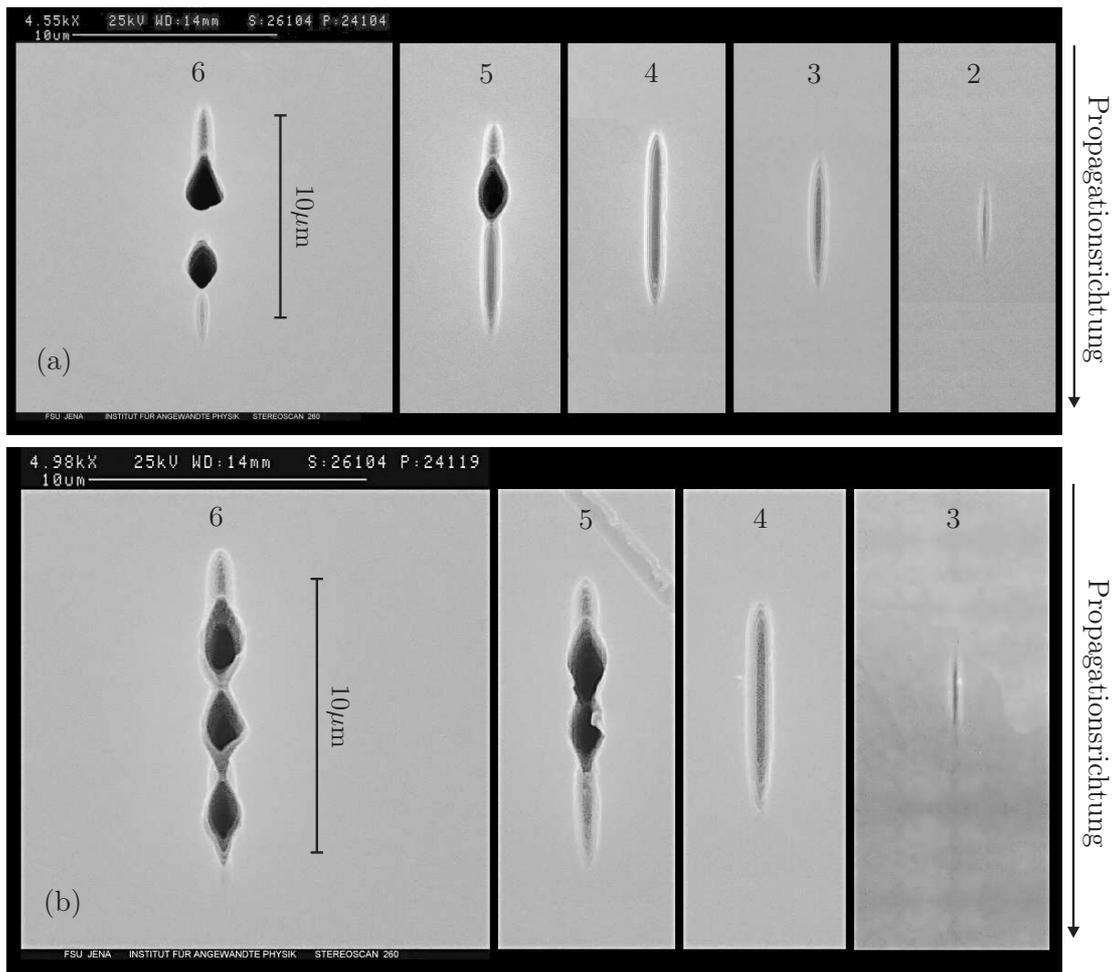


Abbildung F.2: REM-Aufnahmen der angeätzten Querschnitte der in Quarzglas mit (a) dem Mikroskopobjektiv und (b) der Asphäre eingebrachten Linienstrukturen in der jeweiligen Korrekturtiefe von (a) $185\mu\text{m}$ und (b) $260\mu\text{m}$. Linien gleicher Nummer haben die gleiche Eingangspulsenergie. Bei beiden Optiken tritt ab der fünften Linie Materialzerstörung (Typ II) auf.

rungen im Brechungsindex sind sehr gering und waren erst nach acht Stunden im flusssäurehaltigen Ätzbad unter dem Phasenkontrastmikroskop erkennbar. Die Materialmodifikationen sind vom Typ I und konnten nicht in ein Höhenprofil für REM-Aufnahmen umgewandelt werden. In Abb. F.3 ist die Phasenkontrastaufnahme der Querschnitte der Strukturen im Kieselglas zu sehen. Diese Strukturen weisen eine Gesamttiefe von mehr als $500\mu\text{m}$ auf. Bei genauer Betrachtung werden Bereiche deutlich, in denen die Strukturen unterbrochen sind. Mit zunehmender Pulsenergie zeichnen sich mehrere einzelne Bereiche mit Strukturänderungen ab, die eine oder auch zwei Unterbrechungen haben.

