

Funktionale Schichten für den Ultrakurzpuls Bereich

Von der Fakultät für Mathematik und Physik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

zur Erlangung des akademischen Grades

Doktor der Naturwissenschaften

Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation von

M.Sc., Thomas Willemsen

2018

Referent: Prof. Dr. Detlev Ristau
Korreferent: Prof. Dr. Uwe Morgner
Tag der Promotion: 15.10.2018

Kurzfassung

Hochtechnologische Laseranwendungen für den Ultrakurzpuls Bereich erfordern dielektrische Komponenten mit bestmöglichen Eigenschaften hinsichtlich des optischen Übertragungsverhaltens der Phaseneigenschaften und der laserinduzierten Zerstörschwellen. Zur Umsetzung dieser Forderungen steht nur eine begrenzte Anzahl binärer Materialien zur Verfügung. Insbesondere der Brechwert und die optische Bandkante sind fest durch das jeweilige Material definiert. Eine dringend erforderliche Steigerung der Leistungsverträglichkeit von Optiken bedarf somit neuartiger Konzepte, um den Brechwert oder die optische Bandkante gezielt einstellen zu können. Hierbei ist ein etablierter Ansatz der Einsatz von ternären Kompositen. Über das Mischungsverhältnis zweier binärer Materialien kann die optische Bandkante variiert werden. Nachteilig ist, dass der Brechwert durch das Komposit determiniert ist. Eine vielversprechende Alternative bietet daher die Herstellung von quantisierten Schichtstrukturen. Dabei wird ein hochbrechendes Material in eine Matrix eines niedrigbrechenden Materials eingebettet. Wird die Schichtdicke des hochbrechenden Materials dünn genug gewählt, so kann die Beweglichkeit der Elektronen eingeschränkt werden. Dieser für kristalline Halbleiter etablierter Ansatz wird in der vorliegenden Arbeit erstmals experimentell mit amorphen Materialien durchgeführt und auf komplexe dielektrische Systeme übertragen.

Hergestellte amorphe quantisierte Schichtstrukturen zeigen eine spektrale Blauverschiebung bei Schichtdicken kleiner als 4 nm vom hochbrechenden Material. Die optischen Bandkanten korrelieren mit theoretischen Berechnungen auf Grundlage der Lösung der Schrödingergleichung. Ein entscheidender Vorteil gegenüber ternären Kompositen ist die Möglichkeit, für eine konstant gewählte optische Bandkante den Brechungsindex gezielt über die Nanolaminatstruktur einzustellen. Beispielhaft wurde eine quantisierte Schichtstruktur mit einer optischen Bandkante von 5 eV hergestellt, die mit 1,8 einen um 16 % höheren Brechwert erreichte als das ternäre Komposit derselben optischen Bandkante. Wie bei allen bisher untersuchten Oxiden steigt die laserinduzierte Zerstörschwelle linear mit der optischen Bandkante in den Nanolaminaten an. Die quantisierten Schichtstrukturen finden Anwendung bei der Optimierung der Zerstörschwelle von anspruchsvollen phasenkomprimierenden Optiken. Hierbei werden hochbrechende Schichten im binären Design mit maximaler Feldstärke gezielt durch die neuartigen quantisierten Strukturen ersetzt. Mit dem Designkonzept wurde eine 1,9 fach höhere LIDT für die hergestellten Demonstratoren erreicht. Das vorgestellte Konzept scheint invariant gegenüber dem spezifischen Design und den eingesetzten Materialien zu sein und bietet somit die Möglichkeit der Herstellung von phasenkomprimierenden Optiken mit Zerstörschwellen für die nächste Generation von Hochleistungslaserspiegeln.

Schlagwörter: Quantisierte Schichtstrukturen, Ultrakurzpuls Optiken, Laserinduzierte Zerstörschwelle

Abstract

The current laser technology and its ultrashort pulse applications are driven by a continuous improvement which imposes strong demands on the required high end optical components. Especially, steadily growing power capabilities and the dispersion management of the phase of dielectric optics are crucial and can be optimized by the choice of the layer material as well as by the corresponding design. Taking into account the well-known available binary oxides the maximum power handling capability is reached. For further improvement new materials are needed. State of the art is the deposition of ternary composites by the simultaneous sputtering of two target materials. On this basis new materials can be sputtered with improved optical gap values. The fixed index of refraction determined by the chosen ratio of the target materials can be identified as a major disadvantage. However, another possibility successfully applied for semiconductors to create new material properties is the use of the binary oxides itself. The electron confinement can be changed by reducing the physical thickness of the high refractive index material in the few nm range of a classical high low stack. Such materials can be considered as dielectric quantized nanolaminates. In this thesis the experimental application for amorphous materials is realized in fundamental studies and transferred to complex designs for the first time.

Manufactured amorphous quantized layer structures are characterized by a spectral blue shift with layer thicknesses of the high refractive index material less than 4 nm. The optical gaps correspond with simulations applying numerical solutions of Schrödinger equation. A decisive advantage is the possibility to tune the index of refraction for a fixed optical gap with respect to ternary composites. As an example, a quantized layer structure and a ternary composite with an equal optical gap of 5 eV can be compared. In this context the index of refraction of the novel layer structure can be tuned to 1,80 and offers an increase of 16% compared to the ternary composite. In correlation with all previously shown oxides the laser induced damage is improved linearly with the optical gap for the quantized layer structures. The fundamental results are applied to decrease the electric field strength in complex designs of chirped mirrors. Binary high refractive index layers are replaced by the modified layer structures. An improvement of the laser induced damage threshold by a factor of 1,9 could be demonstrated with respect to an initial binary chirp mirror. The concept seems to be independent of the applied materials and the designs. It offers a promising possibility to manufacture chirp mirrors with improved damage thresholds for the next generation of high power optics.

Key words: Quantized layer structures, ultra short pulse optics, laser induced damage threshold

Erklärung der Selbstständigkeit

Hiermit versichere ich, die vorliegende Arbeit selbstständig verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt sowie die Zitate deutlich kenntlich gemacht zu haben. Die Arbeit wurde bisher keiner anderen Prüfungsbehörde vorgelegt und auch noch nicht veröffentlicht.

Hannover, 25.06.2018

Thomas Willemsen

Inhaltsverzeichnis

1 Einleitung	1
2 Theoretische Grundlagen dielektrischer Schichtsysteme im Femtosekunden Regime	5
2.1 Phasenkompromierende Optiken	6
2.1.1 Designkonzepte phasenkompromierender Spiegel	8
2.2 Feldstärkeverteilung in dielektrischen Mehrschichtsystemen	10
2.3 Zerstörmechanismen dielektrischer Schichten im fs-Regime	12
2.4 Abhängigkeit der laserinduzierten Zerstörschwelle vom Material und der Feldstärke	15
3 Theoretische Grundlagen quantisierter Materialien	17
3.1 Quanten Wells	19
3.1.1 Teilchen im Potentialkasten mit endlicher Barriere	20
3.1.2 Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung	21
3.2 Zustandsdichten und Übergangswahrscheinlichkeiten im Quantentopf	25
4 Herstellung und Qualifizierung von hochqualitativen Schichten mit dem IBS-Prozess	29
4.1 Prinzip der Ionen-Strahl-Zerstäubung	30
4.2 Verwendete IBS-Anlage	31
4.3 Spektrale ex-situ Charakterisierung von Schichtsystemen	35
4.4 Übertragungsverhalten einer Einzelschicht	37
4.5 Materialabhängige optische Bandkante	38
4.6 Bestimmung der laserinduzierten Zerstörschwelle im fs-Regime	41
4.7 Kapitelzusammenfassung	44
5 Herstellung und Analyse von Ultrakurzpuls laser Optiken	47
5.1 Designsynthese von phasenkompromierenden Optiken	48
5.2 Evaluationsmethoden zur Bestimmung der GDD	51
5.3 Herstellung von phasenkompromierenden Optiken	53
5.4 Ex-situ Charakterisierung von phasenkompromierenden Optiken	55

5.5	Evaluation der Herstellungsroutine	58
5.6	Kapitelzusammenfassung und Fazit	61
6	Quantisierte amorphe Schichtstrukturen	63
6.1	Charakterisierung von amorphen Nanolaminaten	64
6.2	Nachweis von Nanolaminatstrukturen	68
6.3	Laserinduzierte Zerstörfestigkeit von amorphen Nanolaminaten	72
6.4	Vergleich der optischen Eigenschaften von ternären Kompositen und Nanolaminaten	75
6.4.1	Optische Parameter	75
6.4.2	Laserinduzierte Zerstörung	77
6.5	Einfluss der Barriere Dicke auf die LIDT von quantisierten Schichtstrukturen	82
6.6	Kapitelzusammenfassung	84
7	Steigerung der LIDT von Ultrakurzpuls laser Optiken mit neuartigen Design Methoden	87
7.1	Anwendung von Nanolaminatstrukturen in konventionellen hochreflektierenden Bragg-Spiegeln	88
7.2	Evaluierung der Parameter zum Nachweis einer Steigerung der LIDT in Ultrakurzpuls Optiken	91
7.3	Feldstärkenverteilung der phasenkomprimierenden Designs	94
7.4	Ex-situ Charakterisierung phasenkomprimierender Spiegel	97
7.5	Klassifizierung der hergestellten Demonstratoren	101
7.6	Kapitelzusammenfassung	105
8	Zusammenfassung und Ausblick	107
	Literatur	111
	Eigene Veröffentlichungen	129
	Curriculum Vitae	131

KAPITEL 1

Einleitung

Die rasante Entwicklung von hochtechnologischen Anwendungen mit Ultrakurzpuls Lasern im Femtosekunden Regime stellt außergewöhnliche Anforderungen an die dielektrischen Komponenten. Insbesondere die im Resonator eingesetzten Optiken nehmen eine Schlüsselposition für die Optimierung der realisierbaren Laserspezifikationen ein. Ziel hierbei ist die Kombination von maximaler Spitzenleistung mit möglichst geringer Pulsdauer. In diesem Zusammenhang ist eine aktive Kompensation der Phase des elektrischen Feldes zwingend erforderlich, um der natürlichen Dispersion der Laserstrahlung entgegenzuwirken. Eine in zunehmendem Maße verwendete Variante zur Dispersionskompensation beruht auf dem Einsatz von spezifisch berechneten, phasensensitiven dielektrischen Schichtsystemen. Die Herstellung derartiger Komponenten erfordert den Einsatz eines hochqualitativen Beschichtungsverfahrens, wie beispielsweise der Ionenstrahlzerstäubung in Kombination mit einer optischen Schichtdickenmonitorierung höchster Präzision. Der Einsatz derartiger Komponenten erstreckt sich über einen breiten Spektralbereich vom tiefen Ultravioletten bis hin zu Wellenlängen im mittleren Infraroten. Auch wenn eine Vielzahl derartiger Komponenten am Markt kommerziell verfügbar ist, stellt deren Herstellung häufig eine signifikante Herausforderung dar. Das Schichtdesign reagiert extrem sensitiv auf Abweichungen einzelner Schichten. Bereits Schichtdickenabweichungen im Subnanometerbereich können zu starken Oszillationen der Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GDD) führen. Mathematisch betrachtet, definiert die GDD die zweite Ableitung der spektralen Phase. Ziel bei der Herstellung derartiger dielektrischer Komponenten ist oftmals ein möglichst konstanter GDD-Verlauf. Zur Realisierung dieser hochkomplexen Schichtsysteme ist eine spezifische Beschichtungsstrategie erforderlich, die im besonderen Maße die Schichtdickenkontrolle beinhaltet. Die bislang verfügbaren Methoden, wie das spektrale in-situ-Monitoring in Transmission oder Reflexion oder auch die Kontrolle über die Zeit, erfordern bezüglich der Schichtdickenpräzision zusätzliche Optimierungen. Es zeigt sich insbesondere, dass die indirekte Bestimmung der Phase über die Transmission oder Reflexion nicht sensitiv genug ist. Unabhängig von den technischen Herausforderungen im Herstellungsprozess sind phasensensitive Optiken oftmals durch eine komplexe Feldstärkenverteilung im Design charakterisiert. Hochbrechende Materialien sind im Vergleich zu niedrigbrechenden Schichten im Allgemeinen durch eine energetisch kleinere optische Bandlücke charakterisiert. Die

laserinduzierte Zerstörschwelle (LIDT) wiederum ist über die optische Bandkante und die Feldstärke im Schichtmaterial determiniert. Bei identischer Feldstärke und identischen verwendeten Laserparametern steigt die LIDT linear mit der optischen Bandlücke an. Das Produkt aus Feldstärke und gemessenen Zerstörschwellen einer Einzelschicht definiert die materialintrinsische LIDT. Generell ist die Zerstörschwelle einer dielektrischen Komponente durch die Schicht definiert, die die geringste interne LIDT aufweist. Eine Optimierung der LIDT von phasenkomprimierenden Optiken erfordert somit eine genaue Analyse der Feldstärkeverteilung im Schichtsystem. Tatsächlich ist nur eine begrenzte Anzahl an geeigneten binären Materialien verfügbar, die den hohen Anforderungen dielektrischer Schichtsysteme für Laseranwendungen genügen. Weitere signifikante Steigerungen der Zerstörfestigkeit von dielektrischen Optiken durch den Einsatz binärer Materialien können somit vorerst nicht erwartet werden. Neuartige Designstrategien, in denen hochbrechende Schichten mit extremer Feldstärke durch Materialien mit einstellbarer optischer Bandkante und Brechungsindizes ersetzt werden, sind notwendig. Eine mittlerweile etablierte Technik zur Variation der optischen Parameter amorpher Schichten basiert auf dem simultanen Zerstäuben von zwei binären Materialien. Die optische Bandkante lässt sich unter Verwendung oxidischer Komposite auf diese Weise in dem Intervall zwischen den beiden binären Materialien einstellen. Auch im Falle von ternären Kompositen steigt die LIDT linear mit zunehmender optischer Bandkante an. Infolgedessen konnten ternäre Komposite erfolgreich in konventionelle Bragg-Spiegel integriert und damit eine signifikante Steigerung der Zerstörfestigkeit demonstriert werden. Über die Mischung beider Target-Materialien wird der Brechungsindex exakt definiert und sinkt kontinuierlich mit steigender optischer Bandkante in ternären Kompositen. Generell erweist sich der technische Aufwand sowie die Reproduzierbarkeit der optischen Eigenschaften von ternären Kompositen als anspruchsvoll. Eine vielversprechende Alternative, die für kristalline Materialien in der Halbleiterindustrie seit längerem verfolgt wird, ergibt sich aus der Anwendung von quantisierenden Schichtstrukturen. Dabei wird die Beweglichkeit der Elektronen im hochbrechenden Material durch dessen Einbettung in die Matrix eines niedrigbrechenden Materials eingeschränkt. Die diskreten Energiezustände der Elektronen in dem so realisierten Potentialtopf können über die Wahl der Schichtdicke des hochbrechenden Materials gezielt beeinflusst werden. Die Quantisierung des hochbrechenden Materials ermöglicht somit eine definierte Variation der resultierenden Bandkante. Bislang erschien die Übertragung des Konzeptes aufgrund der fehlenden mikroskopischen Fernfeldordnung in amorphen Materialien für dielektrische Schichten zweifelhaft und wurde daher auch nicht experimentell verifiziert.

Mit der vorliegenden Arbeit werden erstmals amorphe quantisierte Schichtstrukturen hergestellt und quantitativ charakterisiert. Als vielversprechende Alternative zu ternären Kompositen kann zusätzlich zu der optischen Bandkante auch der Brechungsindex gezielt eingestellt werden. Diese quantisierten Schichtstrukturen werden zur Verbesserung der laserinduzierten Zerstörschwelle von phasenkomprimierenden Optiken im Ultrakurzimpuls

Bereich angewandt. Dabei werden hochbrechende Schichten mit hohen Feldstärken sowohl mittels neuartiger quantisierter Schichtstrukturen als auch durch ternäre Komposite substituiert. Die Herstellung der phasensensitiven Optiken wird durch die Bereitstellung eines neuen Monitorierungskonzeptes erleichtert. Die Phase wird hierbei während des Beschichtungsprozesses am bewegten Substrat gemessen.

Zu Beginn werden in Kapitel 2 die nötigen Grundlagen bezüglich phasensensitiver Spiegel dargestellt sowie generell Zerstörschwellenabhängigkeiten im fs-Regime detailliert beschrieben. Im Anschluss daran, im 3. Kapitel, werden anhand etablierter Modelle die Prinzipien quantisierter Schichtstrukturen erörtert. Die notwendigen Materialien und Methoden zur Herstellung von dielektrischen Schichten und deren optischen Charakterisierungsmöglichkeiten im Hinblick auf bestmögliche Schichtqualitäten werden schließlich im 4. Kapitel diskutiert. Kapitel 5 erklärt im Detail die Herstellung und Evaluation von phasenkomprimierenden Optiken. Es werden ausgewählte Designkonzepte präsentiert, die eine zuverlässige Extrapolation des Phasenverhaltens bis in den ultravioletten Spektralbereich unter Verwendung des NIR-Phasen-Monitors ermöglichen. Das 6. Kapitel thematisiert die Herstellung einzelner quantisierter Schichtstrukturen und deren theoretische Verifikation. Im Anschluss daran werden Experimente präsentiert mit dem Ziel, die hergestellten quantisierten Strukturen zu validieren. Ein weiterer Schwerpunkt ist der detaillierte Vergleich von ternären Kompositen und quantisierten Schichtstrukturen hinsichtlich ihrer Zerstörschwellen. Die gewonnenen Schlussfolgerungen werden für die gezielte Verbesserung der LIDT von dielektrischen Optiken genutzt, wie in Kapitel 7 beschrieben ist. Es wird gezeigt, wie quantisierte Schichtstrukturen zunächst in einem konventionellen Bragg-Spiegel evaluiert werden und anschließend ein binärer phasenkomprimierender Spiegel für eine anspruchsvolle Anwendung im nahinfraroten Spektralbereich hergestellt und analysiert wird. Für die Optimierung werden sowohl Substitutionen mit ternären Kompositen als auch quantisierenden Strukturen durchgeführt. Insgesamt ist es das Ziel, die maximale Feldstärke in der hochbrechenden Schicht zu senken und damit eine Verbesserung der LIDT zu implizieren.

KAPITEL 2

Theoretische Grundlagen dielektrischer Schichtsysteme im Femtosekunden Regime

Schwerpunkt der vorliegenden Arbeit ist die gezielte Verbesserung der laserinduzierten Zerstörschwelle (LIDT) von phasenkomprimierenden dielektrischen Filtern im Femtosekunden Regime (fs-Regime) über den Einsatz neuartiger Materialien. Phasenkomprimierende Optiken reflektieren das Licht derart, dass der natürlichen Dispersion zeitlich entgegengewirkt werden kann. Die komplexe Schichtabfolge solcher dielektrischer Spiegel verringert unter anderem die LIDT signifikant im Vergleich zu konventionellen dielektrischen Bragg-Spiegeln. Der Einsatz von Schichten mit verbesserten optischen Eigenschaften im Design von phasenkomprimierenden Filtern soll dabei als grundlegender Ansatz verfolgt werden, um die Zerstörfestigkeit der Komponenten zu verbessern. Als Alternative zu ternären Mischungen werden dabei erstmalig amorphe quantisierte Schichtstrukturen, sogenannte Nanolamine, hergestellt und nachfolgend in Designs von phasenkomprimierenden Spiegeln substituiert. Das vorliegende Kapitel erläutert zunächst die notwendigen theoretischen Grundlagen von dielektrischen Schichtsystemen für das Femtosekunden Regime am Beispiel von phasenkomprimierenden Optiken. Im Allgemeinen sind die Designs durch eine hohe Sensitivität auf Schichtdickenabweichungen während des Herstellungsprozesses gekennzeichnet. Neben den gering erlaubten Fehlertoleranzen gehen die Designs oftmals mit einer komplexen Feldstärkeverteilung einher. Die Berechnung der Feldstärke erfolgt mit kommerziellen Dünnschichtprogrammen und wird in diesem Kapitel qualitativ über einen intuitiven Ansatz zur Berechnung der Feldstärke in Mehrschichtsystemen vorgestellt. Die Feldstärke ist über die optische Bandkante des jeweiligen Schichtmaterials wiederum mit der laserinduzierten Zerstörschwelle verknüpft. Die herzustellenden phasenkomprimierenden Optiken zielen auf eine Kompression von Laserpulsen im fs-Regime ab. Da die Zerstörprozesse stark vom zeitlichen Regime abhängen, konzentriert sich diese Arbeit vornehmlich auf Betrachtungen im fs-Regime [Chi96].

2.1 Phasenkomprimierende Optiken

Ein Lichtpuls wird als eine Superposition ebener elektrischer Wellen mit unterschiedlichen Moden beschrieben:

$$E(z,t) = \frac{1}{2\pi} \int d\omega \check{E}(\omega) e^{i(\omega t - \phi(z,\omega))} \quad (2.1)$$

mit der Propagationsrichtung z , der Frequenz ω und der Phasenbeziehung $\phi(z,\omega)$ zwischen den ebenen Wellen. Im Vakuum sind Phasen- und Gruppengeschwindigkeit gleich. Bedingt durch den frequenzabhängigen Brechungsindex $n(\omega)$ in einem Medium erfährt ein Lichtpuls zeitliche und räumliche Dispersion. Über die Taylorentwicklung der spektralen Phase $\phi(z,\omega)$ nach der Kreisfrequenz ω , kann die Dispersion quantifiziert werden [Die06]:

$$\phi(z,\omega) = \phi_0 + \underbrace{\frac{\partial \phi}{\partial \omega}(\omega - \omega_0)}_{GD} + \underbrace{\frac{1}{2} \frac{\partial^2 \phi}{\partial \omega^2}(\omega - \omega_0)^2}_{GDD} + \mathcal{O}(\omega^3) \quad (2.2)$$

Anschaulich beschreibt dabei das Differential erster Ordnung, als Gruppenverzögerung (GD) definiert, die zeitliche Verschiebung der Einhüllenden des Pulses. Das Differential zweiter Ordnung wird als Gruppenverzögerungsdispersion (GDD) bezeichnet und quantifiziert das zeitliche „Zerfließen“ des Wellenpaketes bei der Propagation der elektro-magnetischen Strahlung durch das Medium bedingt durch die frequenzabhängige Dispersion der Moden (Abb. 2.1). Derartige Pulsdeformationen werden durch entsprechende optische Komponenten kompensiert.

Wie einleitend erläutert, beschreibt die Dispersion die Abhängigkeit des Brechungsindex von der Frequenz oder Wellenlänge der elektromagnetischen Strahlung. Einzelne Frequenzen werden beim Durchlaufen in einem Medium unterschiedlich stark gebrochen. Im Falle der normalen Dispersion $\frac{dn}{d\lambda} < 0$ werden niedrigere Wellenlängen stärker gebrochen als höhere. Ein fs-Puls kann über die Synchronisation der im Laserresonator schwingenden Moden generiert werden. Je mehr Moden im Laserpuls enthalten sind, desto geringer ist die zeitliche Breite. Die Relation ist aus einer Fourieranalyse ersichtlich [Ruz16] und kann über das Zeit-Band-Breite-Produkt qualitativ nachvollzogen werden [Ste05]:

$$\Delta\tau \Delta\omega \geq \text{const} \quad (2.3)$$

mit der Pulsdauer $\Delta\tau$ und dem Frequenzspektrum $\Delta\omega$. Die Konstante „const“ liegt im Intervall zwischen eins und zwei, in Abhängigkeit der Pulsform. Mit den bereits eingeführten Summanden aus der Taylorreihenentwicklung der Phase elektromagnetischer Wellen kann ein Bezug zur Gruppenverzögerung (GD), also der zeitlichen Verschiebung des kompletten Wellenpaketes und der Ableitung der Gruppenverzögerung, der Gruppenverzögerungsdispersion (GDD), hergestellt werden. Dabei ist ersichtlich, dass je breiter das Frequenzspektrum

im Puls ist, desto stärker wirkt sich die Dispersion aus. Über folgenden Zusammenhang kann der Effekt der zeitlichen Verbreiterung eines gauß'schen Lichtpulses durch ein dispersives Medium abgeschätzt werden [Wal01]:

$$\tau(l) = \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln(2) k_2 l}{\tau_0^2} \right)^2} \leftrightarrow \tau_0 \sqrt{1 + \left(\frac{4 \ln(2) GDD}{\tau_0^2} \right)^2} \quad (2.4)$$

mit der ursprünglichen Pulslänge τ_0 vor dem Durchlaufen des dispersiven Mediums, der materialspezifischen Dispersionskonstanten k_2 und der Propagationslänge l durch das Medium. Durchläuft beispielsweise ein gaußförmiger Laserpuls mit einer Zentralwellenlänge von 800 nm ein 1 mm dickes BK-7 Glasplättchen ($k_2 = 44,8 \text{ fs}^2/\text{mm}$), so verbreitert sich ein Eingangspuls von $\tau_0 = 100 \text{ fs}$ auf $\tau(l) = 100,01 \text{ fs}$. Ein einfallender Puls mit einer Dauer von $\tau_0 = 5 \text{ fs}$ verbreitert sich dahingehend beim Durchlaufen durch dasselbe Glasplättchen um mehr als das fünffache der ursprünglichen Pulsdauer auf $\tau(l) = 25,3 \text{ fs}$. Die prinzipielle Notwendigkeit besteht folglich darin, dem zeitlichen Zerfließen entgegenzuwirken. Der Lichtpuls muss beim Durchlaufen eines zusätzlichen Mediums in Transmission oder Reflexion eine negative GDD erfahren. Prinzipiell ist das mit einer definierten Anordnung aus Gittern oder Prismen möglich. Phasenkomprimierende dielektrische Spiegel bieten gegenüber Gittern und Prismen einen entscheidenden Vorteil. Abhängig von den Anforderungen kann der phasensensitive Spiegel flexibel berechnet und hergestellt werden, beispielsweise mit gezielter Unterdrückung der TOD oder variablen Verläufen der GDD.

2.1.1 Designkonzepte phasenkomprimierender Spiegel

Die Herstellung von phasenkomprimierenden Spiegeln basiert auf komplexen Designs. Auf dem Substrat ist im Allgemeinen ein hoch reflektierender Bragg-Spiegel aufgebracht, gefolgt von Schichtsequenzen mit variierenden Schichtdicken. Diese Sequenzen bewirken eine Reflexion von Moden mit geringeren Frequenzen in tieferen Schichtstapeln als höhere Frequenzen. Durch den Wegunterschied wird der Puls zeitlich komprimiert [Mat98; Szi97]. Ebenso lässt sich das Prinzip umkehren, und der Puls kann nach erfolgter Reflexion zusätzlich gestreckt werden.

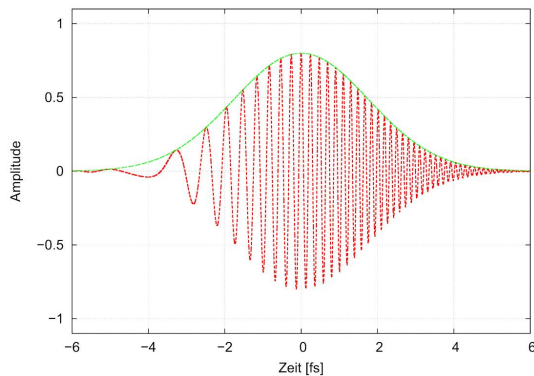


Abbildung 2.1: Gauß-Puls mit zeitlich ansteigender Trägerfrequenz. Es kommt zu einer Verbreiterung und Amplitudenabnahme aufgrund der Dispersion 2. Ordnung nach [Pas17].

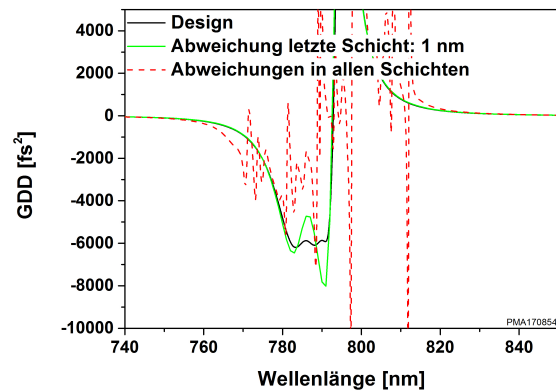


Abbildung 2.2: Auswirkungen von Schichtdickenfehlern für einen phasenkomprimierenden Spiegel mit einer Ziel-GDD von -6000 fs^2 .

Die generelle Herausforderung stellen phasenkomprimierende Spiegel an den Herstellungsprozess und an die Sensitivität bezüglich Abweichungen der physikalischen Schichtdicke vom Targetdesign oder Variationen im Dispersionsverhalten. Um die Sensitivität zu verdeutlichen, sei ein phasensensitiver Spiegel mit einer beispielsweise hohen GDD von -6000 fs^2 und einer spektralen Breite von 10 nm betrachtet. Der Beispielspiegel bestehend aus 65 alternierenden hoch- und niedrigbrechenden Schichten und sei bis zur letzten Schicht fehlerfrei hergestellt. Weicht nur die letzte Schicht mit einer physikalischen Gesamtdicke von 100 nm um einem Prozent ab zu 101 nm, so ist die spezifizierte GDD bereits mit einem nicht mehr tolerierbaren Fehler behaftet (Abb. 2.2). Ausgehend von den derzeit realisierbaren Designs lassen sich empirisch ermittelte Fehlertoleranzen angeben, die aus den realisierbaren Bedingungen im IBS-Prozess extrahiert wurden. Die Schwankungen in den Dispersionsdaten für längere Beschichtungsdauern sollten weniger als 1% für das hochbrechende und weniger als 0,5% für das niedrigbrechende Material betragen, und die relativen Schichtdickenfehler müssen gleichzeitig wesentlich kleiner als 1 nm sein. Eine

aktive Kontrolle des Beschichtungsprozesses und eine Erweiterung des Monitorierungskonzeptes scheint notwendig, um flexibel auf kleinste Abweichungen der Dispersionsdaten oder der erreichten Schichtdickengenauigkeiten reagieren zu können. Andernfalls kommt es zu starken Oszillationen um den berechneten GDD Wert (vgl. Abb. 2.2). Die hohen Anforderungen an den Beschichtungsprozess führen zu modifizierten Designstrategien. Eine industriell weit genutzte Möglichkeit ist die Herstellung von komplementären Paaren von phasenkomprimierenden Spiegeln. Die berechnete GDD im Spiegeldesign oszilliert und führt so zu einer geringeren Sensitivität auf Prozessparameterabweichungen. Ein analoges Design mit verschobener Zentralwellenlänge vervollständigt das Paar an phasenkomprimierenden Spiegeln. Aufgrund der destruktiven Interferenz der verschobenen GDD-Oszillationen wird ein Laserpuls nach Reflexion am Spiegelpaar insgesamt mit einer konstanten GDD verzögert. Extrem kurze Pulse mit einer Oktave können mit den Spiegelpaaren beispielsweise komprimiert werden [Kär01]. Ebenso kann ein Design gewählt werden, in dem die Phase des Pulses unter zwei verschiedenen Einfallswinkeln unterschiedlich verzögert wird [Per09]. Nach Reflexion unter den beiden entsprechenden Einfallswinkeln ist der Puls insgesamt mit konstanter GDD komprimiert worden. Als alternative Konzepte, einen breitbandigen Laserpuls mit nur einer Reflexion an einem dielektrischen Filter zu komprimieren, werden spezielle phasenkomprimierende Designs mit einer Keilschicht diskutiert [Hab16]. Weiterhin können spektral kurze Laserpulse mit extrem hohen GDD-Werten komprimiert werden, welche dabei auf Gires-Tournois-Interferometer (GTI) Spiegeln basieren [Gol00]. Dabei wird ein konventionelles Bragg-Design mit präzise angeordneten „Spacer“- Schichten ergänzt. Die dadurch implizierten Resonanzen in der Feldstärkeverteilung führen zu hohen GDD-Werten, wie beispielsweise für einen Filter mit einer spektralen Bandbreite von 10 nm

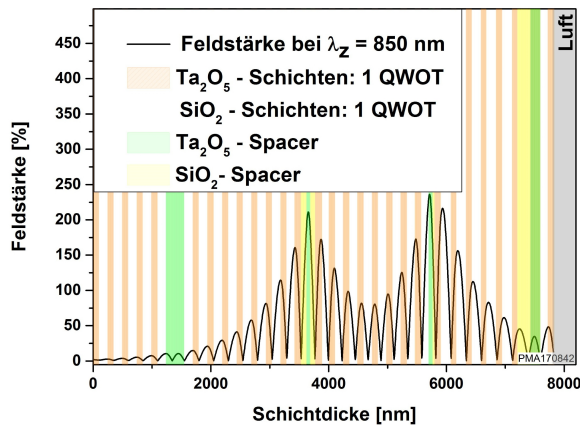


Abbildung 2.3: Feldstärkenverteilung in einem phasensensitiven GTI-Spiegel mit einer spektralen Bandbreite von 10 nm. Die skizzierten Spacer-Schichten erzeugen Resonanzen und damit eine hohe GDD von -6000 fs².

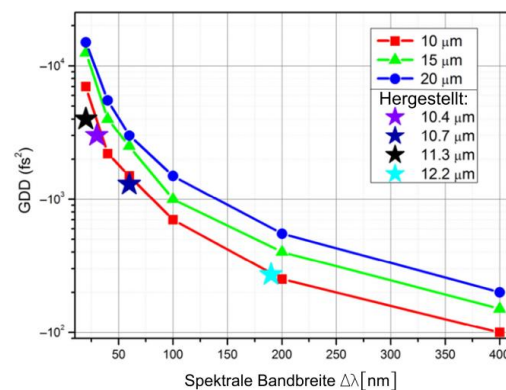


Abbildung 2.4: Von V. Pervak et al. postulierter empirischer Zusammenhang zwischen GDD und maximal möglicher spektraler Bandbreite in Abhängigkeit der physikalischen Gesamtdicke für Spiegel aus Ta_2O_5 und SiO_2 , nach [Per13].

und einer GDD von -6000 fs^2 (Abb. 2.3). Oftmals kann für eine Vielzahl von Designs mit flacher GDD nicht mehr eindeutig zwischen einem GTI und einem konventionellen phasenkomprimierenden Spiegel unterschieden werden [Per11b]. Allgemein korreliert die spektrale Bandbreite mit der spezifizierten GDD. Je geringer die spektrale Bandbreite, desto höhere GDD Werte können im Design realisiert werden (Abb. 2.4) [Per13].

Für den weiteren Verlauf der Arbeit und der dargestellten Optimierung von phasenkomprimierenden Optiken stellt die gezielte Beeinflussung der Feldstärke eine wichtige Funktion dar. Der Feldstärkenverlauf in einem dielektrischen Mehrschichtsystem kann dabei mit leistungsstarken kommerziell erhältlichen Dünnschichtprogrammen wie Spektrum oder Optilayer berechnet werden. Die Programme führen dabei unter Verwendung charakteristischer Matrizen für die jeweiligen Schichten Matrizenmultiplikationen durch [Abe67; Oht90]. Für die Darstellung der elektrischen Feldstärke¹ in einem Schichtsystem ist es erforderlich, die Feldstärke hinsichtlich der einfallenden Welle zu normieren. Diese Werte werden immer relativ zum maximal möglichen Wert im Vakuum ausgegeben. So kann z.B. der Spitzenwert derart gewählt werden, dass dieser vor einem HR-Spiegel 100 % beträgt [Die02]. Im Folgenden sei ein intuitiver Ansatz zur grundsätzlichen Bestimmung der Feldstärke in Multischichtsystemen vorgestellt.

2.2 Feldstärkeverteilung in dielektrischen Mehrschichtsystemen

Die wellenlängenabhängige Interaktion eines einfallenden Laserpulses mit einem amorphen Festkörper beeinflusst die Feldstärkeverteilung in einem dielektrischen Mehrschichtsystem. Bei der Beschränkung auf nichtmagnetische Materialien sind diese durch den wellenabhängigen optischen Brechungsindex $n(\lambda)$ charakterisiert. Der Poynting-Vektor $\vec{S} = \vec{E} \times \vec{B}$ beschreibt dabei das Kreuzprodukt aus dem instantanen elektrischen und magnetischen Feld, aus dem die einfallende Welle zusammengesetzt ist. Der zeitliche Mittelwert des Poynting-Vektors $|\overline{\vec{S}}|$ kann als elektromagnetische Intensität I definiert werden. Die Intensität und die Feldstärke sind dabei für ein dielektrisches Medium mit Brechungsindex n_0 [Lev68] wie folgt verknüpft:

$$I(t) = \frac{1}{2} c n_0 \varepsilon_0 |E(t)|^2 \quad (2.5)$$

mit der elektrischen Feldkonstante ε_0 , der Lichtgeschwindigkeit c , dem Brechungsindex n_0 sowie der Amplitude des elektrischen Feldes $E(t)$. Fällt nun unter einem beliebigen Einfallswinkel das elektromagnetische Feld auf die dielektrische Grenzfläche, so setzt sich der elektrische Feldvektor in Abhängigkeit der Polarisierung jeweils aus einer tangentialen und normalen Komponente zusammen. Unter der Berücksichtigung der Stetigkeit der tangentialen Feldkomponenten am Übergang von Grenzflächen lässt sich ein rekursives

¹ Im Folgenden wird die elektrische Feldstärke nur noch als Feldstärke bezeichnet

Verhältnis der Feldstärken in jeweiligen aufeinanderfolgenden Schichten eines dielektrischen Multischichtsystems aufstellen [Apf76; Ber63]:

$$\frac{E_j}{E_{j-1}} = \frac{(1 + re^{2i\phi})}{1 + r} e^{i\phi} \quad (2.6)$$

mit der Schichtnummer j und der komplexen Reflexionsamplitude r zur benachbarten Oberfläche, sowie der Phasenbeziehung ϕ zwischen den zwei Grenzflächen. Bei genauer Kenntnis der Reflexionsamplituden im Schichtsystem können mit der dargestellten Rekursionsformel die tangentialen Komponenten des elektrischen Feldes für eine einfallende Welle bei Propagation durch das EinfallsmEDIUM an jedem Punkt im Multischichtsystem berechnet werden. E_{j-1} kann dabei auch die Grenzfläche zum EinfallsmEDIUM oder Substrat berücksichtigen. Eine stufenweise Anwendung der Rekursionsformel liefert ein Feldstärkenprofil für das komplette Schichtsystem. Für eine unter 0° zur Grenzfläche einfallende Welle steht der elektrische Feldvektor parallel zur Grenzfläche, und mit der Rekursionsformel kann die absolute Feldstärke im Multischichtsystem berechnet werden. Bei einem Einfallswinkel abweichend von 0° müssen die zwei Polarisationsrichtungen (p- und s-pol) separat betrachtet werden. Der senkrecht polarisierte Anteil des elektrischen Feldes ist orthogonal zur Einfallsebene und steht daher parallel zur Grenzfläche. Der elektrische Feldvektor setzt sich folglich nur aus der tangentialen Komponente zusammen. Im Fall des parallel polarisierten Anteils der einfallenden Welle müssen sowohl die tangentiale als auch die normale Komponente betrachtet werden. Für den p-polarisierten Anteil folgt:

$$\begin{aligned} \text{tangential: } E_T &= E_i(1 + r) \cos \phi \\ \text{normal: } E_N &= E_i(1 - r) \sin \phi \end{aligned} \quad (2.7)$$

mit der Amplitude der einfallenden Welle E_i . Die Reflexionsamplitude r ist dabei als das Verhältnis der tangentialen Feldkomponenten der reflektierten und einfallenden Welle definiert. Dabei lässt sich zeigen, dass die Reflexionsamplitude für die normale Feldkomponente $-r$ ist [Sto63].

Die Berechnung der Feldstärkeverteilung in dielektrischen Schichtsystemen bildet eine wichtige Grundlage für die Verbesserung der laserinduzierten Zerstörschwelle von Optiken (z.B. Abb. 2.4). Nachfolgend werden zunächst die grundlegenden Zerstörmechanismen dielektrischer Schichten im fs-Regime zusammen gefasst.

2.3 Zerstörmechanismen dielektrischer Schichten im fs-Regime

Der von einem Laserpuls induzierten Zerstörung im dielektrischen Schichtmaterial geht eine komplexe Wechselwirkung physikalischer Prozesse voraus. So können in Abhängigkeit des zeitlichen Regimes der eingestrahnten Pulse irreversible, elektronische, thermische oder auch thermomechanische Materialmodifikationen induziert werden. Dabei kann die Energie des Laserpulses freie Ladungsträger durch nichtlineare Ionisationsprozesse generieren, von freien Elektronen absorbiert werden, bzw. die Energie der Elektronen ins Gittersystem transferiert werden. Im Ultrakurzpuls (UKP) Bereich mit weniger als 10 ps wird die Energie schneller von den Elektronen absorbiert, als dass diese an die atomare Struktur abgegeben wird. Die Evolution der Dichte der freien Elektronen determiniert den Zerstörungsprozess und kann über drei wechselwirkende Teil-Ionisationsprozesse beschrieben werden [Gor79; Jup12; Mer05; Sta04; Stu95]:

$$\frac{\partial \rho(t)}{\partial t} = W_{PI}(I(t)) + W_{Kask}(I(t), \rho(t)) - W_{Rel}(\rho(t)) \quad (2.8)$$

mit der von Intensität des einfallenden Laserpulses $I(t)$ abhängigen Photoionisationsrate W_{PI} , der von der Intensität und Elektronendichte im Leitungsband $\rho(t)$ abhängigen Kaskadenionisationsrate W_{Kask} und der von der Elektronendichte abhängigen Rekombinationsrate W_{rel} . Einfallende Laserpulse mit einer für das dielektrische Material transparenten Wellenlänge regen durch nicht-lineare Anregungsprozesse gebundene Elektronen im Valenzband in freie Zustände im Leitungsband an. Die Ionisationsrate W_{PI} kann mit der Keldysh-Theorie beschrieben werden [Kel65]. Keldysh definiert dabei einen Faktor der als adiabatischer Keldysh-Koeffizient γ bezeichnet wird:

$$\gamma = \frac{\omega \sqrt{m_e^* E_{gap}}}{eE} \quad (2.9)$$

mit der Laserfrequenz ω , der effektiven Elektronenmasse m_e^* , der optischen Bandkante des Materials E_{gap} , der Elementarladung e und dem einfallenden elektrischen Feld E . Über die Quantifizierung des Parameters kann der anfängliche Photo-Ionisationsprozess durch Multiphotonenabsorption (MPA) für $\gamma \ll 1$ oder Tunnelionisation (TE) für $\gamma \gg 1$ festgelegt werden. Dabei wird im Fall der Multiphotonenabsorption, das Elektron durch eine quasi-instantane Absorption von mehreren Photonen in freie Zustände im Leitungsband angeregt. Die minimale Summe der absorbierten Photonen muss dabei mindestens der Energie der optischen Bandlücke entsprechen. Dominiert die Tunnelionisation den Prozess, so induziert das externe elektrische Feld des einfallenden Laserpulses eine Verformung der elektronischen Bandstruktur. Im Valenzband gebundene Elektronen erhalten eine höhere Wahrscheinlichkeit durch die modifizierte Potentialbarriere in die freie Zustände des Leitungsbandes zu tunneln. Für $\gamma \approx 1$ ergibt sich für den Ionisationsprozess eine Überlagerung aus MPA und TE. Beide initialen Prozesse werden vertiefend mit der Keldysh-Theorie gelöst [Azz04;

[Bur07; Jia05; Kel65; Nat85; Par89; Sud02; Yua07]. Die über die Photoionisation anfänglich ins Leitungsband angeregten Elektronen werden über den zur Ionisierungsrate beitragenden Anteil der Kaskadenionisation weiter verstärkt. Anschaulich werden dabei freie Elektronen im Grundzustandsniveau im Leitungsband weiter angeregt in höhere Energieniveaus. Unter Abgabe ihrer Energie können die freien Elektronen wieder in das Grundzustandsniveau des Leitungsbands relaxieren. Erfolgt dieser Prozess aus einem angeregten Energieniveau, das mindestens der optischen Bandkante entspricht, so kann das emittierte Photon ein gebundenes Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband anregen. Zum einen kann der Anteil der Kaskadenionisation berechnet werden mit dem Drude-Modell [Dru00a; Dru00b], in dem eine eindimensionale Bewegungsgleichung für das Elektron in einem periodisch wechselnden Strahlungsfeld betrachtet wird. Mit der Definition einer kritischen Energie, ab der das stoßende Elektron Energie größer oder gleich der Potentialbarriere aufgesammelt hat und einem Einfangsquerschnitt der Kaskadenionisation, der inversen Bremsstrahlung, kann die Kaskadenionisationsrate bestimmt werden [Fei74; Rai65]. Der Formalismus nach Drude erfordert zwangsläufig beim Erreichen der kritischen Energie eine Anregung eines zusätzlichen Elektrons aus dem Valenzband. Mögliche Interaktionen mit dem Gitter werden nicht berücksichtigt und induzieren einen systematischen Fehler in der Kaskadenionisationsrate. Alternativ zu dem Drude-Modell kann die Kaskadenionisation über ein diskretisiertes Energieniveauschema in einem angenommenen parabolischen Leitungsband berechnet werden. In dem aufgestellten MRE-Modell sind die Energieniveaus E_k äquidistant verteilt in einem Abstand der Photonenergie $E_{ph} = h\nu$ des einfallenden Lichtfeldes (Abb. 2.5) [Ret04]. Das Elektron nimmt sequentiell ein Photon auf, solange bis das Zwischenniveau E_k erreicht ist, in dem das Energieniveau größer oder gleich der optischen Bandkante ist. Mit einer Wahrscheinlichkeit W behaftet, kann das in das Grundniveau des Leitungsbandes relaxierende Elektron analog zum Drude-Modell ein gebundenes Elektron anregen. Über die Lösung eines Systems aus Differentialgleichungen 1. Ordnung lassen sich die sequentiellen Kaskadenionisationsraten berechnen. Abschließend gilt es für die Bestimmung der gesamten Ionisationsrate (Gleichung 2.8) Relaxationen der angeregten Elektronen in das Valenzband zu beachten. Der Relaxationsprozess im Allgemeinen ist stark vom Material und der spezifischen Relaxationszeit abhängig. Reionisationsprozesse aus den Zwischenzuständen werden nicht beachtet, und die Ionisationsrate der Relaxation wird $\partial\rho/\partial t = -\rho(t)/\tau_{rel}$ angenähert.

Ab einer kritischen, über die Ionisationsrate erzeugten Elektronendichte im Leitungsband verändert das Material seine optischen Eigenschaften und wird absorptiv. Mit dem Drude-Modell lässt sich eine Abhängigkeit des Brechungsindex von der Elektronendichte aufzeigen. Erzeugte Absorptionen im Elektronenplasma können als der entscheidende Mechanismus für einen Energietransfer des Lichtfeldes in die amorphe Schicht verstanden werden [Sug10]. Die Plasmafrequenz ω_P ist an dem Punkt gleich der Frequenz des

elektromagnetischen Feldes ω . Die kritische Elektronendichte folgt aus:

$$\rho_{krit} = \frac{\varepsilon_0 m_e^* \omega^2}{e^2} \quad (2.10)$$

Diese hier sehr komprimierten Theorien wurden in vergangenen Arbeiten ausführlich diskutiert und bilden ein Grundgerüst für die daraus deduzierten Gesetzmäßigkeiten, die sich aufgrund der expliziten und direkten Anwendbarkeit auf komplexe Strukturen übertragen lassen. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit wird für Zerstörschwellenmessungen unter anderem an binären Wechselschichtsystemen aus HfO_2 - SiO_2 Proben ein Laser mit einer Zentralwellenlänge von 1030 nm, bei einer Pulsdauer von 850 fs und einer Wiederholrate von 10 Hz eingesetzt. Die Grundlage für die Bestimmung der LIDT, abgestimmt auf die experimentellen Parameter, bietet das Modell der Dichte ρ von quasi-freien Elektronen. Die Schwelldichte, ab der eine irreversible Modifikation im dielektrischen Material auftritt, kann über die Elektronen im Leitungsband mit einer kritischen Dichte ρ_{Krit} beschrieben werden (Gleichung 2.10). Die Photonenenergie der hier verwendeten Laserpulse mit λ_z ist mit $E_{Laser} = 1,20 \text{ eV}$ wesentlich kleiner als die optische Bandkante von HfO_2 mit $E_{\text{HfO}_2} = 5,40 \text{ eV}$. Aus diesem Grund kann die Anregung in das Leitungsband nur durch nicht-lineare Prozesse erfolgen. Initialisiert wird die Anregung durch eine Multiphotonen-Ionisation und generiert notwendige Elektronendichten im Bereich von 10^{18} bis $10^{19} \text{ e}^-/\text{cm}^2$ für die anschließende Kaskadenionisierung. Die elektronische Ionisationsrate $\partial\rho/\partial t$ kann somit in erster Ordnung durch die Ratengleichung (Gleichung 2.8) beschrieben werden. Für die folgenden Berechnungen der LIDT wird die vollständige Lösung nach Keldysh verwendet. Die Kaskadenionisation wird über die Multiple-Raten-Gleichung (MRE-Modell), und die Relaxationsrate wird über eine charakteristische Relaxationszeit bestimmt. Das MRE-Modell zeigt für die vorgegebenen Parameter eine präzise Energieverteilung der Elektronen im Leitungsband. Die gesamte Energiedichte lässt sich über die einzelnen Elektronenenergien aufsummieren:

$$E_{total} = \sum_{i=1}^k (m+n) h\nu \rho_i \quad (2.11)$$

wobei m die Größenordnung der Multi-Photonen-Ionisation angibt, n das Energielevel im Leitungsband und k den energetisch höchstmöglichen Zustand im Leitungsband, der über den Grenzwert der Kaskadenionisation definiert ist, charakterisiert. Für hochbrechende Materialien, wie z.B. Ta_2O_5 , wurde gezeigt, dass durch die Interaktion des Laserpulses mit der dielektrischen Schicht die Zerstörung durch ein Aufschmelzen des Materials initialisiert wird [Šia14]. Diese Zerstörschwelle lässt sich unter der Annahme einer konstanten Wärmekapazität von $c_v = 0,737 \text{ J}/(\text{gK})$ und einer Dichte von $\rho_m = 2,5 \text{ g}/\text{cm}^3$ berechnen. Die kritische Temperatur ist durch die Schmelztemperatur mit $1713 \text{ }^\circ\text{C}$ definiert. Die in

der Schicht deponierte Energie steigt rasch mit größer werdender Elektronendichte im Leitungsband und legitimiert somit die gewählten Näherungen. Die nachfolgende Berechnung und Gegenüberstellung der Evaluation der maximalen Elektronendichte und der eingebrachten Energie pro Volumeneinheit basiert auf dem Anregungsprozess in HfO_2 . Die totale Energie E_{total} ergibt sich aus der Summe der Energie, die benötigt wird, um ein Elektron ins Leitungsband anzuregen und der potentiellen Energie im Leitungsband. Die schnelle Anregung führt zu einem ähnlichen Verhalten der berechneten laserinduzierten Zerstörschwelle, unabhängig von dem gewählten Modell der kritischen Elektronendichte ($H_{HfO_2} = 3,50 \text{ J/cm}^2$) oder der kritischen Temperatur ($H_{HfO_2} = 3,51 \text{ J/cm}^2$) [Wil16].

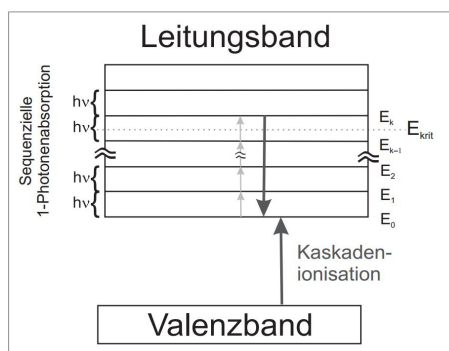


Abbildung 2.5: Schematische Darstellung der Kaskadenionisation nach dem MRE-Modell nach [Jup12].

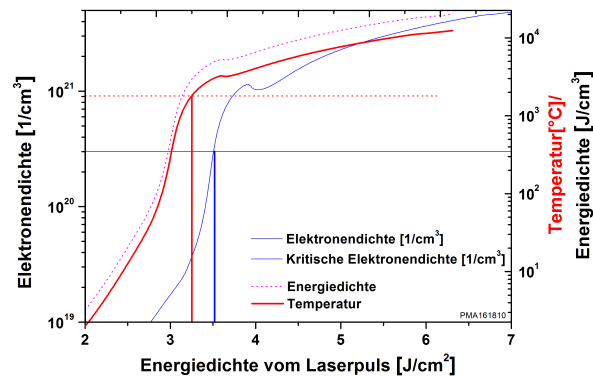


Abbildung 2.6: Berechnete Temperatur- und Elektronendichte in HfO_2 . Die Dichtefunktionen sind mit einer Zentralwellenlänge von 1030 nm und einer Pulsdauer von 850 fs berechnet.

2.4 Abhängigkeit der laserinduzierten Zerstörschwelle vom Material und der Feldstärke

Für die Optimierung der LIDT von Schichtsystemen ist eine fundamentale Betrachtung des Zerstörverhaltens von dielektrischen Materialien notwendig. Eine allgemeine Betrachtung dieser komplexen Vorgänge ist auf Grund der spezifischen Anwendung nicht erforderlich, da phasenkomprimierende Spiegel nur im UKP-Bereich verwendet werden können. Somit ist es sinnvoll, dass sich auch die Betrachtung der Zerstörmechanismen auf diesen Bereich konzentriert mit dem Fokus auf den spektralen nahen infraroten Wellenlängenbereich, für den im Rahmen dieser Arbeit die experimentellen Betrachtungen im Vordergrund stehen. Die physikalischen Kenngrößen der UKP Zerstörung können in wenigen Strahl- und Materialeigenschaften zusammengefasst werden. Durch diese anwendungsbezogene Darstellung können die physikalischen Kenngrößen des Zerstörverhaltens auf ein Mindestmaß reduziert werden, sodass eine Fokussierung auf die für komplexe Beschichtungen notwendigen Kenngrößen möglich ist. Die zentralen Zusammenhänge der Laserpuls-Materie-Wechselwirkung wurden von Mero und Rudolph formuliert [Mer05]. Demnach besteht ein linearer Zusam-

menhang zwischen der Einzelpulszerstörungsschwelle F_{th} und der optischen Bandlücke E_{gap} :

$$F_{th}(E_{gap}, \tau_P) = (c_1 + c_2 E_{gap}) \tau_P^\kappa \quad (2.12)$$

mit der Pulsdauer τ_P . Die Fitparameter c_1 und c_2 , sowie κ wurden empirisch aus Messungen ermittelt: $c_1 = -0,16 \pm 0,02 \text{ Jcm}^{-2} \text{ fs}^{-\kappa}$ und $c_2 = -0,074 \pm 0,004 \text{ Jcm}^{-2} \text{ fs}^{-\kappa} \text{ eV}^{-1}$ und $\kappa = 0,3$. Der Geltungsbereich des Mero-Rudolph-Gesetzes erstreckt sich auf transparente Materialien. Die chemische Zusammensetzung der Materialien sowie physikalische Eigenschaften, wie Schmelztemperatur, Wärmeleitung, Schichtstress oder andere Eigenschaften, die bei WW-Prozessen mit längeren Pulsen das Zerstörverhalten dominieren, haben hier so geringe Auswirkungen, dass sie in erster Ordnung vernachlässigt werden können.

Die Bestrahlung der Proben mit konstanter Pulsdauer im Femtosekunden Bereich impliziert eine linear ansteigende LIDT und legt damit eine direkte Relation zu der materialabhängigen optischen Bandkante nahe. Die Materialauswahl sollte somit auf die elektronischen Eigenschaften konzentriert werden. Binäre Materialien, ausgezeichnet mit einer energetisch hohen Bandkante, wie beispielsweise SiO_2 , sind durch eine deutlich höhere LIDT gekennzeichnet als Materialien mit kleineren optischen Bandkantenwerten [Jog03; Len98; Mer05; Ros99; Sch01; Sim03; Stu96], deren LIDT sich entsprechend des Mero-Rudolph-Gesetzes einsortiert. Für die im Laufe dieser Arbeit verwendeten oxidischen Materialien Hafniumdioxid (HfO_2 , $E_{gap} \approx 5,2 - 5,4 \text{ eV}$), Tantalpentoxid (Ta_2O_5 $E_{gap} \approx 4,1 - 4,3 \text{ eV}$) und Siliziumdioxid (SiO_2 $E_{gap} \approx 6,5 - 8,85 \text{ eV}$) wurden sowohl für binäre Materialien als auch für ternäre Komposite das Zerstörverhalten in umfangreichen Studien hinreichend untersucht und die Gültigkeit des Mero-Rudolph-Gesetzes bewiesen.

Eine vollkommen neue Materialklasse ergibt die Anwendung von Nanolaminaten. Im nächsten Kapitel sollen unter anderem die Grundlagen für das sich ändernde elektronische „Confinement“ bereitgestellt werden in quantisierten Schichtstrukturen.

KAPITEL 3

Theoretische Grundlagen quantisierter Materialien

Die Steigerung der laserinduzierten Zerstörschwelle (LIDT) konnte in vorangegangenen Studien eindrucksvoll mit ternären Mischungen demonstriert werden. Die empirisch belegte lineare Abhängigkeit zwischen laserinduzierter Zerstörschwelle und optischer Bandkante für binäre Materialien öffnet ein breites Anwendungsspektrum für die Herstellung von ternären Kompositen, realisiert durch das simultane Zerstäuben von zwei binären Targetmaterialien. In Abhängigkeit des wohldefinierten Mischungsverhältnisses kann somit die optische Bandkante kontinuierlich im Bereich der optischen Bandkanten der beteiligten binären Materialien variiert werden. Die Messung der laserinduzierten Zerstörschwelle bestätigt die lineare Abhängigkeit mit der optischen Bandkante und verdeutlichen, dass die LIDT dielektrischer Einzelschichten strengen Gesetzmäßigkeiten unterliegen [Gal12; Jup07; Jup11; Man12a; Ris09; Ste11]. Insbesondere für die Analyse von Multischichtsystemen ist es essentiell ein Kriterium zu definieren, in welcher Schicht (Material) die Zerstörung eintritt. Diese Schicht mit der geringsten internen Zerstörschwelle determiniert somit in der Regel die LIDT der kompletten optischen Komponente. Eine qualitative Abschätzung des internen Zerstörverhaltens kann mit dem LIDT-Kreis erfolgen [Jup12; Ris14]. Dafür ist zunächst eine Normierung der Zerstörschwellen notwendig, um so die jeweilige materialintrinsische (designunabhängige) Zerstörschwelle zu definieren:

$$H_{int} = \frac{|E_{max(z)}|}{|E_{ein}|} H_{abs} \quad (3.1)$$

mit der maximalen Feldstärke $|E_{max(z)}|$ in der Einzelschicht an der Position z , der Feldstärke der einfallenden Welle¹ $|E_{ein}|$ und der absolut gemessenen Fluenz der dielektrischen Probe H_{abs} . Unter der Forderung der materialintrinsischen Feldstärke folgt für das jeweilige analysierte Material $H_{int} = const$. Mit dem im vorigen Unterkapitel vorgestellten Formalismus kann die Feldstärke auch in binären Multischichtsystemen in jeder Schicht berechnet werden. Weiterfolgend dem LIDT-Kreis definiert der Quotient aus materialspezi-

¹ Mit der verwendeten Software Spektrum wird die einfallende Welle stets auf 50 % normiert. Diese Werte werden immer relativ zum maximalen möglichen Wert im Vakuum ausgegeben, d.h. der Spitzenwert vor einem hochreflektierenden Spiegel beträgt 100 %.

fischer LIDT und maximaler Feldstärke in der j -ten Schicht des jeweiligen Materials im Schichtsystem die Zerstörschwelle der kompletten optischen Komponente. Als empirische Approximation folgt, dass die hochbrechende Schicht mit der höchsten Feldstärke in einem binären Schichtsystem die Zerstörschwelle der Optik festlegt. Grundsätzlich konnte Jupé zeigen, dass die Zerstörschwelle von unter anderem hochreflektierenden Spiegeln bestimmt werden kann und mit ternären Mischungen signifikant verbessert werden konnte [Jup12]. Neben den ternären Kompositen zur kontrollierten Steigerung der optischen Bandkante und der Verbesserung der laserinduzierten Zerstörschwelle wird im Rahmen dieser Arbeit erstmalig ein alternatives Konzept für amorphe Schichtmaterialien vorgestellt. Über die Einschränkung der Elektronenbeweglichkeit in einem binären Oxid kann die optische Bandkante manipuliert werden. Der thematische Schwerpunkt dieses Kapitels beschreibt die Prinzipien solcher sogenannten quantisierten Schichtstrukturen. Die Einschränkung der Elektronenbeweglichkeit und die daraus resultierenden modifizierten Energieniveaus werden erfolgreich für kristalline Materialien ausgenutzt für die Herstellung von Heteroübergängen und Übergittern (engl. superlattice) [Bra32; Joh25]. Anders als bei p/n Übergängen ist hier nicht die Dotierung unterschiedlich, sondern die Materialart. Dabei kann ein hochbrechendes Material in eine Matrix aus einem niedrigbrechenden Material eingebettet werden. Mithilfe des Potentialtopfes mit endlich hohen Barrieren kann die Abhängigkeit zwischen den Energieniveaus und der gewählten Schichtdicke des hochbrechenden Materials über die Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung numerisch bestimmt werden. Die periodische Fortsetzung von zwei Materialien mit unterschiedlicher Bandkante und Schichtdicke definiert ein Übergitter. Für die Qualität der Übergitter ist die exakte Reproduzierbarkeit der Schichtfolgen entscheidend. Die Schichtdicken liegen dabei teilweise in der Größenordnung von einigen Atomlagen. Die erfolgreiche Umsetzung von Halbleiterheterostrukturen von Herbert Kroemer und Schoes I. Alfjorow wurde mit dem Nobelpreis in Physik ausgezeichnet und führte unter anderem zu der Entwicklung von Laserdioden [Alf71; Kro82]. Für die Solarzellenforschung konnte beispielsweise die Effizienz der Zellen deutlich gesteigert werden in dem Si in eine Matrix aus SiO_2 eingebettet wurde [Cho08]. Die quantisierte Schichtstruktur ist dabei von der Tunnelreichweite der Elektronen in die Barrierschichten abhängig. Ist die Tunnelreichweite größer als die gewählten Barrieren, so überlappen sich die Elektronenfunktionen und Zustandsdichten und wirken dem Quantisierungseffekt entgegen. Aufgrund der fehlenden mikroskopischen Fernfeldordnung können Bandstrukturen in amorphen Festkörpern nicht mehr eindeutig lokalisiert werden, und eine Verschiebung der optischen Bandkante über die beschriebene Quantisierung ist nicht zu erwarten. Die Übertragung der Herstellung von Heterostrukturen mit amorphen Materialien wird anhand dieses Kapitels mit kristallinen Modellen erläutert, mit dem Ziel, die Modelle qualitativ mit den im Verlauf dieser Arbeit erhaltenden experimentellen Ergebnissen zu verknüpfen.

3.1 Quanten Wells

Die räumliche Einschränkung der Elektronenbeweglichkeit (elektronisches Confinement) definiert die Verteilung und Zustandsdichten in einem Quanten-Well [Bas91; Shi97; Wei14]. Diese Arbeit konzentriert sich auf die Herstellung von Quantenfilmen, sog. Nanolaminaten. Dabei wird eine wenige Nanometer dicke Schicht mit energetisch geringer Bandkante in eine Umgebung mit höherer Bandkante eingebettet. Die folgenden Überlegungen wurden erfolgreich in kristallinen Materialien angewandt [Bas90]. In der Schichtebene selber sind die Teilchen frei beweglich und bilden ein 2-dimensionales Elektronengas [Ebe13]. Alternativ definieren Quantenpunkte- und Quantendrähte Strukturen, in denen die Elektronenbeweglichkeit auf drei oder eine räumliche Richtungen beschränkt werden [Har00]. Von Bedeutung für diese Arbeit ist es, das elektronische Confinement gezielt zu beeinflussen. Die Lage der Energieniveaus kann durch die Proportionalität $E_n^{e,p} \propto (m_{e,p}^* L_{well}^2)^{-1}$ über die Wahl der Quanten-Well (QW) Breite L_{well} eingestellt werden [Cap87]. Die gezielte periodische Herstellung solcher Strukturen wird als Nanolaminat bezeichnet. Es sei hier darauf hingewiesen, dass sich die Energieniveaus der Quantisierungszustände bei unendlicher Höhe der Barriere mit

$$E_n = \frac{n^2 h^2}{8m_e^* L_{well}^2} \quad (3.2)$$

approximieren lassen, sodass sich hier die Bandkante des Materials über die geometrische Breite des QW einstellen lässt. Je kleiner die Quanten-Well-Breite gewählt wird, desto mehr verschiebt sich die Lage der Energieniveaus E_n im Leitungsband zu größeren Energiewerten (Abb. 3.1). Die nachfolgenden Betrachtungen konzentrieren sich auf den ersten energetischen Zustand E_1 , da dieser Zustand entscheidend für die meisten im Rahmen der Arbeit

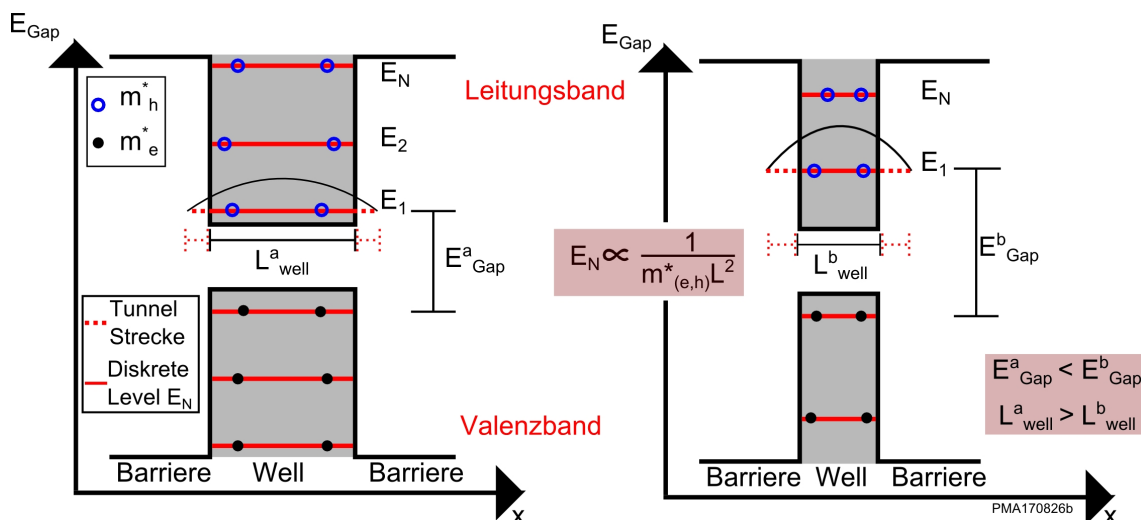


Abbildung 3.1: Schema der Lage der Energieniveaus im Valenz- und Leitungsband.

untersuchten optischen Eigenschaften ist. Die optische Bandkante vergrößert sich, was mit einer spektralen Verschiebung hin zu kürzeren Wellenlängen einhergeht. Die Breite L_{well} korrespondiert mit der Schichtdicke des hochbrechenden Materials und wird mit Quanten-Well (QW) bezeichnet. Die Schichtdicke des niedrigbrechenden Materials, in die das hochbrechende Material eingebettet ist, wird als „Barriere“ (BA) definiert. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen in den endlichen Barrieren ist ungleich null. Der evaneszente Teil der Elektronenwelle kann in die Barrieren eindringen (Abb. 3.1). Die nachfolgenden Darlegungen konzentrieren sich auf Elektronen im Leitungsband von Quantenfilmen mit periodischen Randbedingungen und können über die Betrachtung eines Teilchens in einem Potentialkasten mit endlicher Barriere berechnet werden.

3.1.1 Teilchen im Potentialkasten mit endlicher Barriere

Im Allgemeinen kann der Zustand eines Teilchens quantenmechanisch über die Wellenfunktion $\psi(\vec{x},t)$ beschrieben werden, mit dem Ortsvektor \vec{x} und der Zeit t . Für eine bessere Übersicht wird im Folgenden lediglich eine räumliche Dimension betrachtet mit $\vec{x} = x$. Die Aufenthaltswahrscheinlichkeit berechnet sich über das Betragsquadrat der Wellenfunktion durch $W_{el} = |\psi(x,t)|^2$. Die Wellenfunktionen lassen sich grundlegend über die von Erwin Schrödinger aufgestellten Gleichungen bestimmen [Sch26]:

$$i\hbar \frac{\partial}{\partial t} \psi(x,t) = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \psi(x,t) + V(x)\psi(x,t) \quad (3.3)$$

Bei entsprechender Invarianz gegenüber der Zeit folgt die zeitunabhängige Schrödingergleichung:

$$E_n \psi_n(x) = -\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2}{\partial x^2} \psi_n(x) + V(x)\psi_n(x) \quad (3.4)$$

mit der reduzierten Planck-Konstante \hbar , der effektive Masse m^* des Teilchens m , der potentiellen Energiefunktion $V(x)$, sowie den reellen Eigenenergiewerten E_n . Betrachtet wird im Folgenden das Teilchen in einem Potentialkasten der Breite a mit endlich hohen Barrieren mit $V(x)=E_0$ für $x \leq 0$ und $x \geq L_{well}$ (Abb. 3.2). Für Eigenenergiewerte $E_n \leq E_0$ gibt es eine quantenmechanische Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Teilchen in den klassisch verbotenen Zonen (Tunneleffekt). Abhängig von der Zone müssen drei unterschiedliche Wellenfunktionen $\psi_{i,n}(x)$ mit ($i = 1,2,3$) angenommen werden:

$$\begin{aligned} \psi_{1,n}(x) &= F e^{-\alpha_n x} + G e^{\alpha_n x} \\ \psi_{2,n}(x) &= A \sin(k_n x) + B \cos(k_n x) \\ \psi_{3,n}(x) &= H e^{-\alpha_n x} + I e^{\alpha_n x} \end{aligned} \quad (3.5)$$

mit den Koeffizienten A, B, F, G, H, I und den Größen

$$\begin{aligned}\alpha_n &= \frac{1}{\hbar} \sqrt{2m_{(e,p)}^* (E_0 - E_n^{(e,p)})} \\ k_n &= \frac{1}{\hbar} \sqrt{2m_{(e,p)}^* E_n^{(e,p)}}\end{aligned}\tag{3.6}$$

Aus der Forderung der Stetigkeit der Wellenfunktionen und der Differentiale ergeben sich die entsprechenden Randbedingungen aus den Übergangsbereichen $\psi_{1,n}(0) = \psi_{2,n}(0)$, $\psi_{2,n}(L_{well}) = \psi_{3,n}(L_{well})$ und der räumlichen Differentiale $\partial/\partial x$. Es existieren symmetrische Lösungen (A=0 und G=H) und antisymmetrische (B=0 und G=-H), determiniert durch die Relation der Koeffizienten A, B, G und H und die Paritätserhaltung der Wellenfunktion. Es folgen transzendente Gleichungssysteme, die lediglich numerisch gelöst werden können. Aus den numerischen Lösungen lassen sich in Abhängigkeit des diskreten Niveaus „n“ die Eigenenergiewerte E_n berechnen. Unter der Berücksichtigung einer effektiven Masse für die Elektronen m_e^* und Löcher m_p^* kann das Konzept zur Bestimmung der diskret verteilten Eigenenergien E_n auf eine Festkörperbandstruktur übertragen werden [Kit96]. Die effektive Masse wird dabei in Einheiten der Elektronenruhemasse im Vakuum m_e angegeben mit $m_{(e,p)}^* = am_{(e,p)}$. Gewöhnlich liegt der Parameter a dabei in einem Intervall von $0,1 \leq a \leq 10$. Mit dem mathematischen Konstrukt der effektiven Masse kann die Bewegung von Elektronen oder Löchern in einem Kristall beschrieben werden.

3.1.2 Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung

Die Randbedingungen zur Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung führen zu den symmetrischen¹ transzendenten Gleichungen:

$$\begin{aligned}f_1(z) &= \tan(z) \\ f_2(z) &= \sqrt{\frac{\sigma^2 - z^2}{z^2}}\end{aligned}\tag{3.7}$$

z und σ sind dimensionslose Parameter und definiert als:

$$\begin{aligned}\sigma &= \frac{L_{well}}{2\hbar} \sqrt{2m_{(e,p)}^* E_1} \\ z &= \frac{L_{well}}{2\hbar} \sqrt{2m_{(e,p)}^* E_n^{(e,p)}}\end{aligned}\tag{3.8}$$

¹ Aus den Randbedingungen lassen sich sowohl symmetrische ($\tan(z)$) als auch antisymmetrische ($-\cot(z)$) Gleichungen herleiten (Gerade oder ungerade Parität der Wellenfunktion $\psi(x,t)$). Betrachtet werden für die nachfolgenden graphischen Lösungen die symmetrischen Lösungen.

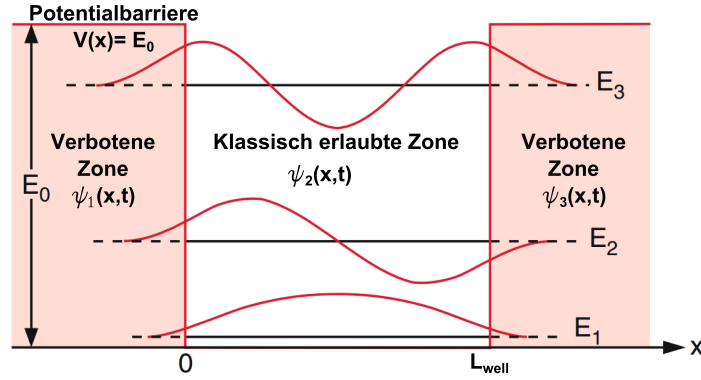


Abbildung 3.2: Schema zum endlichen Potentialtopf nach [Dem00].

dabei gibt E_0 die Differenz der optischen Bandkanten zwischen dem binären niedrigbrechenden und dem binären hochbrechenden Material mit $E_0 = 0,5(E_{n_{low}} - E_{n_{high}})$ an, \hbar das reduzierte Planksche Wirkungsquantum, L_{well} die Schichtdicke des QW, $m_{(e,p)}^*$ die effektive Masse der Elektronen oder Löcher (Indizes (e,p)), n definiert das Level der Energiezustände im Valenz- und Leitungsband ($n=1$ definiert hier das Grundzustandsniveau). Für die nachfolgend vorgestellten QW-Materialien Hafniumdioxid (HfO_2) und Tantalpentoxid (Ta_2O_5), jeweils eingebettet in Barrieren aus Siliziumdioxid (SiO_2), ergeben sich die Energieniveaus aus der graphischen Lösung der transzendenten Gleichungen $f_1(z)$ und $f_2(z)$. Dazu werden diese Funktionen geplottet. Die Schnittpunkte der beiden Kurven definieren letztendlich die Energieniveaus. Wie bereits erwähnt, ist für die Berechnungen zunächst die Verschiebung des Grundzustandsniveaus von Interesse. Es wird also jeweils der erste Schnittpunkt $z_1 \gg 0$ bestimmt (Abb. 3.3). Im Detail wird die Quantentopfbreite L_{well} als freier Parameter gewählt und mit einer fest definierten effektiven Elektronenmasse m_e^* kombiniert. Bei den theoretischen Studien wird die effektive Masse im Bereich zwischen $(0,3-1,0)m_e$ (m_e ist hierbei die Ruhemasse des Elektrons im Vakuum) gewählt. Nach dem daraus resultierenden Schnittpunkt z_1 lässt sich das quantisierte Grundzustandsenergieniveau E_1^e der Elektronen in eV, wie folgt bestimmen:

$$E_1^e = \left[\frac{2}{m_e^* e} \left(\frac{z_1 \hbar}{L_{well}} \right)^2 \right] + E_{n_{high}} \quad (3.9)$$

e stellt dabei die Elementarladung dar und $E_{n_{high}}$ die optische Bandkante des nicht quantisierten hochbrechenden Materials. Höhere Energieniveaus können mit korrelierenden weiteren Schnittpunkten z_i äquivalent berechnet werden. Insgesamt nimmt die Anzahl der möglichen Energieniveaus linear mit sinkender QW-Breite ab. Exemplarisch folgen für SiO_2 als Barrierenmaterial und Ta_2O_5 als QW-Material 11 mögliche Energieniveaus der Elektronen für eine QW-Breite von 8 nm und entsprechend 3 Niveaus für eine Breite von $L_{well} = 2$ nm. Die Anzahl nimmt mit sinkender QW-Breite linear ab. Die effektive

Elektronenmasse ist dabei mit einem Wert von $m_e^* = 0,8 m_e$ konstant gehalten (Abb. 3.3). Für alle nachfolgenden Berechnungen der Energieniveaus wird der Beitrag der Löcher vernachlässigt, da die effektive Masse der Löcher m_p^* mit mindestens einer Größenordnung größer abgeschätzt werden muss als die effektive Masse der Elektronen ($m_p^* \gg m_e^*$). Insgesamt postulieren die Berechnungen einen nichtlinearen Anstieg der optischen Bandkante mit kleiner werdender Breite des QW.

Das hier vorgestellte Modell ist für die Beschreibung von kristallinen Materialien mit klar definierten Bandstrukturen in Abhängigkeit der effektiven Massen bestens geeignet. Für amorphe Materialien können die Bandstrukturen in den meisten Fällen lediglich empirisch ermittelt werden. Die hier berechneten Energieniveaus stellen somit eine Näherung dar, die, wie im Verlauf dieser Arbeit gezeigt werden wird, jedoch sehr gut mit den experimentellen Befunden übereinstimmt. Wichtig für nachfolgende Untersuchungen ist zudem die Berücksichtigung des Tunneleffektes im endlichen Potentialtopf. Für das (quantifizierte) Grundzustandsniveau lässt sich annehmen, dass die Elektronen in Abhängigkeit der Position x mit einem exponentiell abfallenden Verhalten $e^{-\gamma x}$ in die Barriere-Schichten eindringen können. Der Abklingfaktor γ ist dabei, wie folgt definiert:

$$\gamma = \frac{2}{L_{well}}(\sigma - z) = \sqrt{2m_{(e,p)}^* \frac{(E_0 - E_n^{(e,p)})}{\hbar^2}} \quad (3.10)$$

die Parameter σ und z sind definiert durch Gleichung 3.8. Die Schichtdicke des QW verbreitert sich somit effektiv um $L_{eff} = L_{well} + 2/\gamma$. Für die betrachtete Materialkombination aus dem hochbrechenden Material Ta_2O_5 und dem niedrigbrechenden Material SiO_2 lässt sich so die effektive Zunahme der Schichtdicke von Ta_2O_5 bestimmen, wenn diese in SiO_2 eingebettet wird. Maßgeblich hängt die Verbreiterung von der effektiven Elektronenmasse m_e^* ab

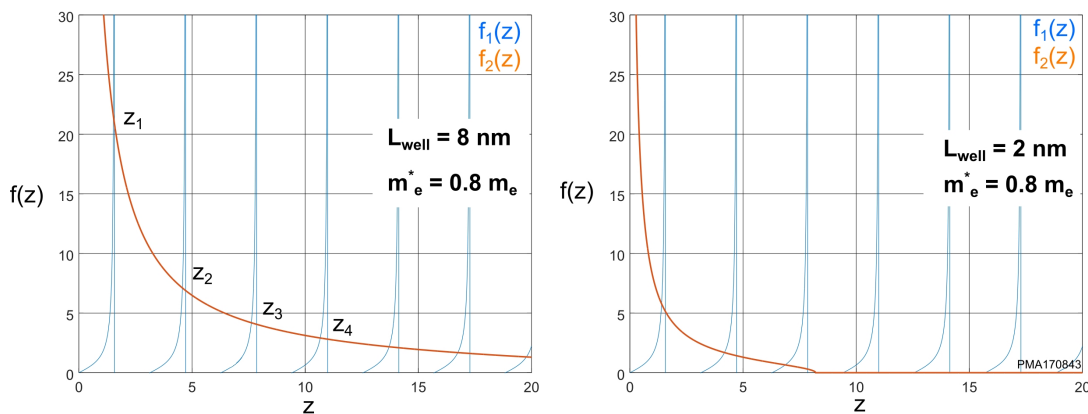


Abbildung 3.3: Graphische Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung zur Bestimmung der Energieniveaus der Elektronen für Ta_2O_5 als hochbrechendes und SiO_2 als niedrigbrechendes Material in Abhängigkeit der QW-Breite.

(Tabelle 3.1). So verbreitert sich beispielsweise eine 1 nm QW-Schicht bei einer effektiven Elektronenmasse von $m_e^* = 0,8 m_e$ um 0,17 nm. Folglich muss für das gewählte Beispiel die BA-Schicht aus SiO_2 dicker als 0,17 nm sein, um einen vollständigen Tunneleffekt ($<1/e^2$) der Elektronen durch das BA-Material zu vermeiden.

Die Energiezustände können nun über die numerische Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung für die Fitparameter der QW-Breite L_{well} und in Abhängigkeit der effektiven Elektronenmasse berechnet werden. Eine Quantisierung erfolgt, wenn sich das Grundzustandsenergieniveau der Elektronen E_1^e ändert und sich somit die optische Bandkante gegenüber der optischen Bandkante des reinen Materials $E_{n_{high}}$ vergrößert. Das elektronische Confinement im hochbrechenden Material verändert sich so aufgrund der eintretenden Quantisierung.

Tabelle 3.1: Übersicht über die effektive Verbreiterung der Quanten-Well Schicht in Abhängigkeit der effektiven Elektronenmasse.

L_{well} [nm]	Effektive Länge			
	$1,0 m_e$	$0,9 m_e$	$0,7 m_e$	$0,5 m_e$
20	20,14	20,15	20,17	20,2
8	8,14	8,15	8,17	8,2
2	2,14	2,15	2,17	2,2
1	1,14	1,15	1,17	1,2
0,5	0,65	0,66	0,69	0,72

3.2 Zustandsdichten und Übergangswahrscheinlichkeiten im Quantentopf

Die nachfolgenden Darlegungen konzentrieren sich auf Elektronen in Leitungsbändern von Quantenfilmen mit periodischen Randbedingungen. Die diskrete Quantisierung der Energiezustände E_n (vgl. Abb. 3.2) wirkt sich direkt auf die Zustandsdichten D_C aus. Unter der Annahme periodischer Randbedingungen in der Filmebene folgt die energieabhängige Zustandsdichte des n -ten Energieniveaus im Leitungsband und durch entsprechende Summation über alle Subniveaus die Zustandsdichte im Leitungsband D_C :

$$D_C(E) = \sum_n D_n(E) = \frac{m_e^*}{\pi \hbar^2 L_{well}} \sum_n A(E - E_n)$$

$$A(E - E_n) = \begin{cases} 1 & \text{für } E > E_n \\ 0 & \text{sonst} \end{cases} \quad (3.11)$$

Durch die Einführung der Sprungfunktion $A(E - E_n)$ folgt der Verlauf der Zustandsdichte D_C als Treppenfunktion. m_e^* stellt dabei die effektive Elektronenmasse dar, \hbar das reduzierte Plancksche Wirkungsquantum und L_{well} die Breite des Quanten-Well. Von Interesse für die Auswertung der im Verlauf der Arbeit durchgeführten laserinduzierten Zerstörungsschwellenmessungen sind die Übergangswahrscheinlichkeiten sowohl zwischen den einzelnen diskreten Energieniveaus im QW als auch von den diskreten Niveaus ins Kontinuum (Bulk-Material) (Abb. 3.4). Quantifiziert werden solche Übergänge über die Oszillatorstärke, die die Wahrscheinlichkeit von Absorption oder Emission elektromagnetischer Strahlung

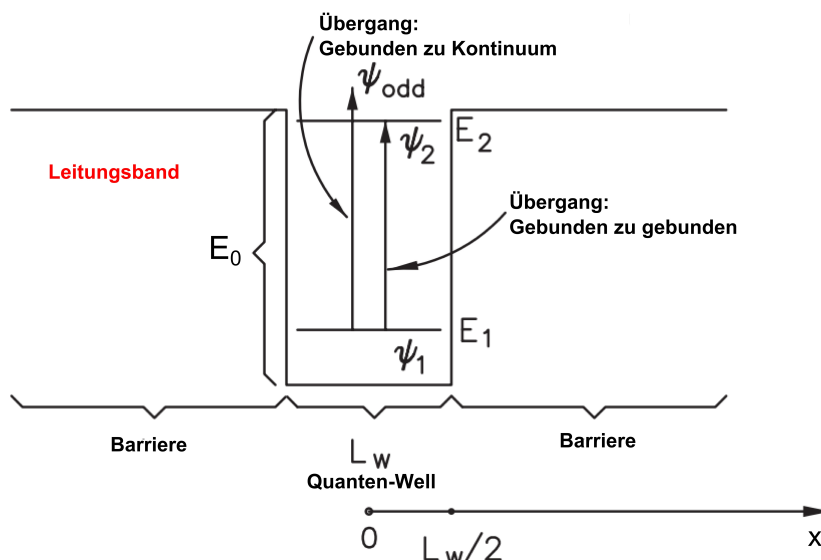


Abbildung 3.4: Mögliche Übergänge in einem Quanten-Well im Leitungsband nach [Sch07].

zwischen Energieniveaus angibt [Liu88; Wes85]:

$$f \equiv \frac{2}{m\hbar\omega} |\langle \psi_{n=2} | p_x | \psi_{n=1} \rangle|^2 \quad (3.12)$$

mit den Wellenfunktionen ψ_n der jeweiligen Energieniveaus und dem Dipoloperator p_z der Elektronen in z -Richtung. Erlaubt sind dabei nur Übergänge von Lösungen der Wellenfunktion mit gerader Parität zu entsprechenden Energieniveaus mit ungerader Parität oder umgekehrt. Im Rahmen dieser Arbeit wird das erste angeregte Niveau im Potentialtopf E_1 jeweils mit einer symmetrischen Lösung der Wellenfunktion (gerade Parität) angenommen. Über die Anwendung der im vorigen Unterkapitel vorgestellten Schrödingergleichung können die Wellenfunktionen der jeweiligen Energieniveaus berechnet werden. Die Übergangswahrscheinlichkeit unter Beachtung der Symmetrienerhaltung zwischen dem Grundzustand und dem ersten angeregten Zustand in einem QW ergibt sich zu [Hel99]:

$$f_{g-g} = \frac{8\hbar C_1^2 E_0^2}{m_e^* \omega (E_2 - E_1)^2} \cos^2 \left(\frac{k_1 L_{well}}{2} \right) \frac{E_2 \alpha_2 \sin^2 \left(\frac{k_2 L_{well}}{2} \right)}{E_2 \alpha_2 \frac{L_{well}}{2} + E_0 \sin^2 \left(\frac{k_2 L_{well}}{2} \right)} \quad (3.13)$$

mit

$$C_1 = \left(\frac{L_{well}}{2} + \frac{E_0}{\alpha_1 E_1} \cos^2 \left(k_1 \frac{L_{well}}{2} \right) \right)^{-1}$$

E_0 definiert dabei die Potentialbarriere in eV, k_n und α_n beschreiben die mit Gleichung 3.6 eingeführten Größen, E_1 ist das Grundzustandsenergieniveau und E_2 das erste angeregte Energieniveau jeweils im Leitungsband, ω die Photonenfrequenz. Die effektive Masse im Barrierenmaterial kann vernachlässigt werden, da $\psi_{n=1}(x)$ hauptsächlich im QW lokalisiert ist. Analog kann eine Übergangswahrscheinlichkeit von dem Grundzustandsniveau mit $\psi_{n=1}(x)$ in das Bulkmaterial angegeben werden. Bei einem symmetrischen Grundzustandsniveau folgt unter der Beachtung der Paritätserhaltung ein Übergang in einen antisymmetrischen Zustand $\psi_{odd}(x)$ im Bulkmaterial:

$$f_{g-b} = \frac{8\hbar C_1^2 E_0^2}{m\omega L_{bar} (E_x - E_1)^2} \cos^2 \left(\frac{k_1 L_{well}}{2} \right) \frac{(E_x - E_0) \tan^2 \left(\frac{k_x L_{well}}{2} \right)}{E_x + (E_x - E_0) \tan^2 \left(\frac{k_x L_{well}}{2} \right)} \quad (3.14)$$

Zusätzlich zu Gleichung 3.13 gibt L_{bar} die Länge der Barrierschicht an, $L_{bar} \gg L_{well}$ wobei angenommen wird. E_x ist die ausschließlich in x -Richtung betrachtete Energie im Bulk-Material. Die Übergangswahrscheinlichkeiten in Mehrschichtsystemen mit mehreren Materialien können mit der Transfermatrix-Methode berechnet werden [Wei14].

Die in diesem Abschnitt aufgezeigten Zusammenhänge zur Bestimmung der Zustandsdichten und der Übergangswahrscheinlichkeiten lassen sich quantitativ nicht auf amorphe Materialien übertragen. Vielmehr, wie noch ausführlich im Verlauf der Arbeit gezeigt wird,

können damit qualitativ experimentelle Befunde beschrieben werden.

Die dargelegten theoretischen Überlegungen zu phasensensitiven Spiegeln und amorphen Nanolaminaten stellen die Grundlage für die experimentelle Umsetzung. Die nachfolgenden Kapitel konzentrieren sich zunächst auf die Vorstellung der experimentellen Materialien und Methoden, die im Rahmen dieser Arbeit zur gezielten Herstellung von phasenkomprimierenden Spiegeln mit verbesserter laserinduzierter Zerstörschwelle angewandt werden.

KAPITEL 4

Herstellung und Qualifizierung von hochqualitativen Schichten mit dem IBS-Prozess

Nach kompakter Zusammenstellung der notwendigen theoretischen Grundlagen für diese Arbeit werden in diesem Kapitel die experimentellen Methoden vorgestellt, die nötig sind, um dielektrische Schichtsysteme herzustellen und hinsichtlich ihrer optischen Eigenschaften zu charakterisieren. Mit der Ionen-Strahl-Zerstäubungs (IBS)-Technik können Schichten und Schichtsysteme von höchster optischer Qualität hergestellt werden, wie sie für die Anwendungen in dieser Arbeit essentiell sind. Nach einer kurzen Einführung des Prinzips der Ionen-Strahl-Zerstäubung und der im Rahmen dieser Arbeit verwendeten IBS-Anlage werden die optischen Charakterisierungsmethoden näher vorgestellt. Wichtig ist hier zum einen die präzise optische Kontrolle während des Beschichtungsprozesses, um die Schichtdickenabweichung zwischen hergestellter Schicht und zuvor im Design berechneter Schichtdicke möglichst gering zu halten. Zum anderen ist die spektralphotometrische Charakterisierung der hergestellten Schichten nach dem Beschichtungsprozess elementar. Ein Schwerpunkt dieser Arbeit ist die gezielte Variation der optischen Bandkante. Im Allgemeinen sind dielektrische Schichten mit einer höheren energetischen optischen Bandkante durch eine verbesserte laserinduzierte Zerstörfestigkeit gekennzeichnet. Da es die Zielsetzung der vorliegenden Arbeit ist, die Zerstörfestigkeit von optischen Komponenten für den UKP-Bereich zu optimieren, werden zum Abschluss des Kapitels die notwendigen Methoden erörtert, mit denen die LIDT von dielektrischen Komponenten im fs-Regime gemessen wird. Die speziell erforderlichen Methoden zur Herstellung und Charakterisierung von phasenkomprimierenden Optiken werden im darauffolgenden Kapitel separat erläutert.

4.1 Prinzip der Ionen-Strahl-Zerstäubung

Generell beschreibt die Dünnschichttechnik die Herstellung und Anwendung von dünnen Schichten, wie beispielsweise von metallischen, dielektrischen oder halbleitenden Materialien. Die Schichten können in Abhängigkeit der Anwendung dabei durch eine chemische Gasphasenabscheidung auf dem Substrat aufgebracht werden (chemical vapor deposition -CVD-Prozess) oder durch thermisches Verdampfen oder Abstäuben der Targetatome auf einem Substrat aufwachsen (physical vapor deposition PVD-Prozess). Dielektrische Schichten von höchster optischer Qualität in Bezug auf die Schichtabsorption, Defektdichte und totale Streuung werden derzeit vor allem mit dem PVD-Prozess „Ionen-Strahl-Zerstäubung“ (engl.: „Ion-Beam-Sputtering“ - IBS) hergestellt. Das grundlegende Prinzip beruht auf der Erzeugung eines ionisierten Gasplasmas in einer separierten Quelle. Dabei kann das Plasma über lange Zeit kontinuierlich und sehr stabil aufrechterhalten werden. Über ein Gittersystem und das Anlegen eines entsprechenden Potentials werden die Ionen aus der Plasmaquelle hinaus beschleunigt und erreichen dabei kinetische Energien von einigen wenigen keV. Die projektilartigen Ionen werden dabei auf ein Target fokussiert. Die vollständige Beschreibung des Sputterprozesses erfordert eine detaillierte Betrachtung der Wechselwirkungen in einem Festkörper und wurde bereits Ende der 1970er quantitativ abgehandelt [Bra67; Sig69; Tho68]. Für IBS-Anwendungen werden häufig metallische Materialien verwendet. Die extrahierte Energie der Ionen definiert vornehmlich den Interaktionsprozess mit der Oberfläche (Abb. 4.1). Die hochenergetischen Ionen haben über unterschiedliche Prozesse eine Wechselwirkung mit dem Targetmaterial, wobei lineare Stoßkaskaden als dominierend betrachtet werden können. In einem kleinen, oberflächennahen Raumvolumen von ca. 1 nm^3 finden diese Stoßkaskaden statt und zerstäuben so das metallische oder metalloxidische Targetmaterial (Abb. 4.2). Die Wahrscheinlichkeit, ob die angeregte Stoßkaskade auch zu einer Emission eines Targetatatoms führt, ist dabei statistisch verteilt. Der Wirkungsgrad liegt zwischen 5 und 25 % [Weh70]. Auf Grund dieser geringen Effizienz wird das Targetmaterial stark aufgeheizt und erfordert eine aktive Kühlung. Zur Herstellung von dielektrischen

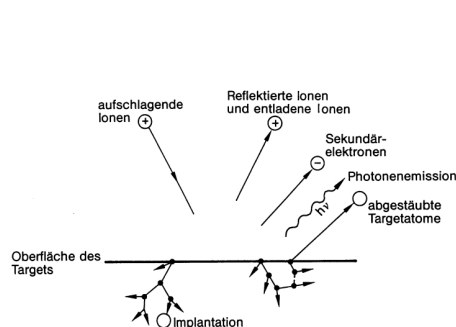


Abbildung 4.1: Mögliche Interaktion beschleunigter Ionen mit einer Oberfläche nach [Cha80]

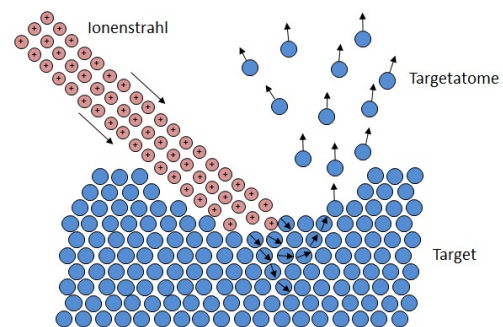


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des Zerstäubens durch lineare Stoßkaskaden von Ionen an Oberflächen nach [Fra13]

Materialien werden die abgestäubten metallischen Adatome mit einem Reaktionsgas, in der Regel Sauerstoff oder Stickstoff, in Verbindung gebracht. Das Reaktionsgas wird dabei entweder direkt über dem Target eingelassen oder durch die Ionenquelle injiziert. Die freigesetzten Adatome verlassen das Target in einer vergleichsweise breiten Winkelverteilung, wobei diese in der Regel als Verteilung beschrieben wird [Wid13]. Für eine ausreichend große mittlere Weglänge der abgestäubten Adatome muss der Sputterprozess im Hochvakuum stattfinden. Auf der Substratoberfläche kondensieren die Adatome und bilden die Schicht mit material- und anlagenspezifischen, aber konstanten Raten. Im IBS –Prozess werden auf Grund der Energien und der Geometrien meist amorphe Dielektrika gebildet. Die vollständige Beschreibung der Adhäsion bedarf der Betrachtung und Kombination verschiedener Simulationsansätze auf makro- und quantenmechanischer Basis [Tur15a; Tur15b]. Die hohe Energie der am Substrat kondensierenden Adatome im Bereich von mehreren eV garantiert eine kompakte amorphe Schicht mit Defektdichten von weniger als 1 pro cm^2 im Vergleich zu geringeren Energien der auf dem Substrat kondensierenden Moleküle mit Defektdichten von einigen 100 pro cm^2 in thermischen Sputterprozessen [Fre87]. Nachteilig bei dem IBS Verfahren sind lediglich die vergleichsweise geringen Sputteraten und die begrenzte laterale homogene Beschichtungsfläche. Mit der zunehmenden Kommerzialisierung des Prozesses wurden jedoch in den vergangenen Jahren sowohl die Raten als auch die verfügbaren Beschichtungsflächen deutlich gesteigert. Derzeit können Proben von bis zu 400 mm mit einer Homogenität von besser als 0,5 % Schichtdickenvariation beschichtet werden (Firma Veeco).