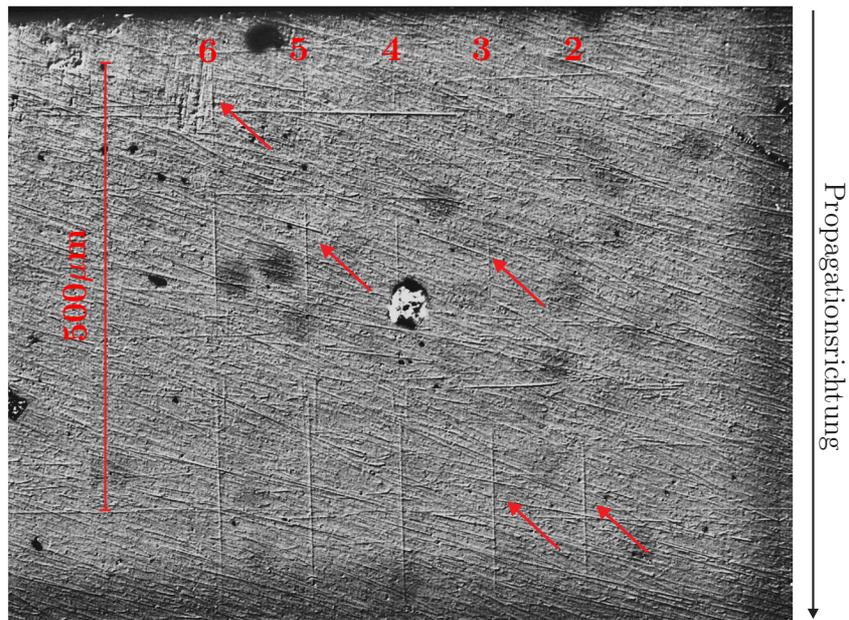


Abbildung F.3: Phasenkontrastaufnahme der Querschnitte der Strukturen, die mit der plankonvexen Sammellinse in das Kieselglas eingebracht wurden. Man erkennt deutlich die starke Ausdehnung über bis zu $500\mu\text{m}$ und die Unterbrechungen innerhalb der Strukturen.

Literatur

- [1] Z. Bor : Distortion of femtosecond laser pulses in lenses. In: *Optics Letters* 14 (1989), Nr. 2, S. 119–121.
- [2] Z. Bor und L. Z. Horváth : Distortion of femtosecond pulses in lenses. Wave optical description. In: *Optics Communications* 94 (1992), Nr. 4.
- [3] E. T. Sharp und J. P. Wisoff : Analysis of lens and zone plate combinations for achromatic focusing of ultrashort laser pulses. In: *Applied Optics* 31 (1992), Nr. 15, S. 2765–2769.
- [4] M. Kempe, U. Stamm, B. Wilhelmi, W. Rudolph : Spatial and temporal transformation of femtosecond laser pulses by lenses and lens systems. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 9 (1992), Nr. 7, S. 1158–1165.
- [5] M. Kempe und W. Rudolph : Impact of chromatic and spherical aberration on the focusing of ultrashort light pulses by lenses. In: *Optics Letters* 18 (1993), Nr. 2, S. 137–139.
- [6] M. Kempe und W. Rudolph : Femtosecond pulses in the focal region of lenses. In: *Physical Review A* 48 (1993), Nr. 6, S. 4721–4729.
- [7] E. Ibragimov : Focusing of ultrashort laser pulses by the combination of diffractive and refractive elements. In: *Applied Optics* 34 (1995), Nr. 31, S. 7280–7285.
- [8] O. G. Mattei und A. M. Gil : Spherical aberration in spatial and temporal transforming lenses of femtosecond laser pulses. In: *Applied Optics* 38 (1999), Nr. 6, S. 1058–1064.
- [9] R. Piestun und A. B. D. Miller : Spatiotemporal control of ultrashort optical pulses by refractive–diffractive–dispersive structured optical elements. In: *Optics Letters* 26 (2001), Nr. 17, S. 1373–1375.
- [10] R. Ashman und M. Gu : Effect of ultrashort pulsed illumination on foci caused by a Fresnel zone plate. In: *Applied Optics* 42 (2003), Nr. 10, S. 1852–1855.
- [11] **U. Fuchs** : *Theoretische und experimentelle Untersuchungen zur Propagation ultrakurzer Laserpulse durch Fokussierungsoptiken: Diplomarbeit*, Jena, November 2004.
- [12] **U. Fuchs**, D. U. Zeitner und A. Tünnermann : Ultra-short pulse propagation in complex optical systems. In: *Optics Express* 13 (2005), Nr. 10, S. 3852–3861.
- [13] **U. Fuchs** und D. U. Zeitner : Focusing Ultrashort Pulses: in *Ultrafast Optics Textbook*. In: Hg. von R. Trebino und J. Squier, 2006.
- [14] L. C. Arnold, A. Heisterkamp, W. Ertmer, H. Lubatschowski : Computational model for nonlinear plasma formation in high NA micromachining of transparent materials and biological cells. In: *Optics Express* 15 (2007), Nr. 16, S. 10303–10317.
- [15] R. M. Junnarkar : Short pulse propagation in tight focusing conditions. In: *Optics Communications* 195 (2001), Nr. 273–292.
- [16] L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz : Femtosecond Laser- Induced Damage and Filamentary Propagation in Fused Silica. In: *Physical Review Letters* 89 (2002), Nr. 18, 186601(4).
- [17] K. Ishikawa, H. Kumagai und K. Midorikawa : High-power regime of femtosecond-laser pulse propagation in silica: Multiple-cone formation. In: *Physical Review E* 66 (2002), Nr. 5, 056608(8).
- [18] Z. Wu, H. Jiang, H. Sun, H. Yang, Q. Gong : Filamentation and temporal reshaping of a femtosecond pulse in fused silica. In: *Physical Review A* 68 (2003), Nr. 6, 063820(8).
- [19] Z. Wu, H. Jiang, H. Yang, Q. Gong : The refocusing behaviour of a focused femtosecond laser pulse in fused silica. In: *Journal of Optics A* 5 (2003), S. 102–107.
- [20] W. R. Boyd : *Nonlinear optics*, 2. Aufl., Amsterdam: Acad. Press, 2003, ISBN: 0121216829.
- [21] A. Dubietis, E. Gaizauskas, G. Tamosauskas, P. Di Trapani : Light Filaments without Self -Channeling. In: *Physical Review Letters* 92 (2004), Nr. 25, 253903(4).
- [22] G. Fibich, S. Eisenmann, B. Ilan, Y. Erlich, M. Fraenkel, Z. Henis, L. A. Gaeta, A. Zigler : Self-focusing distance of very high power laser pulses. In: *Optics Express* 13 (2005), Nr. 15, S. 5897–5903.