4.2 Verwendete IBS-Anlage

Alle im Rahmen dieser Arbeit präsentierten Schichten und Schichtsysteme wurden mit der in diesem Unterkapitel beschriebenen IBS-Anlage hergestellt. Die Beschichtungsanlage stellt somit die experimentelle Grundlage der physikalischen Untersuchungen dar und wird deshalb im Detail dargestellt, wobei insbesondere die höchste Schichtpräzision (optische Schichtdicke) und die hohe optische Qualität im Vordergrund stehen. Zur Erzeugung und Beschleunigung des Edelgasplasmas wurde eine kommerzielle induktiv gekoppelte RF-Quelle der Firma Veeco mit einem Extraktionsgitterdurchmesser von 6 cm verwendet. Die Ionenquelle besteht dabei aus zwei Hauptkomponenten, einer Entladungskammer, in der das Plasma generiert wird, und einem Drei-Gitterextraktionssystem, mit dem der Ionenstrahl auf das Target beschleunigt wird. Außerhalb der eigentlichen Ionenquelle ist zudem ein Emitter (Neutralisator) von Elektronen installiert, der die Aufladung in der Beschichtungskammer und die Divergenz des Ionenstrahles verhindert. Die Anlage gestattet sowohl den Einsatz von Argon als auch Xenon sowie deren Mischung als Sputtergase. Die Gase werden induktiv mit einem RF-Feld von 13,5 MHz angeregt, das die freien Plasmaelektronen beschleunigt und dadurch die Gasmoleküle ionisiert. Die Ionenquelle ist geometrisch

und elektrisch über ein Drei-Gittersystem mit dem Rezipienten verbunden. Die Quelle kann einen maximalen Ionenstrom von 150 mA bei einer Beschleunigungsspannung von 1500 V liefern. Der Einfallswinkel auf dem Target beträgt 55° . Für die Herstellung von binären Wechselschichtsystemen als auch möglichen ternären Mischungen sind die hoch- und niedrigbrechenden Targetmaterialien auf einem senkrecht zum Ionenstrahl beweglichen linearen Translationstisch montiert mit einem maximalen Verfahrensweg von 300 mm (Aerotech – Pro165). Das notwendige Reaktionsgas wird zwischen Ionenquelle und Target eingelassen. Die amorphen Schichten werden in einer reaktiven Sauerstoffatmosphäre mit einem Partialdruck im niedrigen 10^{-4} mbar Bereich hergestellt. Dabei wird ein entsprechendes System aus einer öl-freien Scrollpumpe (Edmunds – XDS46i) zur Generierung eines Hintergrunddrucks im hohen 10^{-2} mbar Bereich und einer magnetgelagerten Turbomolekularpumpe (Trinos) zur Aufrechterhaltung des Partialdruckes verwendet. Für die im Rahmen dieser Arbeit jeweils verwendeten hochbrechenden Materialien Ta_2O_5 und HfO_2 werden Zerstäubungsraten von ca. 0,07 nm/s erreicht und für das niedrigbrechende Material SiO_2 Raten von 0,15 nm/s. Der verwendete Substrathalter mit einem Durchmesser von 200 mm bietet auf zwei Radien insgesamt Platz für 25 Substrate mit einem jeweiligen Durchmesser von 25 mm. Eine radiale Gleichverteilung des Beschichtungsmaterials wird durch eine entsprechende kontinuierliche Rotation des Substrathalters mit 38 Umläufen pro Minute erreicht. Die laterale Homogenität wird mit auf die entsprechenden Materialkombinationen speziell abgestimmten Blenden erreicht, die jeweils zwischen Target und Substrathalter montiert sind. Die empirisch ermittelten Formen der eingesetzten Blenden erlauben einen lateralen Schichtdickenverlauf von maximal 0,5 % auf dem Substrattellerdurchmesser von 200 mm. Der Materialstrom vom Target wird zwischen den Schichten durch den sogenannten Substratshutter unterbrochen.

Essentiell für die Beschichtung von hoch qualitativen optischen Komponenten ist eine präzise Kontrolle der Prozessparameter. Trotz der stabilen Beschichtungsraten im IBS-Prozess ist es wichtig, mögliche Abweichungen bereits während der Beschichtung zu detektieren und auf diese flexibel zu reagieren. Die IBS-Anlage ist dafür unter anderem mit einem optischen Breitbandmonitor ausgestattet, der während jeder Umdrehung des Substrathalters das Transmissionsspektrum der beschichtenden Probe mittels fasergekoppeltem Spektralphotometer misst [Ris06]. Über ein entsprechendes Softwaremodul werden die aufgenommenen Messdaten verarbeitet und an ein Modelldesign angefügt. Als Ergebnis liefert der Algorithmus nach jeder Rotation die aktuelle Schichtdicke, aus deren zeitlicher Änderung die Beschichtungsrate bestimmt wird. Limitiert durch das Emissionsspektrum der Halogenlampe sowie das Transmissionsverhalten der Schutzfenster und Strahlführungselemente kann das Transmissionsverhalten im Bereich von (420 – 1050) nm mit einer spektralen Auflösung von (1 – 2) nm aufgenommen werden. Um eine gleichmäßige Ausleuchtung des Spektrometers zu erreichen, wird das Intensitätssignal mit einem exakt berechneten dielektrischen Filter geglättet, der zwischen den beiden Lichtleitfasern implementiert ist.

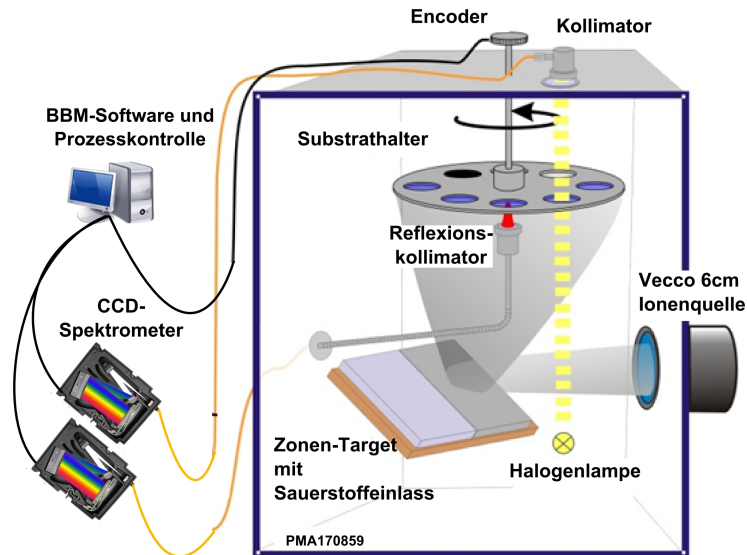


Abbildung 4.3: Schematischer Aufbau der IBS-Anlage.

Für die Konvertierung des Messsignals in die spektrale Transmission sind drei Datensätze erforderlich. Zum einen ist eine Referenzmessung I_{Ref} durch eine Position im Substratteller, in dem sich kein Substrat befindet, erforderlich. Für die Ermittlung des Detektionsuntergrundes I_{dark} ist weiterhin eine Dunkelfeldmessung notwendig und letztendlich die Messung I_{Sample} durch das Substrat:

$$T_{Sample}(\lambda_i) = \frac{I_{Sample}(\lambda_i) - \bar{I}_{dark}(\lambda_i)}{I_{Ref}(\lambda_i) - \bar{I}_{dark}(\lambda_i)} \quad (4.1)$$

Die Wellenlängen λ_i sind diskret verteilt, vorgegeben durch die Kalibration des fasergekoppelten CCD-Spektrometers. Die Messung des Referenzsignals I_{ref} und der Dunkelfeldmessung I_{dark} werden dabei zeitlich über mehrere Messungen gemittelt, unter der Annahme einer zeitlichen Konstanz des Signals von mehreren Sekunden. Die Messpositionen I_{Sample} , I_{dark} und I_{Ref} werden über eine entsprechende installierte Lichtschranke und einen Encoder synchronisiert. Aus dem Transmissionsspektrum erfolgt die Bestimmung der aktuellen Schichtdicke d_s iterativ von einem Startwert ausgehend über die Minimierung der mittleren quadratischen Fehlersumme MSE:

$$MSE(d_s) = \sum_{i=1}^m [T_{Calc}(\lambda_i, d_1, \dots, d_{s-1}, d_s) - T_{Sample}(\lambda_i)]^2 \quad (4.2)$$

dabei setzt sich die berechnete Kurve T_{Calc} aus dem als fix angenommenen Matrizenprodukt der „s-1“ schon aufgewachsenen Schichten auf dem Substrat und den jeweiligen Dispersionsdaten sowie den Dispersionsdaten des Substrates und der charakteristischen Schichtmatrix zusammen [Lap09; Ris06]. Die Minimierung der mittleren quadratischen Fehlersumme

erfolgt über die Ausführung eines Algorithmus, basierend auf dem „Golden-Schnitt“ [Pre07]. Die Schichtdicke d_s wird danach weiterhin iterativ um eine festgelegte Schichtdicke Δd variiert. Erhöht sich die Fehlersumme während des Prozesses, so wird die Schichtdicke bis zu einem Minimalwert Δd_{min} reduziert. Die aktuelle Iteration des Algorithmus ist erfolgreich, wenn die aktuelle Fehlersumme $MSE(d_s + \Delta d_{min})$ größer oder gleich der Fehlersumme der vorigen Iteration ist. Die erfolgreiche Minimierung der Fehlersumme ist stark abhängig von den in T_{calc} eingegebenen Dispersionsdaten. Die präzise Kenntnis der Dispersionsdaten ist entscheidend für eine fehlerfreie Beschichtung, denn der Algorithmus im BBM betrachtet jede Schicht als fehlerfrei aufgewachsen mit den initial eingeladenen Dispersionsdaten. Selbst konventionelle hochreflektierende Bragg-Spiegel weichen trotz erfolgter Schichtdickenfehler und einer geringfügigen Änderung der Dispersionsdaten während der Beschichtung in der spektralen ex-situ Analyse nach der Beschichtung nur minimal vom berechneten Targetband ab. Dieses Verhalten wird als Selbstkompensation bezeichnet [Sul92]. Empirische Studien zeigen für eine Vielzahl von beispielsweise komplexen optischen Filtern, dass keine starke Gewichtung von Selbstkompensationseffekten erfolgt [Tik11]. Eine im Vorfeld mögliche analytische Untersuchung, die den Effekt von Selbstkompensationseffekten bewertet, wird gegenwärtig in Form von virtuellen Beschichtungsanlagen unter Verwendung des BBM entwickelt und optimiert.

Ein Zusatzsoftwaremodul für den BBM bietet die Möglichkeit, nach jeder fertiggestellten Schicht in-situ einen Optimierungszyklus durchzuführen. Grundlage ist das nach jeder Schicht abgespeicherte Transmissionsspektrum vom BBM zwischen 420 bis 1050 nm, das während des Beschichtungsprozesses automatisch in das Zusatzmodul „Recalc/ReOpt“ eingeladen werden kann. Auf Grundlage des Transmissionsspektrums wird dann die Schichtdicke d_s approximiert und die etwaige Abweichung zum Design bestimmt und dokumentiert. Optional können auch die Dispersionsdatensätze des hoch- und niedrigbrechenden Materials

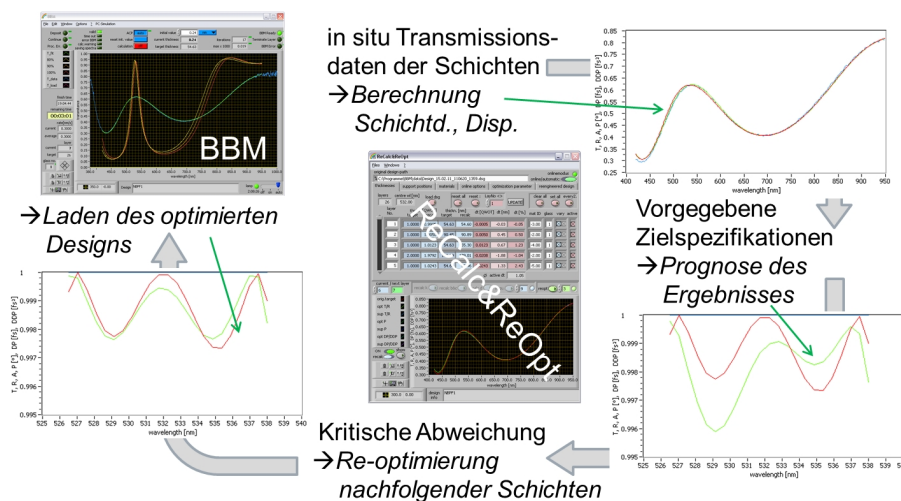


Abbildung 4.4: Optimierungszyklus mit der Software Umgebung ReCalc-ReOpt nach [Sch11].

mit für den Optimierungszyklus freigegeben werden. Die bislang berechneten Abweichungen in den Schichtdicken und Dispersionsdatensätze werden auf die finalen Abweichungen für die definierten Targetspezifikationen prognostiziert. In Abhängigkeit der ermittelten finalen Abweichungen können wiederum in einem automatischen Zyklus die noch nicht aufgebrauchten Schichten in ihren optischen Dicken neu optimiert werden, um die Spezifikationen des Zieldesigns zu erreichen. Dafür wird die finale MSE zu den Zielspezifikationen erneut minimiert. Als Targetspezifikationen können für die Optimierung sowohl die Transmission, Reflexion und Phase des elektrischen Feldes, als auch die erste (GD) und zweite Ableitung (GDD) der Phase in frei wählbaren Einfallswinkeln oder Polarisationsrichtungen des Lichtes definiert werden. Für eine effiziente Auslastung der Rechenleistung erfolgt die automatische Optimierung jeweils für die letzten neun schon aufgewachsenen Schichten unter der Anwendung eines partiellen Algorithmus [Amo11; Sch11]. Der Zyklus aus aktueller Ermittlung der Schichtdicken- und Dispersionsdatenabweichungen und eventueller erforderlicher Optimierung der noch nicht aufgewachsenen Schichten kann nach jeder Schicht durchgeführt werden (Abb. 4.4).

Neben dem Breitbandmonitor in Transmission ist die verwendete IBS-Anlage mit einem alternativen Messsystem ausgestattet. Unterhalb des rotierenden Substrathalters kann das reflektierte Licht der rotierenden Optiken während des Beschichtungsprozesses aufgesammelt werden. Über einen Kollimator und ein BK7 Fenster wird das reflektierte Signal der Proben in eine Faser eingekoppelt, die wiederum über einen Wellenschlauch vom Rezipienten getrennt ist. Anwendung findet das Messsystem für die Herstellung von phasenkomprimierenden Optiken und wird im Detail im anschließenden Kapitel vorgestellt.

Während in diesem Unterkapitel die eingesetzte IBS-Anlage mit ihren Möglichkeiten vorgestellt wurde, die aufwachsenden Schichten in-situ zu monitorieren und zu analysieren, werden im nächsten Unterkapitel die für diese Arbeit relevanten Methoden vorgestellt, mit denen amorphe Einzelschichten oder Mehrschichtsysteme charakterisiert werden können.

4.3 Spektrale ex-situ Charakterisierung von Schichtsystemen

Die in-situ Charakterisierung während des Beschichtungsprozesses nimmt einen immer größeren Stellenwert für die Optikfertigung ein. Keine dieser Monitore kann jedoch eine präzise ex-situ Charakterisierung ersetzen, da die Messgenauigkeiten und die -bereiche der in-situ Messungen im Vergleich zu den oftmals standardisierten ex-situ Verfahren eingeschränkt sind. Beispielsweise ist es, bedingt durch die in der IBS-Anlage eingesetzte Halogenlampe und der Forderung schneller Integrationszeiten des CCD-Spektrometers, unabdinglich, die hergestellten Proben nach erfolgter Beschichtung außerhalb der Anlage mit durchstimmbaren Spektrometern mit einer besseren spektralen Auflösung und einem größeren Wellenlängenbereich zu charakterisieren nach einem definierten Messprotokoll, der ISO15368 [Isoa]. Relevant für das analysierte Probenspektrum im Rahmen dieser Arbeit sind zwei Spektrometertypen. Die Vielzahl der untersuchten Proben werden im spektralen

Bereich von 190 bis 2200 nm mit dem kommerziellen Spektralphotometer „Lambda1050“ (PerkinElmer) vermessen. Über ein automatisiertes Verfahren und Wechsel im Spektrometer vorhandener Gittersysteme, Lampen und Detektoren, können die Wellenlänge und die Intensität der EM-Strahlung monochromatisch in einem beliebigen Intervall zwischen den Grenzwellenlängen 190 und 2200 nm variiert werden. Die Transmission kann über einen manuell eingestellten Probenhalter in beliebigen Einfallswinkeln ($0^\circ < \text{AOI} < 45^\circ$) gemessen werden. Die Messung der spektralen Reflexion erfordert eine Referenzmessung auf einer im Vorfeld exakt bekannten Kalibrationsprobe, wie beispielsweise einem Quarzkeil mit bekannten Dispersionsdaten. Die erforderliche Anwendung von speziellen Reflexionseinsätzen für das Lambda1050-Spektrometer begrenzt den Einfallswinkel bezüglich der Proben auf 6° . Insbesondere für die relevanten Bestimmungen der Dispersionsdaten der jeweiligen dielektrischen Probe ist es erforderlich, sowohl das Reflexions- als auch Transmissionsspektrum exakt zu messen und miteinander zu korrelieren. Der Einfallswinkel für die Transmissionsmessungen wird ebenfalls auf 6° determiniert, um keine spektrale Verschiebung zwischen der Reflexion- und Transmissionskurve zu generieren. Für die Bestimmung von ternären Mischungen oder periodischen quantisierten Nanolaminatsequenzen mit einer optischen Bandkante kleiner als 6,5 eV wird das im LZH entwickelte DUV/VUV Spektrometer eingesetzt [Bla03]. Luft absorbiert einen Großteil der elektromagnetischen Strahlung unterhalb von 190 nm. Die Vermessung der Proben im VUV Spektralbereich erfolgt deshalb im Vakuum. Im Gegensatz zum Lambda1050 Spektrometer kann der Probenhalter für Transmissions- und Reflexionsmessungen automatisiert im Einfallswinkel mit einem minimal wählbaren Einfallswinkel von 7° positioniert werden. Die Messgenauigkeiten in Transmission und Reflexion sind dabei annähernd äquivalent zum Lambda1050 Spektrometer (Tabelle 4.1). Für Multischichtsysteme geben die spektralphotometrischen ex-situ Messungen Aufschluss darüber, ob die hergestellte Optik mit den Designberechnungen korreliert oder ob eine zu große Abweichung zu den Zielspezifikationen auftritt. Für hergestellte binäre Einzel-

Tabelle 4.1: Vergleich der Parameter der eingesetzten Spektralphotometer zur Probenuntersuchung.

	VUV Spektrometer	Lambda 1050 -PerkinElmer-
Spektraler Wellenlängenbereich	(120 – 300) nm	(190 – 2200) nm
Maximale Auflösung	0,5 nm	0,1 nm
Messmethoden	T und R	T und R
Messgenauigkeit Transmission	0,2 %	0,1 %
Messgenauigkeit Reflexion	1 %	1 %
Verwendeter Messwinkel	7°	6°
Polarisationsart	un-pol	un-pol

schichten oder ternäre Mischungen sind die Transmissions- und Reflexionsmessungen von elementarer Bedeutung bei der Bestimmung der Dispersionsdaten und der optischen Bandkante. Das nächste Unterkapitel erläutert die Ermittlung der Dispersionsdaten anhand des Übertragungsverhaltens an einer Einzelschicht.

4.4 Übertragungsverhalten einer Einzelschicht

Die wellenlängenabhängigen Dispersionsdaten $n(\lambda)$ eines binären Materials, einer ternären Mischung oder eines quantisierten Nanolaminates setzen sich im Allgemeinen aus einem Real- und Imaginärteil zusammen:

$$n(\lambda) = n_0(\lambda) + ik(\lambda) \quad (4.3)$$

n_0 gibt dabei den Brechungsindex des Materials an, i bezeichnet die imaginäre Einheit. Der dimensionslose Extinktionskoeffizient k beschreibt für $k > 0$ einen exponentiellen Abfall der Lichtintensität im Medium und ist direkt proportional zum Absorptionskoeffizienten:

$$\alpha = \frac{2k\omega}{c} \quad (4.4)$$

mit der Frequenz ω und der Lichtgeschwindigkeit c . Generell lässt sich der Realteil $n_0(\lambda)$ über mehrere Modelle approximieren. Gute Erfahrungen in Bezug auf eine fehlerfreie Beschichtung mit dem IBS-Verfahren zeigen ermittelte Brechwerte n_0 mit der Sellmeier Relation [Sel71]. Die Methode ist eine allgemeine Erweiterung des Cauchy-Formalismus und besitzt ihre Gültigkeit sowohl für transparente Materialien, wie beispielsweise dielektrische dünne Schichten, als auch für Halbleitermaterialien im infraroten Spektralbereich [Cau30]. Die Sellmeier-Formel wird für komplett transparente Materialien ($k = 0$) betrachtet:

$$n_0^2(\lambda) - 1 = \sum_{j=1} \frac{b_j \lambda^2}{\lambda^2 - c_j} \quad (4.5)$$

mit den Sellmeier-Koeffizienten b_j und c_j . Der Brechwertverlauf $n_0(\lambda)$ kann für eine Vielzahl von in der Dünnschichttechnik eingesetzten Materialien dabei gut mit einem Koeffizienten-Paar ($j = 1$) bestimmt werden. Mit den aufgenommenen spektralen Transmissions- und Reflexionsmessungen und der Kenntnis über die Beziehung in den Maxima und Minima der spektralen Kurven lassen sich der Brechwert bei einer Wellenlänge und darüber schließlich die Sellmeier-Koeffizienten b_j und c_j bestimmen. Die ermittelten Sellmeier-Koeffizienten ermöglichen die Darstellung des wellenlängenabhängigen Brechungsindex (Gleichung 4.5). Ein Minimum liegt vor für eine $\lambda/4$ -Schicht und ein Maximum für eine $\lambda/2$ -Schicht in der

Transmissionskurve gemäß [Poe03]

$$\begin{aligned} \text{Minimum mit } m=(0,1,2,3,\dots): \quad n_0 d_{phy} &= \frac{(m+1)\lambda}{4} \\ \text{Maximum mit } m=(1,2,3,\dots): \quad n_0 d_{phy} &= \frac{m\lambda}{2} \end{aligned} \quad (4.6)$$

mit der physikalischen Schichtdicke d_{phy} und der Größenordnung m der Extremstellen. Für eine akkurate Bestimmung der Dispersionsrelation sind möglichst viele Interferenzordnungen im Spektrum erforderlich, was mit einer Mindestgröße der physikalischen Schichtdicke d_{phy} korreliert. Die Ermittlung der Dispersionsrelation $n_0(\lambda)$ über die Sellmeier-Gleichung ist eine leistungsstarke Methode, insbesondere wenn im Vorfeld die physikalische Schichtdicke oder Materialdaten aus vorangegangenen Experimenten bekannt sind. Nachteilig wird der Verlauf der Dispersionskurve schon festgelegt, bevor die Fit-Prozedur gestartet wird. Unter Angabe geeigneter Startwerte und dem Einladen der spektralen Kurven der jeweiligen Einzelschichten erfolgt die Bestimmung der Schichtdicken oder der Dispersionskurven automatisiert mit der im LZH entwickelten Dünnschichtsoftware „Spektrum“ [Die02]. Empirische Studien zeigen eine maximale Abweichung von 1% für die Bestimmung der Brechwerte mit dem dargelegten Sellmeier-Formalismus. Die Bestimmung der k -Werte erfolgt über die Energiebilanz $T + A + R = 1$ und das Lambert-Beersche-Gesetz. Dieses setzt spektrale Messungen der Transmission und Reflexion unter gleichem Einfallswinkel voraus. Die Ermittlung der Absorptionskurve bildet die Grundlage für die Bestimmung der optischen Bandkante, die im nächsten Teilabschnitt genauer betrachtet wird.

4.5 Materialabhängige optische Bandkante

Die Kenntnis der materialspezifischen optischen Bandkante, ab der die dielektrische Schicht das Licht absorbiert, ist von elementarer Bedeutung für die Herstellung von optischen Komponenten. Neben der generellen Fragestellung, ob die gewählte Materialkombination insbesondere in UV-Anwendung noch genug spektrales Verhalten aufzeigt, ist insbesondere die direkte Korrelation zwischen der laserinduzierten Zerstörschwelle einer dielektrischen Schicht und der materialspezifischen optischen Bandkante für die Anwendungen dieser Arbeit wichtig. Die Definition der Bandkante erfolgt in kristallinen Materialien mit dem Begriff der Bandlücke. Durch die Symmetrie in einem perfekten Kristall, gegeben durch eine mikroskopische Nah- und Fernfeldordnung, lassen sich Bandstrukturen aus Valenz- und Leitungsband eindeutig definieren. Die Bandlücke wird als minimaler Abstand zwischen Valenz- und Leitungsband definiert und in eV angegeben. Eine Photonenenergie von 1 eV entspricht dabei einer Wellenlänge von ca. 1240 nm. Über die Bandlücke können elektronische und optische Eigenschaften des Festkörpers charakterisiert werden. Ein Festkörper absorbiert im allgemeinen Strahlung, wenn die Photonenenergie ausreicht, um Elektronen vom Valenz- in das Leitungsband anzuregen. Da keine Elektronen in den verbotenen

Bereich zwischen Valenz- und Leitungsband angeregt werden können, muss die Energie eines Photons die der Bandlücke übertreffen. Der Festkörper ist demnach für Strahlung oberhalb einer gewissen Wellenlänge transparent. Die Bandstruktur zwischen Valenz- und Leitungsband bildet sich durch die einheitliche Gitterperiodizität aus, die mit den Blochwellenfunktionen beschrieben werden können. Generell wird zwischen direkten und indirekten Bandübergängen unterschieden in Abhängigkeit der Lage der Valenz- und Leitungsbänder zueinander und der Brillouin-Zonen. Für eine vertiefende Darstellung sei auf gängige Fachliteratur verwiesen [Kit96]. In amorphen Materialien ist die Nahordnung erhalten, aber Bindungslänge und -winkel können variieren (keine mikroskopische Fernfeldordnung). Die damit verbundene Variation des Gitterabstandes impliziert eine lokale Variation der Bandlücke. Die Bandkanten von Valenz- und Leitungsband sind nicht mehr scharf definiert, und Wellenfunktionen können überlappen und nicht mehr über delokalisierte Blochwellenlängen beschrieben werden. Es kommt zu einer Anhäufung von Zustandsdichten und zu der Ausbildung von Intrabandzuständen. Dennoch gibt es auch in amorphen Festkörpern Bereiche, oberhalb derer Elektronen und Löcher frei beweglich sind, aber nicht mehr mit den Modellen der kristallinen Bandstruktur beschrieben werden können. Im Folgenden werden diese Bereiche oder Anhäufungen der Zustandsdichten als optische Bandkante von amorphen Festkörpern definiert, die letztendlich über die spektrale Vermessung der Transmission und Reflexion und der Anwendung eines Extrapolationsverfahrens bestimmt werden können. Im Wesentlichen hat sich dafür das Extrapolationsverfahren nach Tauc etabliert [Tau74]. Beachtet werden muss, dass die Herleitung wieder von geordneten Bedingungen in Kristallen ausgeht. Über die parabolische Näherung werden Zustandsdichten im Valenz- und Leitungsband definiert und letztendlich eine Proportionalität zum Imaginärteil der dielektrischen Funktion hergestellt [Jup12; Ste05]:

$$\begin{aligned}
 D_V(E) &\propto \sqrt{E_V - E} \\
 D_L(E + \hbar\omega) &\propto \sqrt{E + \hbar\omega} - E_{gap} \\
 \text{Im}[\varepsilon(\omega)] &\propto |p_{nl}|^2 (\hbar\omega - E_0)^2
 \end{aligned} \tag{4.7}$$

mit der Zustandsdichte D_V im Valenzband, der Zustandsdichte D_L im Leitungsband, dem Imaginärteil der dielektrischen Funktion $\varepsilon(\omega)$, dem Matrixübergangselement $|p_{nl}|^2$ und dem als optische Bandkante definierten Wert E_0 . Mit der Annahme der Invarianz des Matrixelements des Dipoloperators und einer Vernachlässigung der Dispersion $n(\lambda) = \text{const}$ folgt die Tauc-Approximation:

$$\sqrt{\alpha(\omega)\omega} \propto (\hbar\omega - E_{gap}) \tag{4.8}$$

mit dem wellenlängenabhängigen Absorptionskoeffizienten $\alpha(\omega)$, der über die spektrale Messung der Transmission und Reflexion ermittelt wird. Im Experiment wird der gewichtete

Absorptionskoeffizient $\sqrt{\alpha(\omega)\omega}$ über die Energie der Photonen $\hbar\omega$ aufgetragen (Abb. 4.5). Der durch die Messpunkte gelegte lineare Fit wird extrapoliert. Der Schnittpunkt der extrapolierten Geraden mit Photonenenergie Achse determiniert die optische Bandkante. Der lineare Bereich der Tauc-Funktion ist limitiert und wird durch Zwischenbandzustände beeinflusst. Absolute Messungen der optischen Bandkanten können mit einem hohen Fehler behaftet sein, sind relativ untereinander aber vergleichbar [Bea93]. Solange bei der Auswertung von verschiedenen Proben ein konstanter Abschnitt als linearer Fit-Bereich gewählt wird und nicht zwischen Approximationsmethoden innerhalb einer Probenserie gewechselt wird, wie beispielsweise der Cody-Approximation oder der Ermittlung der Urbach-Kante, kann von einer relativen Vergleichbarkeit ausgegangen werden. Die Bestimmung der absoluten Genauigkeit der optischen Bandkanten ist im Rahmen dieser Arbeit nicht relevant für die hergestellten ternären Mischungen und amorphen Nanolaminat-Strukturen. Relevant ist es vielmehr, die relative Evaluation der optischen Bandkanten untereinander aufzuzeigen. Alternative Möglichkeiten zur Bestimmung der optischen Bandkanten, wie die bereits angesprochenen Cody- oder Urbach-Methoden, sind ebenfalls von Zwischenbandzuständen beeinflusst und führen zu Fehlern in der absoluten Bestimmung der Bandkante. Zwischenbandzustände in der Bestimmung der optischen Bandkante für amorphe Materialien konnten bislang in noch keinem Modell berücksichtigt werden. Wie eingangs erwähnt, stellt die optische Bandkante eine direkte Relation zur laserinduzierten Zerstörschwelle (LIDT) dar. Im nachfolgenden Unterkapitel wird die Messmethode zur Ermittlung der LIDT vorgestellt.

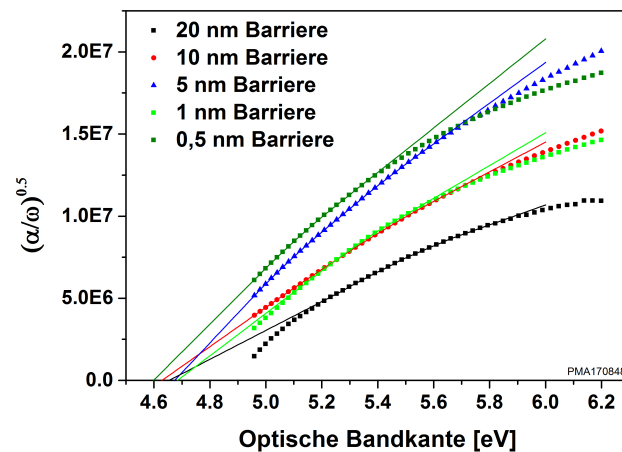


Abbildung 4.5: Bestimmung der optischen Bandkante von hergestellten amorphen Nanolaminatsequenzen mit variierender Barrierendicke. Die durchgezogenen Linien zeigen die jeweiligen Extrapolationen.

4.6 Bestimmung der laserinduzierten Zerstörschwelle im fs-Regime

Wie bereits erwähnt, werden die hergestellten phasenkomprimierenden Optiken ausschließlich für den Ultrakurzimpuls Bereich konzeptioniert, wodurch auch die LIDT-Untersuchungen auf diesen Bereich beschränkt werden können. Je nach Zielstellung muss zwischen grundlegenden und angewandten Untersuchungen unterschieden werden. Insbesondere die Charakterisierung von Einzelschichten hinsichtlich der Zerstörschwelle bietet fundamentale Einblicke in die Materialeigenschaften. Im Gegensatz zur Mehrpulszerstörschwelle lässt sich durch den Ausschluss des Mehrpulsverhaltens eine vereinfachte Interpretation der Zerstörvorgänge durchführen. In Bezug auf die Untersuchungen von Materialeigenschaften und -Klassifikationen sind derartige Einzelpuls-LIDT-Messungen (1:1) ein wichtiges Hilfsmittel. Die Entwicklung von leistungsfähigen Modellen bei der Zerstöranalyse bietet die Möglichkeit, Rückschlüsse auf die elektronischen Eigenschaften der Materie zu ziehen. Für die Qualifizierung von komplexen, optischen Komponenten sollte in Hinblick auf die Praxisorientierung auf die Messung der Mehrpulszerstörschwelle (S:1) zurückgegriffen werden. Deshalb werden im Rahmen der Arbeit sowohl Einzelpulszerstörschwellen- als auch Mehrpulszerstörschwellenmessungen eingesetzt. Beide Verfahren sind nach dem internationalen Messprotokoll der ISO21254 bestimmt [Isob]. Der prinzipielle Aufbau der Messung ist in Abb. 4.6 schematisch dargestellt. Für die unterschiedlichen Untersuchungen kommen jeweils verschiedene Lasersysteme zum Einsatz. Die Mehrpuls-LIDT-Messung basiert auf einem Titan:Saphir Laser (Firma Clark-MXR, Inc.), der bei einer Zentralwellenlänge von $\lambda_Z = 775 \text{ nm}$ Laserpulse mit einer Pulsdauer von $\tau_P = 150 \text{ fs}$ emittiert. Die Wiederholrate der Pulse beträgt $f_{rep} = 1 \text{ kHz}$. Die Energie der Laserpulse wird über einen polarisationsabhängigen Abschwächer gezielt reguliert. Dafür wird die Polarisationsrichtung der linear polarisierten Laserstrahlung mit einer $\lambda/2$ -Wellenlängen-Platte gegen die Achse eines polarisierenden Strahlteilers gedreht und über diese Kombination abgeschwächt. Die Verzögerungsplatte ist auf einem motorisierten Drehtisch installiert und kann über die entsprechende Software in beliebige Winkel gedreht werden. Die Wahl des Winkels

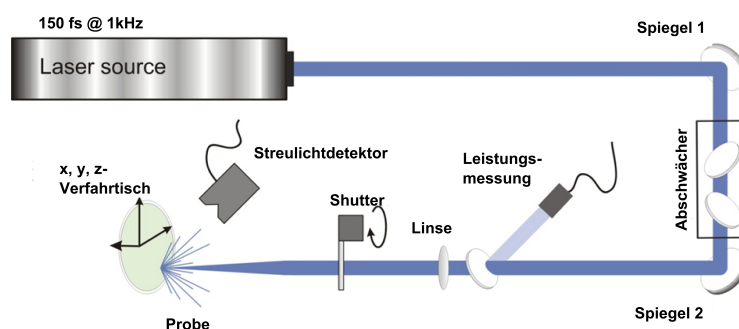


Abbildung 4.6: Schematischer Aufbau zur Vermessung der laserinduzierten Zerstörschwelle mit Mehrpulsbestrahlung S:1 im Femtosekunden Regime nach ISO21254

impliziert die Transmission durch den polarisierten Strahlteiler und reguliert damit die Energiedichte, die letztendlich auf die Probe eingestrahlt wird. Eine kalibrierte Photodiode misst dabei die eingestrahlte Energie jedes Pulses. Für die Energiedichte auf der Probe ist neben der Energie auch die Strahlgröße auf der Probe relevant. Der Laserstrahl wird mit einer Linse auf die Probe fokussiert, um die nötige Energiedichte zu realisieren. Mit einer Strahlprofilkamera wird der Strahldurchmesser am Probenort gemessen. Über die z-Position des Probenverfahrtisches lässt sich die Probe mit einer Genauigkeit von $\pm 0,1 \mu\text{m}$ in den Fokus justieren. Dabei wird eine Fokusgröße (FWHM) von etwa $150 \mu\text{m}$ verwendet. Die maximale Energiedichte dieses Setups liegt bei ca. 6 J/cm^2 . Auftretende Zerstörungen der Probe werden in-situ mit einer zweiten Photodiode detektiert, die das Streulicht der Probe monitoriert. Bei einer erfolgten Zerstörung wird mehr Laserstrahlung an der Probenoberfläche gestreut, und bei Überschreiten eines vordefinierten Schwellwertes wird die Position als zerstört erkannt. Über die automatisierte Steuerung wird darauf hin die Bestrahlung über das Schließen eines schnellen mechanischen Bauteils (sog. „Shutter“) unterbrochen. Bedingt durch die Mechanik und die Elektronik des Shutters und seiner Steuerung erfolgt die Unterbrechung des Strahlengangs erst, nachdem ein weiterer zusätzlicher Laserpuls auf die Probe getroffen ist. Dieser Effekt wird in der Auswerteroutine hinsichtlich der Fluenz für einzelne Pulsklassen mit berücksichtigt. Die automatisierte Messung wird über die Definition einer Rastermatrix auf der Probe initialisiert. Dabei werden verschiedene Positionen auf der Probe mit variierenden Energiedichten bestrahlt. Jede Position wird bis zur detektierten Zerstörung oder der maximal eingestellten Anzahl an Pulsen pro Position angefahren. Alle im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Schichtsysteme wurden auf Quarz-Substraten mit einem Durchmesser von 25 mm hergestellt. Auf der Testfläche können ca. 500 Positionen im Abstand von $0,8 \text{ mm}$ bestrahlt werden, ohne eine Interaktion zwischen benachbarten Testpositionen befürchten zu müssen. Die automatische x- und y-Translation der Messmatrix auf der Probe ist ebenfalls über die LIDT –Software automatisiert. Gemäß ISO21254 werden die Proben im Anschluss an die LIDT-Messung ex-situ mit einem Nomarski-Mikroskop im DIC-Modus untersucht. Hierbei wird die vorige online Streulichtdetektion verifiziert.

Mit der im LZH entwickelten Auswerteroutine kann die Zerstörschwelle ermittelt werden. Für jede Pulsklasse kann dabei eine Überlebenskurve bestimmt werden (Abb. 4.7). Dafür wird den einzelnen Energieklassen eine Zerstörwahrscheinlichkeit zugeordnet. Der Wert „1“ ist äquivalent zu einer gesicherten Zerstörung bei der entsprechenden Energiedichte, und „0“ impliziert entsprechend keine Zerstörung. Im Übergangsbereich erfolgt die Zuordnung der Wahrscheinlichkeit aus der statistischen Auswertung des Datensatzes der jeweiligen Energieklasse. Die 0%-Zerstörschwelle wird durch Extrapolation der Wahrscheinlichkeiten im Übergangsbereich auf 0 festgelegt. Die Fit-Anpassung ermöglicht zusätzlich die Angabe der Energiedichte, die zu 50% zu einer Zerstörung führt. Die Gesamtheit aller in den einzelnen Pulszahlklassen bestimmten Zerstörschwellen wird in der sogenannten

charakteristischen Zerstörkurve zusammengefasst (Abb. 4.8). Diese ermöglicht auch die Extrapolation der LIDT für große Pulszahlen.

Die Bestimmung der LIDT mit Einzelschusspulsen (1:1) erfolgt mit einem anderen Messsystem, welches am Institut Fresnel in der Gruppe von Laurent Gallais installiert ist [Man12b]. Prinzipiell ergibt sich ein vergleichbarer Messaufbau wie beim Aufbau des LZHS. Bei der Laserquelle handelt es sich um einen kommerziellen Dioden gepumpten Ytterbium Laser (Amplitudes Systemes S-Pulse HP) mit einer Zentralwellenlänge von 1030 nm und einem räumlichen Gaußprofil. Die Pulsdauer kann zwischen 500 bis zu 3000 fs variiert werden und wird kontinuierlich von einem Autokorrelator kontrolliert. Für alle im Rahmen dieser Arbeit erfolgten Messungen wurde eine Pulsdauer von $\tau_P = 850$ fs gewählt. Es können dabei Wiederholraten von 1 Hz bis hin zu 100 kHz eingestellt werden, mit einer maximalen Energie von 1 mJ bei 1 Hz und 38 μ J bei 100 kHz. Die linear polarisierten Laserpulse werden unter einem Einfallswinkel von 45° auf die zu untersuchende Probe mit einer plan-konvexen Linse fokussiert. Die Probe wird mit einem motorisierten Dreiachsverfahrtisch präzise im Fokus positioniert, und der Fokus wird mit einer Strahlprofilkamera gemessen. Der Strahldurchmesser beträgt 120 μ m (FWHM). Für die Bestrahlung der Probe mit Einzelpulsen wird eine Wiederholrate von 10 Hz gewählt und ein mechanischer Shutter vor dem Laser verwendet. Die Pulsenergie lässt sich kontinuierlich und automatisiert mit einer Kombination aus einer $\lambda/2$ -Platte und einem Polarisator durchstimmen. Die Testpositionen auf den Proben werden mit je einem Laserpuls bestrahlt, wobei die Fluenz zwischen den Positionen stufenweise reduziert wird. Die ab einer spezifischen Fluenz auftretenden Zerstörungen werden in-situ mittels eines Nomarski-Mikroskops, das mit einer schnellen CCD-Kamera ausgestattet ist, detektiert [Man12b].

Insgesamt stehen zwei leistungsstarke Messverfahren zur Verfügung, um die hergestellten Proben bezüglich ihrer Zerstörschwelle zu analysieren. Begründet durch eine mögliche Schwankung in der Laserintensität und der damit verbundenen Fluenzvariation auf der

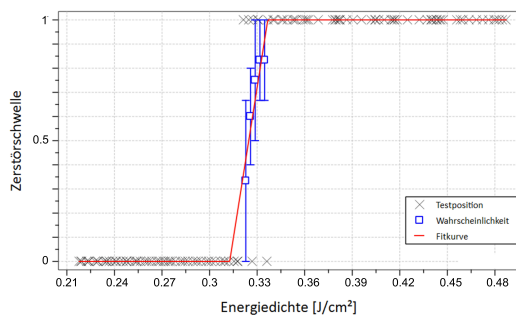


Abbildung 4.7: Exemplarische Überlebenskurve einer dielektrischen Komponente für eine festgelegte Pulsklasse.

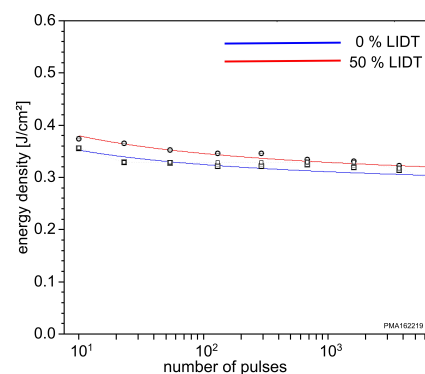


Abbildung 4.8: Beispiel für resultierende Zerstörschwellen aufgetragen über die Pulsklassen.

Probe werden die LIDT-Messungen mit einer maximalen Unsicherheit von 10 % angegeben. Die Proben werden in Abhängigkeit des geplanten Experiments entweder mit dem S:1-Aufbau oder dem 1:1-Aufbau bestrahlt. Es ist zu beachten, dass ein direkter Vergleich aufgrund der unterschiedlichen Laserquellen zwischen den 1:1 und S:1-Tests nicht möglich ist.

4.7 Kapitelzusammenfassung

In diesem Kapitel wurden die erforderlichen Methoden erläutert, die notwendig sind, um hochqualitative dielektrische Schichten mit höchster Präzision herzustellen und im Anschluss bezüglich ihrer optischen Eigenschaften zu charakterisieren. Das hier eingesetzte Ionen-Strahl-Zerstäubungs-Verfahren garantiert aufgrund der hohen Energie der abgestäubten Adatome, die am Substrat kondensieren, sehr kompakte Schichten. Es können so im Vergleich zu anderen Beschichtungsverfahren Defekte in den Schichten reduziert werden, was zu einer geringen Absorption und Streuverlusten führt. Die vergleichsweise kleine Zerstäubungsrate bei den eingesetzten Targetmaterialien und die geringe Prozesstemperatur erweisen sich als vorteilhaft für ein exaktes Monitorieren der Schichten während des Beschichtungsprozesses. So ist mit keiner Verschiebung des spektralen Verhaltens des Schichtsystems zu rechnen. Die kleinen Raten erlauben eine flexible Korrektur von geringsten Abweichungen zum berechneten Zieldesign. Die Kombination aus eingesetztem optischen Breitbandmonitor (BBM) in Transmission und dem Zusatzmodul „Recalc/Reopt“ ermöglichen eine Herstellung von höchst komplexen dielektrischen Filtern. Unter der Verwendung schneller Algorithmen können die optischen Schichtparameter anhand der bislang vorliegenden Transmissionsspektren berechnet werden. Abweichungen zum Design können auf eine Gesamtabweichung zu den spezifizierten Targetbändern extrapoliert werden. Noch nicht aufgesputterte Schichten werden in ihrer optischen Dicke modifiziert, um die Gesamtabweichung zum Zieldesign erneut zu minimieren. Für die anschließenden ex-situ Charakterisierungen sind im Rahmen dieser Arbeit insbesondere die Bestimmung der optischen Bandkante und die laserinduzierte Zerstörschwelle interessant. Über die spektralen gemessenen Transmissions- und Reflexionsspektren kann der Absorptionskoeffizient und damit durch die Anwendung einer Extrapolationsmethode die optische Bandkante bestimmt werden. Die optische Bandkante ist direkt mit der laserinduzierten Zerstörung verknüpft. Angepasst an die herzustellenden phasenkomprimierenden Spiegel im fs-Regime, werden alle Proben mit fs-Pulsen untersucht. Zwei Messaufbauten nach ISO21254 kommen zum Einsatz. Einmal wird die Zerstörschwelle nach Mehrpulsbestrahlung S:1 analysiert ($\lambda_Z = 775 \text{ nm}$; $\tau_P = 150 \text{ fs}$; $f_{rep} = 1 \text{ kHz}$) und zum anderen mit Einzelschussbestrahlung 1:1 ($\lambda_Z = 1030 \text{ nm}$; $\tau_P = 850 \text{ fs}$; $f_{rep} = 10 \text{ Hz}$). Der Messplatz wird jeweils in Abhängigkeit des Experiments der Probensätze gewählt.

Insgesamt stellen die hier vorgestellten Methoden die erforderlichen Grundlagen dar, um sowohl Einzelschichten als auch komplexe dielektrische Schichtsysteme herzustellen

und deren optische Eigenschaften zu charakterisieren. Insbesondere die Bestimmung der optischen Bandkanten als auch die laserinduzierten Zerstörschwellen von quantisierten Schichtstrukturen und ternären Mischungen werden die Grundlage bilden für eine erfolgreiche Verbesserung der LIDT von phasenkomprimierenden Optiken. Im Detail werden die speziellen notwendigen Analysen und Herstellungsroutinen von phasenkomprimierenden dielektrischen Filtern im nachfolgenden Kapitel erläutert.

KAPITEL 5

Herstellung und Analyse von Ultrakurzpuls-Laser-Optiken

Das Kapitel behandelt Ultrakurzpuls-Laser-Optiken am Beispiel von phasenkomprimierenden dielektrischen Optiken. Solche Komponenten mit einer definierten Zielspezifikation für die Phase des elektrischen Feldes, beziehungsweise dessen zweiter Ableitung, der Gruppenverzögerungsdispersion (GDD), stellen höchste Ansprüche an den Beschichtungsprozess und die Schichtdickenkontrolle. Ziel des aktuellen Kapitels ist es, die Methoden zur gezielten Herstellung eines phasenkomprimierenden dielektrischen Filters auf Basis binärer Oxide aufzuzeigen. Beginnend werden die Routinen vorgestellt, mit denen kommerzielle Dünnschichtprogramme phasenkomprimierende Optiken berechnen. Ein wichtiger Aspekt in der Designberechnung sind die unterschiedlichen Varianten der Synthese, wobei ein besonderer Fokus auf der Erhöhung der Stabilität bezüglich der Schichtdickenfehlertoleranz liegt. Im Anschluss werden einige Besonderheiten des Beschichtungsprozesses zur Herstellung von phasenkomprimierenden Optiken vorgestellt. Dabei kommt das für diese Arbeit bereitgestellte Konzept des Phasen-BBMs zum Einsatz, mit dem die Phase in Reflexion direkt während des Beschichtungsprozesses am bewegten Substrat gemessen werden kann. Das über die Software zur Verfügung gestellte GDD-Signal pro Umdrehung des Substrathalters verspricht eine bessere Herstellung der Filter. Es werden Konzepte zur Nutzung des Phasen-BBMs evaluiert, um phasenkomprimierende binäre Spiegel gezielt im und außerhalb des spektralen Monitorierungsbereiches des Phasen-BBMs herzustellen. Die ex-situ Charakterisierung der GDD der Spiegel erfolgt mit einem im Rahmen dieser Arbeit entwickelten Weißlichtinterferometer. Grundlegend sollen zwei mögliche Messdomänen in dem aufgebauten Messgerät integriert werden, um so die jeweils möglichen in Abhängigkeit der Messmethode charakteristischen Fehler zu minimieren.

5.1 Designsynthese von phasenkomprimierenden Optiken

Essentiell für eine erfolgsversprechende Herstellung von phasenkomprimierenden Spiegeln ist eine sorgfältige Synthese und Evaluation der Designs. Bezogen auf den Funktionsumfang von auswählbaren Algorithmen und Methoden in Kombination mit einer schnellen Rechenzeit hat die Dünnschichtsoftware „Optilayer“ zurzeit ein Alleinstellungsmerkmal [Opt]. Das Prinzip der Designberechnung beruht auf der gezielten Beeinflussung von Interferenzeffekten und der Variation der optischen Dicke in den Schichtstapeln. Durch eine alternierende dielektrische Schichtabfolge mit zwei Materialien mit einem ausreichend hohen Brechwertunterschied können an den Grenzflächen optische Interferenzeffekte auftreten, impliziert von den einfallenden elektromagnetischen Wellen. Die Interferenzeffekte sind sowohl festgelegt durch die Amplituden und Phasenbeziehungen der Lichtwellen untereinander als auch durch die optischen Dicken der einzelnen Schichten und der Gesamtschichtanzahl. Als maßgeblicher Indikator für die gezielte Einflussnahme auf die Interferenzeffekte durch die Festlegung von spektralen Zielwerten (Target) dient die Anpassungsfunktion Φ [Tik96]

$$\Phi = \sqrt{\frac{1}{N} \sum_{j=1}^N \left[\frac{f(\lambda_j) - \hat{f}_j(\lambda)}{\Delta f_j} \right]^2} \quad (5.1)$$

dabei ist $f(\lambda_j)$ die aktuelle physikalische Kenngröße des zu optimierenden Designs bei einer definierten Wellenlänge bezogen auf die festgelegten Targetspezifikationen $\hat{f}_j(\lambda)$. Hierbei kann es sich beispielsweise um Reflexions-, Transmissionswerte, aber auch Phasenterme (GD oder GDD) handeln. λ_j geben die Wellenlängen an, bei denen die sogenannten Stützstellen definiert wurden. Die Abstände zwischen den Stützstellen N können sowohl reziprok als auch äquidistant verteilt sein. Δf_j gibt die spezifizierten Abweichungen an der jeweiligen Wellenlängenposition j an. Generell gilt: Je kleiner der Wert der Anpassungsfunktion, desto besser ist die Übereinstimmung zwischen definierten Zielspezifikationen im Design und dem zu optimierenden Design. Die Optimierung der Φ -Funktion über eine Variation der Schichtdicken in einem vorgegebenen Design führt zu einer Änderung der Phasenbeziehungen der einfallenden elektromagnetischen Wellen im Schichtsystem, die Änderung des Brechindex wiederum verändert die Höhen der Amplituden. Die Anpassung des Schichtsystems kann je nach numerischem Algorithmus unterschiedlichen Optimierungsstrategien folgen. Im einfachsten Falle werden die Schichten eines festgelegten Designs Schicht für Schicht so lange optimiert, bis ein Minimum erreicht ist. Tatsächlich wird in der Regel bei einer numerischen Optimierung komplexer Schichtsysteme ein lokales Minimum in der Merit-Funktion erreicht, und für die Zielstellung ist eine Lösung zu finden, die eine möglichst geringe Abweichung von den Targetspezifikationen definiert. Das heißt, es gibt immer eine Vielzahl von Lösungen, die eine mehr oder weniger gute Lösung des Problems darstellen. Wie im Folgenden beschrieben wird, ist neben der Abweichung des synthetisierten Designs von den Targetspezifikationen auch die Stabilität der Lösung ein sehr wichtiger Parameter. Der

derzeit wohl effektivste Algorithmus ist der sogenannte „needle“ Algorithmus. Dabei wird zunächst ein Minimum der Anpassungsfunktion in Abhängigkeit der Phasenbeziehungen und der anderen Spezifikationen des Schichtsystems mit definierter Schichtzahl erreicht. Ist die Abweichung dann noch zu groß, ist die gezielte Substitution einer oder mehrerer neuer Schichten in das Design erforderlich. Die gezielte Substitution wird als „needle Variation“ definiert. Für eine weitere bestmögliche Minimierung der Anpassungsfunktion ist die Position, an der die neuen Schichten in das System eingebracht werden, entscheidend, die mathematisch über den „needle“ Algorithmus determiniert wird. Dabei wird eine analoge Anpassungsfunktion definiert [Fur92]:

$$\delta F = P_1(z, n_0)\delta + P_2(z, n_0)\delta^2 \quad (5.2)$$

δ ist dabei die Dicke der neu eingefügten Schicht, F die Anpassungsfunktion für das spezifizierte Design, z die Position der neu implementierten Schicht im Design und n_0 der Brechwert der eingefügten Schicht. Entscheidend für die "needle"-Optimierung ist es, die Dispersionen der Materialien exakt zu definieren, da der Algorithmus sonst keine optimale Lösung finden kann [TJ93]. Der Zyklus der Optimierung ist beendet und kann nicht weiter optimiert werden, wenn durch das erneute zusätzliche Einfügung einer dünnen Schicht δ das Minimum der Koeffizienten $P(z) = \min P_j(z, n_j)$ nicht mehr negativ wird.

Die Vorgabe eines analytischen Startdesigns für die „needle“ Optimierung ist oftmals nicht sinnvoll aufgrund des komplexen Aufbaus von phasenkomprimierenden Designs. Vielmehr bietet die Funktion der graduellen Synthese in der Optilayer Software einen geeigneten Optimierungsansatz [The02; Tik04]. Hierbei wird jeweils ohne die Vorgabe eines Startdesigns eine dicke Schicht an beliebiger Stelle eingefügt. Nach jeder neuen Schicht wird der Prozess der „needle“ Optimierung durchgeführt. Ist eine Variation mit dem Algorithmus nicht mehr möglich ($P(z) < 0$), so wird eine neue dicke Schicht eingefügt. Der Zyklus wird solange wiederholt, bis zuvor definierte Abbruchkriterien, wie beispielsweise die maximal erlaubte Gesamtschichtdicke des Designs oder ein Minimum der Anpassungsfunktion Φ , erreicht sind. Insbesondere die hohe Sensitivität von phasenkomprimierenden Designs in Bezug auf Schicht- oder Dispersionsabweichungen während des Beschichtungsprozesses, stellen hohe Anforderungen an den Beschichtungsprozess und die Stabilität der Prozessparameter sowie an die Evaluation von geeigneten Designs. Für die Herstellung der optischen Komponenten muss oftmals eine gewisse Fehlertoleranz gewährleistet sein, um das berechnete Design auch im Beschichtungsprozess umsetzen zu können. Derartige Designs werden als stabile oder robuste Designs bezeichnet. Hier bietet die Dünnschichtsoftware Optilayer eine anwendungsorientierte Funktion zur robusten Synthese. Dabei wird ein grundlegendes Design mit der graduellen Synthese berechnet und unter der Verwendung des "needle"-Algorithmus optimiert. Ergänzend zu einem optimierten Design werden zu diesem Design „M“ zusätzliche Designs entsprechend der Targetspezifikationen berechnet,

die eine geringfügig abweichende Schichtfolge aufweisen und einen maximalen angegebenen Schichtdickenfehler oder Änderungen in den Dispersionsdaten berücksichtigen. Im Detail können die einzelnen Schichtdicken des grundlegenden Designs mit d_k bezeichnet werden, wobei sich die physikalische Gesamtschichtdicke d_{phy} aus $d_{phy} = \sum_{k=1}^N d_k$ ergibt, mit der Gesamtzahl N an Schichten im Design. Die Schichtdicken des j -ten benachbarten Designs werden mit $d_k^{(j)} = d_k + \delta_{kj}$ angegeben. Mit $j = 1, \dots, M$ kann im Vorfeld die Gesamtanzahl M an zu berechnenden benachbarten Designs vom Anwender definiert werden. Die zufälligen Einzelfehler δ_{kj} mit $\delta_{kj} = \Psi(0, \sigma_{abs}^2) + \Psi(0, d_k^2 \sigma_{rel}^2)$ bilden eine Summe aus absoluten und relativen Schichtdickenfehlern mit Standardabweichungen σ_{abs} und σ_{rel} . Die Gesamtheit wird in einer sogenannten „Cloud“ zusammengefasst. Diese „Wolke“ von Designs definiert die Lösungsmenge. Die Anpassungsfunktion wird im Hinblick auf alle Designs, die in der Wolke enthalten sind, gemittelt [Per11a]

$$\bar{\Phi} = \sqrt{\Phi_0^2 + \sum_{j=1}^M \Phi_j^2 M + 1} \quad (5.3)$$

Φ_0 bezeichnet dabei die Anpassungsfunktion des grundlegenden Designs und M die Gesamtanzahl an benachbarten Designs in der Designwolke. Die analytische Bestimmung der Anpassungsfunktion kann mit Hilfe der Hesse-Matrix und der Störungsfunktion bestimmt werden und somit in die Methoden des „needle“ Algorithmus und der graduellen Synthese integriert werden [Fur92; TJ93].

Trotz der angewendeten robusten Design-Synthese zur Berechnung von phasenkomprimierenden Spiegeln bleibt die Herstellung herausfordernd. Abweichungen in den Prozessparametern müssen während des Beschichtungsprozesses frühzeitig erkannt und korrigiert werden. Eine direkte Messung der GDD von den hergestellten Spiegeln erscheint notwendig. Das Messprinzip der GDD beruht dabei auf einem Michelson-Interferometer, in das Weißlicht eingekoppelt wird [Did96; Nag90]. Dabei wird das reflektierte Licht der hergestellten Optik mit der gewünschten GDD-Spezifikation mit einer Optik mit bekannter GDD überlagert. Für die anschließende Analyse des Interferenzsignals stehen im Wesentlichen zwei Evaluationsmethoden bereit, die im folgenden Unterkapitel kurz erläutert werden.

5.2 Evaluationsmethoden zur Bestimmung der GDD

In einem Michelson-Interferometer wird das Weißlicht an einem Strahlteiler in zwei Arme, dem Proben- und dem Referenzarm, zu gleichen Anteilen aufgeteilt und nach entsprechender Reflexion an der zu untersuchenden Komponente und dem Referenzspiegel mit bekannter GDD erneut am Strahlteiler überlagert. Die überlagerten Teilwellen sind dabei kohärent, wenn sich die Phasendifferenz beider Wellen in einem Zeitraum Δt um weniger als 2π ändert [Dem06]. Die maximale Zeit, bis sich der Phasenunterschied um mehr als 2π ändert, ist dabei als Kohärenzzeit τ_c definiert. Das Interferenzsignal kann in einem Weißlichtinterferometer mit zwei unterschiedlichen Analysemethoden ermittelt werden, der Frequenz- und der Zeit-Domäne. In der Frequenzdomäne wird das über die Armlängen örtlich fest eingestellte Interferenzsignal $S\omega$ in ein Spektrometer eingekoppelt [Kov95]:

$$S(\omega) = |E_R(\omega)|^2 + |E_P(\omega)|^2 + E_R^*(\omega)E_P(\omega)e^{i(\omega\tau+\Delta\phi)} + E_R(\omega)E_P^*(\omega)e^{-i(\omega\tau+\Delta\phi)} \quad (5.4)$$

mit dem frequenzabhängigen elektrischen Feld aus dem Referenzarm $E_R(\omega)$ und Probenarm $E_P(\omega)$, sowie den komplex konjugierten Feldern $E_{P,R}^*(\omega)$ und der Phasendifferenz $\Delta\phi$. Eine inverse Fouriertransformation $FT^{-1}[S(\omega)]$ in den Zeitraum gestattet dabei die Extraktion der gesuchten Phaseninformation. Dafür wird das invers fouriertransformierte Signal mit einer Fensterfunktion $w(t)$ multipliziert und mit einer Fouriertransformation $s(\omega)$ in den Frequenzraum abgebildet:

$$s(\omega) = FT[FT^{-1}[S(\omega)]w(t)] \quad (5.5)$$

Die Phasendifferenz $\Delta\phi$ ist über den Polarwinkel von $s(\omega)$ mit $\Delta\phi = \arg[s(\omega)]$ verknüpft. Die einfache bzw. zweifache Differentiation nach der Kreisfrequenz ω liefert die GD bzw. GDD des analysierten dielektrischen Spiegels im Probenarm.

Die alternative Methode, die GDD einer optischen Komponente unter der Anwendung der Weißlichtinterferometrie zu analysieren, bietet die Zeitdomäne. Dabei wird der Referenzspiegel auf einem beweglichen Piezoaktuator installiert und der Abstand L zum Strahlteiler um Δs kontinuierlich variiert, was eine Zeitverzögerung von $\tau = 2\Delta s/c$ impliziert. Mit einer Photodiode kann die zeitabhängige Intensität am Interferometerausgang vermessen werden [Did96]:

$$I(\tau) \propto |\check{E}_R(t-\tau)|^2 + |\check{E}_P(t)|^2 + \check{E}_R(t-\tau)\check{E}_P^*(t)e^{-i\omega_0\tau} + \check{E}_R^*(t-\tau)\check{E}_P(t)e^{i\omega_0\tau} \quad (5.6)$$

mit den elektrischen Feldern des am jeweiligen Spiegel reflektierten Lichts und den entsprechenden komplex konjugierten Anteilen multipliziert mit einer Phase um die Zentralfrequenz ω_0 und der Verzögerung τ des Feldes $E_R(t)$. Die Phaseninformation kann über eine Fourier Analyse ermittelt werden. Dabei kann äquivalent der letzte oder vorletzte Term aus Gleichung 5.6 einer Fourier Transformation in den Frequenzraum unterzogen werden mit

zeitlicher Mittelung zu [Pas17]

$$K^+(\omega) = \int d\tau \check{E}_R(t - \tau) \check{E}_P^*(t) e^{-i\omega_0\tau} e^{i\omega\tau} = \check{E}_R^*(\omega) \check{E}_P(\omega) = |\check{E}(\omega)|^2 \quad (5.7)$$

Verluste im Interferometer $\alpha(\omega)$ und das Transferverhalten der Spiegel $R(\omega)$ führen zu einer zusätzlichen Phase und modellieren das fouriertransformierte Signal zu $K^+(\omega) = |\check{E}(\omega)|^2 R(\omega) \alpha(\omega) e^{-i(\phi_P(\omega) + \phi_{AG}(\omega))}$. Dabei kann die Phase über

$$\phi_P(\omega) + \phi_{AG}(\omega) = -\arctan \frac{\text{Im}(K_V^+(\omega))}{\text{Re}(K_V^+(\omega))} \quad (5.8)$$

ermittelt werden. Die systematische Phase $\phi_{AG}(\omega)$ kann zuvor mit beispielsweise zwei Silberspiegeln mit bekannter Dispersion ermittelt werden.

Prinzipiell können mit den bislang in diesem Kapitel vorgestellten Methoden dielektrische Filter mit einer von der Anwendung abhängigen gewünschten GDD flexibel berechnet werden und nach erfolgter Herstellung mittels Weißlichtinterferometer vermessen werden, um mögliche Abweichungen zur Zielspezifikation aufzuzeigen. Für eine Minimierung der Abweichungen und der in Kapitel 2 bereits diskutierten hohen Sensitivität im Herstellungsprozess auf kleine Abweichungen in den Prozessparametern sind alternative, angewandte Monitorierungstechniken für eine erfolgreiche Beschichtung von phasenkomprimierenden Optiken im IBS-Prozess erforderlich. Diese werden fortgehend diskutiert.

5.3 Herstellung von phasenkomprimierenden Optiken

Die nach jeder hergestellten Schicht zusätzlich abgespeicherte Transmissionsmessung wird in das Zusatzmodul „Recalc/Reopt“ eingeladen. Die Dispersionsdaten und Schichtdicken werden basierend auf den Transmissionsdaten nachoptimiert. Mit den eingeladenen Reflexions- und GDD-Targetspezifikationen in der Reopt Umgebung können die Abweichungen auf das Design prognostiziert werden. Anschließend können die noch nicht abgeschiedenen Schichten in ihren Dicken optimiert werden, um die Abweichungen zum ursprünglichen Target zu minimieren. Diese Prozedur ermöglicht eine aktive Fehlerkorrektur. Allerdings sind, wie bereits erwähnt, insbesondere die letzten Schichten von phasenkomprimierenden Optiken ausschlaggebend für eine erfolgreiche Realisierung der Targetspezifikationen, insbesondere der GDD (Abb. 2.1- Kapitel 2.1). Dabei ist es ersichtlich, dass Fehler in nachfolgenden Schichtfolgen nicht mehr ausreichend kompensiert werden können, da nur noch wenige Schichten zur Optimierung zur Verfügung stehen. Insbesondere kann Recalc für die letzte Schicht im Design nur eine Prognose für die bestmögliche Schichtdicke angeben, ob diese dann aber ohne Schichtdickenabweichung abgeschaltet wird, kann nicht mehr kompensiert werden. Empirische Studien an den für diese Arbeit hergestellten phasenkomprimierenden Beschichtungen zeigen, dass Komponenten, die ausschließlich mit dem BBM und Recalc abgeschaltet wurden, keine ausreichende Reproduzierbarkeit in der Herstellung der GDD-Spezifikationen gewährleisten. Die verwendete IBS-Anlage ist zusätzlich mit einem weiteren optischen Monitor ausgestattet. Dabei handelt es sich um ein faserbasiertes

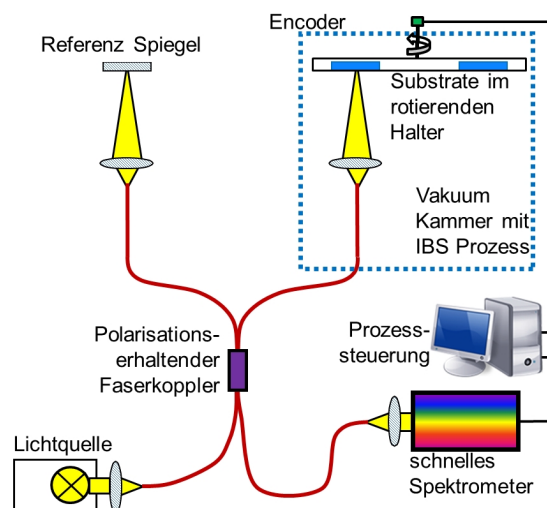


Abbildung 5.1: Schema des faserbasierten Weißlichtinterferometers zur Messung der GDD während des Beschichtungsprozesses nach [Sch16].

in-situ Weißlichtinterferometer¹. Das von der Probe reflektierte Licht wird über einen Kollimator in eine Faser eingekoppelt und die GDD wird während des Beschichtungsprozess am sich bewegten Substrat gemessen [Sch16]. Über eine Superlumineszenz Diode (SLED) wird dabei Licht von 790 bis 900 nm mit einer Ausgangsleistung von 5 mW in einen polarisationserhaltenden Faserkoppler eingekoppelt und auf die beiden Faserarme (Referenz- und Probenarm) aufgeteilt. Das Licht im Referenzfaserarm wird mit einem beweglichen, freistehenden Silberendspiegel (Thorlabs –low GDD silver mirror) wieder in die Faser eingekoppelt und am Faserkoppler überlagert. Das eingekoppelte Weißlicht im Probenarm beleuchtet über den Kollimator die Probe auf dem rotierenden Substrathalter. Das reflektierte Signal der Probe wird erneut über den Kollimator in die Faser eingekoppelt. Das resultierende Intensitätsspektrum wird mittels eines hochauflösenden Spektrometers (Horiba iHR320) mit einer schnellen Kamera (CMOS – pco.edge) aufgenommen. Wegen der Wahl des Gitters im Spektrometer und der Beleuchtungseinheit des Interferometers ist der spektrale Monitorierungsbereich auf eine Wellenlänge zwischen 800 bis 880 nm begrenzt (Abb. 5.1). Das Interferometer arbeitet in der Fourier-Domäne und garantiert die Analyse des aufgenommenen spektralen Interferenzsignals innerhalb weniger ms. Zur Auswertung ist eine Fourier-Transformation sowie eine Separation der Phaseninformation und die Rücktransformation in den Frequenzraum erforderlich. Die GDD ergibt sich dann aus der zweimaligen Ableitung der so gewonnenen Phaseninformation nach der Zeit. Die notwendige Fourieranalyse kann zu Messartefakten führen, die sich wiederum durch die 2-fache Differenzierung der Phase potenzieren [Hew79; Nag90; Tak82]. Eine signifikante Reduzierung der Messartefakte wird mit der zur Verfügung stehenden Analysesoftware durch die Evaluation des Interferenzsignals mit Hilfe der Kurz-Zeit-Fourier-Transformation (STFT) erreicht. Letztendlich lässt sich aus dem aufgenommenen spektralen Signal über die STFT direkt die erste Ableitung der Phase (GD) ermitteln, und Messartefakte können so reduziert werden [Sch16]. Das Interferenzsignal ist weitgehend resistent gegenüber Vibrationen in der Vakuumkammer, die von der Turbomolekular- oder Scrollpumpe und der rotierenden Kalotte induziert werden. Nichtsdestotrotz ist die Justage des Rückreflexes von der Probe in den Faserkollimator sensitiv und hängt unter anderem auch von der Probendicke ab. Der Faserkollimator in der Vakuumkammer ist auf einen Spiegelhalter installiert, mit dem der Kollimator in xyz-Richtung verkippt werden kann. Bislang ist eine automatisierte Ansteuerung des Halters noch nicht integriert, über die mittels kleiner vakuumtauglicher Motoren der geringe Luft-Vakuum-Shift der Justage und der sich ändernde Rückreflex kompensiert werden könnte, impliziert durch die ansteigende physikalische Gesamtdicke auf dem Substrat. Die Monitorierungsstrategie für die hergestellten Proben

1 Der Aufbau des faserbasierten Weißlichtinterferometers mit der Programmierung der Softwareumgebung wurde nicht im Rahmen dieser Arbeit entwickelt und für eine quantitative Evaluation des Monitorierungskonzeptes an der IBS-Anlage erstmalig bereitgestellt.

sieht es daher vor, dass der Beschichtungsprozess nach der vorletzten Schicht unterbrochen und die Kammer belüftet wird. Im Anschluss wird das in-situ Weißlichtinterferometer mit einem zum Referenzarm baugleichen Silberspiegel kalibriert und darauffolgend der Rückreflex der bis dahin abgeschiedenen Schichten einjustiert. Nach dem erneuten Start des Beschichtungsprozesses wird der BBM in den passiven Modus geschaltet, und die verbleibende Schicht wird somit manuell abgeschaltet. Dabei vergleicht der Bediener, wann das in-situ gemessene GDD-Signal mit der Targetspezifikation übereinstimmt. Die geringen verwendeten Beschichtungsraten von etwa 0,07 nm/s für das hochbrechende und 0,15 nm/s für das niedrigbrechende Material gestatten dem Operator aktuell noch ausreichend Zeit für eine präzise Abschaltung der Schicht. Der Zuwachs der Schicht um 1 nm korreliert mit ca. 9 Umläufen des Probenhalters (14s) für das hochbrechende und ca. 4 für das niedrigbrechende Material (7s).

Konzeptionell könnte insbesondere die Bedienung und die Flexibilität des GDD-Monitors optimiert werden. Auf Grundlage der im Rahmen der Arbeit gewonnenen Erkenntnisse wird eine automatische Abschaltung als zukünftige Weiterentwicklung des in-situ GDD-Monitors integriert werden. Die Verwendung von alternativen leistungsstarken Lichtquellen könnte für eine Erweiterung des spektralen Monitorierungsbereiches genutzt werden, in Kombination mit verfügbaren breitbandigen „single-mode“ Fasern. Zur Vermessung der hergestellten Proben ex-situ in einem breiteren spektralen Bereich wurde im Rahmen dieser Arbeit zusätzlich ein Freistrah-Weißlichtinterferometer aufgebaut, welches im nächsten Unterkapitel dargestellt wird.

5.4 Ex-situ Charakterisierung von phasenkomprimierenden Optiken

Grundlegend bietet das konstruierte und aufgebaute Freistrah-Interferometer die Möglichkeit, die Optik sowohl in der Frequenz- als auch Zeit-Domäne zu vermessen, ohne eine notwendige erneute Justage der Optik (Abb. 5.2). Der Vergleich der gemessenen GDD einer phasensensitiven Optik, resultierend aus der Fourier- und der Zeitlichen-Messmethode, verspricht eine erhöhte Invarianz gegenüber systematischen Messfehlern. Als Lichtquelle des Interferometers dient eine konventionelle Halogenlampe mit einem Emissionsmaximum bei etwa 800 nm. Über einen Polarisationsstrahlteiler (PBS) wird das nun p-polarisierte Licht in das Michelson-Interferometer eingekoppelt. Der verwendete dielektrische Strahlteiler lenkt das Licht zu gleichen Intensitätsanteilen in den Referenz- und Probenarm. Der Referenzspiegelhalter befindet sich auf einem Piezoaktuator. Nach Überlagerung der reflektierten Teilstrahlen aus dem Probe- und Interferenzarm durch den Stahlteiler lässt sich anhand eines Umlenkspiegels die Art der Detektion wählen. Für die Frequenzanalyse werden die überlagerten reflektierten Teilstrahlen aus Proben- und Referenzarm mit einem Spektrometer vermessen. Über einen Präzisionstranslationstisch, auf dem der Proben Spiegel installiert ist, wird dabei eine exakt definierte Laufzeitvariation der beiden Strahlen in den Interferometerarmen eingestellt. Durch die Anwendung der Frequenz-Domäne (Fourier-Domäne)

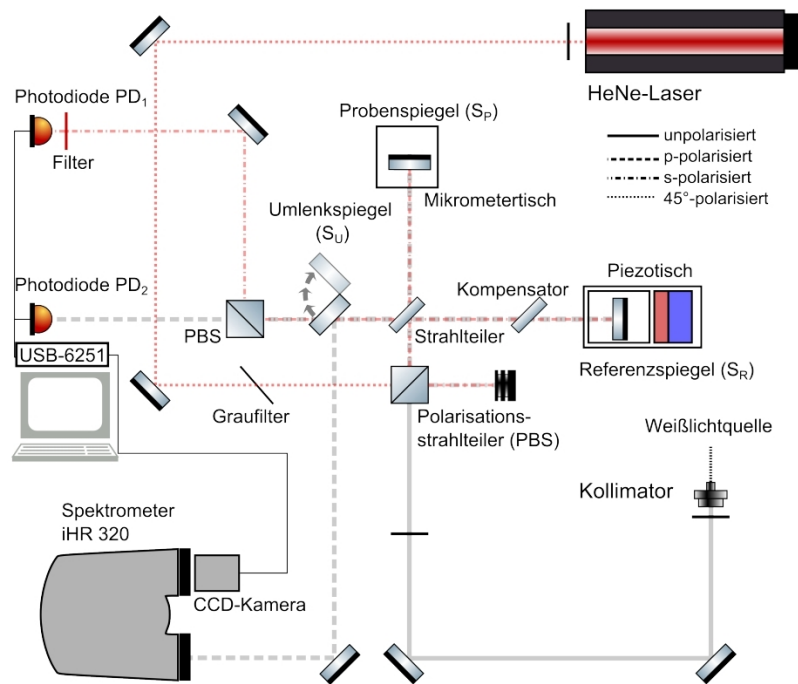


Abbildung 5.2: Skizze des realisierten dualen ex-situ Weißlichtinterferometers nach [Pas17].

lässt sich so der Phasenanteil der elektromagnetischen Welle aus dem Interferenzsignal extrahieren. Die Analyse erfolgt mit identischer Software, die von dem entwickelten Phasen-BBM bereitgestellt wurde [Sch16]. Im Vergleich zum Phasen-BBM wird der Messbereich hier nicht durch die Faser- und Lichtquellenspezifikationen eingeschränkt. Über die jeweilige Wahl der Gitter im Spektrometer (iHR 320) und des Strahlteilers kann die GDD hergestellter Optiken in einem Spektralbereich von 600 – 1100 nm vermessen werden. Für die im Rahmen dieser Arbeit vermessenen Optiken wurde das Gitter derart gewählt und kalibriert, dass ein Bereich von 770 bis 890 nm vermessen werden konnte.

Die zweite Position des Umlenkspiegels ermöglicht die Vermessung des Probenreflektors mit der zeitlichen Domäne. Hierfür ist der Referenzreflektor auf einem bewegten Piezoaktuator positioniert und impliziert eine kontinuierliche Längenänderung des Interferometerarms, äquivalent zu einer Zeitverzögerung der elektromagnetischen Wellen. Eine Photodiode detektiert die sich zeitlich verändernde Intensität des Lichtfeldes. Die Extrahierung des Phasensignals bedarf lediglich einer einmaligen Fourier-Transformation in den Frequenzraum und kann somit prinzipiell Messfehler im Vergleich zur Auswertung in der Fourier-Domäne reduzieren. Die spektrale Auflösung und mögliche Messfehler werden in der zeitlichen Domäne von dem verwendeten Piezoaktuator determiniert. Für die Auswertung der zeitlichen Domäne wird der Piezo aktiviert, und die zeitlich variierende Intensität der überlagerten Teilstrahlen wird über einen zusätzlichen Polarisationsstrahlteiler auf eine Photodiode gelenkt. Zur Positionskontrolle des Referenzreflektors wird in dem Interferometer ein zusätzlicher Strahlengang verwendet, bei dem ein s-polarisierter Helium-Neon-Laser als

Referenzquelle genutzt wird. Dabei wird der Laserstrahl über den anfänglichen Polarisationsstrahlteiler in das Michelsoninterferometer eingekoppelt. Mittels der Interferenz des Laserlichtes lässt sich die Bewegung des Referenzspiegels monitorieren. Im Anschluss wird das Lasersignal mit dem zweiten PBS wiederum vom Weißlichtsignal separiert und mit einer zusätzlichen Photodiode detektiert. Tatsächlich erfordert die Anwendung der Zeit-Domäne höchste Präzision in der mechanischen Stabilität der Translation. Hier führten Hystereseeffekte zu einer Reduzierung der Messgenauigkeit im gemessenen GDD-Signal im Vergleich zu den Messungen mit der Fourier-Domäne. Die zukünftige Verwendung der zeitlichen Messmethode impliziert einen Piezoaktuator mit unterdrückter Hysterese, weshalb im Rahmen der Arbeit im Wesentlichen auf die Fourier-Domäne zurückgegriffen wurde. Für die Auswertung über die Fourier-Domäne wird der Piezoaktuator deaktiviert. Generell nachteilig an der Messmethode der GDD mit einem Weißlichtinterferometer ist die starke Abhängigkeit einzelner Parameter in der Analyseroutine auf den spektralen Verlauf der GDD, die ein gewisses Maß an experimentellem Geschick erfordert. Nichtsdestotrotz korrelieren Vergleichsmessungen von dispersionskompensierenden Optiken in der Fourier-Domäne mit dem aufgebauten ex-situ Freistrahlinferferometer gut zu kommerziell erhältlichen Weißlichtinterferometern (KmLabs-Chromatis) am Beispiel von hergestellten Optiken. Hierfür wurden zwei binäre Designs berechnet mit den Materialien Ta_2O_5 und SiO_2 . Zum einen wurde ein phasenkomprimierender Spiegel mit flacher GDD (-500 fs^2) und größerer spektraler Bandbreite hergestellt in einem spektralen Wellenlängenbereich von 800 bis 850 nm (Abb. 5.3). Zum anderen dient ein hergestellter GTI-Spiegel zur Erzeugung von hohen GDD-Werten (-5000 fs^2) und dadurch resultierender kleiner spektraler Bandbreite von 845 bis 855 nm (Abb. 5.4). Eine horizontale Verschiebung der WLI-Messkurven des GTI-Spiegels mittels des aufgebauten ex-situ Weißlichtinterferometers in der Frequenz-Domäne und der Messung mit dem kommerziellen Chromatis-Gerät deutet auf eine kleine Schichtdickeninhomogenität ($< 1\%$) der vermessenen Probe hin.

Die bisherigen Überlegungen des vorigen und des aktuellen Kapitels zeigen auf, dass die Bausteine aus einer robusten Synthese zur Designberechnung, der Anwendung des hochqualitativen IBS-Beschichtungsprozesses in Kombination mit einem optischen Breitbandmonitor und dem Zusatzmodul „Recalc/Reopt“ zunächst optimale Voraussetzungen für die Herstellung bis zum letzten Schichtpaar von komplexen dispersionskompensierenden Optiken bieten. Die Möglichkeit, mit dem Phasen-BBM die GDD in-situ an der bewegten Probe zu messen, garantiert eine präzise Kontrolle der sensitiven Schichten des Design.

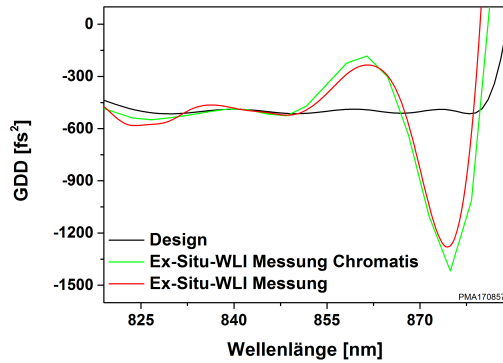


Abbildung 5.3: Korrelation der GDD-Messkurve aufgenommen mit dem aufgebauten ex-situ Weißlichtinterferometer in Fourier-Domäne und einem kommerziellen Messgerät (KmLabs - Chromatis).

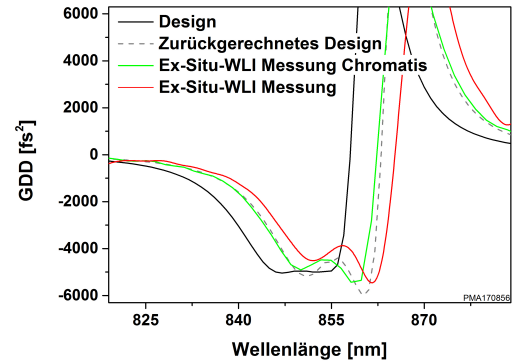


Abbildung 5.4: Korrelation der GDD Messkurven für einen phasenkomprimierenden GTI-Spiegel.

5.5 Evaluation der Herstellungsroutine

Exemplarisch sollen nun zwei Möglichkeiten vorgestellt werden, dispersionskompensierende Spiegel kontrolliert durch Anwendung des Phasen-BBMs herzustellen, bei denen die Designspezifikationen abseits des direkten spektralen Monitorierungsbereiches liegen. Dabei liegt es nahe, ein Design mit zwei spektral definierten GDD-Spezifikationen zu konzipieren. Ein Bandbereich zielt dabei auf die eigentliche später gewünschte Anwendung ab, und das andere Band liegt als Referenzband im Monitorierungsbereich des Phasen-BBMs. Wird nun das Referenzband präzise mit der in-situ GDD-Messung abgeschaltet, so kann auch von einer Erfüllung der Spezifikationen im Anwendungsbereich ausgegangen werden. Grundvoraussetzung ist dabei eine äquivalente Sensitivität beider GDD-Bänder auf eventuelle Abweichungen im Beschichtungsprozess. Alternativ ist es auch möglich, ein Design zu wählen, bei dem die Fehlertoleranz im extrapolierten Zielbandbereich größer ist als im Monitorband. Gewählt wird als Demonstrator zunächst ein dispersionskompensierendes Spiegeldesign für den ultra-violetten Spektralbereich von 330 bis 360 nm unter einem Einfallswinkel von 0° und einer gewünschten Gruppenverzögerungsdispersion von -100 fs^2 . Die entsprechende Wahl der Referenztargetspezifikation im spektralen Bereich des Phasenmonitors wird zwischen 820 bis 870 nm gewählt. Die Festlegung der GDD mit derselben absoluten Höhe von -100 fs^2 , also einem GDD-Verhältnis der beiden Bänder von 1:1, führt zu einem sensitiveren Ansprechen auf Schichtdickenfehler im UV-Band als im naheninfraroten Referenzband. Dies ist aus einer beispielhaften Variation von lediglich der letzten Schichtdicke um $\pm 1 \text{ nm}$ deutlich ersichtlich (Abb. 5.5). Ausgehend von der nahezu linearen Skalierbarkeit der Schichtdickengenauigkeit mit der Zentralwellenlänge impliziert ein GDD-Verhältnis von ca. 1:2 eine äquivalente Sensitivität beider GDD-Target-Bänder auf Schichtdickenfehler im Herstellungsprozess. Designstudien zeigen jedoch, dass mindestens

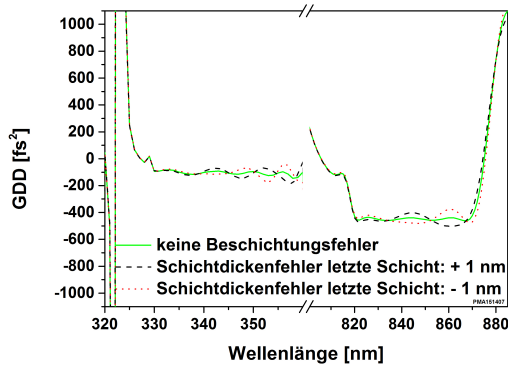


Abbildung 5.5: Berechnetes Referenzdesign (HR 850; -100 fs^2 ; HR 355; -100 fs^2).

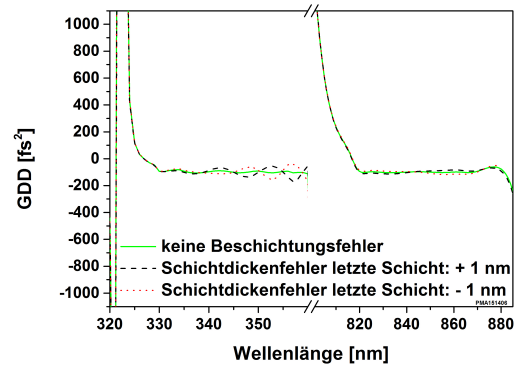


Abbildung 5.6: Berechnetes und hergestelltes Design (HR 850; -450 fs^2 ; HR 355; -100 fs^2).

ein Verhältnis von 1:4 notwendig ist (Abb. 5.6).

Das hergestellte und qualifizierte Design besteht aus 78 alternierenden HfO_2 - SiO_2 Schichten mit einer physikalischen Gesamtdicke von ca. $9 \mu\text{m}$. Impliziert durch das notwendige GDD-Verhältnis von mehr als 1:4 ist das NIR-GDD-Targetband mit -450 fs^2 gekennzeichnet. Das spektrale Reflexionsverhalten erreicht im UV-Band einen minimalen Wert von 94,5 %. Im Herstellungsprozess wurden die letzten Schichten im Design einmal mit dem in-situ-Phasen-BBM abgeschaltet (Abb. 5.7), und zum Vergleich erfolgte die Kontrolle konventionell mit dem Transmissions-BBM und der Online-Optimierung mit ReCalc/ReOpt (Abb. 5.8). Die anschließende ex-situ Charakterisierung verdeutlicht die Notwendigkeit einer präzisen Abschaltung der Beschichtung mit dem Phasen-BBM. Basierend auf den nach jeder Schicht abgespeicherten BBM -Transmissionsmessungen im Wellenlängenbereich von 420 bis 1050 nm, korrelieren die Weißlichtinterferometer-Messungen der GDD im NIR-Band mit den zurückgerechneten Zielspezifikationen. Der Spiegel, abgeschaltet mit dem Phasen-BBM, verspricht eine GDD korrelierend zu der berechneten im spektralen UV-Band. Eine Messung der GDD mit dem Weißlichtinterferometer im entsprechenden UV-Bereich konnte im Rahmen dieser Arbeit nicht durchgeführt werden. Das Weißlichtinterferometer muss hinsichtlich der eingesetzten Komponenten modifiziert werden. Nichtsdestotrotz stellt das vorgestellte Konzept vielfältige Möglichkeiten dar für die präzise Herstellung von dispersionskompensierenden Spiegeln in spektralen Bändern abseits des Monitorierungsbereiches. Die Umsetzung erfordert eine präzise Kenntnis der Dispersionsdaten in den jeweiligen spektralen Bereichen.

In einem exemplarischen zweiten möglichen Konzept wird die Verfügbarkeit des Phasen-BBMs für die gezielte Herstellung von phasenkomprimierenden Spiegeln mit Zielspezifikationen im überlappenden spektralen Bereich aber mit unterschiedlicher Polarisation und variierendem Einfallswinkel demonstriert. Als Zielvorgabe wird eine Komponente mit einer

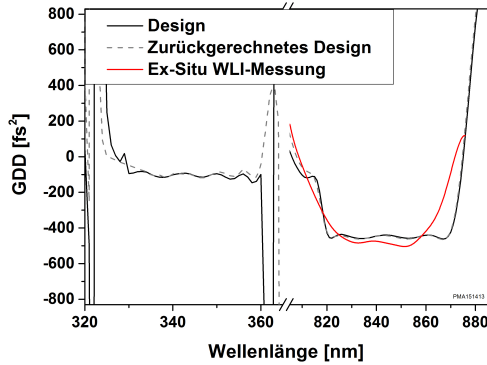


Abbildung 5.7: Hergestellter Spiegel abgeschaltet mit dem Phasen-BBM.

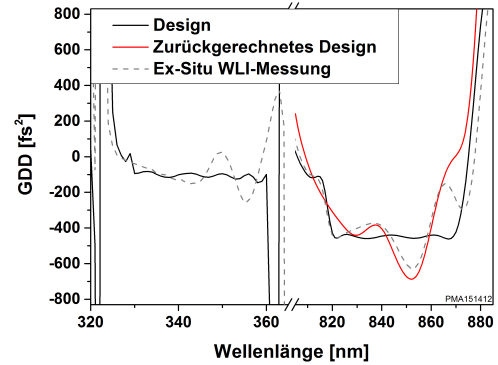


Abbildung 5.8: Hergestellter Spiegel abgeschaltet mit einem konventionellen Transmissions-BBM.

spektralen Bandbreite von 720 bis 820 nm bei einer Reflexion von mehr als 99,7% unter einem Einfallswinkel (AOI) von 45° und einer konstanten Gruppenverzögerungsdispersion von -50 fs^2 berechnet. Als hoch- bzw. niedrigbrechendes Material wird Ta_2O_5 und SiO_2 gewählt. Insgesamt ist das berechnete Design durch 59 alternierende Schichten und eine resultierende physikalische Gesamtdicke von $7,2 \mu\text{m}$ charakterisiert. Analog zu den zwei berechneten spektralen Bändern im vorigen Beispiel werden wieder die letzten Schichten des Spiegels während des Herstellungsprozesses mit dem Phasen-BBM (AOI 0°) kontrolliert. Die unter einem Einfallswinkel von 0° gemessene GDD korreliert ausgezeichnet mit dem zurückgerechneten Design (Abb. 5.9). Das unter 0° evaluierte Design kann nun unter einem Einfallswinkel von 45° dargestellt werden¹ (Abb. 5.10).

Insgesamt verdeutlichen die beiden vorgestellten Konzepte in diesem Unterkapitel die vielfältigen Möglichkeiten, dispersionskompensierende Optiken kontrolliert mit Hilfe des Phasen-BBMs herzustellen. Eine direkte Monitorierung der GDD im entsprechenden Zielspezifikationsbereich der gewünschten Optik ist somit nicht zwingend erforderlich.

¹ Im Rahmen des Boulder Damage Symposiums wurde die GDD der Probe unter einem Winkel von 45° gemessen mit dem kommerziellen WLI von Chromatis. Der Kurvenverlauf stimmt qualitativ mit dem unter 45° zurückgerechneten Design überein [Neg16].

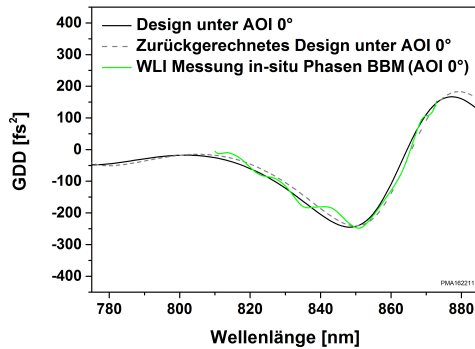


Abbildung 5.9: Evaluation der gemessenen GDD im Vergleich zum ursprünglichen und zurückgerechneten Design unter einem Einfallswinkel von 0° .

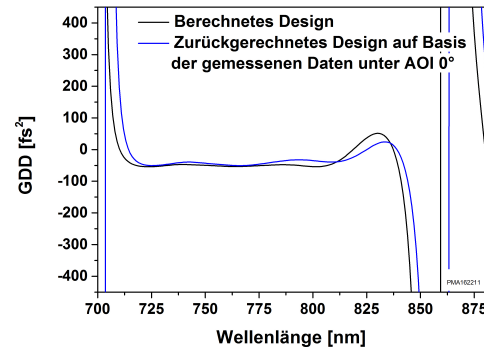


Abbildung 5.10: Ursprünglich berechnetes Design und auf Basis der Resultate unter einem $AOI 0^\circ$ zurückgerechnetes Design für einen Einfallswinkel von 45° .