- [23] M. D. Rayner, A. Naumov und B. P. Corkum : Ultrashort pulse non-linear optical absorption in transparent media. In: *Optics Express* 13 (2005), Nr. 9, S. 3208–3217.
- [24] L. C. Arnold, A. Heisterkamp, W. Ertmer, H. Lubatschowski : Streak formation as side effect of optical breakdown during processing the bulk of transparent Kerr media with ultra-short laser pulses. In: *Applied Physics B* 80 (2005), S. 247–253.
- [25] J. Liu, X. Chen, J. Liu, Y. Zhu, Y. Leng, J. Dai, R. Li, Z. Xu : Spectrum reshaping and pulse self-compression in normally dispersive media with negatively chirped femtosecond pulses. In: *Optics Express* 14 (2006), Nr. 2, S. 979–987.
- [26] A. Couairon und A. Mysyrowicz : Femtosecond filamentation in transparent media. In: *Physics Reports* (2007), Nr. 441, S. 47–189.
- [27] R. J. Gulley, W. S. Winkler und M. W. Dennis : Simulation and analysis of ultrafast-laser-pulse-induced plasma generation in fused silica. In: *Optical Engineering* 47 (2008), Nr. 5, 054302(1–9).
- [28] R. W. Singer : *Entwicklung und experimentelle Überprüfung nicht-paraxialer Wellenausbreitungsmethoden zur Analyse mikrooptischer Komponenten: Dissertation*, Erlangen, März 1995.
- [29] K.-H. Brenner und W. Singer : Light propagation through microlenses: a new simulation method. In: *Applied Optics* 32 (1993), Nr. 26, S. 4984–4988.
- [30] V. L. Keldysh : Ionization in the Field of a Strong Electromagnetic Wave. In: *Sov. Phys. JETP* 20 (1965), Nr. 5, S. 1307–1314.
- [31] E. V. Gruzdev : Photoionization rate in wide band-gap crystals. In: *Physical Review B* 75 (2007), Nr. 205106, S. 1–13.
- [32] E. V. Gruzdev und K. J. Chen : Laser-induced ionization and intrinsic breakdown of wide band-gap solids. In: *Applied Physics A* 90 (2008), S. 255–261.
- [33] M. Sparks, L. D. Mills, R. Warren, T. Holstein, A. A. Maradudin, J. L. Sham, E. Loh, F. D. King : Theory of electron-avalanche breakdown in solids. In: *Physical Review B* 24 (1981), Nr. 6, S. 3519–3536.
- [34] C. B. Stuart, D. M. Feit, M. A. Rubenchik, W. B. Shore, D. M. Perry : Laser-Induced Damage in Dielectrics with Nanosecond to Subpicosecond Pulses. In: *Physical Review Letters* 74 (1995), Nr. 12, 2248(4).
- [35] C. B. Stuart, D. M. Feit, S. Herman, M. A. Rubenchik, W. B. Shore, D. M. Perry : Optical ablation by high-power short-pulse lasers. In: *Journal of the Optical Society of America B* 13 (1996), Nr. 2.
- [36] M. Li, S. Menon, P. J. Nibarger, N. G. Gibson : Ultrafast Electron Dynamics in Femtosecond Optical Breakdown of Dielectrics. In: *Physical Review Letters* 82 (1999), Nr. 11, S. 2394–2397.
- [37] R. S. Vatsya und K. S. Nikumb : Modeling of laser-induced avalanche in dielectrics. In: *Journal of Applied Physics* 91 (2002), Nr. 1, S. 344–351.
- [38] T. Apostolova und Y. Hahn : Modeling of laser-induced breakdown in dielectrics with subpicosecond pulses. In: *Journal of Applied Physics* 88 (2000), Nr. 2, S. 1024–1034.
- [39] L. Englert, B. Rethfeld, L. Haag, M. Wollenhaupt, C. Sarpe-Tudoran, T. Baumert : Control of ionization processes in high band gap materials via tailored femtosecond pulses. In: *Optics Express* 15 (2007), Nr. 26, S. 17855–17862.
- [40] H. B. Christensen und P. Balling : Modeling ultrashort-pulse laser ablation of dielectric materials. In: *Physical Review B* 79 (2009), Nr. 155424, S. 1–10.
- [41] B. Rethfeld : Unified Model for the Free-Electron Avalanche in Laser-Irradiated Dielectrics. In: *Physical Review Letters* 92 (2004), Nr. 18, 187401(4).
- [42] B. Rethfeld : Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics. In: *Physical Review B* 73 (2006), Nr. 3, 035101(6).
- [43] P. Bowlan, P. Gabolde, A. Shreenath, K. McGresham, R. Trebino, S. Akturk : Crossed-beam spectral interferometry: a simple, high-spectral-resolution method for completely characterizing complex ultrashort pulses in real time. In: *Optics Express* 14 (2006), Nr. 24, S. 11892–11900.
- [44] P. Bowlan, P. Gabolde, A. M. Coughlan, R. Trebino, J. R. Levis : Measuring the spatiotemporal electric field of ultrashort pulses with high spatial and spectral resolution. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 25 (2008), Nr. 6, A81–A92.
- [45] R. Trebino : *Frequency-resolved optical gating: The measurement of ultrashort laser pulses*, Boston: Kluwer Academic Publ., 2002, ISBN: 1402070667.

- [46] C. Iaconis und A. I. Walmsley : Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses. In: *Optics Letters* 23 (1998), Nr. 10, S. 792–794.
- [47] J. Jasapara und W. Rudolph : Characterization of sub-10-fs pulse focusing with high-numerical-aperture microscope objectives. In: *Optics Letters* 24 (1999), Nr. 11, S. 777–779.
- [48] R. Netz, T. Feurer, R. Wolleschenski, R. Sauerbrey : Measurement of the pulse-front distortion in high-numerical-aperture optics. In: *Applied Physics B* 70 (2000), S. 833–837.
- [49] L. Gallmann, G. Steinmeyer, H. D. Sutter, T. Rupp, C. Iaconis, A. I. Walmsley, U. Keller : Spatially resolved amplitude and phase characterization of femtosecond optical pulses. In: *Optics Letters* 26 (2001), Nr. 2, S. 96–98.
- [50] W. Amir, Planchon. T. A., G. C. Durfee, A. J. Squier, P. Gabolde, R. Trebino, M. Müller : Simultaneous visualization of spatial and chromatic aberrations by two-dimensional Fourier transform spectral interferometry. In: *Optics Letters* 31 (2006), Nr. 19, S. 2927–2929.
- [51] P. Gabolde und R. Trebino : Single-shot measurement of the full spatiotemporal field of ultrashort pulses with multispectral digital holography. In: *Optics Express* 14 (2006), Nr. 23, S. 11460–11467.
- [52] V. V. Lozovoy, I. Pastirk und M. Dantus : Multiphoton intrapulse interference. IV. Ultrashort laser pulse spectral phase characterization and compensation. In: *Optics Letters* 29 (2004), Nr. 7, S. 775–777.
- [53] N. D. Fittinghoff, A. J. Squier, P. J. C. Barty, N. J. Sweetser, R. Trebino, M. Müller : Collinear type II second-harmonic-generation frequency-resolved optical gating for use with high-numerical-aperture objectives. In: *Optics Letters* 23 (1998), Nr. 13, S. 1046–1048.
- [54] R. Chadwick, E. Spahr, A. J. Squier, G. C. Durfee, B. Walker, N. D. Fittinghoff : Fringe-free, background-free, collinear third-harmonic generation frequency-resolved optical gating measurements for multiphoton microscopy. In: *Optics Letters* 31 (2006), Nr. 22, S. 3366–3368.
- [55] E. A. B. Saleh und C. M. Teich : *Grundlagen der Photonik*, 21. Aufl., Lehrbuch Physik, Weinheim: Wiley-VCH, 2008, ISBN: 9783527406777.
- [56] J.-C. Diels und W. Rudolph : *Ultrashort laser pulse phenomena: Fundamentals, techniques, and applications on a femtosecond time scale*, Optics and photonics, San Diego: Acad. Pres, 1996, ISBN: 0122154924.
- [57] J. J. Stamnes : *Waves in focal regions: Propagation, diffraction and focusing of light, sound and water waves*, The Adam Hilger series on optics and optoelectronics, Bristol: Hilger, 1986, ISBN: 0852744684.
- [58] W. J. Goodman : *Introduction to Fourier optics*, 2. Aufl., New York: Mcgraw-Hill Publ.Comp., 1996, ISBN: 0071142576.
- [59] M. Y. Engelberg und S. Ruschin : Fast method for physical optics propagation of high-numerical-aperture beams. In: *J. Opt. Soc. Am. A* 21 (2004), Nr. 11, S. 2135–2145.
- [60] H. R. Stolen, P. J. Gordon, J. W. Tomlinson, A. H. Haus : Raman response function of silica-core fibers. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 6 (1989), Nr. 6, S. 1159–1166.
- [61] H. Garcia, M. A. Johnson, A. F. Oguama, S. Trivedi : New approach to the measurement of the nonlinear refractive index of short (<25 m) lengths of silica and erbium-doped fibers. In: *Optics Letters* 28 (2003), Nr. 19, S. 1796–1798.
- [62] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz : Study of damage in fused silica induced by ultra-short IR laser pulses. In: *Optics Communications* 191 (2001), S. 333–339.
- [63] A. Couairon, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, A. Mysyrowicz : Filamentation and damage in fused silica induced by tightly focused femtosecond laser pulses. In: *Physical Review B* 71 (2005), Nr. 12, 125435(11).
- [64] G. Fibich und L. A. Gaeta : Critical power for self-focusing in bulk media and in hollow waveguides. In: *Optics Letters* 25 (2000), Nr. 5, S. 335–337.
- [65] B. C. Schaffer, A. Brodeur und E. Mazur : Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses. In: *Measurement Science and Technology* 12 (2001), S. 1784–1794.
- [66] O. Efimov, S. Juodkazis und H. Misawa : Intrinsic single- and multiple-pulse laser-induced damage in silicate glasses in the femtosecond-to-nanosecond region. In: *Physical Review A* 69 (2004), Nr. 042903, S. 1–7.