5.6 Kapitelzusammenfassung und Fazit

Der in diesem Kapitel aufgezeigte Ansatz, dispersionskompensierende Spiegel robust zu berechnen, unter Verwendung neuester Monitoringstechniken herzustellen und anschließend zu charakterisieren, verbindet die gegenwärtig am weitesten entwickelten Software- und Hardwarelösungen mit einander. Diese im Rahmen der vorliegenden Arbeit entwickelte Strategie ist derzeit nur am Laser Zentrum Hannover e.V. umsetzbar, bietet aber bei einer weiterführenden Hardware- und Software-Automatisierung des Phasen-BBMs ein hohes Potential für industrielle Anwendungen. Bedingt durch die eingesetzte Faser und die Lichtquelle kann die GDD mit dem Phasen-BBM am bewegten Substrat während des Beschichtungsprozesses in einem spektralen Bereich von 800 bis 880 nm vermessen werden unter einem Einfallswinkel von annähernd 0° . In diesem Bereich können sowohl binäre phasenkomprimierende Spiegel mit größerer spektraler Bandbreite und flachem GDD Verlauf als auch GTI-Spiegel mit hohen GDD Werten und schmaler spektraler Bandbreite gezielt hergestellt werden. Über die Berechnung von speziellen Designs kann der Phasen-BBM genutzt werden, um auch phasenkomprimierende binäre Spiegelsysteme abseits des spektralen Monitorierungsbereiches herzustellen. So ist es möglich, Designs mit zwei definierten GDD-Target-Bändern zu berechnen. Ein Target-Band wird jeweils in den Monitorierungsbereiches des Phasen-BBMs gelegt und das andere entsprechend der eigentlich gewünschten Spezifikation, wie beispielsweise phasenkomprimierende Spiegel mit alternativen Einfallswinkeln oder alternativem spektralen Bereich. Über die spezielle Wahl des Verhältnisses beider Bänder kann eine äquivalente Sensitivität auf Schichtdickenfehler sichergestellt werden. Wird das GDD-Band im spektralen Bereich des Phasen-BBMs präzise getroffen, so verspricht die äquivalente Sensitivität einen ähnlichen GDD Verlauf im gewünschten zweiten spektralen Bereich.

Allerdings kann die präzisierte Herstellung der dispersionskompensierenden Filter nicht die

konzeptionelle Problematik der komplexen Feldstärkeverteilung innerhalb der Schichtabfolge umgehen. Bei derart komplexen Designs können Feldstärkenüberhöhungen gerade in oberflächenfernen Schichten oder Schichtstapeln auftreten (Abb. 5.11). Insbesondere bei hochbrechenden Schichten führt diese Feldverteilung zu einer Verringerung der Laserstrahlungsfestigkeit in komplexen Schichtsystemen, weil das maximale Produkt aus interner LIDT und Feldintensität in den jeweiligen Schichten die Schwelle definiert. Damit sind alternative Designstrategien gefordert, um das Produkt aus Feldüberhöhung zu minimieren und die interne LIDT in solchen Designs gezielt zu maximieren. Diese werden detailliert in Kapitel 7 vorgestellt. Grundlage für eine erfolgreiche Beeinflussung der Feldstärke im Design sind, im Rahmen dieser Arbeit, gewählte neuartige Materialmodifikationen. Die Herstellung und Evaluation dieser Materialklasse erfolgt im anschließenden Kapitel.

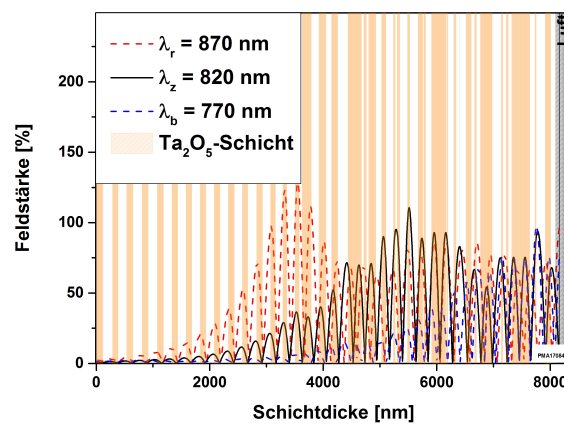


Abbildung 5.11: Feldstärkeverteilung in einem binären phasensensitiven Spiegel mit flacher GDD (-200 fs^2) bei einer spektralen Bandbreite von 110 nm. Niedrige Frequenzanteile werden in tiefer gelegenen Schichtstapeln reflektiert im Vergleich zu höheren Moden (blau gestrichelt).

KAPITEL 6

Quantisierte amorphe Schichtstrukturen

Unter Beachtung des Energieflusses konnte unter dem Einsatz von ternären Kompositen die Zerstörschwelle systematisch verbessert werden. Aus Sicht des Beschichtungsprozesses wird der Brechwert von Schichtpaar zu Schichtpaar schrittweise abgesenkt, was zur Bezeichnung RISED-Design (Refractive Index StEpped Down) führte. Unter dem Einsatz von ternären Mischungen ließ sich die Zerstörschwelle eines binären TiO_2 - SiO_2 Spiegels um den Faktor 2,3 steigern [Jup12]. Nachteilig könnte sich gerade für komplexe Beschichtungen, wie phasenkomprimierende Filter, die schwierige Reproduzierbarkeit des Mischungsverhältnisses der ternären Mischungen in längeren Beschichtungen darstellen. Mit einer prognostizierten Brechwertreproduzierbarkeit von $\pm 5\%$ für ein erneutes Anfahren des ausgewählten Mischungsverhältnisses können phasensensitive Beschichtungen nicht mit der erforderlichen Präzision hergestellt werden [Jup12; Lap09]. Zudem zeigen empirische Studien, dass es technologisch äußerst anspruchsvoll ist, die laterale Schichtdickenhomogenität, auch in Bezug auf die Materialzusammensetzungen, bei der Implementierung ternärer Mischungen in binäre Schichtsysteme konstant zu halten. Nichtsdestotrotz sind optische Schichten mit einstellbaren optischen Parametern essentiell für die Verbesserung der laserinduzierten Zerstörfestigkeit von optischen Dünnschichtkomponenten. In diesem Kapitel soll eine neuartige Alternative zu ternären Kompositen vorgestellt werden.

Gegenstand des aktuellen Kapitels ist es somit, ein neues Konzept anzuwenden, mit dem sich eine neue Flexibilität für die Einstellung von optischen und elektronischen Parametern von amorphen Schichten erreichen lässt. Wie bei kristallinen Materialien kann die optische Bandkante manipuliert werden, indem eine hochbrechende Schicht in eine Matrix aus niedrigbrechenden Schichten eingebettet wird. Dadurch ergibt sich eine räumliche Konzentration der Wellenfunktion bzw. der Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen. Im Grundlagenkapitel der optischen Materialien wurden die theoretischen Voraussetzungen für die folgenden experimentellen Untersuchungen mit quantisierenden Nanolaminaten dargestellt. Es werden erstmalig quantisierte amorphe Schichtstrukturen hergestellt, optisch charakterisiert und mit Modellrechnungen korreliert. Im Anschluss werden Experimente und Studien vorgestellt, um die Quantisierung in amorphen Materialien zu verifizieren. Ein großes Anwendungspotential bieten die modifizierten optischen Bandkanten für die Steigerung der laserinduzierten Zerstörschwelle. Weitergehend wird die Zerstörfestigkeit der

hergestellten amorphen Nanolaminaten gemessen. Als alternatives Verfahren zur Manipulation der optischen und elektronischen Parameter und der damit verbundenen Steigerung der Zerstörschwelle hat sich in einigen Bereichen der Hochleistungs-Optikherstellung die Anwendung von ternären Mischungen etabliert. Der Vergleich von ternären Kompositen und amorphen Nanolaminaten gestattet einen detaillierten Einblick in die Physik von Kompositen und Nanolaminaten. Somit konzentrieren sich die nachfolgenden Abschnitte auf den Vergleich der Eigenschaften der beiden Konzepte. Das Kapitel schließt mit einem Konzept zur Evaluierung einer minimalen Barrieren-Schichtdicke abhängig von der Laserintensität.

6.1 Charakterisierung von amorphen Nanolaminaten

Eine amorphe Nanolaminatstruktur wird in dieser Arbeit als eine periodische Schichtabfolge $(LH)^N L$ mit der Schichtpaaranzahl N definiert, wobei die Schichtdicke der Einzelschichten so dünn ist, dass die Einzelschicht einen vernachlässigbaren Einfluss auf die optischen Eigenschaften des Systems hat und die Gesamtheit der Schichten als optische Funktionsschicht betrachtet werden kann (Abb. 6.1). Bei quantisierenden Nanolaminaten müssen die Schichtdicken so gering sein, dass aus den strukturellen Eigenschaften eine signifikante Verschiebung der optischen Bandkante gegenüber der ursprünglichen Bandkante des hochbrechenden Materials erfolgt. Für $N = 1$ ergibt sich die bereits beschriebene Grundstruktur aus einem hochbrechenden Material H (Quanten-Well (QW)) mit Brechwert n_{High} eingebettet in eine Matrix aus einem niedrigbrechenden Material L (Barrier (BA)) mit Brechwert n_{Low} .

Für einen experimentellen Nachweis wird zunächst Ta_2O_5 als hochbrechendes und SiO_2 als niedrigbrechendes Material gewählt. Ziel ist es, eine spektrale Verschiebung hin zu kürzeren Wellenlängen im Transmissionsspektrum für hergestellte Proben mit kleiner werdenden QW-Breiten aufzuzeigen. Anschließend wird die spektrale Verschiebung durch die Bestimmung der optischen Bandkante mit Hilfe des Tauc-Formalismus quantifiziert (Kapitel 4.5).

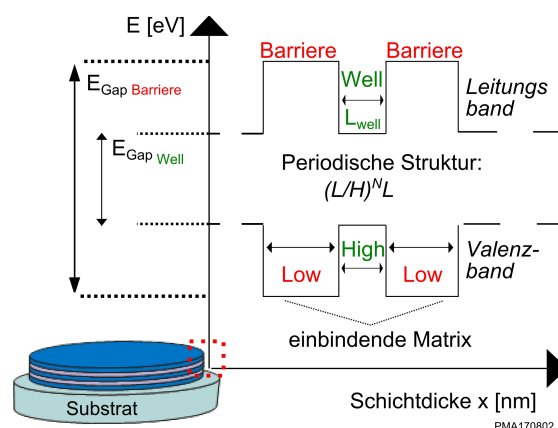


Abbildung 6.1: Schematische Darstellung der periodischen Struktur zur Formierung eines amorphen Nanolaminats.

Zum experimentellen Nachweis wurden sechs verschiedene Probensets hergestellt, die sich jeweils in der Breite des QW unterscheiden. Der Fokus liegt hierbei auf dem Nachweis der spektralen Verschiebung der optischen Bandkante, aufgrund der postulierten Quantisierung in den hochbrechenden Schichten mit kleiner werdenden QW-Breiten. Im ersten Ansatz werden die Barriere-Schichten mit einer Breite von 20 nm konstant gehalten, so dass diese ausreichend groß gewählt sind, um einen Einfluss des Tunneleffektes auszuschließen. Die physikalische Gesamtdicke wird mit (383 ± 10) nm ebenfalls konstant gehalten, sodass diese einer Gesamtschichtdicke von 3 QWOT bei einer Zentralwellenlänge von 800 nm entspricht (Tabelle 6.1). Die Wahl dieser Geometrie stellt eine ausreichend optische Schichtdicke für die Messung des charakteristischen spektralen Verhaltens in den Transmissions- und Reflexionskurven sicher. Das spektrale Transmissions- und Reflexionsverhalten von den hergestellten Nanolaminaten ist dabei äquivalent zu dem von "klassischen" dielektrischen Einzelschichten (Abb. 6.2). Die physikalische Gesamtschichtdicke und die Dispersionsdaten können somit, bzw. mit Hilfe des Sellmeier-Formalismus, mit einer Genauigkeit von $\pm 1\%$ beschrieben werden.

Tabelle 6.1: Übersicht über die hergestellten Nanolamine.

L_{well} [nm] (Ta₂O₅ oder HfO₂)	Barriere [nm] (SiO₂)	Design	Physikalische Gesamtdicke [nm]
200	0	H	200
20	20	(LH) ⁹ L	380
8	20	(LH) ¹³ L	384
4	20	(LH) ¹⁵ L	380
2	20	(LH) ¹⁶ L	372
1	20	(LH) ¹⁷ L	377
0,5	20	(LH) ¹⁸ L	389

Hergestellt werden die Proben mit dem in Kapitel 4.2 beschriebenen IBS-Verfahren. Die optische Bandkante der Ta₂O₅-Einzelschicht wurde über den Tauc-Plot zu $E_{gap} = 4,29$ eV bestimmt und liegt damit in guter Übereinstimmung mit Literaturwerten [Cev95]. Schichtdicken, die größer sind als 4 nm, werden mit dem Breitbandmonitor abgeschaltet. Schichtdicken kleiner als 4 nm werden per Zeit terminiert. Die stabilen Raten im IBS-Prozess garantieren eine genau zeitliche Abschaltung. Gegenüber einer klassischen Ta₂O₅-Einzelschicht lässt sich die optische Bandkante unter Verwendung einer quantisierenden Nanolaminatstruktur mit QW-Breiten von 0,5 nm experimentell um $\Delta E_{Gap} = 0,81$ eV steigern. Die optische Bandkante lässt sich somit um ca. 46 nm zu kürzeren Wellenlängen schieben. Der Brechwert

verringert sich gegenüber einer Ta_2O_5 -Einzelschicht linear um bis zu $\Delta n_0 = 0,57$ für die Nanolaminatstruktur mit einer QW-Breite von 0,5 nm und Barriere-Dicken von 20 nm (Abb. 6.3). Dem quadratischen Anstieg der optischen Bandkante steht also ein linearer Abfall des Brechungsindex gegenüber.

In einem nächsten Schritt werden die theoretischen Berechnungen zur Verschiebung der optischen Bandkante mit den experimentell bestimmten optischen Bandkanten validiert. Durch die Wahl der effektiven Elektronenmasse m_e^* als Fitparameter lassen sich mehrere berechnete Kurven der optischen Bandkanten über die QW-Breite auftragen. Die endliche energetische Tiefe wird dabei aus der Differenz der optischen Bandkanten von Ta_2O_5 und der experimentell bestimmten optischen Bandkanten von SiO_2 mit $E_{gap} = 7,5\text{ eV}$ definiert (vgl. Gleichung 3.8 - Kapitel 3.1). Aus dem Abgleich mit den experimentellen Daten kann die Bestimmung der effektiven Elektronenmasse m_e^* für das hochbrechende Material erfolgen. Im Fall von Ta_2O_5 kann die effektive Elektronenmasse zwischen $m_e^* = (0,7 - 0,9) m_e$ abgeschätzt werden (Abb. 6.4). In vorangegangenen Studien wurde die effektive Elektronenmasse von Ta_2O_5 mit $m_e^* = 0,8 m_e$ bestimmt [Ant67]. Die diskutierten Unsicherheiten in der Bestimmung der optischen Bandkante (Kapitel 4.5) führen zu einem Fehlerintervall bei der Korrelation der Messdaten mit den berechneten Kurven (Abb. 6.4). Ferner ist die absolute Bestimmung der optischen Bandkante abhängig von dem gewählten Auswerteverfahren. Bandkantenbestimmungen mit der Urbach-Methode liefern beispielsweise für die hier erfolgten Untersuchungen höhere Absolutwerte. Solange innerhalb einer Messreihe nicht zwischen verschiedenen Auswertemethoden variiert wird, haben die systematischen Messabweichungen der Bandkantenbestimmung keine Auswirkungen auf die Vergleichbarkeit innerhalb einer Studie [Bea93; Urb53]. Eine alternative Messmethode zur Bestimmung der optischen Bandkante, die nicht von Zwischenzuständen in den Bandstrukturen beeinflusst wird, könnte durch Photo-Fluoreszenz-Messungen an

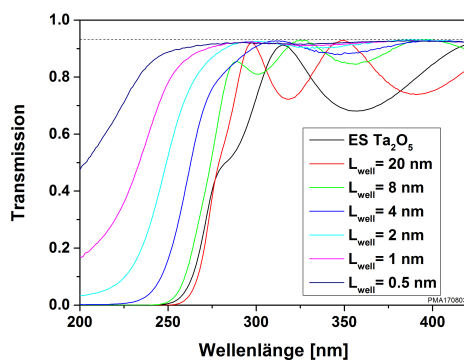


Abbildung 6.2: Spektrale Transmissionskurven für die hergestellten Nanolaminatstrukturen aus Tabelle 3.

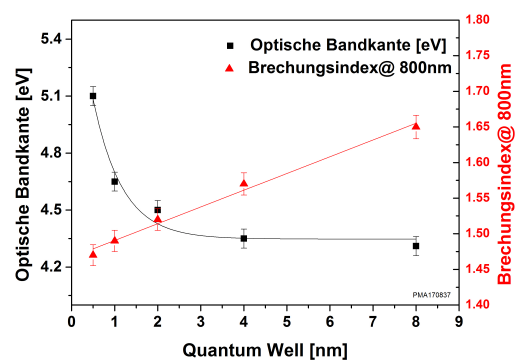


Abbildung 6.3: Evaluation der optischen Bandkante und des Brechungsindex in Abhängigkeit der Quanten-Well Breite für die hergestellten Nanolaminatstrukturen.

heruntergekühlte Nanolaminat-Proben (Nahe dem absoluten Nullpunkt) erfolgen.

Die Quantisierung und die Formation zu einer amorphen Nanolaminatstruktur sollten nur indirekt von der Wahl des hochbrechenden Materials abhängen. Vor diesem Hintergrund wurde das hochbrechende Material Ta_2O_5 durch Hafniumdioxid (HfO_2) substituiert und der Probensatz analog zu den Nanolaminatdesigns aus Tabelle 6.1 hergestellt und charakterisiert. Die Anpassung der numerischen Lösungen von QW-Strukturen mit HfO_2 liefert, unter Einbeziehung analoger Messunsicherheiten, wie bereits für Ta_2O_5 diskutiert, eine effektive Elektronenmasse im Intervall von $m_e^* = (0,4 - 0,6) m_e$ (Abb. 6.5). In der Literatur wird die effektive Elektronenmasse von HfO_2 mit $m_e^* = 0,29 m_e$ angegeben [Jup11]. Die Diskrepanz kann durch die unterschiedlichen Herstellungsmethoden und Messverfahren begründet werden. Gegenüber einer HfO_2 -Einzelschicht lässt sich die optische Bandkante um ca. 40 nm spektral zu kürzeren Wellenlängen verschieben und ist damit vergleichbar mit der absoluten spektralen Verschiebung der optischen Bandkante für quantisierte Ta_2O_5 -Nanolaminat. Wird als Definition für die Quantisierungsschwelle eine spektrale Verschiebung in den kurzwelligen Bereich von mindestens 10 nm bei einer Halbierung der Quanten-Well Breite definiert, so tritt eine Quantisierung für HfO_2 und Ta_2O_5 -Nanolaminat ab einer QW-Breite kleiner als 4 nm auf. Dies ergibt sich sowohl aus den experimentellen Daten als auch aus der theoretischen Modellierung des Potentialtopfes. Unter Einbeziehung der diskutierten Messunsicherheiten bei der Bestimmung der optischen Bandkanten sowie der Schichtdickengenauigkeit wird so eine Methode dargestellt, um die effektive Elektronenmasse von amorphen Materialien experimentell zu approximieren. Nichtsdestotrotz müssen die hergestellten Nanolaminat noch weiter validiert werden. Zum einen wurde für die in diesem Unterkapitel vorgestellten Nanolaminat die physikalische Gesamtschichtdicke mit einer Toleranz von 10 nm konstant gehalten. Proben mit dünneren

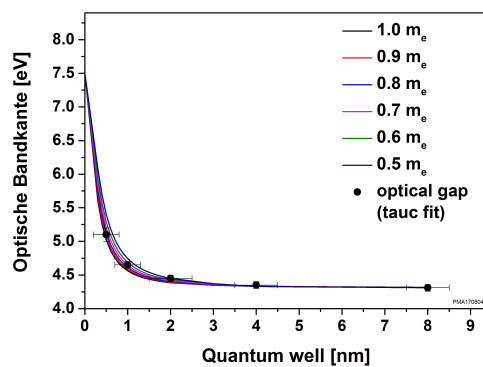


Abbildung 6.4: Experimentell bestimmte optische Bandkanten korreliert mit berechneten Werten für Ta_2O_5 . Die effektive Elektronenmasse kann dabei als Fitparameter variiert werden.

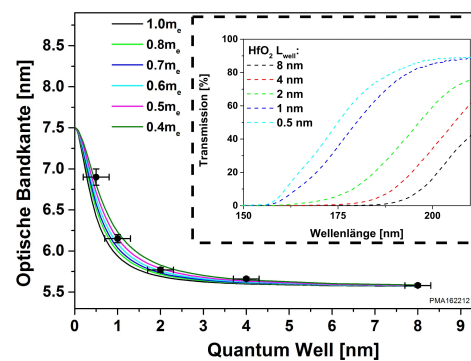


Abbildung 6.5: Analog zum Ta_2O_5 Experiment durchgeführte Messreihe mit HfO_2 -Nanolaminaten und den abgebildeten spektralen Transmissionsmessungen.

QW-Breiten sind so durch einen niedrigeren Absolutanteil an hochbrechendem Material charakterisiert. Es muss experimentell ausgeschlossen werden, dass die gemessene spektrale Verschiebung durch den geringer werdenden Absolutanteil des hochbrechenden Materials verursacht wird. Zum anderen ist es erforderlich aufzuzeigen, dass die periodische Struktur $(LH)^N L$ für die hier gewählten kleiner werdende QW-Breiten nicht in eine homogene ternäre Mischung übergeht und so den Effekt der gemessenen spektralen Verschiebung zu kürzeren Wellenlängen verfälscht. Die dritte essentielle Bedingung für die Bestätigung des Konzeptes von amorphen, quantisierenden Nanolaminaten ist der experimentelle Nachweis, dass sich die optische Bandkante nicht für kleiner werdende Barriere-Schichtdicken ändert, solange diese dick genug sind, um das Tunneln der Elektronen ausreichend zu unterdrücken. Im nächsten Abschnitt werden diese drei Bedingungen experimentell an amorphen Nanolaminatstrukturen verifiziert.

6.2 Nachweis von Nanolaminatstrukturen

Bislang wurden die Designparameter für die hergestellten und charakterisierten Nanolamine so gewählt, dass die Barriere und die physikalische Gesamtdicke d_{phy} konstant gehalten wurden. Das Ta_2O_5 -Nanolaminat mit einer QW-Breite von $L_{well} = 8$ nm beinhaltet absolut einen Gesamtanteil an Ta_2O_5 von $d_{Ta} = 104$ nm und einem absoluten SiO_2 -Anteil von $d_{Si} = 280$ nm. Mit abnehmender QW-Breite und einer SiO_2 -Gesamtschichtdicke von $d_{Si} = 380$ nm verringert sich der Ta_2O_5 -Absolutanteil von 27,1 % auf 3,2 % für die Nanolaminatstruktur mit $L_{well} = 0,5$ nm auf $d_{Ta} = 9$ nm. Zunächst ist somit auszuschließen, dass die spektrale Verschiebung nicht aufgrund des für das gewählte Beispiel um ca. 23,9 % geringeren Anteils an Ta_2O_5 gemessen wurde. Zur Überprüfung werden Nanolamine hergestellt mit einer konstant gehaltenen absoluten Ta_2O_5 -Schichtdicke von $d_{Ta} = (33 \pm 1)$ nm sowie einer konstanten Schichtdicke von wiederum 3 QWOT bei 800 nm. Die QW-Breite wird dabei in vier Beschichtungschargen jeweils von 8, 2, 1 und 0,5 nm variiert. Die Dicke der SiO_2 -Barriere-Schichten variieren zwischen den hergestellten Proben, und sind so gewählt, dass die physikalische Gesamtdicke 3 QWOT entspricht. Die spektralphotometrischen Transmissionsmessungen zeigen eine analoge Verschiebung der optischen Bandkante zu den bereits charakterisierten Nanolaminaten mit abnehmenden Ta_2O_5 -Anteil von ca. 43 nm (Abb. 6.7). Die Verschiebung der optischen Bandkante ist somit nicht auf einen reduzierten Ta_2O_5 -Anteil zurückzuführen.

In einem nächsten Schritt gilt es auszuschließen, dass eine alternierende Schichtstruktur aus hoch- und niedrigbrechendem Material ab einer gewählten Schichtdicke von nur wenigen Atomlagen in ein ternäres Komposit übergeht. Zu überprüfen ist, ob die Grenzflächen eines Nanolaminates zwischen den Schichten noch eindeutig definiert sind. Es ist also erforderlich, den Querschnitt eines dielektrischen Schichtsystems mikroskopisch zu analysieren. Eine erforderliche laterale Auflösung von besser als 1 nm schränkt die Auswahl möglicher Mikroskope deutlich ein. Für diese Untersuchung erscheint das Transmissionselektronenmi-

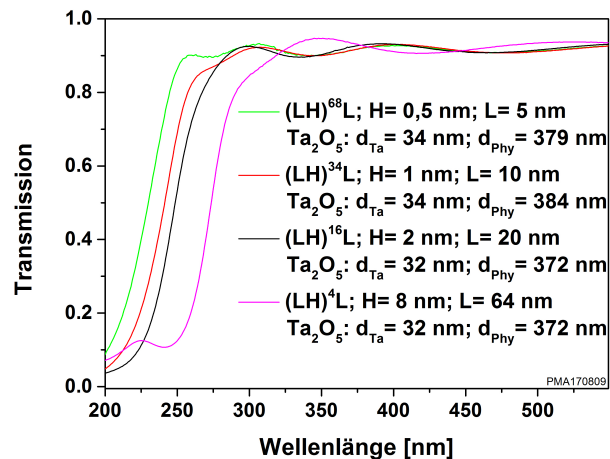


Abbildung 6.6: Transmissionsverhalten von Nanolaminaten mit einem absolut konstanten Anteil an Ta_2O_5 .

kroskop¹ (TEM) am besten geeignet. Elektronen werden auf max. 200 keV beschleunigt und durchstrahlen eine im Vakuum montierte Probe. Damit die Elektronen das Objekt durchdringen können, darf der präparierte Querschnitt nur wenige nm dick sein. Bei den Aufnahmen in Abb. 6.7 handelt es sich um Hellfeld-Aufnahmen. Der Kontrast entsteht durch die unterschiedlichen Massen, wobei auch die Schichtdicken des Präparates einen Einfluss haben (in die Bildebene hinein der jeweiligen präparierten Querschnitte). Die Dicke der Querschnitte ist durch die Präparations immer identisch, und damit ist der Kontrast ausschließlich durch die Masse der Atome bestimmt. Tantal hat eine Atommasse von 181 u und Silizium von 28 u. Entsprechende Ta_2O_5 -Schichten erscheinen im Hellfeld-Bild dunkel. Für diese Untersuchung ist ein alternierendes Schichtsystem $(HL)^{23}$ mit einer physikalischen Gesamtdicke von $d_{Phy} = 2,4 \mu m$ hergestellt worden. Nanolaminatstrukturen mit reduzierten QW-Breiten und konstanten Barriere-Schichtdicken von 20 nm, die analog zu den bereits diskutierten Proben sind, sind in oberen Bereichen des Stapels lokalisiert. Die Analyse des TEM-Bildes zeigt, dass einzelne Schichten bis unterhalb von 1 nm klar aufgelöst werden können. Die Grenzflächen zwischen den Schichten lassen sich aufgrund des hohen Kontrastverhältnisses klar identifizieren (Abb. 6.7). Speziell für konzeptionierte Ta_2O_5 -Schichtdicken von 1 nm können die Grenzflächen zu angrenzenden SiO_2 Schichten gut aufgelöst werden. Ein Aufweichung der Grenzflächen und ein Übergang in ein ternäres Komposit lässt sich mit dieser Analyse ausschließen. In einem ausgewählten Bereich lassen sich Ta_2O_5 -Schichten mit einer Dicke von $(1,3 \pm 0,5) nm$ vermessen und die SiO_2 -Schichten

¹ Gerätetyp: TEM Tecnai G2 F20 TMP von Fa. FEI. Die aufwendige Probenpräparation und die Messungen wurden am Laboratorium für Nano- und Quantenengineering (LNQE) der Leibniz Universität Hannover durchgeführt.

mit $(20 \pm 0,5)$ nm (Abb.6.7 - rechts). Unter Berücksichtigung der Fehlergrenzen bestätigen die TEM-Untersuchungen somit die physikalischen Schichtdicken des Designs. Die geringfügige Diskrepanz könnte aufgrund der komplexen Analyse des präparierten Querschnittes entstehen. Die Probe zeigt keine kristallinen Strukturen und lässt sich somit nicht über entsprechende Beugungsreflexe orientieren, was eine exaktere Messung der Schichtdicke ermöglichen würde. Bei dieser Messung wird die Probe solange gekippt und fokussiert, bis die dünnsten Ta_2O_5 -Schichten im ausgewählten Bereich am schmalsten erscheinen. Je nach Dicke des Präparats würde eine Rotation um 2 bis 3° ausreichen, um bei einer 0,5 nm dicken Schicht eine 1,5 nm breite Projektion zu erzeugen. Abseits der diskutierten Problematik in der Schichtdickenbestimmung ist es für diese Untersuchung nicht entscheidend, die hergestellten Schichtdicken auf einen halben Nanometer genau zu verifizieren. Vielmehr liegt der Fokus der Studie auf dem Nachweis von klaren Grenzflächen zwischen den Schichten mit Dicken von weniger als 2 nm, die die signifikanten Quantisierungseffekte hervorrufen.

Die Exklusion eines Übergangs zu einem ternären Komposit für Nanolamine und die Bestätigung der spektralen Verschiebung der quantisierten Zustände, die unabhängig von dem absoluten Ta_2O_5 -Anteil sind, liefern eine eindeutige Indikation für die Veränderung des elektronischen Confinement aufgrund der kleiner werdenden QW-Breite in der Nanolaminatstruktur. In einer abschließenden Versuchsreihe gilt es, die theoretischen Überlegungen zum Eindringen der Elektronen aus den Quanten-Well-Schichten in die Barriere-Schichten experimentell zu verifizieren. Solange die Barriere-Schicht-Dicke signifikant größer ist als die Tunnelreichweite, sollte sich bei einer konstant gehaltenen QW-Breite die optische Bandkante nicht ändern. Für eine angenommene QW-Breite von 1 nm und einer effektiven Elektronenmasse von $m_e^* = 0,8 m_e$ folgt, dass die Barriere bei Ta_2O_5 nicht dünner als

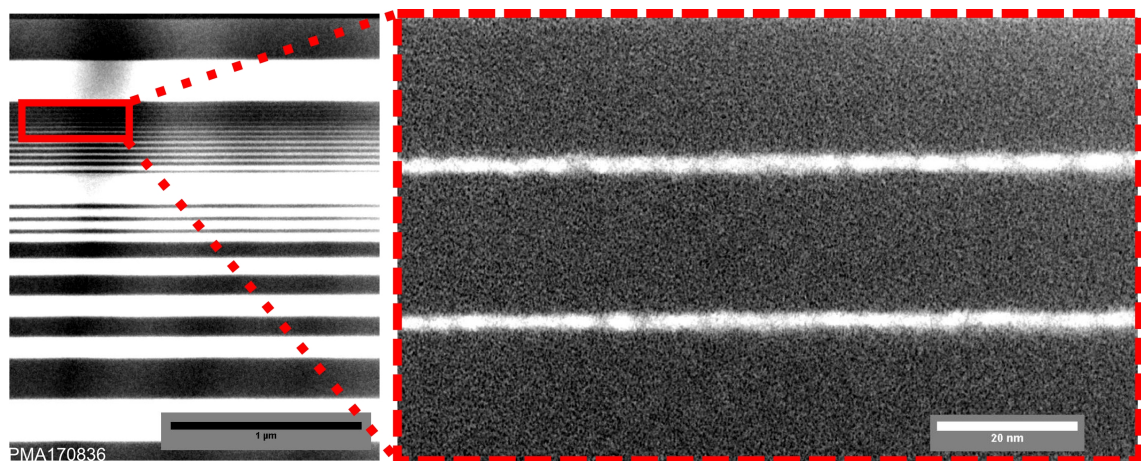


Abbildung 6.7: Querschnitt einer alternierenden dielektrischen Schichtstruktur aus Ta_2O_5 (helle Balken) und SiO_2 (dunkle Balken) aufgenommen mit einem Hellfeld Transmissionselektronenmikroskop. Für eine bessere Darstellung sind die Farben invertiert.

0,17 nm gewählt werden darf, da sonst die Elektronen durch die Barriere-Schicht tunneln können (vgl. Tabelle 3.1 – Kapitel 3.1.2). Zur Überprüfung dieser Arbeitshypothese werden fünf Probensätze von Nanolaminaten hergestellt. Im Gegensatz zu den vorherigen Nanolaminaten wird nun die Breite des Quanten-Well mit 1 nm konstant gehalten und die Barrierendicke mit jeweils 20, 10, 5, 1 und 0,5 nm entsprechend variiert. Der relative Ta₂O₅-Anteil steigt in den Proben mit kleiner werdenden Barriere-Dicken. Ein Anteil von Ta₂O₅ zu SiO₂ von 1:20 resultiert in einen Brechungsindex von $n_{1:20} = 1,49$ bei einer Zentralwellenlänge von $\lambda_Z = 800$ nm. Für Barriere-Dicken von 0,5 nm (Verhältnis 1:0,5) erhöht sich der Brechungsindex auf $n_{1:0,5} = 1,89$ (Abb. 6.8). Der Brechwert lässt sich über die Wahl der Barriere-Dicke innerhalb der Intervallgrenzen des niedrigbrechenden und hochbrechenden Materials und dem Verhältnis aus minimaler QW und Barriere-Dicke gezielt einstellen. Über folgenden Zusammenhang kann der jeweilige Brechwert im Nanolaminat quantifiziert und mit spektralphotometrischen Messungen validiert werden:

$$n_{nano} = \frac{n_H d_{QW} + n_L d_{barriere}}{d_{QW} + d_{barriere}} \quad (6.1)$$

mit dem Brechwert n_{nano} des Nanolaminats, dem Brechwert n_H des binären hochbrechendem Material im Quanten-Well und dem entsprechenden Brechwert n_L des binären niedrigbrechenden Materials der Barriere-Schichten. d_{QW} und $d_{barriere}$ bezeichnen die physikalischen Schichtdicken der periodisch gewählten Quanten-Well und Barriere Breiten.

Intuitiv ist das Verhältnis aus minimaler Barriere und QW-Breite durch die Größe der Atomlagen von SiO₂ und Ta₂O₅ geometrisch limitiert. Eine experimentelle Verifizierung, ob sich die optische Bandkante für Barriere-Dicken unterhalb der maximalen Eindringtiefe der Elektronen in die Barriere-Schichten reduziert, lässt sich nicht durchführen, da die theoretische Tunnellänge unterhalb des Durchmessers einer SiO₂-Elementarzelle liegt. Auch bei amorphen Materialien stellt die Elementarzelle die kleinst mögliche chemische Einheit dar. Experimentell realisierte SiO₂-Schichtdicken von 0,5 nm entsprechen somit etwa zwei Atomlagen SiO₂ [EK12]. Ebenso lassen sich mit den aufgezeigten Limitierungen und dem gewählten Herstellungsverfahren nicht mehr reproduzierbare Schichten mit weniger als 0,5 nm herstellen. Ferner bestätigt die Analyse des charakterisierten Probensatzes die Unabhängigkeit der spektralen Verschiebung zu kürzeren Wellenlängen von dem absoluten Ta₂O₅ -Gehalt sowie von der physikalischen Gesamtdicke d_{phy} . Der Absolutanteil an Ta₂O₅ ist in der Probe mit einer Barriere von 1 und 10 nm identisch, während sich die physikalische Gesamtdicke unterscheidet (Abb. 6.8).

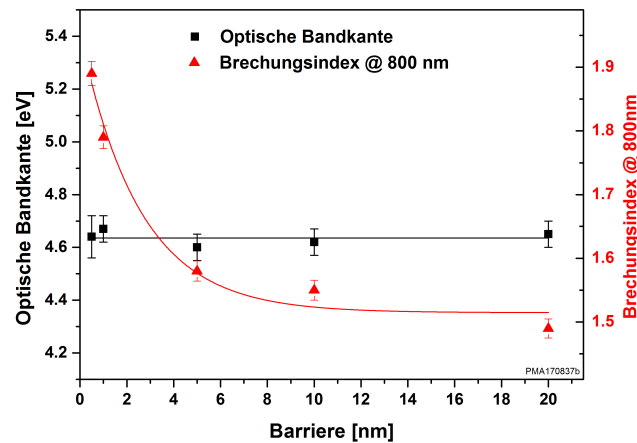


Abbildung 6.8: Evaluation der optischen Bandkante und des Brechungsindex für Nanolamine mit einer konstanten QW-Breite von 1 nm und variierender Barrierschichtdicke.

6.3 Laserinduzierte Zerstörfestigkeit von amorphen Nanolaminaten

Der angewandte Fokus dieser Arbeit liegt auf der Herstellung von Ultrakurzpuls Optiken für Laseranwendungen im fs-Regime. Analysiert werden zunächst die hergestellten HfO₂-Nanolamine (vgl. Tabelle 6.1). Dabei werden die Proben in einem Einfallswinkel von 45° mit Einzelschuss-Laserpulsen ($\lambda_Z = 1030$ nm; $\tau_P = 850$ fs; $f_{rep} = 10$ Hz) mit abnehmender Fluenz bestrahlt. Die Fluenz F_{norm} in J/cm² ist dabei für einen normalen Einfallswinkel definiert. Die auf der Probe eingestrahlte Fluenz ist dementsprechend durch $F_{Probe} = F_{normal} \cos 45^\circ$ gegeben (vgl. Kapitel 4.6). Die experimentellen Ergebnisse der laserinduzierten Zerstörschwellen-Messungen lassen sich mit Berechnungen der LIDT korrelieren (vgl. Kapitel 2.3 - Abb. 2.6). Die Rechnungen basieren auf dem Anregungsprozess in HfO₂ und können qualitativ auf die Nanolaminatstruktur übertragen werden (Abb. 6.9). Im quantisierten Nanolaminat findet der Anregungsprozess der Elektronen im hochbrechenden QW-Material statt. Hingegen können aufgrund der geringen Dicke der QW von wenigen nm und der hohen Schmelztemperatur von HfO₂ Schmelzeffekte in den SiO₂-Barrierschichten angenommen werden. Die marginale Differenz in der Zerstörschwelle lässt sich innerhalb der Fehlertoleranzen in der LIDT Messung nicht unterscheiden. Der Vergleich der experimentellen Ergebnisse der aufgetragenen LIDT H_{rel} über die optische Bandkante stimmt qualitativ mit dem auf Grundlage des kritischen Temperatur- und des kritischen Elektronenmodells berechneten Verlauf überein (Abb. 6.9). Dabei sind die LIDT Werte von der maximalen Intensität der Feldstärke entkoppelt und auf den maximalen Wert zu H_{rel} normiert. Zwischenbandzustände in amorphem Material wirken sich unterschiedlich auf die experimentell bestimmte absolute optische Bandkante aus, wie der Vergleich der ermittelten optischen Bandkante mit dem Tauc- und Urbach-Formalismus hier exemplarisch verdeutlicht. Der qualitative Verlauf beider Bandkanten stimmt sehr gut

mit der theoretischen Vorhersage überein [Bea93].

Neben der demonstrierten qualitativen Übereinstimmung von modellierter und experimentell bestimmter Einzelschusszerstörschwelle ist insbesondere auch das Verhalten der Zerstörschwelle von dielektrischen Proben unter einer Bestrahlung mit einer Vielzahl von Pulsen S interessant ($S:1$). Im Vergleich zu HfO_2 ist Ta_2O_5 durch einen höheren Brechwert im Nah-Infraroten-Spektralbereich charakterisiert. Das prinzipielle Aufzeigen einer erfolgreichen Implementierung von Nanolaminatstrukturen in komplexe dielektrische Schichtsysteme scheint zunächst mit der Wahl von Ta_2O_5 -Nanolaminaten zielführender zu sein. Somit werden im Folgenden die Zerstörswellen der hergestellten Ta_2O_5 -Nanolamine bei einer Bestrahlung von 10.000 Pulsen ermittelt. Für eine bessere Vergleichbarkeit der Zerstörswellen untereinander wird die interne LIDT berechnet und im Anschluss auf den maximalen Wert normiert. Innerhalb des untersuchten Dynamikbereiches der optischen Bandkante von 4,3 bis 4,65 eV folgt eine linear ansteigende Zerstörschwelle (Abb. 6.11), die mit der empirisch ermittelten Relation von Mero korreliert (Gleichung 2.12 – Kapitel 2.4) [Mer05]. Gegenüber einer Einzelschicht aus Ta_2O_5 lässt sich die relative LIDT um annähernd 60 % steigern für ein Ta_2O_5 -Nanolaminat mit einer QW-Breite von 1 nm und einer Barriere von 20 nm. Die absolut gemessene LIDT ergibt sich zu $H_{10n1} = 1,5 \text{ J/cm}^2$ (bei einer Laserwellenlänge von $\lambda_Z = 775 \text{ nm}$) und liegt somit unterhalb der Zerstörschwelle des Substrats. Auf Grundlage von Untersuchungen an binären Oxiden und ternären Kompositen kann davon ausgegangen werden, dass ein weiterer linearer Anstieg der LIDT für Nanolaminat mit einer QW-Breite von weniger als 1 nm erfolgt. Eine quantitative Analyse erfordert Substrate, die weitaus dünner sind als die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Substrate mit einer Dicke von 1 nm. Auf diese Weise könnten Selbstfokussierungseffekte im Substrat, welche eine Substraterstörung induzieren können, weitgehend unterdrückt

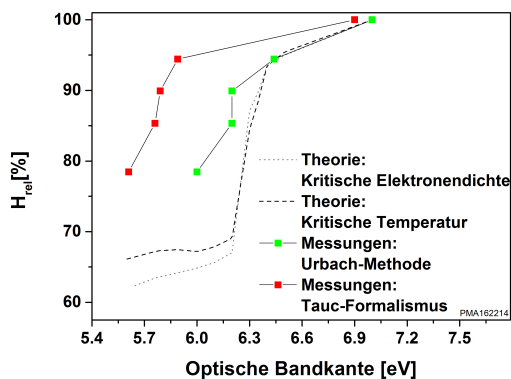


Abbildung 6.9: Vergleich zwischen theoretischem und experimentellen Zerstörswellenverhalten für HfO_2 -Nanolaminat.

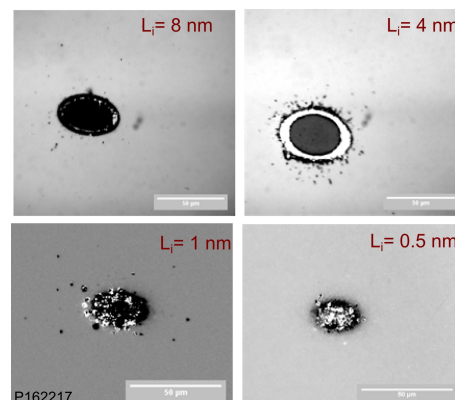


Abbildung 6.10: 1:1 Zerstörmorphologie von HfO_2 - SiO_2 Nanolaminaten. L_i bezeichnet die Breite des Quantenwells.

werden [Jür15].

Relevant für die hier durchgeführten Messungen der laserinduzierten 1:1-Zerstörschwelle von HfO_2 -Nanolaminaten und für die S:1 - Messung der Ta_2O_5 -Nanolaminaten ist in erster Linie der Nachweis des stetigen Anstieges der LIDT für Nanolaminaten mit kleiner werdenden Quanten-Well-Breiten. Der Anstieg der LIDT liefert einen weiteren wichtigen Indikator für eine einsetzende Quantisierung des hochbrechenden Materials. Die für HfO_2 und Ta_2O_5 - Nanolaminatstrukturen einsetzende Quantisierung des Materials deutet sich auch in der mit einem Nomarski-Mikroskop analysierten Zerstörungsmorphologie an (hier exemplarisch Anhand von Ta_2O_5 -Nanolaminaten mit $L_{well} = 8 \text{ nm}$ und 2 nm (Abb. 6.12). Dabei lassen sich unterschiedliche thermische Einflussbereiche unterscheiden, die allerdings auch auf unterschiedliche Ta_2O_5 -Konzentrationen zurückzuführen sein könnten. Bei HfO_2 -Nanolaminaten wurden ähnlich deutliche Veränderungen in der Morphologie der Zerstörung beobachtet (Abb. 6.10).

Insbesondere die demonstrierte Steigerung der laserinduzierten Zerstörschwelle bietet die Möglichkeiten zur Verbesserung der Laserleistungsstabilität von hochqualitativen dielektrischen Optiken. Ein vergleichbares Konzept zur stetigen Steigerung der laserinduzierten Zerstörschwelle sind die bereits diskutierten ternären Kompositen, die mit der „Ion-Beam-Co-Sputter“ Technik hergestellt werden können. Abhängig von der Targetposition lässt sich die optische Bandkante einstellen und führt zu einer Manipulation der laserinduzierten Zerstörschwelle. Einem detaillierten Vergleich beider Konzepte zur gezielten Manipulation der optischen Eigenschaften, bezogen auf Brechwert, optische Bandkante und der damit einhergehenden LIDT gilt das nächste Unterkapitel.

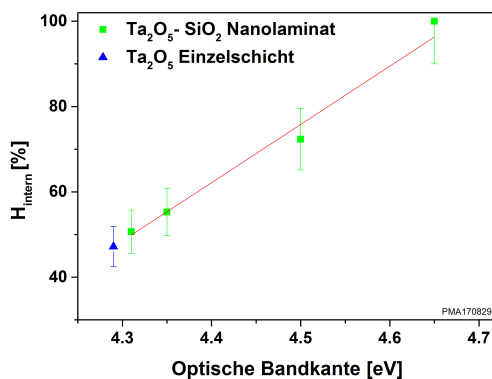


Abbildung 6.11: Experimentell ermittelte Zerstörschwellen für Ta_2O_5 Nanolaminaten für 10.000:1 Messungen nach ISO21254.

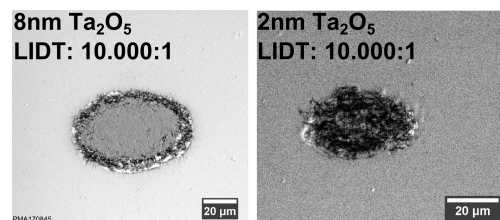


Abbildung 6.12: Typische Zerstörungsmorphologie für Ta_2O_5 Nanolaminaten nach einer Bestrahlung mit 10.000 Pulsen.