- [67] E. Louzon, Z. Henis, S. Pecker, Y. Ehrlich, D. Fisher, M. Fraenkel, A. Zigler : Reduction of damage threshold in dielectric materials induced by negatively chirped laser pulses. In: *Applied Physics Letters* 87 (2005), S. 241903.
- [68] G. E. Gamaly, V. A. Rode, B. Luther-Davies, T. V. Tikhonchuk : Ablation of solids by femtosecond lasers: Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics. In: *Physics of Plasmas* 9 (2002), Nr. 3, S. 949–957.
- [69] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, C. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, F. Krausz : Femtosecond Optical Breakdown in Dielectrics. In: *Physical Review Letters* 80 (1998), Nr. 18, S. 4076–4079.
- [70] Q. A. Wu, H. I. Chowdhury und X. Xu : Femtosecond laser absorption in fused silica: Numerical and experimental investigation. In: *Physical Review B* 72 (2005), S. 085128.
- [71] N. Bloembergen : Laser-Induced Electric Breakdown in Solids. In: *IEEE Journal of Quantum Electronics* 10 (1974), S. 375–386.
- [72] P. Audebert, P. Daguzan, A. Dos Santos, C. J. Gauthier, P. J. Geindre, S. Guizard, G. Hamoniaux, K. Krastev, P. Martin, G. Petite, A. Antonetti : Space-Time Observation of an Electron Gas in SiO₂. In: *Physical Review Letters* 73 (1994), Nr. 14, S. 1990–1994.
- [73] Q. Sun, H. Jiang, Y. Liu, Z. Wu, H. Yang, Q. Gong : Measurement of the collision time of dense electronic plasma induced by a femtosecond laser in fused silica. In: *Optics Letters* 30 (2005), Nr. 3, S. 320–322.
- [74] P. Martin, S. Guizard, P. Daguzan, G. Petite, P. D’Oliveira, P. Meynadier, M. Perdrix : Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals. In: *Physical Review B* 55 (1997), Nr. 9 (5799), S. 1–12.
- [75] F. Bechstedt : Einführung in die Festkörperphysik : Skript zur Vorlesung. WiSe 2005/06.
- [76] A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek, G. Simon : Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses. In: *Physical Review B* 61 (2000), Nr. 17, 11437(14).
- [77] B. Rethfeld : : *persönliche Kommunikation*, 2009.
- [78] V. L. Keldysh : Kinetic Theory of Impact ionization in Semiconductors. In: *Sov. Phys. JETP* 37 (10) (1960), Nr. 3, S. 509–518.
- [79] D. Arnold und E. Cartier : Theory of laser-induced free-electron heating and impact ionization in wide-band-gap solids. In: *Physical Review B* 46 (1992), Nr. 23, S. 102–115.
- [80] F. Fuchs : : *persönliche Kommunikation*, 2009.
- [81] A. A. Said, T. Xia, A. Dogariu, J. D. Hagan, J. M. Soileau, W. E. Van Stryland, M. Mohebi : Measurement of the optical damage threshold in fused quartz. In: *Applied Optics* 34 (1995), Nr. 18, S. 3374–3376.
- [82] E. V. Gruzdev : : *persönliche Kommunikation*, 2009.
- [83] M. Will : Ultrakurzpulsinduzierte Brechzahlmodifikationen in transparenten Festkörpern: Dissertation. Diss., Jena: Friedrich-Schiller Universität, 2004.
- [84] S. Nolte, M. Will, J. Burghoff, A. Tünnermann : Femtosecond waveguide writing: a new avenue to three-dimensional integrated optics. In: *Applied Physics A* 77 (2003), S. 109–111.
- [85] J. Thomas, E. Wikszak, T. Clausnitzer, **U. Fuchs**, D. U. Zeitner, S. Nolte, A. Tünnermann : Inscription of fiber Bragg gratings with femtosecond pulses using a phase mask scanning technique. In: *Applied Physics A* (2006), Nr. DOI: 10.1007/s00339-006-3754-2.
- [86] *Zemax: Optical Design Program - Benutzerhandbuch*, Zemax Development Corporation, 15.10.2007.
- [87] <http://www.fftw.org>, FFTW Version 3.2.1.
- [88] D. M. Feith und A. J. Fleck : Effect of refraction on spot-size dependence of laser-induced breakdown. In: *Applied Physics Letters* 24 (1974), Nr. 4, S. 169–172.
- [89] Q. Sun, H. Jiang, Y. Liu, Y. Zhou, H. Yang, Q. Gong : Effect of spherical aberration on the propagation of a tightly focused femtosecond laser pulse inside fused silica. In: *Journal of Optics A: Pure and Applied Optics* 7 (2005), S. 655–659.
- [90] V. M. Fischetti, J. D. DiMaria, D. S. Brorson, N. T. Theis, R. J. Kirtley : Theory of high-field electron transport in silicon dioxide. In: *Physical Review B* 31 (1985), Nr. 12, S. 8124–8142.
- [91] **U. Fuchs**, D. U. Zeitner und A. Tünnermann : Optics for focusing of ultra-short laser pulses. In: *Proceedings of SPIE* 5962 (2005), S. 802–809.
- [92] **U. Fuchs**, D. U. Zeitner und A. Tünnermann : Hybrid optics for focusing ultrashort laser pulses. In: *Optics Letters* 31 (2006), Nr. 10, S. 1516–1518.

- [93] Y. Barad, H. Eisenberg, M. Horowitz, Y. Silberberg : Nonlinear scanning laser microscopy by third harmonic generation. In: *Applied Physics Letters* 70 (1997), Nr. 8, S. 922–924.
- [94] A. J. Squier, M. Müller, J. G. Brakenhoff, R. K. Wilson : Third harmonic generation microscopy. In: *Optics Express* 3 (1998), Nr. 9, S. 315–324.
- [95] D. Yelin und Y. Silberberg : Laser scanning third-harmonic-generation microscopy in biology. In: *Optics Express* 5 (1999), Nr. 8, S. 169–175.
- [96] J. Serbin, A. Egbert, A. Ostendorf, N. B. Chichkov, R. Houbertz, G. Domann, J. Schulz, C. Cronauer, L. Fröhlich, M. Popall : Femtosecond laser-induced two-photon polymerization of inorganic–organic hybrid materials for applications in photonics. In: *Optics Letters* 28 (2003), Nr. 5, S. 301–303.
- [97] A. Vogel, J. Noack, G. Hüttman, G. Paltauf : Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissues. In: *Applied Physics B* 81 (2005), S. 1015–1047.
- [98] E. Wikszak, J. Thomas, J. Burghoff, B. Ortaç, J. Limpert, S. Nolte, **U. Fuchs**, A. Tünnermann : Erbium fiber laser based on intracore femtosecond-written fiber Bragg grating. In: *Optics Letters* 31 (2006), Nr. 16, S. 2390–2392.
- [99] **U. Fuchs**, D. U. Zeitner, A. Tünnermann, U. J. Thomas, E. Wikszak, u.a. : Verfahren und Anordnung zum Strukturieren einer lichtleitenden Faser entlang deren Längsachse (longitudinale Strukturierung) basierend auf der nicht-linearen Absorption von Laserstrahlung. Pat. 10 2006 046 313, 29.09.2006.
- [100] M. L. M. Balistreri, P. J. Korterik, L. Kuipers, F. N. Hulst : Phase Mapping of Optical Fields in Integrated Optical Waveguide Structures. In: *Journal of Lightwave Technology* 19 (2001), Nr. 8, S. 1169–1176.
- [101] M. L. M. Balistreri, H. Gersen, P. J. Korterik, L. Kuipers, F. N. Hulst : Tracking Femtosecond Laser Pulses in Space and Time. In: *Science* 294 (2001), Nr. 5544, S. 1080–1082.
- [102] H. Gersen, Dijk, E. M. H. P. van, P. J. Korterik, F. N. Hulst, L. Kuipers : Phase mapping of ultrashort pulses in bimodal photonic structures: A window on local group velocity dispersion. In: *Physical Review E* 70 (2004), Nr. 6, 066609(12).
- [103] N. D. Fittinghoff, L. J. Bowie, N. J. Sweetser, T. R. Jennings, A. M. Krumbügel, W. K. DeLong, R. Trebino, A. I. Walmsley : Measurement of the intensity and phase of ultraweak, ultrashort laser pulses. In: *Optics Letters* 21 (1996), Nr. 12, S. 884–886.
- [104] C. Dorrer, N. Belabas, P. J. Likforman, M. Joffre : Experimental implementation of Fourier-transform spectral interferometry and its application to the study of spectrometers. In: *Applied Physics B* 70 (2000), S. 99–107.
- [105] A. Kovács, K. Osvay, Z. Bor, R. Szipöcs : Group-delay measurement on laser mirrors by spectrally resolved white-light interferometry. In: *Optics Letters* 20 (1995), Nr. 7, S. 788–790.
- [106] k. Misawa und T. Kobayashi : Femtosecond Sagnac interferometer for phase spectroscopy. In: *Optics Letters* 20 (1995), Nr. 14, S. 1550–1552.
- [107] D. Meshulach, D. Yelin und Y. Silberberg : Real-time spatial–spectral interference measurements of ultrashort optical pulses. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 14 (1997), Nr. 8, S. 2095–2098.
- [108] P. J. Geindre, P. Audebert, S. Rebibo, C. J. Gauthier : Single-shot spectral interferometry with chirped pulses. In: *Optics Letters* 26 (2001), Nr. 20, S. 1612–1614.
- [109] M. E. Kosik, S. A. Radunsky, A. I. Walmsley, C. Dorrer : Interferometric technique for measuring broadband ultrashort pulses at the sampling limit. In: *Optics Letters* 30 (2005), Nr. 3, S. 326–328.
- [110] A. Kovács, K. Osvay, G. Kurdi, M. Görbe, J. Klebniczki, Z. Bor : Dispersion control of a pulse stretcher–compressor system with two-dimensional spectral interferometry. In: *Applied Physics B* 80 (2005), S. 165–170.
- [111] F. Burmeister : *Charakterisierung fokussierter ultrakurzer Laserpulse mit spektralaufgelöster räumlicher Interferometrie: Diplomarbeit*, Jena, November 2008.
- [112] P. Bownan, P. Gabolde und R. Trebino : Directly measuring the spatio-temporal electric field of focusing ultrashort pulses. In: *Optics Express* 15 (2007), Nr. 16, S. 10219–10230.
- [113] W. Demtröder : *Elektrizität und Optik: Mit 17 Tabellen, zahlreichen durchgerechneten Beispielen und 137 Übungsaufgaben mit ausführlichen Lösungen*, 2. Aufl., Bd. Bd. 2, Springer-Lehrbuch, Berlin: Springer, 1999, ISBN: 3540651969.
- [114] P. Bownan, **U. Fuchs**, R. Trebino, D. U. Zeitner : Measuring the spatiotemporal electric field of tightly focused ultrashort pulses with sub-micron spatial resolution. In: *Optics Express* 16 (2008), Nr. 18, S. 13663–13675.