6.4 Vergleich der optischen Eigenschaften von ternären Kompositen und Nanolaminaten

6.4.1 Optische Parameter

Die im Rahmen dieser Arbeit zur Verfügung stehende IBS-Anlage ist mit einem linearen Translationstisch ausgestattet (Kapitel 4.2). Es können sowohl ternäre Mischungen als auch Einzel- oder Wechselschichtsysteme aus einem hoch- oder niedrigbrechendem Material hergestellt werden. Der quantitative Vergleich der Evaluation des Brechwertes und der optischen Bandkante wird im Folgenden für die Oxide von Tantal und Silizium präsentiert. Insgesamt werden abhängig von der Targetposition neun ternäre $Ta_xSi_yO_z$ -Komposite mit einer physikalischen Dicke von 300 nm hergestellt. Durch die sukzessive Erhöhung des SiO_2 -Anteils in den hergestellten Kompositen kann die optische Bandkante um $\Delta E_{Gap} = 1,06$ eV im Vergleich zu einer binären Ta_2O_5 Einzelschicht ($E_{Ta_2O_5} = 4,29$ eV) erhöht werden. Der Brechwert n_{ref} verringert sich auf 1,49 und entspricht damit dem Brechwert von SiO_2 (Abb. 6.13 – schwarze Datenpunkte). Das Mischungsverhältnis wird über den Brechwert mit der Lorentz-Lorenz Formel abgeschätzt [Mic37]. Insgesamt sind der Brechwert und die optische Bandkante fest über das eingestellte Mischungsverhältnis $Ta_xSi_yO_z$ determiniert, das heißt, es gibt keine Möglichkeit, die optischen Eigenschaften durch Variation weiterer Designparameter durchzustimmen. Im Gegensatz dazu ist die optische Bandkante in quantisierten Nanolaminaten über die Dicke der hochbrechenden Schicht bestimmt. Im Einklang mit der Theorie ist zu erwarten, dass sich die optische Bandkante bei konstanter QW-Breite nicht ändert, auch wenn die Barriere variiert wird. In Anlehnung an die Untersuchung aus Kapitel 6.2 werden jeweils für konstante QW-Breiten von 8, 2, 1 und 0,5 nm, die Barrieren von 20, 10, 5, 1 und 0,5 nm verringert (vgl. rosa, grüne, rote und braune Kurven in Abb. 6.13). In der Untersuchung werden folglich vier Beschichtungsreihen von Nanolaminaten mit den hergestellten ternären Kompositen verglichen. Die optische Bandkante der Nanolaminat ändert sich durch die entsprechenden Variationen der Barrieren für die jeweiligen festgehaltenen QW-Breiten nicht und gestattet einen einstellbaren Brechungsindex (Abb. 6.8). Mit der erfolgten Untersuchung können einige für die weitere Betrachtung interessante Aussagen im Vergleich zu ternären Kompositen abgeleitet werden. Insbesondere das Verhältnis von Bandkante und Brechwert nimmt hier eine entscheidende Bedeutung ein. Im Einklang mit den theoretischen Vorhersagen weisen Nanolaminat mit einer QW-Breite von 8 nm nur sehr geringe spektrale Blauverschiebungen auf im Vergleich zu einer binären Einzelschicht aus Ta_2O_5 . Der über die Barrieren-Dicke maximal einstellbare Brechwert sowie die zugehörige optische Bandkante korrespondiert mit denen der ternären Komposite, die den gleichen Brechwert und die gleiche optische Bandkante aufweisen (92 % Ta_2O_5 -Anteil im ternären Komposit). Auch für den Absorptionswert folgen vergleichbare Werte mit beispielsweise $k = 1,4 * 10^{-1}$ bei einer Wellenlänge von 266 nm. Für QW-Breiten kleiner oder gleich 4 nm erhöhen sich die optischen Bandkanten deutlich. Hier zeigt sich, dass sich mit den Nanolaminaten ein signifikant größerer Brechwert darstellen lässt als mit den ternären

Kompositen mit äquivalenter optischer Bandkante. Die Brechwerterhöhung wird umso größer, je geringer die gewählte QW-Breite und je größer die zugehörige optische Bandkante ist. Beispielsweise kann gegenüber einem ternären Komposite (16 % Ta_2O_5 im ternären Komposit) mit einer optischen Bandkante von $E_{\text{Gap}} = 5 \text{ eV}$ und einem Nanolaminat mit einer QW-Breite von 0,5 nm der Brechwert um $\Delta n_0 = 0,25$ auf 1,8 gesteigert werden.

Während bei der Anwendung in konventionellen Schichtstapeln eigentlich stets die Maximierung sowohl der optischen Bandkante als auch des Brechwertkontrastes die optimalen Ergebnisse liefert, eröffnet sich über die Herstellung von Nanolaminaten erstmalig die Möglichkeit, fundamentale Prozesse in dielektrischen Schichtsystemen für eine konstante optische Bandkante in Abhängigkeit eines variierenden Brechungsindex zu untersuchen. Derartige Untersuchungen können beispielsweise für die gezielte Anwendung von nichtlinearen Effekten in dielektrischen Schichten große Bedeutung gewinnen [Rod15]. So können beispielsweise Nanolaminat für Untersuchungen der Konversionseffizienz der dritten Harmonischen bei einer Fundamentallaserwellenlänge von 800 nm herangezogen werden. Über die Wahl der QW-Breite des hochbrechenden Materials kann die optische Bandkante flexibel angepasst werden. Eine ausreichende physikalische Gesamtdicke kann über die Periodizität der Schichtabfolge eingestellt werden. Für Ta_2O_5 und SiO_2 konnte ein Nanolaminat hergestellt werden mit insgesamt 500 Schichten und einer Gesamtdicke von ca. 1,6 μm . Die optische Bandkante liegt, an das Experiment angepasst, leicht unter der dritten Harmonischen bei 4,88 eV. Insgesamt charakterisiert sich das Nanolaminat mit einem Brechwert von 1,55 bei 800 nm durch einen Absorptionswert von $k = 6,9 * 10^{-4}$ und liegt damit um einen Faktor 3,33 besser im Vergleich zu einer 0,3 μm dicken ternären $\text{Ta}_x\text{Si}_y\text{O}_z$ Einzelschicht mit einer vergleichbaren optischen Bandkante von 4,87 eV und einem über das Mischungsverhältnis im Komposit fest eingestellten Brechwert von 1,61 bei 800 nm (28 % Ta_2O_5 -Anteil im Komposit) (Abb. 6.14). Hinsichtlich der möglichen Schichtdickenpräzision im Bereich von wenigen Atomlagen im IBS-Prozess und der Notwendigkeit, mindestens eine geschlossene monoatomare Schicht als Barriere oder Quanten-Well zu verwenden, erscheint es derzeit technisch schwer möglich, den Brechwert oder die optische Bandkante von Nanolaminaten noch signifikant durch abnehmende Schichtdicken für entsprechend gewählte Materialkombinationen zu erhöhen, wie es bereits in Kapitel 6.2 für die Reduzierung von der SiO_2 Schichtdicke diskutiert wurde.

Höhere Brechwerte hingegen lassen sich mit weiteren binären Materialien erzeugen. Simulationen mit TiO_2 ($E_{\text{Gap}} = 3,75 \text{ eV}$) anstelle von Ta_2O_5 zeigen mit einer gewählten QW-Breite von 0,5 nm eine einstellbare optische Bandlücke von 4,9 eV (253 nm). Bedingt durch den höheren Brechwert des binären TiO_2 , kann sich der Brechwert des TiO_2 - SiO_2 Nanolaminats auf maximal 1,93 bei einer Wellenlänge von 800 nm steigern lassen. Unabhängig von der Untersuchung möglicher Konversionseffizienzen zur Erzeugung der dritten Harmonischen wäre es beispielsweise auch denkbar, kristalline Materialien als QW-Material in dielektrische Barrieren einzubetten. Die optische Bandkante könnte so in den sichtbaren Spektralbereich

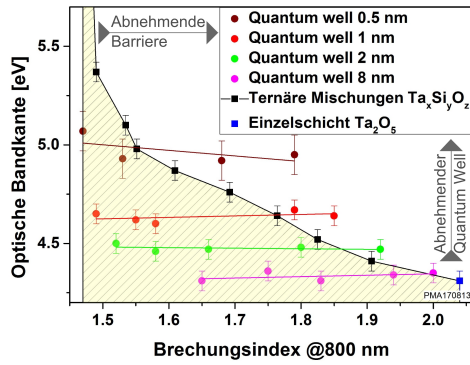


Abbildung 6.13: Gegenüberstellung der Evaluation der optischen Bandkante und des Brechungsindex für Nanolaminat und ternäre Mischungen.

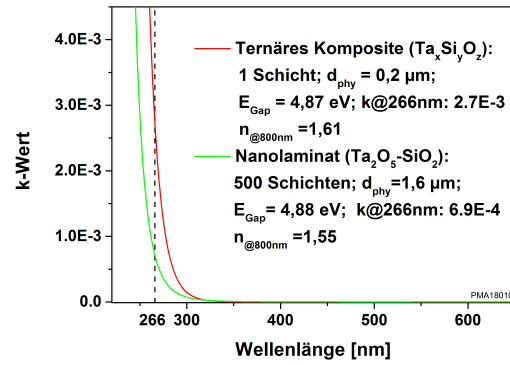


Abbildung 6.14: Vergleich der Absorptionswerte für ein Nanolaminat und eine ternäre Einzelschicht.

verschoben und der Brechwert signifikant gesteigert werden. Am Beispiel von 0,5 nm dicken Si Schichten ($n_{800\text{nm}} = 3,48$) eingebettet in 1 nm dicke TiO_2 ($n_{800\text{nm}} = 2,2$) Schichten kann die simulierte optische Bandkante auf 2,49 eV in den sichtbaren Spektralbereich verschoben werden und ist dabei durch einen Brechwert von 2,73 bei einer Wellenlänge von 800 nm ausgezeichnet. Diese Anwendungen werden jedoch im Rahmen der vorliegenden Arbeit nicht weitergeführt, da sich die Untersuchungen auf das Zerstörverhalten konzentrieren. Sie sollen hier nur als Ausblick erwähnt sein.

6.4.2 Laserinduzierte Zerstörung

Weiterführend ist der direkte Vergleich zwischen ternären $\text{Ta}_x\text{Si}_y\text{O}_z$ -Kompositen und Ta_2O_5 - SiO_2 -Nanolaminatstrukturen bezogen auf die laserinduzierte Zerstörschwelle von großem Interesse für die Leistungssteigerung von komplexen dielektrischen Komponenten in Laserapplikationen für den Ultrakurzpuls Bereich im fs-Regime. Gewählt wird die 10.000:1 LIDT-Messung nach ISO21254 (Pulsdauer $\tau_p = 150$ fs; Wiederholrate $f_{rep} = 1$ kHz; Zentralwellenlänge $\lambda_Z = 775$ nm). Für den Vergleich werden jeweils Ta_2O_5 - SiO_2 Nanolaminat mit QW-Breiten von 8, 4, 2 und 1 nm ausgewählt. Um einen möglichen Einfluss der gewählten Barriere-Dicken auf die LIDT zu minimieren, wird die Barriere mit jeweils 20 nm konstant gehalten (vgl. Tabelle 6.1 – Kapitel 6.1). Dem gegenüber stehen sieben getestete ternäre Mischungen mit einer jeweiligen physikalischen Dicke von 300 nm, die sich in einem vergleichbaren Intervall der optischen Bandkante bewegen. Die Messergebnisse werden jeweils für eine bessere Vergleichbarkeit untereinander durch die relative LIDT H_{rel} vom Brechwert und der Intensität des Feldes entkoppelt:

$$H_{rel} = \frac{HF_H}{H_{max}F_{Hmax}} \quad (6.2)$$

mit $F = |E|^2 n_{ref} / n_0$. Dabei spiegelt H die gemessenen Werte in J/cm^2 wieder und F gibt den Energiefluss¹ an. n_0 bezieht sich dabei auf den Brechungsindex des Einfallmediums, der in diesem Fall durch das Medium Luft mit $n_0 = 1$ gegeben ist. n_{ref} ist der jeweilige Brechungsindex bei der Zentralwellenlänge von $\lambda_z = 775$ nm der analysierten Probe² und $|E|^2$ gibt den maximalen Wert der Intensität des Feldes im jeweiligen Schichtsystem an. Die Ergebnisse werden auf die höchste gemessene LIDT H_{max} normiert und mit dem dazugehörigen Energiefluss $F_{H_{max}}$ multipliziert.

Die maximal gemessene LIDT für das Nanolaminat mit einer QW-Dicke von 1 nm und einer Barriere von 20 nm beträgt $1,52 J/cm^2$ und für die ternäre Mischung $1,51 J/cm^2$ und liegen damit unterhalb einer Substraterstörung. Die Kurvenverläufe der relativen LIDT H_{rel} für die Nanolamine und die ternären Mischungen steigen linear mit wachsender optischer Bandkante an. Im Vergleich zu den ternären Mischungen mit äquivalenten optischen Bandkanten sind die Nanolamine durch eine prozentual höhere LIDT H_{rel} charakterisiert (Abb. 6.15). Die mikroskopische Analyse von charakteristischen Zerstörungen für ternäre $Ta_xSi_yO_z$ Mischungen und Ta_2O_5 - SiO_2 Nanolamine mit jeweils äquivalenten optischen Bandkanten zeigen unterschiedliche Morphologien (vgl. Abb. 6.16) mit einer optischen Bandkante von $E_{Gap} = 4,65$ eV. Die Differenzierung der Morphologien können einen Hinweis auf die Unterschiede in den Zerstörmechanismen geben. Für qualitative Vergleiche ist es

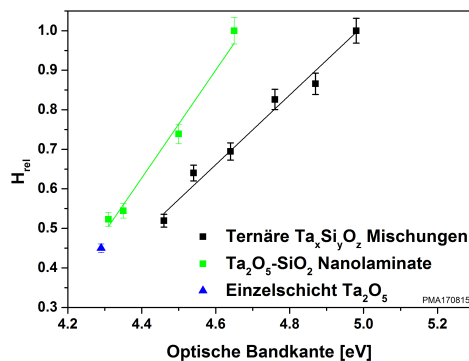


Abbildung 6.15: Vergleich von Ta_2O_5 Nanolaminen und ternären $Ta_xSi_yO_z$ Kompositen für die LIDT von $S : 1$ Messungen.

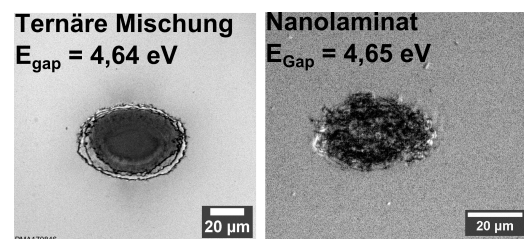


Abbildung 6.16: Vergleich der Zerstör-Morphologie für ein ternäres $Ta_xSi_yO_z$ -Komposit und ein Ta_2O_5 - SiO_2 Nanolaminat für eine äquivalente optische Bandkante.

- 1 Analog zu der bereits vorgestellten Normierung der Feldstärke E , wird auch der Energiefluss F mit der Intensität des Feldes $|E|^2$ innerhalb dieser Arbeit und der verwendeten Software so normiert, dass die Werte immer relativ zum maximal möglichen Wert im Vakuum ausgegeben werden, d.h. der Spitzenwert vor einem HR-Spiegel beträgt 100 %.
- 2 Für ein besseres Verständnis sei an dieser Stelle nochmals wiederholt, dass Nanolamine in ihrem spektralen Verhalten identisch sind mit binären Einzelschichten. Damit kann der kompletten periodischen Nanolaminatstruktur u.a. ein Brechwert zugeordnet werden kann.

für zukünftige Studien interessant, mit beispielsweise einem Laser-Raster-Mikroskop das Tiefenprofil der Zerstörungen aufzulösen. Ein analoges Verhalten der LIDT lässt sich auch für die untersuchten $\text{HfO}_2\text{-SiO}_2$ Nanolaminat und die ternären $\text{Hf}_x\text{Si}_y\text{O}_z$ Komposite im Einzelschuss-Betrieb beobachten (Pulsdauer $\tau_P = 850$ fs; Zentralwellenlänge $\lambda_Z = 1030$ nm). Auch für diese Messungen werden die Zerstörschwellen zur besseren Vergleichbarkeit normiert. Die interne LIDT H_{intern} über den Brechwert ist in Abb. 6.17 dargestellt. Insgesamt folgen auch bei diesen Messungen höhere Leistungsverträglichkeiten für die $\text{HfO}_2\text{-SiO}_2$ -Nanolaminat im Vergleich zu $\text{Hf}_x\text{Si}_y\text{O}_z$ mit äquivalentem Brechwert. Quantitativ lassen sich die beiden Ergebnisse der LIDT-Messungen für die Probensätze mit HfO_2 und Ta_2O_5 aufgrund der unterschiedlichen Messparameter nicht absolut vergleichen. Hier ist es vielmehr entscheidend aufzuzeigen, dass sich ein empirischer Trend für eine höhere LIDT von Nanolaminaten im Vergleich zu ternären Kompositen abzeichnet, der unabhängig vom hochbrechenden QW-Material, sowie der gewählten Pulsdauern im fs-Regime und der herangezogenen Evaluationsmethode, ist (Relative LIDT über die optische Bandkante oder interne LIDT über den Brechwert). Dieser Trend zeigt sich sowohl für Einzelschuss- als auch für Mehrpulszerstörungsmessungen.

Auch wenn derzeit noch keine umfassenden theoretischen Arbeiten zum Zerstörverhalten in Nanolaminaten vorliegen, sollen im Folgenden einige qualitative Überlegungen dargelegt werden, die zukünftig zu einem komplexen Modell zusammengefasst werden könnten. Das derzeit etablierte Zerstörmodell geht davon aus, dass die Zerstörung direkt mit der Dichte der quasifreien Elektronen korreliert ist.

Die erhöhte laserinduzierte Zerstörungsfestigkeit von Nanolaminaten im Vergleich zu ternären Mischungen sollte mit einer Betrachtung der Zustands- und daraus folgenden Elektronen-

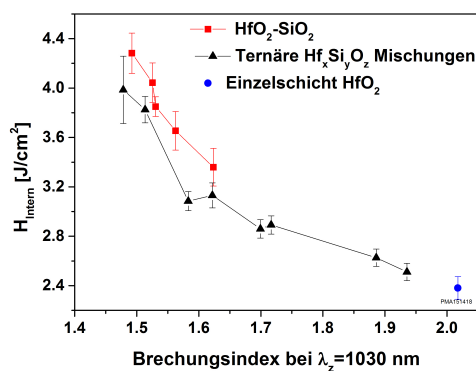


Abbildung 6.17: Analyse der Einzelschuss-LIDT über den Brechwert für ternäre $\text{Hf}_x\text{Si}_y\text{O}_z$ -Mischungen und Nanolaminat.

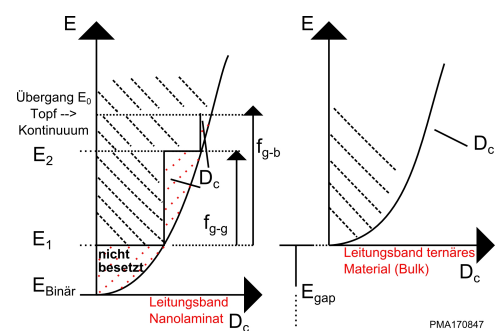


Abbildung 6.18: Schema zur Verteilung der Zustandsdichte im Leitungsband für eine quantisierte Struktur und eine nicht quantisierte Schicht mit äquivalenten optischen Bandkanten $E_1 = E_{Tern} = E_{gap}$ (nach [Ebe13]).

dichten im Leitungs- und Valenzband verknüpft werden und somit eine Modellierung der elektronischen Anregung aus dem Valenz in das Leitungsband aufzeigen, bis die kritischen Elektronendichte erreicht wird, die im fs-Regime zur laserinduzierten Zerstörung führt. Am Anfang des Kapitels wurde bereits gezeigt, dass sich mit dem Modell der Quantentöpfe und der Anwendung der Schrödingergleichung die Energieniveaus E_n von amorphen Materialien im Leitungsband berechnen lassen und mit empirischen, experimentellen Studien für amorphe Schichtstrukturen korrelieren. Die grundlegende Betrachtung soll im Folgenden exemplarisch an einem $\text{Ta}_2\text{O}_5\text{-SiO}_2$ Nanolaminat im Leitungsband verdeutlicht werden (Abb. 6.18). Mit der optischen Bandkante des binären Materials Ta_2O_5 (4,29 eV) und SiO_2 (7,5 eV) ergibt sich eine Topfhöhe (E_0) von ungefähr 1,6 eV. Bei einer gewählten QW-Breite von 1 nm folgen aus der graphischen Lösung (vgl. Kapitel 3.1.2 - Abb. 3.3) das symmetrische Grundzustandsenergieniveau im Leitungsband $E_{1,S} = 4,60$ eV und ein angeregtes antisymmetrisches Energieniveau $E_{2,A} = 5,57$ eV. Die effektive Masse der Elektronen wurde dabei mit $m_e^* = 0,8 m_e$ angenommen (Abb. 6.4). Wie in Kapitel 2.3 erläutert, werden abhängig von dem Keldysh-Parameter durch Multiphotonen- oder Tunnelionisation Elektronen aus dem Valenz- in das Leitungsband angeregt und generieren dort eine initiale Elektronendichte. In quantisierten Schichtstrukturen folgt für die angeregten Elektronen eine „stufige“ Zustandsdichte (Kapitel 3.2 – Gleichung 3.11). Für das hier gewählte Beispiel ergibt sich eine Zustandsdichte von $D_C(E) = \frac{2m_e^*}{\pi\hbar^2 L_{well}}$ für das Nanolaminat und im Vergleich eine Zustandsdichte für eine ternäre Mischung mit äquivalenter optischer Bandkante von $D_{C-Bulk}(E) = \frac{(2m_e^*)^{3/2}}{2\pi\hbar^3} \sqrt{E}$ unter der Annahme parabolischer Bandstrukturen. Unter der Berücksichtigung der energetischen Höhe des Quantentopfes mit $E=E_0$ folgt eine 1,8 fach höhere Zustandsdichte für die Elektronen in einem ternären Komposit im Vergleich zu einem Nanolaminat mit einer QW-Breite von 1 nm. Folglich können weniger Elektronen in das Leitungsband einer quantisierten Struktur angeregt werden.

Der zweite Beitrag zur Ionisationsrate wird von der Kaskadenionisation beschrieben. Das MRE-Modell nach Rethfeld geht beispielsweise von einer diskreten Unterteilung in Energieniveaus des Bulkmaterials im Leitungsband aus, bei dem die Elektronen mittels sequentieller 1-Photonen-Absorption soweit angeregt werden, bis diese eine kritische Energie erreichen, die ausreicht, um ein zusätzliches Elektron aus dem Valenzband in das Leitungsband anzuheben (Kapitel 2.3) [Ret04].

In einem quantisierten kristallinen Nanolaminat sind Übergänge im Potentialtopf zwischen den Energiezuständen E_n und dem über dem Potentialtopf liegenden Bulkmaterial über die Oszillator-Stärke mit Wahrscheinlichkeiten behaftet (Kapitel 3.2). Auch wenn bei einer solchen Betrachtung auf Grund der amorphen Struktur mit erheblichen Störungen zu rechnen ist, bietet das Modell, aufgestellt für kristalline Bandstrukturen, zumindest die Möglichkeit einer qualitativen Approximation. Für das angeführte Beispiel mit einer QW-Breite von 1 nm folgt eine Übergangswahrscheinlichkeit von dem angeregten Grundzustandsniveau (gerade Parität) ins erste Niveau (ungerade Parität) von $f_{E_1 \rightarrow E_2} = 24\%$

Über die hier erfolgte Festlegung des ersten angeregten Grundzustandsniveaus mit gerader Parität können im Kontinuum nur Zustände mit ungerader Parität erreicht werden. Die Übergangswahrscheinlichkeit aus dem angeregten Grundzustandsniveau in das Kontinuum, in dem die kritische Energie E_{krit} erreicht werden kann, verringert sich auf $f_{E_1 \rightarrow E_{krit}} = 0,1\%$. Die sequentielle 1-Photonenabsorption kann in einem Nanolaminat effektiv erst im Kontinuum ab dem Energieniveau $E_j > E_0$ beginnen, da für eine vergleichsweise schmalbandige Anregung über die Zwischenniveaus nur eine geringe Übergangswahrscheinlichkeit besteht. Bei breitbandiger Anregung muss die Ionisierungsrate über die Zwischenniveaus individuell betrachtet werden, was angesichts der komplexen elektronischen Struktur im amorphen Dielektrikum nicht möglich erscheint. Im Rahmen der Betrachtung wird davon ausgegangen, dass die Übergangswahrscheinlichkeit aus den Energieniveaus im Quantentopf $f_{E_n \rightarrow E_{bulk,j}}$ zu verwenden ist. Somit kann erwartet werden, dass sich der Beitrag der Kaskadenionisation im Vergleich zu einem ternären nicht quantisierten Komposit aufgrund der geringeren initialen Zustandsdichte im Leitungsband und der Oszillator-Stärke reduziert, da die Wahrscheinlichkeiten zwischen einzelnen Übergängen im Quantentopf und dem in das Kontinuum, in dem die kritische Energie erreicht werden kann, eingeschränkt ist. Die Zustandsdichte in einem quantisierten Zustand hängt linear von der Anzahl n möglicher Energieniveaus im Topf ab (Kapitel 3.2 – Gleichung 3.11). Schlussfolgernd wird erwartet, dass sich die relative Differenz der laserinduzierten Zerstörschwelle zwischen in der optischen Bandkante vergleichbaren ternären Mischungen und Nanolaminaten mit energetisch steigender optischer Bandkante erhöht. Wie in dem Kapitel 3.1.1 gezeigt wurde, korrespondiert eine höhere optische Bandlücke in einem Nanolaminat mit kleineren QW-Breiten. Je kleiner die QW-Breite ist, desto weniger mögliche Energiezustände können sich im Potentialtopf befinden. So reduziert sich für die hier gewählten Ta_2O_5 - SiO_2 Nanolaminat die Zustandsdichte bei einer QW-Breite von 1 nm (2 mögliche Energieniveaus) auf 0,5 nm (1 mögliches Energieniveau) um $\Delta D_C(E) = \frac{2m_e^*}{\pi \hbar^2 L_{well}}$. Qualitativ kann die Hypothese durch den experimentellen Vergleich der gemessenen Zerstörschwellen und die ansteigende relative Differenz mit energetisch höheren optischen Bandkanten bestätigt werden (Abb. 6.15).

Abschließend ist die Dicke der Barrieren für quantisierte Schichtstrukturen zu berücksichtigen. Das für kristalline Materialien herangezogene Modell mit der Treppenfunktion der Zustandsdichte $D_C(E)$ behält solange seine Gültigkeit, bis die Wellenfunktionen der Elektronen bzw. Löcher überlappen. Eine Überlappung würde zu einer Verschmierung der Treppenstruktur führen, was zu einer höheren Elektronendichte und damit niedrigeren LIDT führen könnte. Im nachfolgenden Unterkapitel werden die Proben mit konstanter Quanten-Well-Breite und jeweils variiertes Barriere-Schichtdicke hinsichtlich der LIDT untersucht.

6.5 Einfluss der Barriere Dicke auf die LIDT von quantisierten Schichtstrukturen

In den bereits diskutierten Studien wurden die periodisch quantisierten Nanolaminatstrukturen mit einer rechteckförmigen Potentialstufe der Barriere approximiert. Die Barriere verändert sich unter der Einwirkung von hochenergetischen externen Feldern, wie beispielsweise bei der Einwirkung von Ultrakurzpulslaserstrahlung. In Abhängigkeit des Keldysh-Parameters lassen sich die Multiphotonenionisation und die Tunnelionisation zur Überwindung oder Tunneln der Potentialbarriere unterscheiden. Die feldstärkeinduzierte Verformung der Barriere kann mit der semiklassischen „Wentzel–Kramers–Brillouin“ (WKB) Näherung bestimmt werden [Jef25; Liu06]. Die WKB-Methode approximiert dabei Lösungen der eindimensionalen Schrödingergleichung und zerlegt die Barriere in viele dünne rechteckige Teilbarrieren. Für kristalline Materialien konnte ein Zusammenbrechen der Potential-Barrieren nachgewiesen werden [Gom08]. Für die Tunnelwahrscheinlichkeit T durch diese Potentialbarriere werden die einzelnen Wahrscheinlichkeiten für jedes Segment multipliziert:

$$T(E, F) = \exp \left[-2 \int_0^{z_C} dz \sqrt{\frac{2m_{e-bar}^*}{\hbar^2} \left(V_B - \frac{eFl_{well}}{2} - E_1 - eFz \right)} \right] \quad (6.3)$$

Dabei ist m_{e-bar}^* die effektive Elektronenmasse in der Barriere, \hbar das reduzierte Plancksche Wirkungsquantum, V_B die Höhe der Potentialbarriere (hier für SiO_2 mit $V_B = 7,5 \text{ eV}$), e die Elementarladung, F die Feldstärke des einwirkenden Laserpulses und E_1 das erste quantisierte Energieniveau. z_C gibt den klassischen Wendepunkt an, an dem die Energie des ersten angeregten Niveaus gleich des verringerten Barrieren Potentials $V = V_B - eFL_{well}/2$ ist und kann als $z_C = (V - E)/eF$ ausgedrückt werden. z_C ist ein Maß für die minimale Barrieren-Schichtdicke. Für die Berechnungen in Ta_2O_5 - SiO_2 -Nanolaminaten wurde die effektive Elektronenmasse in der Barriere (SiO_2) in erster Näherung gleich der effektiven Elektronenmasse im QW gesetzt mit $m_e^* = 0,8m_e$. Mit steigender Feldstärke verringert sich die minimale Potentialbarriere exponentiell, korrelierend zu einer exponentiell ansteigenden Tunnelwahrscheinlichkeit (Integral aus Gleichung 6.3). Ab Pulsintensitäten von $I \approx 5 * 10^{11} \text{ J}/(\text{cm}^2\text{s})$ sinkt die minimale Barrieren-Schichtdicke unterhalb von 1 nm (Abb. 6.19). Die ansteigende Tunnelwahrscheinlichkeit durch die Barrieren in das anschließende QW führt zu einer teilweisen Überlappung der Wellenfunktionen. Die stufenartige Zustandsdichte D_c verschmiert, und das quantisierte Energieniveau wird modifiziert hin zu geringeren optischen Bandkanten. Geringere optische Bandkanten werden eine geringere interne LIDT haben, was nahezu alle Publikationen zur LID bezüglich nicht-quantisierten, binären Materialien sowie ternären Mischungen bestätigen [Jup07; Jup11; Man12a; Mel11; Men13].

Die hergestellte Probenreihe mit jeweils abnehmender Barriere-Dicke für konstante QW-Breiten wird zunächst hinsichtlich ihrer Einzelschuss-LIDT unter den bereits zuvor dar-

gestellten Parametern ($\lambda_C = 1030 \text{ nm}$, $\tau_P = 850 \text{ fs}$, $\text{AOI} = 45^\circ$) charakterisiert. Mit der Analyse der Einzelschuss-LIDT lässt sich ein möglicher Ermüdungseffekt der LIDT aufgrund von der Bestrahlung mit einer Vielzahl von S:1 Pulsen vermeiden. Insgesamt nimmt die LIDT mit kleiner werdender Barriere in guter Korrelation zu der theoretischen WKP-Näherung ab (Abb. 6.20). Unter Annahme eines Gaußprofils für den Laser-Puls ($\tau_P = 850 \text{ fs}$) kann die Spitzenintensität mit den gemessenen absoluten Fluenzwerten H abgeschätzt werden. Für ein Nanolaminat mit einer QW-Breite von 0,5 folgen, in Abhängigkeit der gemessenen Fluenzwerte und der gewählten Barriere-Dicken, Spitzenintensitäten im Bereich von $(5,8 - 7)10^{12} \text{ J}/(\text{cm}^2\text{s})$. In diesem Intervall liegen berechnete Tunnelwahrscheinlichkeiten bei 5 bis 14 %. Im Vergleich der Resultate mit unterschiedlichen QW-Breiten ist für die Probenreihen mit einer Topfbreite von 0,5 und 1 nm ein deutlicher relativer Abfall der internen LIDT H_{intern} , sowohl zwischen Barrieren von 20 und 0,5 nm als auch für Quanten-Wells von 2 und 8 nm, zu beobachten. Während für Nanolaminat mit QW-Breite von 0,5 nm lediglich ein angeregtes Energieniveau möglich ist, folgen aus der Berechnung möglicher Schnittpunkte der symmetrischen transzendenten Gleichungen für Nanolaminat mit 8 nm breiten Quanten-Wells elf angeregte Energieniveaus. Die Abhängigkeit mehrerer besetzter Energieniveaus wird mit der WKP-Näherung nicht berücksichtigt. Anschaulich lässt eine Verteilung der Elektronendichte auf mehrere Niveaus die Tunnelwahrscheinlichkeit sinken. Eine Verschiebung der optischen Bandkante konnte in den vorigen Messungen nicht nachgewiesen werden, da das externe Feld (Lichtquelle vom Spektralphotometer) nicht ausreicht, um erforderliche Intensitäten von größer $10^{11} \text{ J}/\text{cm}^2$ bereitzustellen.

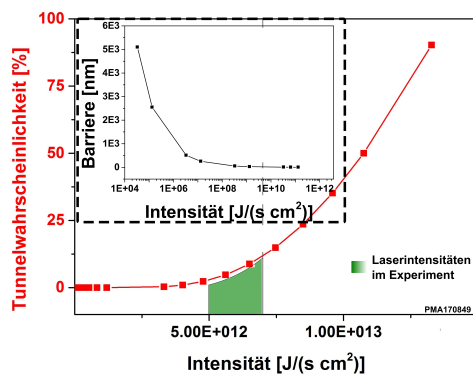


Abbildung 6.19: Minimale Barrieren-Dicke und Tunnelwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit eines anliegenden externen Feldes. Für eine bessere Darstellung ist die x-Achse logarithmisch aufgetragen.

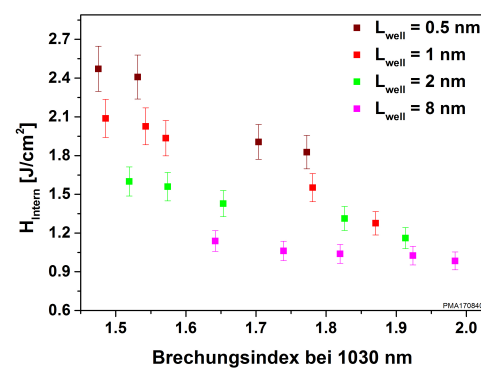


Abbildung 6.20: Einzelschuss-LIDT in Abhängigkeit der Barriere Dicke für jeweils konstante Quanten-Well Breiten.

6.6 Kapitelzusammenfassung

Die Zielstellung dieses Kapitels war es, eine neuartige Materialklasse zu evaluieren. Über die Quantisierung von amorphen Schichtsystemen können die optische Bandkante und der Brechungsindex gezielt manipuliert werden. Die quantisierten Energieniveaus im Nanolaminat führen dabei zu einer Verschiebung der optischen Bandkante. In Übereinstimmung mit den in Kapitel 3 dargelegten theoretischen Überlegungen zeigen hergestellte Proben mit Ta₂O₅ als Quanten-Well-Material und SiO₂ als Barrieren-Material eine Verschiebung der optischen Bandkante hin zu kürzeren Wellenlängen mit abnehmender QW-Breite. In dem hergestellten Probensatz ist zunächst die physikalische Gesamtschichtdicke konstant gehalten mit ca. 3 QWOT bei 800 nm. Über die Wahl der effektiven Elektronenmasse als Fit-Parameter in den numerischen Lösungen der zeitunabhängigen Schrödingergleichung kann für Ta₂O₅ eine effektive Elektronenmasse von 0,7 bis 0,9 m_e abgeschätzt werden. Im weiteren Verlauf werden die hergestellten Nanolaminatstrukturen validiert. Dafür wird gezeigt, dass die Quantisierung unabhängig vom hochbrechenden Material ist, indem der hergestellte Probensatz mit HfO₂ anstelle von Ta₂O₅ hergestellt wird und mit den Berechnungen für HfO₂ erfolgreich korreliert wird. Eine einsetzende Quantisierung tritt ab QW-Breiten kleiner als 4 nm auf für beide Materialkombinationen. Weiterhin wird gezeigt, dass die gezeigte spektrale Verschiebung der optischen Bandkante unabhängig vom SiO₂-Anteil in den zuvor hergestellten Nanolaminaten ist, in dem eine äquivalente spektrale Blauverschiebung mit hergestellten Probensätzen mit einem absolut konstant gehaltenen Anteil des hochbrechenden Materials Ta₂O₅ aufgezeigt werden kann. Eindeutige stetige Grenzflächen zwischen 1 nm dicken Ta₂O₅ Schichten und 20 nm dicken SiO₂ Barriere-Schichten können mikroskopisch mit einem Transmissionselektronenmikroskop aufgelöst werden. Das Verschmieren der Grenzflächen zur Formation eines ternären Komposites kann somit ausgeschlossen werden. Der im Anschluss dargelegte quantitative Vergleich der optischen Parameter zwischen hergestellten Ta_xSi_yO_z Kompositen und Ta₂O₅-SiO₂ Nanolaminaten zeigt einen entscheidenden Vorteil von Nanolaminaten gegenüber Kompositen auf. In Übereinstimmung mit den theoretischen Vorhersagen verändert sich die optische Bandkante nicht in Nanolaminaten bei konstant gehaltener QW-Breite, aber variierender Barrieren-Dicke. So ist es möglich, den Brechwert für konstante optische Bandkanten zu variieren. In ternären Kompositen ist dies nicht möglich, da sowohl die Bandkante als auch der Brechungsindex fest über das am Target eingestellte Mischungsverhältnis determiniert ist. Ab QW-Breiten kleiner als 4 nm können für jeweils gleiche optische Bandkanten höhere Brechwerte in Nanolaminaten erreicht werden im Vergleich zu ternären Kompositen. So kann beispielsweise für ein Nanolaminat mit einer optischen Bandkante von ca. 5 eV der Brechwert auf $n_0 = 1,80$ gesteigert werden, verglichen mit einem ternären Komposit mit einer äquivalenten optischen Bandkante. Hergestellte Nanolaminatstrukturen sind im spektralen Verhalten äquivalent zu binären Einzelschichten. Über eine entsprechende

Wiederholung der periodischen Schichtabfolge können auch dickere quantisierte Schichtstrukturen hergestellt werden. So wurde ein $\text{Ta}_2\text{O}_5\text{-SiO}_2$ Nanolaminat mit insgesamt 500 Schichten und einer physikalischen Gesamtdicke von ca. $1,6 \mu\text{m}$ hergestellt, das sich durch einen Absorptionswert von $k = 6,9 * 10^{-4}$ bei 266 nm auszeichnet. Anwendung sollen die quantisierten Schichtstrukturen zur Steigerung der laserinduzierten Zerstörschwelle von komplexen Mehrschichtsystemen finden. In diesem Kapitel werden die hergestellten Nanolamine in fundamentalen LIDT Studien untersucht und charakterisiert. Analog zu binären Materialien und ternären Kompositen steigt auch hier die LIDT linear mit energetisch größer werdender optischer Bandkante an. Ein direkter Vergleich zu ternären Kompositen zeigt sowohl für Einzel- als auch Mehrpulsbestrahlung und unterschiedlich gewählte Evaluationsmethoden eine verbesserte Zerstörschwelle von quantisierten Schichtstrukturen auf. Modelle für kristalline Materialien werden herangezogen, um den gemessenen Trend qualitativ auf amorphe Materialien zu übertragen. Insbesondere die geringeren Zustandsdichten für kristalline Materialien und die mit Wahrscheinlichkeiten behafteten Übergänge der angeregten Energieniveaus in kristallinen quantisierten Materialien könnten den aufgezeigten Trend der höheren LIDT von amorphen Nanolaminaten qualitativ erklären. Die für kristalline Materialien definierbare Zustandsdichte verschmiert bei einem Tunneln der Elektronen durch die Barriere-Schichten in angrenzende QW-Schichten. Das Verschmieren führt zu einem Herabsetzen der Energieniveaus und folglich zu einer energetisch geringeren optischen Bandkante, die wiederum die LIDT herabsetzen kann. Über die semiklassische WKP-Näherung kann die Tunnelwahrscheinlichkeit für hochenergetische angelegte Felder in Abhängigkeit der Barrieren-Dicke erhöht werden. Für die hergestellten dielektrischen Nanolaminatstrukturen kann mit abfallender Barriere-Dicke eine kleiner werdende LIDT aufgezeigt werden.

Die Anwendung von Nanolaminatstrukturen in komplexen Schichtsystemen wird im nächsten Kapitel untersucht.

KAPITEL 7

Steigerung der LIDT von Ultrakurzpuls-Laser-Optiken mit neuartigen Design-Methoden

Im Verlauf des letzten Kapitels wurde aufgezeigt, dass die Verteilung der elektrischen Feldstärke in dielektrischen Komponenten für Ultrakurzpuls-Laser-Anwendungen komplex ist. Schichten mit maximaler Feldstärke können in tiefen Schichtstapeln vorkommen. Die Kombination aus interner LIDT und maximaler Feldstärke determiniert dabei die laserinduzierte Zerstörfestigkeit der kompletten Optik. Mit der Herstellung von neuartigen quantisierten Schichtstrukturen können die optische Bandkante und der Brechwert gezielt eingestellt werden. Das Ziel dieses Kapitels ist es, die LIDT im fs-Regime von dielektrischen Optiken signifikant zu steigern. Dabei sollen hochbrechende Schichten mit maximaler Feldstärke in den binären Designs gezielt ersetzt werden durch Schichten mit optimierten optischen Eigenschaften in Form der optischen Bandkante und des Brechungsindex. Die Verwendung von quantisierten Schichtstrukturen erscheint gegenüber ternären Mischungen vielversprechender. Im letzten Kapitel wurde der Trend aufgezeigt, dass die LIDT von Nanolaminaten höher ist im Vergleich zu ternären Kompositen mit äquivalenter optischer Bandkante. Die Herstellung erscheint technologisch einfacher, da auf eine Ansteuerung eines Zonen-Targets verzichtet werden kann. Zunächst wird der Designansatz an einem konventionellen hochreflektierenden Bragg-Spiegel umgesetzt. Es wird gezeigt, dass sich die LIDT des QWOT-Spiegels durch den gezielten Einsatz von Nanolaminatstrukturen steigern lässt. Dabei scheint das Konzept besonders effektiv für die Steigerung der LIDT von dielektrischen Komponenten mit komplexen Feldstärkeverteilungen. Der Schwerpunkt dieses Kapitels fokussiert sich auf die Optimierung der Zerstörschwelle von phasenkomprimierenden Spiegeln. Ein analysierter binärer Spiegel soll dabei zum einen durch Nanolaminatstrukturen und zum anderen im Vergleich durch ternäre Komposite ergänzt werden. Insbesondere der Phasen-BBM garantiert dabei eine optimale Herstellung der sensitiven Designs. Insgesamt werden die sechs unterschiedlich hergestellten und analysierten phasenkomprimierenden Spiegel abschließend hinsichtlich ihrer laserinduzierten Zerstörschwelle untersucht.

7.1 Anwendung von Nanolaminatstrukturen in konventionellen hochreflektierenden Bragg-Spiegeln

Das im Verlauf des Kapitels genutzte Konzept der gezielten Substitution von hochbrechenden Schichten, bei denen maximale Feldstärken auftreten, soll zunächst für einen einfachen, konventionellen hochreflektierenden Bragg-Spiegel mit einer Zentralwellenlänge von $\lambda_Z = 800 \text{ nm}$ verwendet werden. Das binäre Bragg-Design ist durch insgesamt 31 Schichten mit einer physikalischen Gesamtdicke von $3,5 \mu\text{m}$, charakterisiert. Im Spektralbereich $\Delta\lambda = 730 - 850 \text{ nm}$ reflektiert der Spiegel theoretisch mehr als 99,9%, was im Rahmen der Messgenauigkeit durch spektralphotometrische Messungen bestätigt wurde (Abb. 7.1). Die maximale Feldstärke tritt in der hochbrechenden Schicht an der Oberflächen auf (Abb. 7.2). Bei konstanter Materialwahl, definiert die LIDT der letzten Ta_2O_5 -Schicht die Zerstörfestigkeit des kompletten Spiegels [Ris14]. In den vorangegangenen Arbeiten wurde meist das klassische Bragg-Design beibehalten und die Komponente durch den Austausch der Schichten mit der geringsten Laserfestigkeit durch ein Material mit höherer materialintrinsischer LIDT ersetzt. Im Rahmen der hier vorgestellten Untersuchung wird eine geringfügig modifizierte Strategie verfolgt. Der Austausch der Schichten verändert zunächst die Feldstärkeverteilung im Schichtsystem und reduziert so signifikant die maximale Feldstärke in der binären Ta_2O_5 -Schicht. Empirische Designstudien zeigen, dass die Feldstärke am effektivsten reduziert werden kann, wenn mindestens drei Nanolaminatstrukturen nach der letzten hochbrechenden Schicht (aus Sicht des Substrates) in das Schichtsystem integriert werden (Abb. 7.4). Dabei ist die Schichtanzahl N der periodischen Nanolaminatstruktur $(LH)^N L$ maßgeblich für die Verringerung der maximalen Feldstärke in binären Ta_2O_5 -Schichten verantwortlich. Auf diese Weise kann die maximale Feldstärke in einer binären Ta_2O_5 -Schicht im Vergleich zum konventionellen Bragg-Spiegel um knapp

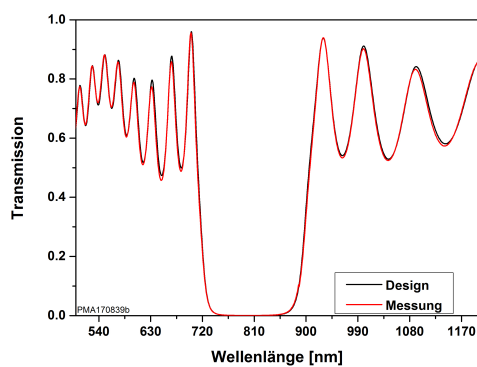


Abbildung 7.1: Spektralphotometrische Messung und Designkurve des binären HR-Spiegels.

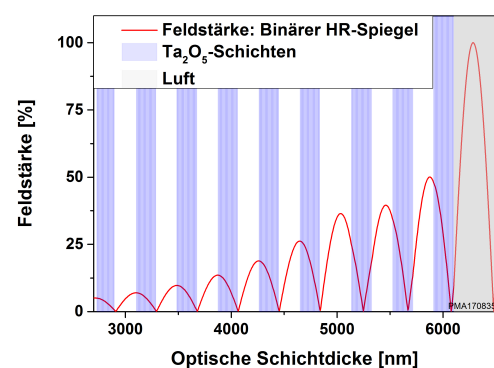


Abbildung 7.2: Feldstärkeverteilung für einen konventionellen Bragg-Spiegel aus Ta_2O_5 - SiO_2 bei einer Zentralwellenlänge von 775 nm .

10 % reduziert werden. Im Gegensatz zu der vollständigen Verwendung von Schichten mit modifizierten optischen Parametern in einem Design, kann dieser Ansatz vergleichsweise einfach für hoch komplexe Designs übernommen werden.

Das Spiegeldesign mit drei integrierten Nanolaminatsequenzen ergibt insgesamt 55 Schichten bei einer Gesamtdicke von $3,4 \mu\text{m}$ (Tabelle 7.1). In diesem Experiment werden Nanolaminatsequenzen mit QW-Breiten von 1 nm und Barrieren-Dicken von 20 nm gewählt. Der geringe Brechwert der Nanolaminatsequenzen ($n_0 = 1,49$) verringert die Bandbreite ($R > 99,9\%$) auf eine spektrale Breite von $\Delta\lambda = 60 \text{ nm}$. Eine gute Korrelation der spektralen ex-situ Messkurve zeigt eine exakte experimentelle Reproduktion des Zieldesigns der Nanolaminatsequenzen (Abb. 7.3). Zur Klassifizierung wird die interne LIDT verwendet, die über die normierte maximale Feldstärke E im Schichtsystem und die gemessene LIDT H_{mess} definiert ist (Gleichung 3.1 – Kapitel 3) [Ris14].

Eine quantitative Analyse der Zerstörung in den Schichtsystemen erfordert, das Verhalten der entsprechenden binären Einzelschichten bzw. zugehörigen Nanolaminatsequenzen zu rekapitulieren (vgl. Kapitel 6.4). Die verwendeten Nanolaminatsequenzen zeigen experimentell eine um den Faktor 2,43 höhere interne LIDT im Vergleich zu einer Ta_2O_5 -Einzelschicht. Eine brechwertunabhängige Normierung von Nanolaminaten und Ta_2O_5 -Einzelschichten kann über die Entkopplung mit dem maximalen Energiefluss in der Einzelschicht an der Position z erfolgen (Gleichung 6.2 – Kapitel 6.4). Unter Berücksichtigung der gemessenen LIDT folgt für den Normierungsfaktor 2,39. Die Approximation zum Vergleich von Nanolaminaten (1 nm breiten QW und 20 nm breite Barriere-Schichten) und Ta_2O_5 -Schichten ergibt, dass erst bei einem Verhältnis der Intensitäten im Nanolaminat zu der Ta_2O_5 -Schicht, das größer ist als $2,4 < E_{max_{Nan}}/E_{max_{Ta_2O_5}}$, davon ausgegangen werden kann, dass die Zerstörung im Nanolaminat stattfindet. Die maximale Feldstärke in der Nanolaminatsequenz ist gegenüber

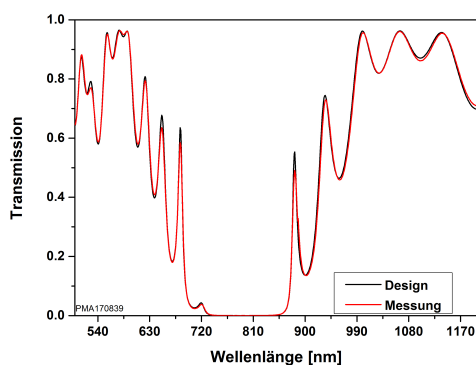


Abbildung 7.3: Spektralphotometrische Messung und Designkurve des HR Spiegels mit drei implementierten Nanolaminatsequenzen.