-
- [115] P. I. Radko, I. S. Bozhevolnyi und N. Gregersen : Transfer function and near-field detection of evanescent waves. In: *Applied Optics* 45 (2006), Nr. 17, S. 4054–4061.
- [116] V. S. Kukhlevsky, M. Mechler, L. Csapo, K. Janssens : Near-field diffraction of fs and sub-fs pulses: super resolution of NSOM in space and time. In: *Physics Letters A* 319 (2003), S. 439–447.
- [117] H. Beyer : *Handbuch der Mikroskopie*, 1. Aufl., Berlin: VEB Verlag Technik, 1973.
- [118] B. Richards und E. Wolf : Electromagnetic Diffraction in Optical Systems. II. Structure of the Image Field in an Aplanatic System. In: *Proceedings of the Royal Society of London A* 253 (1959), S. 358–379.
- [119] K. Bahlmann und W. S. Hell : Electric field depolarization in high aperture focusing with emphasis on annular apertures. In: *Journal of Microscopy* 200 (2000), Nr. 1, S. 59–67.
- [120] R. Dorn, S. Quabis und G. Leuchs : The focus of light - linear polarization breaks the rotational symmetry of the focal spot. In: *Journal of Modern Optics* 50 (2003), Nr. 12, S. 1917–1926.
- [121] N. I. Bronstein, A. K. Semendjajew, G. Musiol, H. Mühlig : *Taschenbuch der Mathematik*, 4. Aufl., Frankfurt am Main: Verlag Harri Deutsch, 1999.
- [122] E. V. Gruzdev : Influence of energy-momentum relation on multiphoton ionization rate. In: *Physical Review B* submitted (2009),
- [123] *Grintech: GRIN rod lenses: Datenblatt, GrinTech GmbH, Schillerstraße 1, 07745 Jena, 2008.*