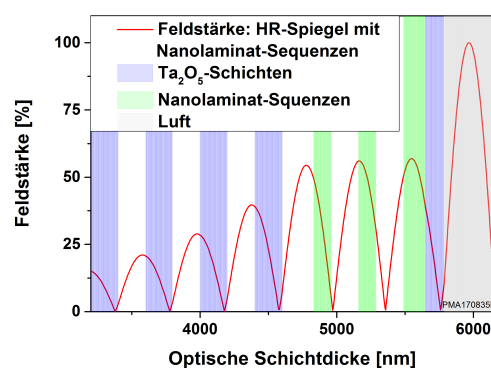


Abbildung 7.4: Feldstärkeverteilung für einen binären Ta_2O_5 - SiO_2 Spiegel mit Nanolaminatsequenzen bei einer Zentralwellenlänge von 775 nm.

Tabelle 7.1: Vergleich wichtiger Designparameter für einen binären HR-Spiegel und einen Spiegel mit enthaltenen Nanolaminatsequenzen.

	Binärer HR- Spiegel	HR-Spiegel mit Nanolaminatse- quenzen
Schichtanzahl	31	55
Gesamtdicke d_{phy} [μm]	3,5	3,4
Spektrale Bandbreite $\Delta\lambda$ [nm]	730 - 850	770 - 830
Reflexion innerhalb von $\Delta\lambda$ [%]	>99,9	>99,9
Einfallswinkel AOI [$^\circ$]	0	0
Maximale Feldstärke in Ta_2O_5 [%]	48	39
Maximale Feldstärke im Nanolaminat [%]	—	57
Gemessener LIDT Wert [J/cm^2]	0,71	0,82

der maximalen Feldstärke in der Ta_2O_5 -Schicht im HR-Spiegel um den Faktor 1,4 höher (Abb. 7.4). Die Zerstörung wird somit in der Ta_2O_5 -Schicht mit $E_{max}(z) = 39\%$ erwartet. Die interne LIDT des binären HR-Spiegels ergibt sich zu $H_{internbin} = 0,34 \text{ J}/\text{cm}^2$ (Tabelle 7.1). Als Konsequenz dieser Betrachtung kann die theoretische LIDT mit $H_{calc} = 0,87 \text{ J}/\text{cm}^2$ abgeschätzt werden. Die experimentell ermittelte Zerstörungsschwelle mit einer Bestrahlung von 10.000 Pulsen pro Messpunkt (S:1) (Pulsdauer $\tau_P = 150 \text{ fs}$) liefert für den HR-Spiegel mit Nanolaminatsequenzen eine LIDT von $H_{mes} = 0,82 \text{ J}/\text{cm}^2$ und weicht damit lediglich um knapp 6% zu der geschätzten LIDT ab. Methoden zur effizienten Erhöhung der LIDT von hochreflektierenden dielektrischen Komponenten wurden in vorangegangenen Studien erfolgreich aufgezeigt, sowohl beispielsweise durch eine bestimmte Materialkombination oder durch die Anwendung des „refractive-index-step-down“ (RISED)-Konzeptes als auch durch die Herstellung von Schichten mit graduellen Brechwertverläufen (Rugate-Designs) [Lap06]. Deshalb wird auf eine weitere Optimierung der LIDT eines HR-Spiegels hier verzichtet. Weiterhin deutet sich für die Studie an binären dielektrischen Spiegeln an, dass die Implementierung von Nanolaminaten die LIDT der Optik umso effizienter verbessern kann, je höher die anfängliche maximale Feldstärke in einer hochbrechenden Schicht im Design ist. Mit steigenden Anforderungen an die Designspezifikationen können immer größere Feldstärken im Design nicht vermieden werden. Relevant für den weiteren Verlauf dieser Arbeit ist die Erkenntnis, dass sich Nanolaminatsequenzen erfolgreich in ein klassisches Spiegel-Design integrieren lassen und damit eine Steigerung der LIDT der Optik in guter

Korrelation zu den theoretischen Hypothesen und berechneten Abschätzungen erreicht werden kann. Die nächsten Unterkapitel beschäftigen sich mit der Designberechnung und Charakterisierung von phasenkomprimierenden Ultrakurzpuls Optiken. Die erforderlichen Randbedingungen und Parameter für die dargelegte Studie zur Verbesserung der LIDT solcher Komponenten werden ebenfalls im anschließenden Unterkapitel aufgeführt.

7.2 Evaluierung der Parameter zum Nachweis einer Steigerung der LIDT in Ultrakurzpuls Optiken

Tabelle 7.2: Übersicht über die Designspezifikationen für die herzustellenden phasenkomprimierenden Optiken

Wellenlängenbereich [nm]	770 - 870
Reflexion [%]	>99,7
GDD [fs²]	-200
Polarisation	p-pol
Einfallswinkel (AOI)	0°

Die Komponenten dieser Arbeit orientieren sich an kommerziell etablierten Strahlquellen für eine Zentralwellenlänge von $\lambda_Z = 800$ nm wie beispielsweise dem Titan:Saphir-Festkörperlaser. Da der Kristall durch sehr breite Fluoreszenzbanden von 670 bis 1070 nm charakterisiert ist und bei 800 nm ein Intensitätsmaximum besitzt, hat sich dieser insbesondere in UKP Anwendungen etabliert [Kär04]. Bedingt durch diese große spektrale Bandbreite $\Delta\lambda$ lassen sich Pulsdauern mit wenigen optischen Umläufen T mit einem Titan:Saphir-Oszillator erzeugen. Über die Zeit-Bandbreiten-Relation lässt sich unter der Annahme eines Gauß-Profiles für den Laserpuls abschätzen, dass ca. 10 fs lange Pulse einer spektralen Bandbreite von $\Delta\lambda = 100$ nm entsprechen. Über diese Abschätzung können ca. acht optische Umläufen des Pulses angenommen werden [Kär04]. Die Propagation eines solchen 10 fs langen Pulses durch ein Medium, wie beispielsweise ein 1 mm dickes BK-7 Glas, verbreitert diesen um das ca. 1,6 fache und motiviert die Nutzung von phasenkomprimierenden dielektrischen Filtern. Für diese anspruchsvollen Pulsparameter werden die hier untersuchten dispersionskompensierenden Spiegel ausgelegt. Die Pulse mit der Bandbreite von $\Delta\lambda = 100$ nm sollen dabei mit einer konstanten Gruppenverzögerungsdispersion von $GDD = -200$ fs² komprimiert werden. Aufgrund der guten optischen Eigenschaften im nah-infraroten Spektralbereich und des hohen Brechwertkontrastes wird als hochbrechendes Beschichtungsmaterial Ta₂O₅ und als niedrigbrechendes SiO₂ gewählt. Die herzustellenden Spiegel sollen eine Reflexion von mindestens $R > 99,7\%$ aufweisen. Die Synthese der Designs erfolgt in der Software Optilayer über die Anwendung der vorgestellten Robusten Synthese (Kapitel 5.1). Zu Beginn wird ein sogenanntes „Start-Design“ berechnet mit den binären Schichtmaterialien Ta₂O₅ und SiO₂ und den definierten Spezifikationen (Tabelle 7.2). Im

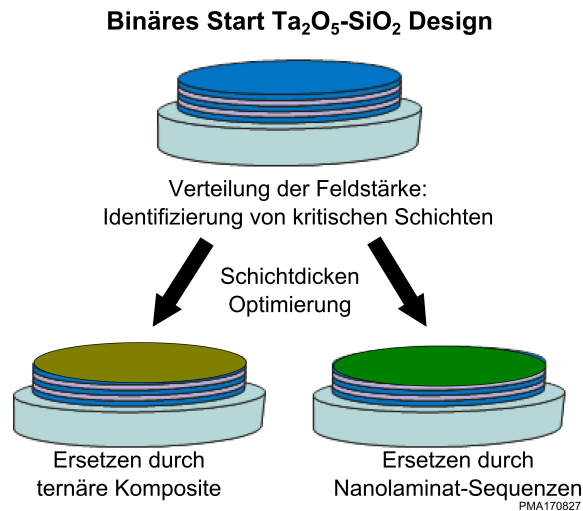


Abbildung 7.5: Prinzip der Designstudie: Ein erstelltes binäres Startdesign wird analysiert, und kritische Schichten werden entsprechend durch ternäre Komposite oder Nanolaminatstrukturen ersetzt.

Anschluss wird der Verlauf der Feldstärke im Schichtstapel quantitativ analysiert bei der späteren Testwellenlänge des LIDT-Messplatzes für 775 nm. Als kritische Schichten im binären Startdesign werden hochbrechende Ta_2O_5 -Schichten definiert, in denen die Feldstärke maximal ist.

Analog zu den Betrachtungen in einem hoch reflektierenden Bragg-Spiegel gilt es, die maximale Feldstärke in Ta_2O_5 -Schichten im Startdesign zu reduzieren. Dafür werden sowohl Nanolaminatsequenzen als auch ternäre Mischungen mit einer höheren internen LIDT in das berechnete Startdesign implementiert (Abb. 7.5). Der Einfluss der veränderten optischen Schichtdicken durch die substituierten Schichtstrukturen wirkt sich massiv auf das sensitive GDD-Target-Band aus und führt zu einer nicht tolerierbaren Abweichung bezüglich der GDD-Spezifikationen. Nach der Substitution ist eine erneute Modifikation der Schichtdicken („Refinement“) notwendig, um insbesondere das GDD-Target-Verhalten wiederherzustellen. Die jeweils implementierte ternäre Schicht oder die Nanolaminatsequenz wird in dem Refinement nicht zur Modifikation freigegeben, da andernfalls die Rechenroutine die ursprüngliche Startkonfiguration wieder herstellen könnte. Die Substitution einer binären Schicht mit maximaler Feldstärke durch eine Nanolaminat-Struktur oder ternäre Schicht mit anschließendem notwendigen Refinement wird als eine Iteration definiert. Die empirischen Designstudien zeigen, dass eine Iteration mit einer ternären Schicht zu einem erneuten Ansteigen der Feldstärke in einer binären Ta_2O_5 -Schicht führt. Die implizierte Folge wäre keine zu erwartende signifikante Verbesserung der LIDT der Komponente. Daraus resultierend wird in einer weiteren Iteration eine zusätzliche ternäre Kompositschicht in das Design substituiert. Mit jeder zusätzlichen ternären Mischung sinkt der Brechwertkontrast ab und erhöht damit die mittlere quadratische Fehlersumme (QUSU) zu der definierten

Target-Spezifikation. Dabei muss ein Kompromiss aus bestmöglicher Verringerung der Feldstärke in binären hochbrechenden Schichten bei einer gleichzeitig möglichst geringen Fehlerabweichung des Targetdesigns aufgrund des geringeren Brechwertkontrastes erreicht werden. Empirische Studien zeigen für das Startdesign eine bestmögliche Relation für insgesamt vier implementierte ternäre Mischungen, äquivalent zu vier durchgeführten Iterationen. Die ternären Schichten sind dabei durch eine physikalische Dicke von jeweils 30 nm und eine optischen Bandkante von 4,76 eV charakterisiert. Im Vergleich zwischen einer entsprechenden ternären Komposit- und einer binären Ta₂O₅-Einzelschicht folgt eine über den Energiefluss gewichtete 1,8 fach höhere LIDT (Gleichung 6.2 – Kapitel 6.4) und eine um den Faktor 2,0 höhere interne LIDT (3.1 – Kapitel 3). Bei der Substitution der feldstärkeüberhöhten binären Schicht in dem Startdesign durch eine Nanolaminatsequenz ergibt sich, dass bereits nach einer Iteration eine signifikante Reduzierung der Feldstärke in den benachbarten binären Ta₂O₅-Schichten möglich ist. Hier wird eine Nanolaminatsequenz mit $(LH)^4L$ mit 1 nm breiten Quanten-Wellen, was einer optischen Bandkante von 4,67 eV entspricht, gewählt und ist dabei identisch zu der Sequenz in Kapitel 7.1. Die Barriere-Dicke beträgt 20 nm, um die LIDT der Sequenz zu maximieren (s. Kapitel 6.6). Die physikalische Gesamtdicke entspricht dabei ca. 1 QWOT bei $\lambda_Z = 800$ nm für Ta₂O₅. Im anschließenden Unterkapitel werden die berechneten Designs im Detail unter Berücksichtigung der Feldstärkenverteilung diskutiert.

7.3 Feldstärkenverteilung der phasenkomprimierenden Designs

Ein geeignetes binäres Ta₂O₅-SiO₂-Startdesign für den phasenkomprimierenden Spiegel mit den im vorigen Unterkapitel beschriebenen Target-Spezifikationen resultiert in einer Komponente mit insgesamt 82 Schichten und einer physikalischen Gesamtdicke von 8,1 μm. Eine experimentelle Umsetzbarkeit des Designs mit der zur Verfügung stehenden IBS-Anlage und ihren abzuschätzenden systematischen Fehlern während des Zerstäubungsprozesses wird mit einem optischen Breitbandsimulator im Vorfeld evaluiert [Ris06]. Das spektrale Reflexionsverhalten erreicht innerhalb von Δλ einen minimalen Wert von 99,9%, bedingt durch den hohen Brechwertkontrast zwischen Ta₂O₅ und SiO₂. Die GDD im Reflexionsbereich oszilliert mit einer maximalen Amplitude von ±8 fs² um die Ziel-GDD von -200 fs² (Tabelle 7.3). Die vom Einfallsmittelpunkt aus gesehene vierte (hochbrechende) Schicht ist in der Feldstärke maximal mit E ≈ 98% (Abb. 7.6 - oben). Diese Schicht wird im Folgenden in der Designsequenz entfernt, und an die entsprechende Stelle wird die zuvor diskutierte Nanolaminatsequenz eingesetzt, bzw. das ternäre Komposit. Nach der erfolgten Iteration mit der Nanolaminatsequenz folgt ein Schichtdesign mit insgesamt 106 Schichten und einer physikalischen Gesamtdicke von 8,9 μm. Der geringe Brechwert der Nanolaminatsequenz von 1,49 bedingt eine Verringerung der minimalen Reflexion auf 99,7%. Die GDD oszilliert immer noch mit einer maximalen Abweichung von ±8 fs² um -210 fs². Die maximale Feldstärke in einer binären Ta₂O₅-Schicht reduziert sich in dem mit der Nanolaminatsequenz modifizierten Design von 98 auf 70%. Die maximale Feldstärke in der eingebrachten Nanolaminatsequenz beträgt ca. 93% (Abb. 7.6 - rechts unten). Das Verhältnis zwischen maximaler Feldstärke in der binären Ta₂O₅-Schicht und Nanolaminatsequenz

Tabelle 7.3: Übersicht über die Designparameter der berechneten Designs mit den vorgegebenen Targetspezifikationen aus Tabelle (7.2)

	Binäres Startdesign	CM: Nanolami- natsequenzen	CM: Ternäre- Komposite
Schichtanzahl	82	106	68
Gesamtdicke d_{phy} [μm]	8,1	8,9	7,9
Minimale Reflexion inner- halb von Δλ [%]	>99,9	>99,7	99,6
Maximale Feldstärke in Ta₂O₅ [%]	99	71	66
Maximale Feldstärke in der substituierten Struktur [%]	—	99	84
Optische Bandkante der substituierten Struktur [eV]	—	4,67	4,76

ist deutlich kleiner als der ermittelte empirische Faktor (Abschnitt 7.1). Erwartet wird somit, dass die Zerstörung durch die Ta_2O_5 -Schicht mit maximaler Feldstärke definiert ist. Eine signifikante Reduktion des Feldes in binären Ta_2O_5 -Schichten auf $E \approx 66\%$ für einen phasenkomprimierenden Spiegel mit ternären Kompositen erfordert vier ternäre Schichten im Design. Die maximale Feldstärke in der ternären $\text{Ta}_x\text{Si}_y\text{O}_z$ -Schicht liegt bei $E \approx 83\%$ (Abb. 7.6 – links unten). Das dargelegte Verhältnis der normierten LIDT Werte der ternären Einzelschicht zu einer binären Ta_2O_5 Schicht aus dem letzten Unterkapitel lässt erneut die erste auftretende Zerstörung der binären Ta_2O_5 -Schicht im phasenkomprimierenden Spiegel erwarten. Die in das Startdesign substituierten vier ternären Komposite führen zu einem signifikant herabgesetzten Brechwertkontrast mit einem minimalen Reflexionswert von $99,6\%$ und bedingen eine höhere Oszillationsamplitude der GDD mit $(-200 \pm 20) \text{ fs}^2$.

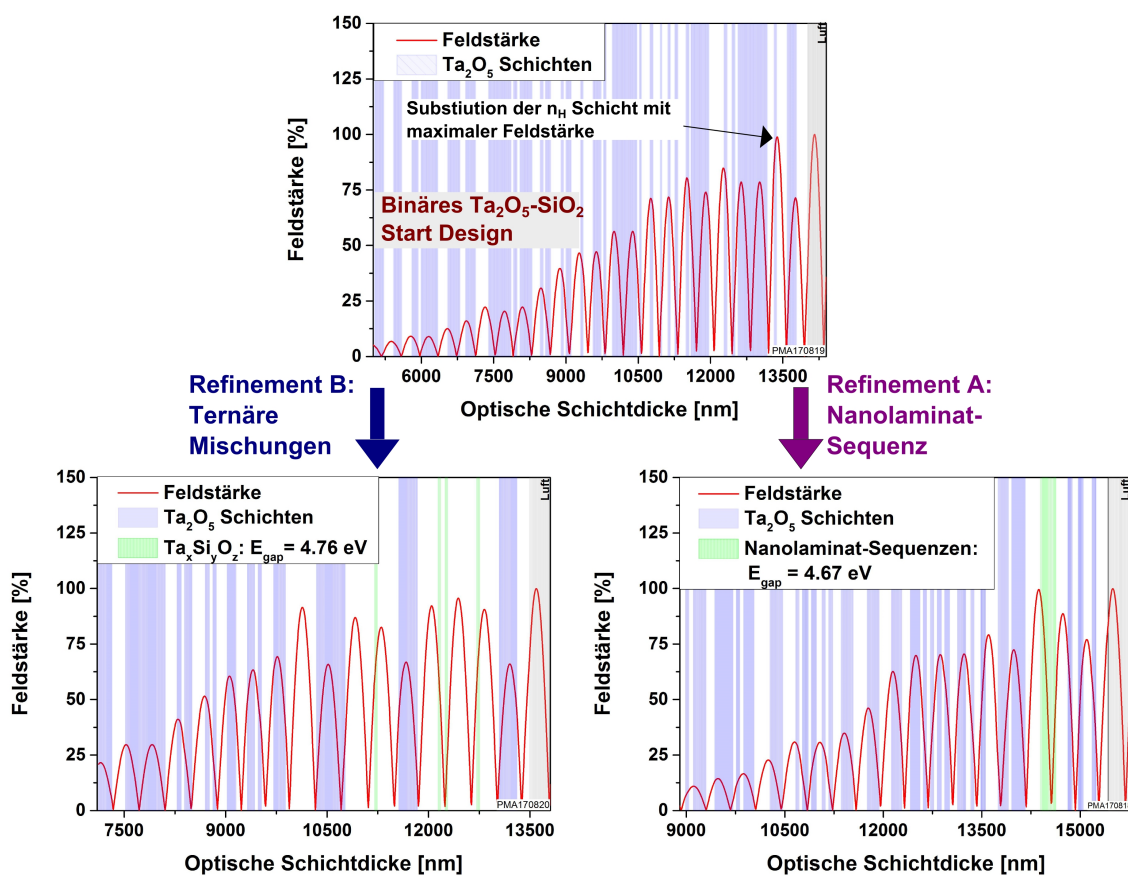


Abbildung 7.6: Verteilung der Feldstärke für das binäre Startdesign und die substituierten Designs bei einer Wellenlänge von 775 nm .

Relevant für die Herstellung und die damit verbundene Charakterisierung der Spiegel ist die Sensitivität der Feldstärke gegenüber Abweichungen in der Schichtdicke oder geringfügigen Änderungen in den Brechwerten während des Beschichtungsprozesses. Eine empfindliche Feldstärke bezogen auf ein Verschieben der Maxima aus einzelnen Schicht-

ten heraus würde die prognostizierte Verbesserung der LIDT der optischen Komponente relativieren. Die Fehleranalyse wird mit empirisch abgeschätzten Schichtdickenfehlern von 1 nm pro Schicht und einer maximalen Brechwertänderung von $\pm 1\%$ des hoch- und $\pm 0,5\%$ niedrigbrechenden Beschichtungsmaterials durchgeführt. Die analysierten Designs der berechneten phasenkomprimierenden Spiegel (Tabelle 7.3) zeigen keine signifikante Verschiebung der Feldstärken (Abb. 7.7). Eine modifizierte Feldstärkenverteilung aufgrund von Abweichungen in den optischen Schichtdicken während des Herstellungsprozesses zu den berechneten Designs kann somit ausgeschlossen werden.

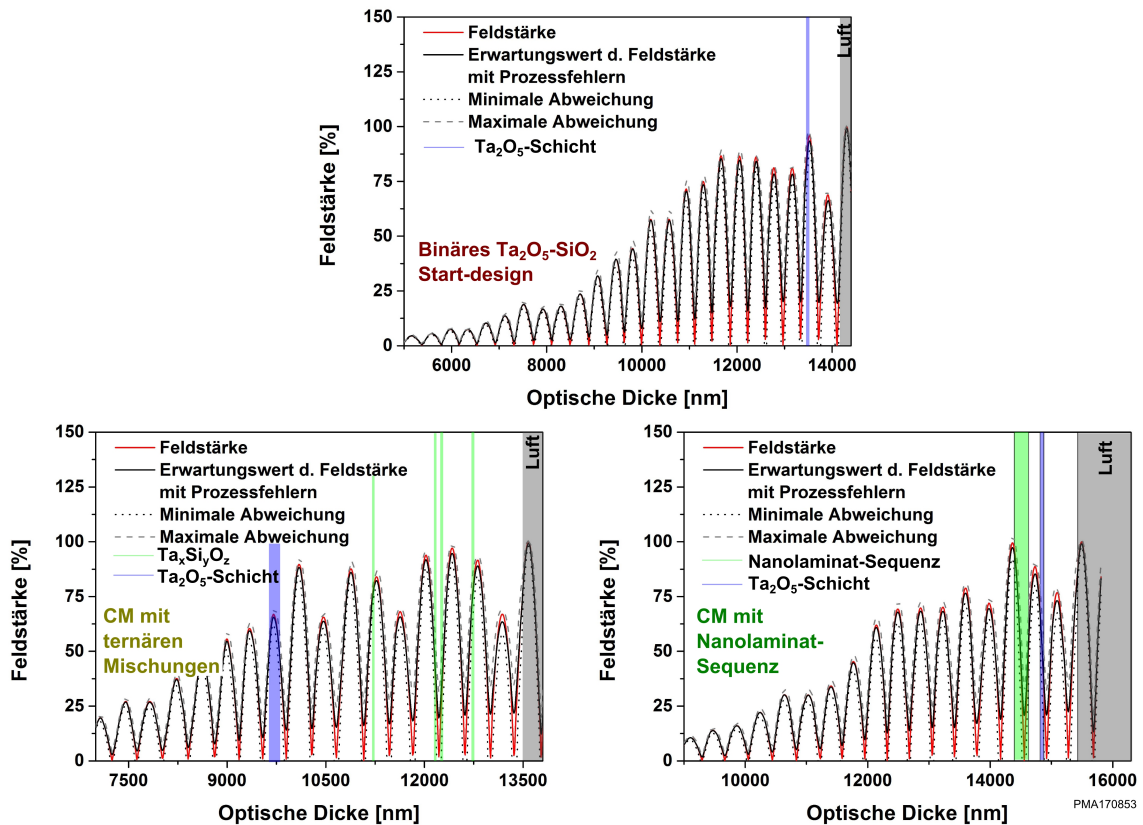


Abbildung 7.7: Fehleranalysen der Feldstärkenverteilung für prognostizierte Abweichungen während des Beschichtungsprozesses bei 775 nm.

Die GDD-Spezifikationen reagieren wesentlich sensibler auf Abweichungen in den optischen Schichtdicken. Insbesondere eine mögliche nicht exakte Reproduzierbarkeit der Targetposition zur Einstellung des gewünschten ternären Komposits kann zu einer signifikanten Abweichung der Dispersionsdaten führen. Systematische Schichtdickenabweichungen von wenigen Atomlagen in dünnen Nanolaminatstrukturen gewichten den relativen Fehler stärker im Vergleich zu einer beispielsweise 100 nm dicken binären Schicht. Eine spezifische Monitorierungsstrategie ist somit notwendig. Die Kombination aus BBM der Reoptimierungssoftware „Reopt, Recalc“ sowie auch dem Phasen-BBM für die präzise Kontrolle der

letzten im Design abzuschneidenden Schichten liefern optimale und notwendige Optionen für die Herstellung der äußerst sensitiven Designs. Das nächste Unterkapitel thematisiert die optischen ex-situ Charakterisierungen der hergestellten Proben.

7.4 Ex-situ Charakterisierung phasenkomprimierender Spiegel

Die GDD der hergestellten Optiken werden mit dem ex-situ Weißlichtinterferometer zwischen 775 bis 870 nm vermessen (Kapitel 5.4). Die jeweilige Messkurve wird dabei mit drei weiteren berechneten Kurvenverläufen der GDD klassifiziert: Zum einen ist die GDD aus dem ursprünglich berechneten Design mit angegeben. Weiterhin werden die vom BBM abgespeicherten spektralen Transmissionsdaten in die Softwareumgebung Recalc geladen. Auf Basis dieser Daten kann die GDD berechnet werden und unterscheidet sich aufgrund von geringfügigen Abweichungen der optischen Schichtdicken während des Herstellungsprozesses in der Regel vom theoretischen Design. Diese Analyse wird als „zurückgerechnetes Design“ definiert. Drittens wird ein Korridor dargestellt, der aus einer Fehleranalyse für theoretisch angenommene Abweichungen in den optischen Schichtdicken folgt. Dabei ist für die vom Einfallsmittel aus gesehenen letzten sechs Schichten ein Schichtdickenfehler von ± 1 nm angenommen worden und eine insgesamt maximale Änderung des Brechungsindex des hochbrechenden Materials von $\pm 1\%$ und des niedrigbrechenden Materials von $\pm 0,5\%$. Für die Berechnung werden die Fehler zufällig variiert. Der dargestellte Korridor ist dabei das gemittelte Resultat aus 50 Berechnungen.

Eine quantitative Analyse der Phasenverläufe der hergestellten Spiegel erfolgt über die Auswertung der Residuenquadratsumme:

$$RSS = \sum_{i=1}^n (GDD_{dsg}(\lambda_i) - GDD_{rev}(\lambda_i))^2 \quad (7.1)$$

mit der theoretischen Gruppenverzögerungsdispersion GDD_{dsg} und der zurückgerechneten GDD_{rev} für die jeweiligen Wellenlängenpunkte λ_i im relevanten spektralen Targetbereich. Der Vergleich zwischen dem phasenkomprimierenden Spiegel aus binären Oxiden und dem Spiegel mit substituierten ternären Mischungen liefert eine konstante Residuenquadratsumme und weicht maximal mit $\pm 100 \text{ fs}^2$ von der berechneten GDD-Spezifikation ab (Abb. 7.8). Insbesondere die während der Langzeit-Beschichtung beobachtete Veränderung des Brechungsindex beeinflusst den relativen Schichtdickenfehler in den dünnen Nanolaminatstrukturen (1 nm QW und 20 nm Barriere) am stärksten. Die zurückgerechnete Kurve der Komponente mit Nanolaminatsequenzen impliziert eine Verschiebung in der Zentralwellenlänge in den kurzwelligeren Spektralbereich. Im spektralen Bereich zwischen 750 bis 840 nm weicht die GDD vergleichbar maximal um $\pm 100 \text{ fs}^2$ ab (Abb. 7.8 - unten). Die erhöhten Abweichungen zwischen 840 bis 860 nm resultieren in einer 4-fach größeren RSS verglichen mit dem phasenkomprimierenden Spiegel mit den ternären Mischungen.

Die jeweiligen spektralen Transmissionsmessungen werden mit den zurückgerechneten Designkurven verglichen und zeigen keine signifikanten Abweichungen für die im Design definierten Reflexions-Spezifikationen (Abb. 7.6 - rechte Spalte).

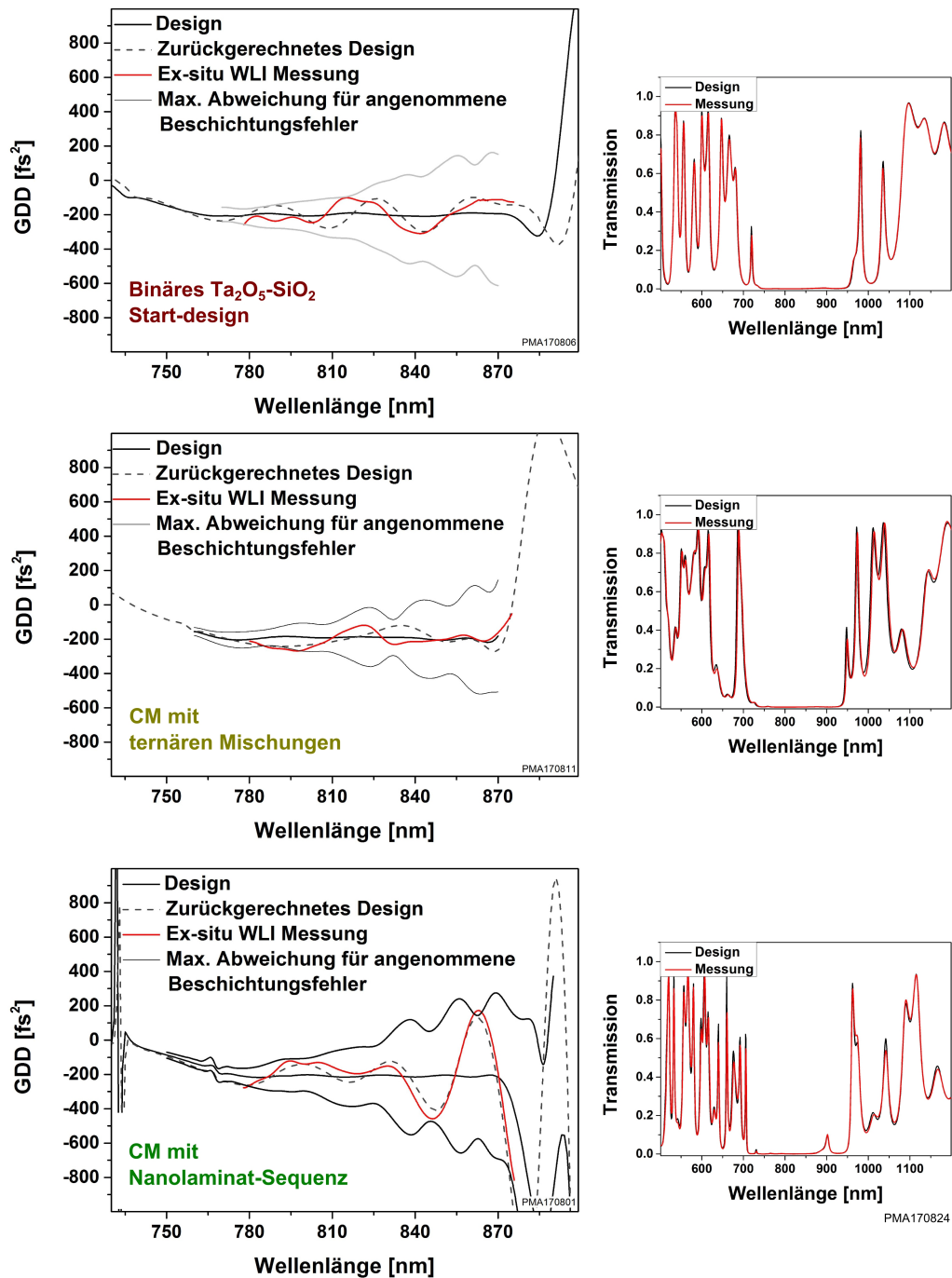


Abbildung 7.8: Gemessene GDD Kurven und spektrale Transmissionsverläufe der hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel.

Im Anschluss werden die Spiegel bezüglich ihrer laserinduzierten Zerstörschwelle charakterisiert. Gewählt wird das S:1-Testprotokoll mit einer Bestrahlung von 10.000 Pulsen pro Position bei den bekannten Parametern ($\tau_P = 150$ fs, $\lambda_Z = 775$ nm; $f_{rep} = 1$ kHz). Der binäre Spiegel hat dabei eine LIDT von $H_{bin} = (0,17 \pm 0,02)$ J/cm². Die Zerstörfestigkeit für die Spiegel mit inkludierten ternären Mischungen oder Nanolaminatsequenzen kann auf das über 1,7 bzw. 1,88 fache gesteigert werden. Differenzierte morphologische Zerstörungen deuten an, dass sich die LIDT von komplexen Schichtstrukturen nicht mehr mit den Abschätzungen über die interne LIDT einer Einzelschicht terminieren lassen (Abb. 7.11). Eine exakte Analyse der Zerstörungen von phasenkomprimierenden Optiken ist aktuell noch nicht vollständig möglich und Gegenstand aktueller Forschung, wobei insbesondere das Verhalten der einzelnen spektralen Moden ein komplexes Zerstörverhalten hervorrufen kann [Csa18; Kaf16; Mel17]. Obwohl die Zerstörschwellen nicht mehr im Vorfeld abgeschätzt werden können, zeigt sich dennoch der erwartete Trend für die hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel. Das binäre Startdesign weist im Vergleich zu den modifizierten Spiegeln höhere Felder in mindestens einer hochbrechenden Ta₂O₅-Schicht auf. Das aufgestellte Konzept zur Reduktion der Feldstärken in den hochbrechenden Schichten durch eine gezielte Integration von Nanolaminatsequenzen oder ternären Kompositen äußert sich in der damit verbundenen und gewünschten Verbesserung der laserinduzierten Zerstörschwelle eines phasenkomprimierenden Spiegels im NIR-Bereich. Weiterhin folgt eine höhere LIDT für den Spiegel mit integrierten Nanolaminatsequenzen im Vergleich zu dem mit enthaltenen ternären Kompositen. Obwohl die optische Bandkante der ternären Mischung ($E_{gap} = 4,75$ eV) größer ist als die der Nanolaminatsequenz ($E_{gap} = 4,67$ eV), ist

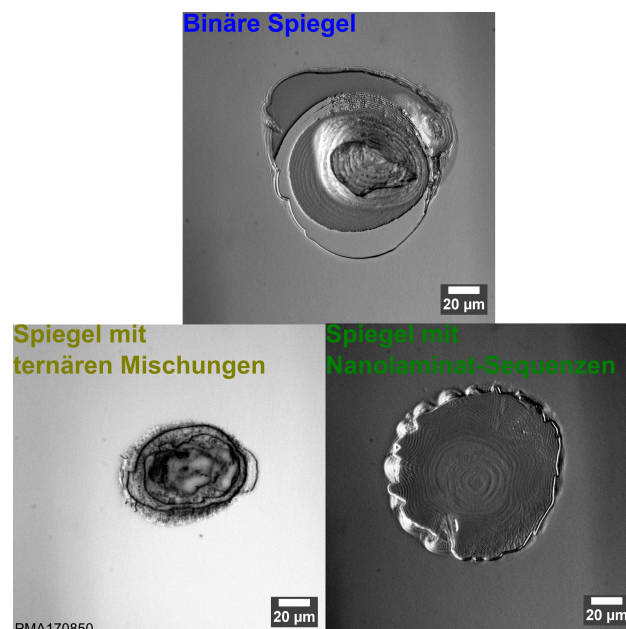


Abbildung 7.9: Zerstörmorphologie der hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel.

die interne LIDT jeweils für die Nanolaminatsequenz höher und könnte dadurch mit zu einer höheren LIDT des phasenkomprimierenden Spiegels mit Nanolaminaten beitragen. Eine mögliche Ursache für die aufgezeigte LIDT-Steigerung könnte durch die experimentell unterschiedlich erzielten GDD-Werte herrühren, die wiederum den einfallenden Laserpuls unterschiedlich stark zeitlich komprimieren. Mit dem von Mero aufgezeigten empirischen Zusammenhang zwischen der Pulsdauer und der Zerstörschwelle kann der Einfluss einer modifizierten Pulsdauer abgeschätzt werden (Gleichung 2.12 - Kapitel 2.4). Die drei hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel weichen bei der Testwellenlänge des LIDT-Messplatzes ($\lambda = 775 \text{ nm}$) um weniger als $\pm 100 \text{ fs}^2$ voneinander ab. Bei einer einfallenden Pulsdauer von 150 fs kann die zeitliche Kompression nach Reflexion am Spiegel bestimmt werden und vergrößert sich um maximal $0,1 \text{ fs}$ (Gleichung 2.4 - Kapitel 2.1). Mit der modifizierten Pulsdauer wird im Anschluss die Zerstörschwelle abgeschätzt. Das maximale Verhältnis der berechneten Zerstörschwellen $H_{max}(150 \text{ fs})/H_{max}(150,01 \text{ fs})$ zeigt Änderungen in der LIDT von weit unterhalb 1% . Erhöhte gemessene Zerstörschwellenwerte für Komponenten mit integrierten Nanolaminaten oder ternären Kompositen aufgrund von abweichenden GDD-Werten können mit dieser Abschätzung vernachlässigt werden. Selbst für Laserpulse mit einer zeitlichen Pulsdauer 10 fs wirkt sich eine Abweichung in den gemessenen GDD-Spezifikationen von $\pm 100 \text{ fs}^2$ in einer maximalen $1,17$ fachen Steigerung der LIDT aus und liegt noch weit unter der ca. $1,9$ fachen aufgezeigten Verbesserung der LIDT.

Interessant für die hergestellten Demonstratoren ist, ob die LIDT durch zusätzliche Designstrategien noch weiter erhöht werden könnte. Dafür kann beispielsweise die Feldstärke in einem binären Design gezielt manipuliert werden oder sowohl ternäre Komposite mit variierenden optischen Bandkanten in den Spiegel substituiert werden als auch Nanolaminat mit variierenden QW-Breiten. Das nächste Unterkapitel diskutiert die Resultate der zusätzlich hergestellten Spiegel und vergleicht die LIDT-Ergebnisse mit den Demonstratoren.

7.5 Klassifizierung der hergestellten Demonstratoren

Zusätzlich ist es mit der Dünnschichtfilm-Software „Optilayer“ möglich, neben den spektralen Targets auch ein Feldstärkentarget zu definieren. Mit diesem Feature kann die Feldstärke in hoch – oder niedrigbrechenden Schichten gezielt minimiert oder maximiert werden. Die zusätzliche Freigabe eines weiteren Parameters für die Designfindung und Optimierung kann zu einer höheren Sensitivität des Designs auf Schicht- und Dispersionsdatenfehler führen. Verglichen mit dem binären Startdesign reduziert sich das Design von 82 auf 73 Schichten, während die physikalische Schichtdicke mit $8\ \mu\text{m}$ und die erreichten GDD- und Reflexions-Spezifikationen annähernd konstant bleiben (Tabelle 7.4).

Insgesamt wird mit dem zusätzlichen E-Feld-Target die maximale Feldstärke stärker in niedrigbrechende Schichten verschoben (Abb. 7.10 – links oben). Dadurch konnte die Feldstärke in einer Ta_2O_5 -Schicht von 98 auf 77 % reduziert werden. Die Verringerung der Feldstärke in den hochbrechenden Schichten manifestiert sich in der Zerstörschwellenmessung in einer LIDT von $H = (0,22 \pm 0,2)\ \text{J}/\text{cm}^2$, was einer 1,3 fachen Steigerung entspricht gegenüber dem binären Design ohne die Freigabe des Feldstärken-Targets. Die diskutierte erhöhte Designsensitivität hat den größten Einfluss auf das GDD-Spektrum. Das GDD-Spektrum des zurückgerechneten Designs, das in guter Korrelation zu der GDD-Messung mit dem ex-situ Weißlichtinterferometer ist, zeigt Oszillationen der GDD mit einer maximalen Amplitude von fast $\pm 200\ \text{fs}^2$. Quantitativ drückt sich die höhere Sensitivität in einer über 6,3 fachen höheren Residuenquadratsumme im Vergleich zum binären Startdesign des phasenkomprimierenden Spiegels (Gleichung 7.1) aus.

Tabelle 7.4: Designparameter der zusätzlich hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel.

	Binär: E-Feld optimiert	RISED: Nano- laminatsequen- zen	RISED: Ternären- Mischungen
Schichtanzahl	74	116	73
Gesamtdicke d_{phy} [μm]	8,0	8,3	7,3
Minimale Reflexion inner- halb von $\Delta\lambda$ [%]	>99,8	>99,7	99,4
Maximale Feldstärke in Ta_2O_5 [%]	77	84	66
Maximale Feldstärke in der substituierten Struktur [%]	—	111	79
Optische Bandkante der substituierten Struktur [eV]	—	4,67; 4,95	5,1; 4,98; 4,87; 4,76; 4,64

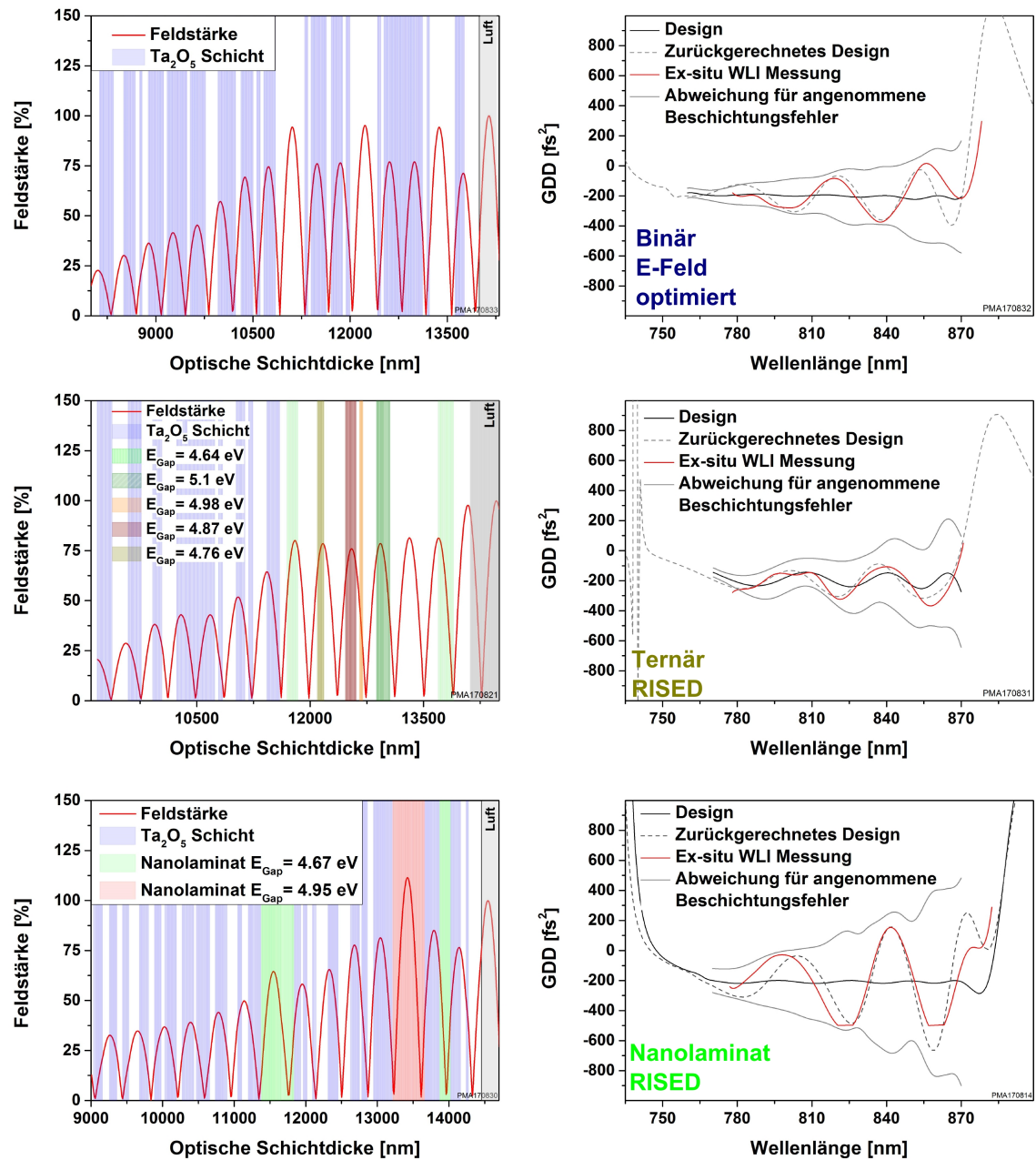


Abbildung 7.10: Feldstärkenverteilung und GDD-Spektren der zusätzlich hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel.

In Anlehnung an das für die Optimierung von hochreflektierenden RISED-Spiegeln ausgearbeitete Konzept, bei dem eine systematische Verringerung des Brechungsindex in hochbrechenden Schichten in absteigender Reihenfolge erfolgt, wurden insgesamt fünf ternäre Komposite mit jeweils unterschiedlichen optischen Bandkanten in einem Intervall von 5,1 bis 4,64 eV in das binäre phasenkomprimierende Startdesign substituiert. Der einhergehende Verlust an Brechwertkontrast schlägt sich in einer minimal erreichten Reflexion von 99,4 % innerhalb der spektralen Bandbreite von 770 bis 870 nm nieder. Die berechnete

GDD-Kurve oszilliert mit einer maximalen Amplitude von $\pm 60 \text{ fs}^2$ um die 200 fs^2 . Die Wahl von fünf verschiedenen ternären Kompositen beim IBS-Co-Sputtern erhöht zusätzlich die Fehleranfälligkeit. Verglichen mit dem Design ist die zurückgerechnete Kurve um den RSS-Faktor 3,6 schlechter (Abb. 7.10 – Mitte rechts). Gegenüber dem Design mit einem konstanten ternären Komposit erhöht sich die Schichtanzahl auf insgesamt 73 bei einer verringerten physikalischen Gesamtdicke von $7,3 \mu\text{m}$. Die maximale Feldstärke in binären Ta_2O_5 -Schichten im ternären phasenkomprimierenden RISED Spiegel konnte nicht weiter reduziert werden und bleibt konstant (Abb. 7.10 – Mitte links). Die charakteristische Zerstörschwelle von $H = (0,28 \pm 0,03) \text{ J/cm}^2$ ist innerhalb der Fehlertoleranz äquivalent zu der phasenkomprimierenden Optik mit einem konstanten eingebrachten ternären Komposit (Abb. 7.11).