Danksagung

Hiermit möchte ich mich bei all jenen bedanken, die mich im Verlauf meiner Promotion, in welcher Form auch immer, unterstützten und motivierten, und somit zum Gelingen der hier vorgestellten Arbeit beigetragen haben. An erster Stelle gilt mein Dank dabei Prof. Andreas Tünnermann für die umfassende Unterstützung dieser Arbeit.

Mein besonderer Dank gilt meinem Arbeitsgruppenleiter Dr. habil. Uwe D. Zeitner für die vielen interessanten Diskussionen und Hinweise zur Verbesserung dieser Arbeit, welche erst das Entstehen dieser in der vorliegenden Form ermöglicht haben.

Mein Dank gilt weiterhin Prof. Stefan Nolte und seiner Arbeitsgruppe am Institut für Angewandte Physik der FSU Jena für die Unterstützung beim Versuchsaufbau von *scanning* SEA TADPOLE.

Für das Mechanikdesign für den Versuchsaufbau von *scanning* SEA TADPOLE gilt mein besonderer Dank Erik Förster. Außerdem möchte ich mich bei Frank Burmeister für Aufbauen von *scanning* SEA TADPOLE im Rahmen seiner Diplomarbeit sowie die nachfolgenden Messungen mit der Hoch-NA-Variante bedanken.

Weiterhin möchte ich allen Mitarbeitern und Mitarbeiterinnen der A3 des Fraunhofer IOF für die von ihnen geprägte offene und motivierende Arbeitsatmosphäre danken.

Dr. Vitaly Gruzdev, Dr. Bärbel Rethfeld und Dr. Susanne Quabis möchte ich sehr herzlich für die zahlreichen und sehr aufschlussreichen Email-Diskussionen danken.

Ph.D. Pamela Bowlan und Prof. Rick Trebino gilt mein ganz besonderer Dank für die fruchtbare Zusammenarbeit bei der Weiterentwicklung von *scanning* SEA TADPOLE.

Meiner Familie gilt an dieser Stelle mein ganz besonderer Dank für ihre Liebe und bedingungslose Unterstützung während der gesamten Arbeit.

Zu guter Letzt bedanke ich mich bei der STUDIENSTIFTUNG DES DEUTSCHEN VOLKES für die großzügige finanzielle Unterstützung durch das gewährte Promotionsstipendium.

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. Prof. Dr. rer. nat. habil. Andreas Tünnermann als betreuender Hochschullehrer.
2. Dr. rer. nat. habil. Uwe D. Zeitner als betreuender Arbeitsgruppenleiter.
3. Ph.D. Pamela Bowlan als Partner einer wissenschaftlichen Kooperation zur Entwicklung und Verbesserung des *scanning* SEA TADPOLE, welche zu den in Abschnitt 6.4.1 dargestellten Ergebnissen führten.
4. Dipl.-Ing. Erik Förster für das Mechanikdesign des am IAP realisierten *scanning* SEA TADPOLE.
5. Dipl.-Phys. Frank Burmeister für den Aufbau des *scanning* SEA TADPOLE im Rahmen der durch die Autorin betreuten Diplomarbeit, sowie die Durchführung der in Abschnitt 6.4.2 präsentierten Messungen.
6. Dr. rer. nat. Frank Fuchs für die Parallelisierung des Quellcodes zur Verwendung des Compute-Clusters "omega" des Rechenzentrums der Friedrich-Schiller-Universität Jena.

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, den 15. Dezember 2009