Analog wird das binäre phasenkomprimierende Startdesign mit zwei Nanolaminatsequenzen ergänzt, wobei Sequenzen mit einer jeweiligen optischen Bandkante von 4,67 und 4,95 eV (korrespondierend zu einer QW-Breite von 1 und 0,5 nm) verwendet werden. Die Dicke der Barriere wird mit 20 nm festgelegt, um die Tunnelwahrscheinlichkeit der Elektronen zu minimieren (vgl. Kapitel 6.5). Äquivalent zu dem vorigen gezogenen Vergleich der ternären phasenkomprimierenden Spiegel erhöht sich auch hier die Schichtanzahl, während sich die physikalische Gesamtdicke um $0,6 \mu\text{m}$ reduziert. Obwohl sowohl die maximale Feldstärke in der binären Schicht als auch die maximale Feldstärke in der Nanolaminatsequenz um knapp 20 bzw. 12 % gestiegen ist, ist die ermittelte Zerstörschwelle der Komponente mit $H = 0,32 \text{ J/cm}^2$ vergleichbar mit der LIDT des phasenkomprimierenden Spiegels mit nur einer Nanolaminatsequenz. Die dünnen Nanolaminatstrukturen im hergestellten Demonstrator sind bei systematischen Schichtdickenabweichungen im Vergleich zu dickeren binären Schichten mit einem höheren relativen Fehler behaftet. Der höhere relative Fehler kann eine Ursache für die starken Oszillationen der GDD-Amplitude um mehr als $\pm 400 \text{ fs}^2$ sein, was sich in einem über 28-fachen höheren RSS-Faktor quantifiziert. Es kann erwartet werden, dass ein mehrmaliges Herstellen der Designs mit inkludierten ternären Mischungen und Nanolaminatsequenzen den RSS-Faktor deutlich reduzieren kann. Spezifische empirisch beobachtete kleine Änderungen der Dispersionsdaten ($\ll 1\%$) bei Langzeitbeschichtungen lassen sich dadurch besser evaluieren und mit in der Designberechnung berücksichtigen. Wichtig erscheint für das Ergebnis dieser Studie, dass substituierte ternäre Mischungen oder Nanolaminatsequenzen mit variierenden optischen Bandkanten die laserinduzierte Zerstörschwelle der Optik nicht weiter verbessern können. Eine gezielte Substitution mit einem modifizierten Material(-Sequenz), das eine ausreichend hohe interne LIDT aufweist, erscheint gegenwärtig ausreichend. Verglichen mit einem auf die Feldstärkenverteilung optimierten binären Design, liegt die LIDT von phasenkomprimierenden Spiegeln mit Nanolaminaten noch immer um den Faktor 1,45 höher (Abb. 7.11).

Das hier vorgestellte Konzept zur Steigerung der LIDT in phasenkomprimierenden Optiken erscheint unabhängig vom gewählten Design und den verwendeten Materialien zu sein. Als

Trend im Vergleich zu der Optimierung der standardisierten hochreflektierenden QWOT-Bragg-Spiegel zeigt sich, dass eine höhere maximale Feldstärke einer hochbrechenden Schicht im Design mehr Möglichkeiten zur Komprimierung bietet. Insbesondere phasenkomprimierende Spiegel mit schmalen spektralen Banden, aber hohen GDD-Werten, die auf Basis von GTI-Spiegeln beruhen, versprechen hohe Steigerungsraten der LIDT durch Substitution der hochbrechenden feldstärkeüberhöhten Schichten mit Nanolaminatsequenzen.

Auch für die technologisch noch anspruchsvoll herzustellenden phasenkomprimierenden Designs mit hohen spektralen Bandbreiten bei gleichzeitig höheren Gruppenverzögerungsdispersionen mit physikalischen Gesamtdicken von mehr als $20\ \mu\text{m}$ treten aufgrund der extremen Designkomplexität stark überhöhte Feldstärken in hochbrechenden Schichten auf. Zum Beispiel gibt es in einem berechneten Design mit einer Gesamtdicke von $26\ \mu\text{m}$ mit einer spektralen Bandbreite von $100\ \text{nm}$, um die Zentralwellenlänge von $820\ \text{nm}$ und einer GDD- von $-1500\ \text{fs}^2$, maximale Feldstärken von mehr als 150% in hochbrechenden Ta_2O_5 -Schichten (Abb. 7.12). Die Designspezifikationen liegen dabei über den von Pervak et al. postulierten empirischen Abhängigkeiten zwischen einer maximal erreichbaren GDD und einer spektralen Bandbreite (Abb. 2.4 - Kapitel 2.1).

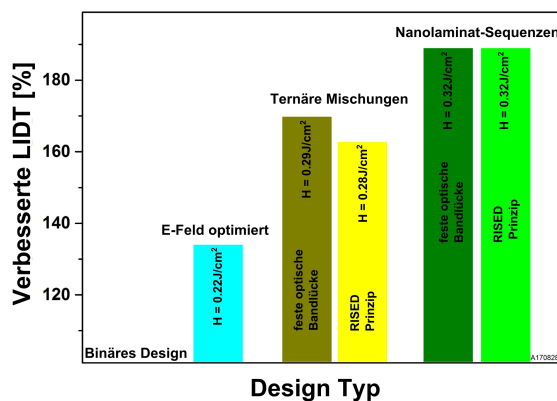


Abbildung 7.11: Ranking der gemessenen laserinduzierten Zerstörungen der hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel.

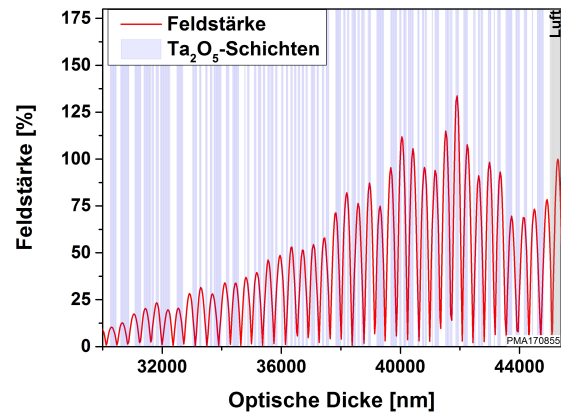


Abbildung 7.12: Verteilung der Intensität der Feldstärke für einen phasenkomprimierenden Spiegel mit einer GDD von $-1500\ \text{fs}^2$ bei einer spektralen Bandbreite von $100\ \text{nm}$ und einer physikalischen Gesamtdicke von $26\ \mu\text{m}$.

7.6 Kapitelzusammenfassung

Ziel dieses Kapitels war es, die laserinduzierte Zerstörschwelle von komplexen dielektrischen Optiken zu erhöhen durch den gezielten Einsatz von den neuartig hergestellten dielektrischen quantisierten Schichtstrukturen. Der Ansatz besteht dabei in der Minimierung der maximalen Feldstärke in hochbrechenden Schichten in einem binären Design. Der im Verlauf der vorliegenden Arbeit dargelegte Zusammenhang zwischen LIDT im fs-Regime, optischer Bandkante und Feldstärke verspricht bei einer erfolgten Minimierung der Feldstärke im hochbrechenden Material eine verbesserte LIDT der kompletten Optik. Es kann gezeigt werden, dass zunächst in einen konventionellen Bragg-Spiegel erfolgreich Nanolamine in das Spiegeldesign substituiert werden können. Dadurch kann die maximale Feldstärke in der hochbrechenden Schicht gesenkt werden. Die Nanolamine haben eine derart verbesserte optische Bandkante, dass die interne LIDT wesentlich höher ist im Vergleich zu einer binären Ta_2O_5 Einzelschicht. Mit der Annahme, dass die Zerstörschwelle des binären Bragg-Spiegels mit Nanolaminatsequenzen stets durch die hochbrechende Ta_2O_5 -Schicht mit maximaler Feldstärke determiniert ist, kann die erwartete LIDT berechnet werden und weicht um lediglich 6 % ab zur experimentell bestimmten LIDT. Die gewählte Methode scheint umso effizienter, je höher die maximale Feldstärke der hochbrechenden Schicht in einem binären Filterdesign ist. Wie bereits aufgezeigt, können insbesondere in phasenkomprimierenden Spiegeln hochbrechende Schichten in tiefen Schichtstapeln mit hohen Feldstärken auftreten. Zu diesem Zweck wird ein anspruchsvoller binärer phasenkomprimierender Spiegel für eine Anwendung im NIR-Bereich berechnet und hergestellt. Die Feldstärkenverteilung wird quantitativ analysiert. Über die gezielte Substitution von Nanolaminen oder ternären Kompositen kann die maximale Feldstärke in einer reinen Ta_2O_5 Schicht signifikant reduziert werden. Die LIDT von phasenkomprimierenden Spiegeln mit Nanolaminatsequenzen kann auf das fast 1,9 fache gesteigert werden im Vergleich zum binären phasenkomprimierenden Design mit einer absoluten LIDT von $0,17 \text{ J/cm}^2$. Filter mit entsprechenden ternären Kompositen zeigen einen geringeren Anstieg der LIDT mit einem Faktor von fast 1,7. Die Einordnung der Ergebnisse erfolgt durch die zusätzliche Herstellung von drei weiteren phasenkomprimierenden Spiegeln. Zum einen wird in der Designberechnung des binären Designs gezielt die maximale Feldstärke in einer hochbrechenden Schicht reduziert. Nachteilig erhöht sich die Sensitivität der GDD-Spezifikation auf geringe Abweichungen im Herstellungsprozess drastisch. Die LIDT des binären Filters mit angewandter Feldstärkeoptimierung liegt mit einem Faktor von 1,4 immer noch deutlich unter der 1,9 fachen Steigerung durch die Anwendung von Nanolaminen. In zwei weiteren hergestellten Spiegeln werden mehrere quantisierte Schichtstrukturen bzw. ternäre Komposite mit variierenden optischen Bandkanten substituiert. Es zeigt sich, dass die LIDT der Optiken nicht weiter gesteigert werden kann. Eine erneute Herstellung der präsentierten Demonstratoren verspricht eine bessere Kenntnis über die Prozessparameter. So könnte

beispielsweise die beobachtete geringfügige Veränderung des Brechungsindex während der langen Beschichtungen quantitativ analysiert werden und in der Berechnung der Designs mitberücksichtigt werden, was wiederum eine geringere Abweichung zwischen der gemessenen GDD und der ursprünglich berechneten GDD implizieren sollte. Abschätzungen zwischen der über die GDD berechneten Pulsdauer und der zu erwartenden Zerstörschwelle zeigen, dass die in den jeweiligen Spiegeln erzielten experimentellen abweichenden GDD-Werte keinen signifikanten Einfluss auf die aufgezeigte Steigerung der GDD haben.

Insgesamt wird von dem hier vorgestellten Konzept zur Steigerung der LIDT erwartet, dass es in Bezug auf die Design- und auch auf die Materialwahl universell eingesetzt werden kann. Die relativ erzielten Verbesserungen sind stark abhängig von dem betrachteten Design und seiner charakteristischen Feldstärkeverteilung. Mit herzustellenden Spiegeln, beispielsweise aus Hafnium- und Siliziumdioxid, lassen sich aufgrund der höheren internen LIDT von HfO_2 im Vergleich zu Ta_2O_5 höhere absolute Zerstörschwellen erreichen. In Kombination mit dem hier vorgestellten Verfahren, beispielsweise die als kritisch identifizierten Schichten mit Nanolaminatstrukturen aus HfO_2 - SiO_2 zu ersetzen, kann die LIDT von Ultrakurzpuls-Optiken entscheidend verbessert werden und bereitet den Weg für die nächste Generation an erforderlichen phasenkomprimierenden Hochleistungsoptiken.

KAPITEL 8

Zusammenfassung und Ausblick

Die Untersuchungen der vorliegenden Arbeit konzentrierten sich auf die Verbesserung der Zerstörschwellen von Ultrakurzpuls Optiken. Hierfür wurde erstmalig eine neuartige Materialklasse hergestellt, mit der die laserinduzierte Zerstörschwelle gezielt optimiert werden kann. Die Herstellung der phasenkomprimierenden Spiegel mit modifizierten Schichtstrukturen gelingt über die Anwendung von neuen Monitorierungstechniken.

Die Arbeit konzentrierte sich zunächst auf die Herstellung von phasenkomprimierenden Spiegeln mit binären Materialien. Die Designstudien und deren experimentelle Umsetzung dienten als Referenz für die weiterführenden Untersuchungen. Bereits für diese Beschichtungen wurde ein neuartiges Monitorkonzept in den Prozess implementiert, das die Phase und damit die Gruppenverzögerungsdispersion (GDD) am bewegten Substrat während des Beschichtungsvorganges misst. Grundlage hierfür ist ein faserbasiertes Weißlichtinterferometer, das derzeit die Phase des elektrischen Feldes im Wellenlängenbereich von 800 bis 880 nm messen kann. Durch die Validierung dieses GDD-Monitors konnte das Potential der Messmethode in Bezug auf die Schichtdickenpräzision von phasenkomprimierenden Optiken innerhalb des Monitorierungsbereiches aufgezeigt werden.

Weiterführend wurden neuartige Konzepte entwickelt, die eine zuverlässige Extrapolation des Phasenverhaltens zu deutlich kürzeren Wellenlängen, bzw. zu größeren Einfallswinkeln ermöglichten. Voraussetzung hierfür ist die Verwendung eines Schichtdesigns, bei dem die Sensitivität der Phase im extrapolierten Bereich kleiner oder äquivalent zur Variation der Messgröße im Monitorbereich ist. Die Evaluation der Beschichtungen erfolgte mittels eines im Rahmen der Arbeit aufgebauten ex-situ Weißlichtinterferometers, welches sowohl die Messung in der Zeit- als auch in der Frequenzdomäne erlaubt. Dieser Aufbau verfügt im Gegensatz zur in-situ Messung über einen größeren Spektralbereich und über eine höhere Wellenlängenauflösung, die eine präzise Analyse der Beschichtungen gestatten.

Allerdings kann hierbei keine Optimierung der LIDT erfolgen, da diese mit komplexen Feldstärkenverteilungen in phasenkomprimierenden Spiegeln korreliert ist. Häufig treten maximale Feldstärken in oberflächenfernen, hochbrechenden Schichtstapeln auf, die dabei die laserinduzierte Zerstörschwelle der kompletten Optik definieren. Der in dieser Arbeit verfolgte Lösungsansatz besteht in der Substituierung der als kritisch identifizierten Schicht-

ten durch dielektrische Materialien mit höherer materialintrinsischer Zerstörschwelle. In bisherigen Studien konnte die Zerstörfestigkeit durch den Einsatz von ternären Kompositen erhöht werden, indem deren optische Bandkante systematisch vergrößert wurde, was hingegen mit einem deutlich höheren technologischen Aufwand verbunden ist. Als Alternative zu den ternären Kompositen wurden in dieser Arbeit erstmalig quantisierte amorphe Schichtstrukturen hergestellt, evaluiert und optimiert. Für die Untersuchungen wurden eine Tantalpenoxid- (Ta_2O_5) und Hafniumdioxid-Schicht (HfO_2) jeweils in eine Matrix aus SiO_2 -Schichten eingebettet. Durch Schichtdickenvariation der hochbrechenden Schichten (Quanten-Well) und der niedrigbrechenden Schichten der Matrix (Barriere-Schichten) lassen sich die optischen und elektronischen Eigenschaften des so dargestellten Materials gezielt einstellen. Das Nanolaminat entsteht hier aus der periodischen Abfolge gleichartiger Quanten-Well und Barriere-Schichten. Die Quanten-Well Breite definiert hierbei die optische Bandkante des Materials, wobei eine signifikante Blauverschiebung der Bandkante für Schichtdicken kleiner 4 nm nachgewiesen wurde. In sehr guter Übereinstimmung mit numerischen Simulationen kann die optische Bandkante durch die sukzessive Verringerung der Schichtdicke des hochbrechenden Materials auf wenige Atomlagen um etwa 45 nm in den kurzwelligeren Spektralbereich verschoben werden. Zur Validierung des Quantencharakters der Nanolamine wurden umfangreiche Untersuchungen durchgeführt. So wurde gezeigt, dass die Bandkantenverschiebung weitgehend unabhängig vom SiO_2 -Anteil des Nanolaminates ist, wodurch sich diese grundlegend von den ternären Kompositen unterscheiden. Voraussetzung für dieses Verhalten sind klar definierte Grenzflächen zwischen den Materialien, die mittels umfangreicher TEM-Analysen nachgewiesen wurden. Die vernachlässigbare Breite des Übergangsbereiches und die präzisen Schichtdicken zeigen einmal mehr die hohe Qualität des verwendeten IBS-Prozesses. In Bezug auf die optischen Eigenschaften verhalten sich die Nanolamine vergleichbar zu herkömmlichen binären Oxiden, wobei sich der effektive Brechwert aus den Anteilen der jeweiligen hoch- und niedrigbrechenden Oxiden ergibt. Im Vergleich zu den Eigenschaften ternärer Komposite lassen sich mit den quantisierenden Nanolaminen die Brechwerte von Strukturen gleicher optischer Bandkante variieren. Insbesondere bei geringen Quanten-Well Breiten können bis zu 16 % höhere Brechwerte erreicht werden als mit ternären Kompositen gleicher Bandkante. So konnte beispielsweise als Demonstrator eine Nanolaminatsequenz mit einer physikalischen Gesamtdicke von $1,6 \mu\text{m}$ und einem gemessenen Absorptionswert von $k(\lambda = 266 \text{ nm}) = 6,9 * 10^{-4}$ aus insgesamt 500 Schichten hergestellt werden. Von besonderem Interesse sind in diesem Zusammenhang die direkten Vergleiche von LIDT-Messungen.

Die bislang aufgezeigte lineare Korrelation von optischer Bandkante und Zerstörschwelle konnte auch für die neuartigen quantisierten Schichtstrukturen nachgewiesen werden und erlaubt den Einsatz der Nanolamine zur Zerstörfestigkeitsoptimierung. Im Folgenden konnte die laserinduzierte Zerstörschwelle sowohl von konventionellen Bragg-Spiegeln als auch von komplexen dielektrischen Schichtfolgen durch den gezielten Einsatz der Nano-

lamintsequenzen stabilisiert werden. Im Gegensatz zum einfachen Materialaustausch bei den Bragg-Systemen erfordert die Optimierung in phasenkomprimierenden Komponenten eine exakte Analyse und Optimierung der internen Feldstärkeverteilung, die durch eine definierte Substitution von hochbrechenden binären Schichten erreicht wird.

Die gezielte Verwendung von quantisierten Strukturen verringerte die maximale Feldstärke in der binären Ta₂O₅-Schicht. Die aus dem konventionellen Bragg-Spiegel resultierende interne LIDT konnte dabei für die Berechnung der Zerstörschwelle des modifizierten Bragg-Spiegels eingesetzt werden, wobei lediglich eine Diskrepanz von 6 % zwischen vorhergesagter und gemessener LIDT auftrat. Zur Demonstration der Anwendung auf komplexe Systeme wurde die Feldstärkenverteilung in einem anspruchsvollen binären Design eines phasenkomprimierenden Spiegels analysiert. Die kritische hochbrechende binäre Schicht wurde sowohl durch quantisierte Schichtstrukturen als auch durch ternäre Komposite substituiert. Eine maximale Steigerung der LIDT von 0,17 J/cm² auf 0,32 J/cm² gelang mit der Anwendung von quantisierten Schichtstrukturen im Design. Dieser Trend wurde durch weitere modifiziert hergestellte Designs von phasenkomprimierenden Optiken bestätigt.

Das Optimierungskonzept scheint unabhängig von den gewählten binären Materialien und vom initialen Startdesign zu sein. Zukünftige Anwendungen von beispielsweise Hafniumdioxid als hochbrechendem Material versprechen daher eine deutliche Steigerung der laserinduzierten Zerstörschwellen. Abseits der Herstellung von phasenkomprimierenden Spiegeln bieten quantisierte Schichtstrukturen mit einem durchstimmbaren Brechwert bei einer konstanten optischen Bandlücke darüber hinaus vielfältige Möglichkeiten für neuartige Grundlagenexperimente, wie beispielsweise der Untersuchung des Zusammenhanges von nichtlinearen und linearen Brechwerten bei konstanter optischer Bandkante.

Literatur

- [Abe67] ABELES, F: *Optics of thin films*. North-Holland, Amsterdam, 1967 (siehe S. 10).
- [Alf71] ALFEROV, ZH I, VM ANDREEV, DZ GARBUZOV, YU V ZHILYAEV, EP MOROZOV, EL PORTNOI und VG TROFIM: „Investigation of the influence of the AlAs-GaAs heterostructure parameters on the laser threshold current and the realization of continuous emission at room temperature“. *Sov. Phys. Semicond* (1971), Bd. 4(9): S. 1573–1575 (siehe S. 18).
- [Amo11] AMOTCHKINA, TATIANA V, MICHAEL K TRUBETSKOV, VLADIMIR PERVAK, SEBASTIAN SCHLICHTING, HENRIK EHLERS, DETLEV RISTAU und ALEXANDER V TIKHONRAVOV: „Comparison of algorithms used for optical characterization of multilayer optical coatings“. *Applied optics* (2011), Bd. 50(20): S. 3389–3395 (siehe S. 35).
- [Ant67] ANTULA, J: „A Method of Measuring Effective Electron Mass in Thin Insulating Films“. *physica status solidi (b)* (1967), Bd. 24(1): S. 95–98 (siehe S. 66).
- [Apf76] APFEL, JOSEPH H: „Electric fields in multilayers at oblique incidence“. *Applied optics* (1976), Bd. 15(10): S. 2339–2343 (siehe S. 11).
- [Azz04] AZZOUZ, IFTITAN M: „Investigation of photoionization processes in ultrashort laser induced damage in optical materials“. *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* (2004), Bd. 37(16): S. 3259 (siehe S. 12).
- [Bas90] BASTARD, GERALD: *Wave mechanics applied to semiconductor heterostructures*. New York, NY (USA); John Wiley und Sons Inc., 1990 (siehe S. 19).
- [Bas91] BASTARD, GÉRALD, JA BRUM und R FERREIRA: „Electronic states in semiconductor heterostructures“. *Solid State Physics*. Bd. 44. Elsevier, 1991: S. 229–415 (siehe S. 19).
- [Bea93] BEAUDOIN, M, M MEUNIER und CJ ARSENAULT: „Blueshift of the optical band gap: Implications for the quantum confinement effect in a-Si: H/a-SiN_x: H multilayers“. *Physical Review B* (1993), Bd. 47(4): S. 2197 (siehe S. 40, 66, 73).
- [Ber63] BERNING, PH: „Physics of thin films, Vol. 1“. *Academic, New York* (1963), Bd. 73 (siehe S. 11).

- [Bla03] BLASCHKE, HOLGER, JÜRGEN KOHLHAAS, PUJA KADKHODA und DETLEV RISTAU: „DUV/VUV spectrophotometry for high-precision spectral characterization“. *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2002 and 7th International Workshop on Laser Beam and Optics Characterization*. Bd. 4932. International Society for Optics und Photonics. 2003: S. 536–544 (siehe S. 36).
- [Bra32] BRADLEY, AJ und AH JAY: „The formation of superlattices in alloys of iron and aluminium“. *Proc. R. Soc. Lond. A* (1932), Bd. 136(829): S. 210–232 (siehe S. 18).
- [Bra67] BRANDT, W und R LAUBERT: „Unified sputtering theory“. *Nuclear Instruments and Methods* (1967), Bd. 47(2): S. 201–209 (siehe S. 30).
- [Bur07] BURAKOV, IGOR M, NADEZHDA M BULGAKOVA, RAZVAN STOIAN, ALEXANDRE MERMILLOD-BLONDIN, ERIC AUDOUARD, ARKADI ROSENFELD, ANTON HUSAKOU und INGOLF V HERTEL: „Spatial distribution of refractive index variations induced in bulk fused silica by single ultrashort and short laser pulses“. *Journal of applied physics* (2007), Bd. 101(4): S. 043506 (siehe S. 13).
- [Cap87] CAPASSO, FEDERICO: „Band-gap engineering: from physics and materials to new semiconductor devices“. *Science* (1987), Bd. 235(4785): S. 172–176 (siehe S. 19).
- [Cau30] CAUCHY, AUGUSTIN-LOUIS: „Sur la réfraction et la réflexion de la lumière“. *Bulletin des sciences mathématiques* (1830), Bd. 14(6) (siehe S. 37).
- [Cev95] CEVRO, M.: „Ion-beam sputtering of (Ta₂O₅) x (SiO₂) composite thin films“. *Thin Solid Films* (1995), Bd. 258(1-2): S. 91–103 (siehe S. 65).
- [Cha80] CHAPMAN, BRIAN N: *Glow discharge processes: sputtering and plasma etching*. Wiley, 1980 (siehe S. 30).
- [Chi96] CHICHKOV, BORIS N, C MOMMA, STEFAN NOLTE, F VON ALVENSLEBEN und A TÜNNERMANN: „Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids“. *Applied Physics A* (1996), Bd. 63(2): S. 109–115 (siehe S. 5).
- [Cho08] CHO, EUN-CHEL, SANGWOOK PARK, XIAOJING HAO, DENGYUAN SONG, GAVIN CONIBEEER, SANG-CHEOL PARK und MARTIN A GREEN: „Silicon quantum dot/crystalline silicon solar cells“. *Nanotechnology* (2008), Bd. 19(24): S. 245201 (siehe S. 18).
- [Csa18] CSAJBÓK, VIKTÓRIA, ZSOLT BEDŐHÁZI, BENEDEK J NAGY und PÉTER DOMBI: „Ultrafast multipulse damage threshold of femtosecond high reflectors“. *Applied optics* (2018), Bd. 57(2): S. 340–343 (siehe S. 99).
- [Dem06] DEMTRÖDER, WOLFGANG: *Experimentalphysik 2: Elektrizität und Optik*. Springer-Verlag, 2006 (siehe S. 51).

- [Dem00] DEMTRÖDER, WOLFGANG: *Experimentalphysik 3: Atome, Moleküle und Festkörper*. Springer-Verlag, 2000 (siehe S. 22).
- [Did96] DIDDAMS, SCOTT und JEAN-CLAUDE DIELS: „Dispersion measurements with white-light interferometry“. *JOSA B* (1996), Bd. 13(6): S. 1120–1129 (siehe S. 50, 51).
- [Die02] DIECKMANN, MANFRED: „Spektrum: Software for optical interference coatings“. *Laser Zentrum Hannover e.V., www.lzh.de* (2002), Bd. (siehe S. 10, 38).
- [Die06] DIELS, JEAN-CLAUDE und WOLFGANG RUDOLPH: *Ultrashort laser pulse phenomena: fundamentals, techniques, and applications on a femtosecond time scale*. Elsevier, 2006 (siehe S. 6).
- [Dru00a] DRUDE, PAUL: „Zur elektronentheorie der metalle“. *Annalen der Physik* (1900), Bd. 306(3): S. 566–613 (siehe S. 13).
- [Dru00b] DRUDE, PAUL: „Zur elektronentheorie der metalle; II. Teil. galvanomagnetische und thermomagnetische effecte“. *Annalen der Physik* (1900), Bd. 308(11): S. 369–402 (siehe S. 13).
- [Ebe13] EBELING, KARL J: *Integrierte Optoelektronik: Wellenleiteroptik. Photonik. Halbleiter*. Springer-Verlag, 2013 (siehe S. 19, 79).
- [EK12] EL-KAREH, BADIH: *Fundamentals of semiconductor processing technology*. Springer Science & Business Media, 2012 (siehe S. 71).
- [Fei74] FEIT, MD und JA FLECK JR: „Effect of refraction on spot-size dependence of laser-induced breakdown“. *Applied Physics Letters* (1974), Bd. 24(4): S. 169–172 (siehe S. 13).
- [Fra13] FRANZ, GERHARD: *Kalte Plasmen: Grundlagen, Erscheinungen, Anwendungen*. Springer-Verlag, 2013 (siehe S. 30).
- [Fre87] FREY, HARTMUT und GERHARD KIENEL: *Dünnschichttechnologie*. Bd. 130. VDI-Verlag Düsseldorf, 1987 (siehe S. 31).
- [Fur92] FURMAN, SH A und AV TIKHONRAVOV: *Basics of optics of multilayer systems*. Atlantica Séguier Frontières, 1992 (siehe S. 49, 50).
- [Gal12] GALLAIS, LAURENT, BENOIT MANGOTE, MIREILLE COMMANDRÉ, MATHIAS MENDE, LARS JENSEN, HENRIK EHLERS, MARCO JUPÉ, DETLEV RISTAU, ANDRIUS MELNINKAITIS, VALDAS SIRUTKAITIS et al.: „An exhaustive study of laser damage in ion beam sputtered pure and mixture oxide thin films at 1030 nm with 500 fs pulse durations“. *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2012*. Bd. 8530. International Society for Optics und Photonics. 2012: 85300K (siehe S. 17).

- [Gol00] GOLUBOVIC, B, RR AUSTIN, MK STEINER-SHEPARD, MK REED, SCOTT A DIDDAMS, DJ JONES und AMELIA G VAN ENGEN: „Double Gires–Tournois interferometer negative-dispersion mirrors for use in tunable mode-locked lasers“. *Optics letters* (2000), Bd. 25(4): S. 275–277 (siehe S. 9).
- [Gom08] GOMEZ, AURORE, VINCENT BERGER, NICOLAS PÉRÉ-LAPERNE und LOUIS-ANNE DE VAULCHIER: „Barrier breakdown in multiple quantum well structure“. *Applied Physics Letters* (2008), Bd. 92(20): S. 202110 (siehe S. 82).
- [Gor79] GORSHKOV, BG, AS EPIFANOV und AA MANENKOV: *The relative role of impact and multiphoton ionization mechanisms in laser induced damage of transparent dielectrics*. ASTM International, 1979 (siehe S. 12).
- [Hab16] HABEL, FLORIAN, VAGE SHIRVANYAN, MICHAEL TRUBETSKOV, CHRISTIAN BURGER, ANNKATRIN SOMMER, MATTHIAS F KLING, MARTIN SCHULTZE und VLADIMIR PERVAK: „Octave spanning wedge dispersive mirrors with low dispersion oscillations“. *Optics express* (2016), Bd. 24(9): S. 9218–9223 (siehe S. 9).
- [Har00] HARRISON, PAUL: *Wires and Dots: Theoretical and Computational Physics*. Wiley, New York, 2000 (siehe S. 19).
- [Hel99] HELM, MANFRED: „The basic physics of intersubband transitions“. *Semiconductors and semimetals*. Bd. 62. Elsevier, 1999: S. 1–99 (siehe S. 26).
- [Hew79] HEWITT, EDWIN und ROBERT E HEWITT: „The Gibbs-Wilbraham phenomenon: an episode in Fourier analysis“. *Archive for history of Exact Sciences* (1979), Bd. 21(2): S. 129–160 (siehe S. 54).
- [Isoa] *ISO 15368 Measurements for reflectance and transmittance of optical components. Draft In-ternational Standard of ISO TC 172/SC 9/WG 6*. International Organization for Standardization. 1997 (siehe S. 35).
- [Isob] *ISO 21254 Lasers and laser-related equipment: Test methods for laser-induced damage threshold*. International Organization for Standardization. 2011 (siehe S. 41).
- [Jef25] JEFFREYS, HAROLD: „On certain approximate solutions of lineae differential equations of the second order“. *Proceedings of the London Mathematical Society* (1925), Bd. 2(1): S. 428–436 (siehe S. 82).
- [Jia05] JIA, TQ, XX LI, DH FENG, CF CHENG, RX LI, H CHEN und ZZ XU: „Theoretical and experimental study on femtosecond laser induced damage in CaF₂ crystals“. *Applied Physics A* (2005), Bd. 81(3): S. 645–649 (siehe S. 13).

- [Jog03] JOGLEKAR, AJIT P, HSIAO-HUA LIU, GJ SPOONER, E MEYHÖFER, G MOUROU und AJ HUNT: „A study of the deterministic character of optical damage by femtosecond laser pulses and applications to nanomachining“. *Applied Physics B* (2003), Bd. 77(1): S. 25–30 (siehe S. 16).
- [Joh25] JOHANSSON, CH und JO LINDE: „Röntgenographische Bestimmung der Atomanordnung in den Mischkristallreihen Au Cu und Pd Cu“. *Annalen der Physik* (1925), Bd. 383(21): S. 439–460 (siehe S. 18).
- [Jup12] JUPÉ, MARCO: „Zerstörverhalten und Anwendungen von oxidischen Mischungen im Ultrakurzpulsbereich“. Diss. Leibniz Universität, 2012 (siehe S. 12, 15, 17, 18, 39, 63).
- [Jup07] JUPÉ, MARCO, MARC LAPPSCHIES, LARS JENSEN, KAI STARKE und DETLEV RISTAU: „Improvement in laser irradiation resistance of fs- dielectric optics using silica mixtures“. *Laser-Induced Damage in Optical Materials*. Bd. 6403. Proc. of SPIE, 2007 (siehe S. 17, 82).
- [Jup11] JUPÉ, MARCO, MATTHIAS MENDE, CHRISTIAN KOLLECK, DETLEV RISTAU, LAURENT GALLAIS und BENOIT MANGOTE: „Measurement and calculation of ternary oxide mixtures for thin films for ultra short pulse laser optics“. *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2011*. Bd. 8190. International Society for Optics und Photonics. 2011: S. 819004 (siehe S. 17, 67, 82).
- [Jür15] JÜRGENS, PETER: „Theoretical and experimental investigations of nonlinear losses and damage mechanisms in transparent materials“. Magisterarb. Leibniz Universität Hannover, 2015 (siehe S. 74).
- [Kaf16] KAFKA, KYLE RP, NOAH TALISA, GABRIEL TEMPEA, DRAKE R AUSTIN, CATALIN NEACSU und ENAM A CHOWDHURY: „Few-cycle pulse laser induced damage threshold determination of ultra-broadband optics“. *Optics express* (2016), Bd. 24(25): S. 28858–28868 (siehe S. 99).
- [Kär04] KÄRTNER, FRANZ X: *Few-cycle laser pulse generation and its applications*. Bd. 95. Springer Science & Business Media, 2004 (siehe S. 91).
- [Kär01] KÄRTNER, FX, U MORGNER, R ELL, T SCHIBLI, JG FUJIMOTO, EP IPPEN, V SCHEUER, G ANGELOW und T TSCHUDI: „Ultrabroadband double-chirped mirror pairs for generation of octave spectra“. *JOSA B* (2001), Bd. 18(6): S. 882–885 (siehe S. 9).
- [Kel65] KELDYSH, LV et al.: „Ionization in the field of a strong electromagnetic wave“. *Sov. Phys. JETP* (1965), Bd. 20(5): S. 1307–1314 (siehe S. 12, 13).
- [Kit96] KITTEL, CHARLES, PAUL MCEUEN und PAUL MCEUEN: *Introduction to solid state physics*. Bd. 8. Wiley New York, 1996 (siehe S. 21, 39).

- [Kov95] KOVÁCS, AP, R SZIPÖCS, K OSVAY und Zs BOR: „Group-delay measurement on laser mirrors by spectrally resolved white-light interferometry“. *Optics letters* (1995), Bd. 20(7): S. 788–790 (siehe S. 51).
- [Kro82] KROEMER, H.: „Heterostructure bipolar transistors and integrated circuits“. *Proceedings of the IEEE*. Bd. 70(1). 1982: S. 13–25 (siehe S. 18).
- [Lap09] LAPPSCHIES, MARC: „Rugate Filter und Mischschichten für optische Hochleistungskomponenten“. Diss. Leibniz Universität Hannover, 2009 (siehe S. 33, 63).
- [Lap06] LAPPSCHIES, MARC, BJÖRN GÖRTZ und DETLEV RISTAU: „Application of optical broadband monitoring to quasi-rugate filters by ion-beam sputtering“. *Applied optics* (2006), Bd. 45(7): S. 1502–1506 (siehe S. 90).
- [Len98] LENZNER, MATTHIAS, JÖRG KRÜGER, S SARTANIA, Z CHENG, CH SPIELMANN, G MOUROU, WOLFGANG KAUTEK und FERENC KRAUSZ: „Femtosecond optical breakdown in dielectrics“. *Physical review letters* (1998), Bd. 80(18): S. 4076 (siehe S. 16).
- [Lev68] LEVI, LEO: *Applied optics: a guide to optical system design*. Wiley, 1968 (siehe S. 10).
- [Liu88] LIU, HC, DD COON, O BYUNGSUNG, YF LIN und MH FRANCOMBE: „Inter-subband transition in quantum wells and triple-barrier diode infrared detector concepts“. *Superlattices and microstructures* (1988), Bd. 4(3): S. 343–349 (siehe S. 26).
- [Liu06] LIU, HUI CHUN: *Quantum Well Infrared Photodetectors: Physics and Applications*. *Optical Science*. Springer, 2006 (siehe S. 82).
- [Man12a] MANGOTE, B., L. GALLAIS, M. COMMANDRE, M. MENDE, L. JENSEN, H. EHLERS, D. RISTAU, A. MELNINKAITIS, V. MIRASKAS, V. SIRUTKAITIS, S. KICAS, T. TOLENIS und DRAZDYS R.: „Femtosecond laser damage resistance of oxide and mixture oxide optical coatings“. *Optics letters* (2012), Bd. 37(9): S. 1478–1480 (siehe S. 17, 82).
- [Man12b] MANGOTE, BENOIT, LAURENT GALLAIS, MYRIAM ZERRAD, FABIEN LEMARCHAND, LH GAO, MIREILLE COMMANDRE und MICHEL LEQUIME: „A high accuracy femto-/picosecond laser damage test facility dedicated to the study of optical thin films“. *Review of scientific instruments* (2012), Bd. 83(1): S. 013109 (siehe S. 43).
- [Mat98] MATUSCHEK, NICOLAI, FRANZ X KARTNER und URSULA KELLER: „Theory of double-chirped mirrors“. *IEEE Journal of selected topics in quantum electronics* (1998), Bd. 4(2): S. 197–208 (siehe S. 8).

- [Mel17] MELNIKAS, SIMAS, TOMAS TOLENIS, LINAS SMALAKYS, GINTARĖ BATAVIČIŪTĖ, ANDRIUS MELNINKAITIS und SIMONAS KIČAS: „Enhancement of laser-induced damage threshold in chirped mirrors by electric field reallocation“. *Optics express* (2017), Bd. 25(22): S. 26537–26545 (siehe S. 99).
- [Mel11] MELNINKAITIS, A., T. TOLENIS, L. MAZULE, J. MIRAIKAS, V. SIRUTKAITIS, B. MANGOTE, X. FU, M. ZERRAD, L. GALLAIS, M. COMMANDRE, S. KICAS und DRAZDYS R.: „Characterization of zirconia and niobiasilica mixture coatings produced by ion-beam sputtering“. *Applied optics* (2011), Bd. 50: S. C188–C196 (siehe S. 82).
- [Men13] MENDE, MATHIAS, STEFAN SCHRAMMEYER, HENRIK EHLERS, DETLEV RISTAU und LAURENT GALLAIS: „Laser damage resistance of ion-beam sputtered Sc₂O₃/SiO₂ mixture optical coatings“. *Applied optics* (2013), Bd. 52(7): S. 1368–1376 (siehe S. 82).
- [Mer05] MERO, M, J LIU, W RUDOLPH, D RISTAU und K STARKE: „Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films“. *Physical Review B* (2005), Bd. 71(11): S. 115109 (siehe S. 12, 15, 16, 73).
- [Mic37] MICHELS, A und J HAMERS: „The effect of pressure on the refractive index of CO₂: The Lorentz-Lorenz formula“. *Physica* (1937), Bd. 4(10): S. 995–1006 (siehe S. 75).
- [Nag90] NAGANUMA, KAZUNORI, KAZUO MOGI und HAJIME YAMADA: „Group-delay measurement using the Fourier transform of an interferometric cross correlation generated by white light“. *Optics letters* (1990), Bd. 15(7): S. 393–395 (siehe S. 50, 54).
- [Nat85] NATHAN, VAIDYA, ARTHUR H GUENTHER und SHASHANKA S MITRA: „Review of multiphoton absorption in crystalline solids“. *JOSA B* (1985), Bd. 2(2): S. 294–316 (siehe S. 13).
- [Neg16] NEGRES, RALUCA A, CHRISTOPHER J STOLZ, KYLE RP KAFKA, ENAM A CHOWDHURY, MATT KIRCHNER, KEVIN SHEA und MEAGHAN DALY: „40-fs broadband low dispersion mirror thin film damage competition“. *Laser-Induced Damage in Optical Materials 2016*. Bd. 10014. International Society for Optics und Photonics. 2016: 100140E (siehe S. 60).
- [Oht90] OHTA, KOJI und HATSUO ISHIDA: „Matrix formalism for calculation of electric field intensity of light in stratified multilayered films“. *Applied optics* (1990), Bd. 29(13): S. 1952–1959 (siehe S. 10).
- [Opt] *OptiLayer Software*. <http://www.optilayer.com> (siehe S. 48).

- [Par89] PARKER, JONATHAN und CR STROUD JR: „Generalization of the Keldysh theory of above-threshold ionization for the case of femtosecond pulses“. *Physical Review A* (1989), Bd. 40(10): S. 5651 (siehe S. 13).
- [Pas17] PASCHEL, SEBASTIAN: „Entwicklung eines dualen Weißlichtinterferometers zur Charakterisierung phasensensitiver Optiken“. Magisterarb. Leibniz Universität Hannover, 2017 (siehe S. 8, 52, 56).
- [Per13] PERVAK, V, V FEDOROV, YU A PERVAK und M TRUBETSKOV: „Empirical study of the group delay dispersion achievable with multilayer mirrors“. *Optics Express* (2013), Bd. 21(15): S. 18311–18316 (siehe S. 9, 10).
- [Per11a] PERVAK, V, MK TRUBETSKOV und AV TIKHONRAVOV: „Robust synthesis of dispersive mirrors“. *Optics express* (2011), Bd. 19(3): S. 2371–2380 (siehe S. 50).
- [Per11b] PERVAK, VOLODYMYR: „Recent development and new ideas in the field of dispersive multilayer optics“. *Applied optics* (2011), Bd. 50(9): S. C55–C61 (siehe S. 10).
- [Per09] PERVAK, VOLODYMYR, IZHAR AHMAD, MK TRUBETSKOV, AV TIKHONRAVOV und FERENC KRAUSZ: „Double-angle multilayer mirrors with smooth dispersion characteristics“. *Optics express* (2009), Bd. 17(10): S. 7943–7951 (siehe S. 9).
- [Poe03] POELMAN, DIRK und PHILIPPE FREDERIC SMET: „Methods for the determination of the optical constants of thin films from single transmission measurements: a critical review“. *Journal of Physics D: Applied Physics* (2003), Bd. 36(15): S. 1850 (siehe S. 38).
- [Pre07] PRESS, WILLIAM H: *Numerical recipes 3rd edition: The art of scientific computing*. Cambridge university press, 2007 (siehe S. 34).
- [Rai65] RAIZER, YU P: „Heating of a Gas by a Powerful Light Pulse, Soviet Physics“. *JETP* (1965), Bd. 21(5) (siehe S. 13).
- [Ret04] RETHFELD, B.: „Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics“. *Physical Review Letters* (2004), Bd. 92: S. 187401 (siehe S. 13, 80).
- [Ris06] RISTAU, D., H. EHLERS, T. GROSS und M. LAPPSCHIES: „Optical broadband monitoring of conventional and ion processes“. *Applied Optics* (2006), Bd. 45: S. 1495–1501 (siehe S. 32, 33, 94).
- [Ris14] RISTAU, DETLEV: *Laser-induced damage in optical materials*. CRC Press, 2014 (siehe S. 17, 88, 89).
- [Ris09] RISTAU, DETLEV, MARCO JUPÉ und KAI STARKE: „Laser damage thresholds of optical coatings“. *Thin Solid Films* (2009), Bd. 518(5): S. 1607–1613 (siehe S. 17).

- [Rod15] RODRÍGUEZ, CRISTINA, STEFAN GÜNSTER, DETLEV RISTAU und WOLFGANG RUDOLPH: „Frequency tripling mirror“. *Optics express* (2015), Bd. 23(24): S. 31594–31601 (siehe S. 76).
- [Ros99] ROSENFELD, A, M LORENZ, R STOIAN und D ASHKENASI: „Ultrashort-laser-pulse damage threshold of transparent materials and the role of incubation“. *Applied Physics A* (1999), Bd. 69(1): S373–S376 (siehe S. 16).
- [Ruz16] RUZHANSKY, MICHAEL und SERGEY TIKHONOV: *Methods of Fourier Analysis and Approximation Theory*. Springer, 2016 (siehe S. 6).
- [Sch01] SCHAFFER, CHRIS B, ANDRE BRODEUR und ERIC MAZUR: „Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses“. *Measurement Science and Technology* (2001), Bd. 12(11): S. 1784 (siehe S. 16).
- [Sch16] SCHLICHTING, SEBASTIAN, THOMAS WILLEMSSEN, HENRIK EHLERS, UWE MORGNER und DETLEV RISTAU: „Fourier-transform spectral interferometry for in situ group delay dispersion monitoring of thin film coating processes“. *Optics express* (2016), Bd. 24(20): S. 22516–22527 (siehe S. 53, 54, 56).
- [Sch11] SCHLICHTING, SEBASTIAN, KARSTEN HEINRICH, HENRIK EHLERS und DETLEV RISTAU: „Online re-optimization as a powerful part of enhanced strategies in optical broadband monitoring“. *Advances in Optical Thin Films IV*. Bd. 8168. International Society for Optics und Photonics. 2011: 81681E (siehe S. 34, 35).
- [Sch07] SCHNEIDER, HARALD und HUI CHUN LIU: *Quantum well infrared photodetectors*. Springer, 2007 (siehe S. 25).
- [Sch26] SCHRÖDINGER, ERWIN: „Quantisierung als eigenwertproblem“. *Annalen der Physik* (1926), Bd. 385(13): S. 437–490 (siehe S. 20).
- [Sel71] SELLMEIER, WILHELM: „Zur Erkennung der abnormen Farbenfolge im Spectrum einiger. Substanzen“. *Annalen der Physik und Chemie* (1871), Bd. 219: S. 272–282 (siehe S. 37).
- [Shi97] SHIK, ALEXANDER Y: *Quantum wells: physics and electronics of two-dimensional systems*. World Scientific, 1997 (siehe S. 19).
- [Šia14] ŠIAULYS, NERIJUS, LAURENT GALLAIS und ANDRIUS MELNINKAITIS: „Direct holographic imaging of ultrafast laser damage process in thin films“. *Optics letters* (2014), Bd. 39(7): S. 2164–2167 (siehe S. 14).
- [Sig69] SIGMUND, PETER: „Theory of sputtering. I. Sputtering yield of amorphous and polycrystalline targets“. *Physical review* (1969), Bd. 184(2): S. 383 (siehe S. 30).

- [Sim03] SIMANOVSKII, DM, HA SCHWETTMAN, H LEE und AJ WELCH: „Midinfrared optical breakdown in transparent dielectrics“. *Physical review letters* (2003), Bd. 91(10): S. 107601 (siehe S. 16).
- [Sta04] STARKE, KAI, DETLEV RISTAU, HERBERT WELLING, TATIANA V AMOTCHKINA, MICHAEL TRUBETSKOV, ANDREI A TIKHONRAVOV und ANATOLY S CHIRKIN: „Investigations in the nonlinear behavior of dielectrics by using ultrashort pulses“. *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2003*. Bd. 5273. International Society for Optics und Photonics. 2004: S. 501–515 (siehe S. 12).
- [Ste05] STENZEL, OLAF: *The physics of thin film optical spectra*. Springer, 2005 (siehe S. 6, 39).
- [Ste11] STENZEL, OLAF, STEFFEN WILBRANDT, MARK SCHÜRMAN, NORBERT KAISER, HENRIK EHLERS, MATHIAS MENDE, DETLEV RISTAU, STEFAN BRUNS, MICHAEL VERGÖHL, MARKUS STOLZE et al.: „Mixed oxide coatings for optics“. *Applied optics* (2011), Bd. 50(9): S. C69–C74 (siehe S. 17).
- [Sto63] STONE, JOHN M: „Radiation and optics“. *Radiation and Optics by John M. Stone New York, NY: McGraw-Hill Book Company, Inc., 1963* (1963), Bd. (siehe S. 11).
- [Stu96] STUART, BC: „BC Stuart, MD Feit, S. Herman, AM Rubenchik, BW Shore, and MD Perry, Phys. Rev. B 53, 1749 (1996).“ *Phys. Rev. B* (1996), Bd. 53: S. 1749 (siehe S. 16).
- [Stu95] STUART, BC, MD FEIT, AM RUBENCHIK, BW SHORE und MD PERRY: „Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses“. *Physical review letters* (1995), Bd. 74(12): S. 2248 (siehe S. 12).
- [Sud02] SUDRIE, LIONEL, ARNAUD COUAIRON, MICHEL FRANCO, BRIGITTE LAMOUROUX, BERNARD PRADE, STELLIOS TZORTZAKIS und ANDRÉ MYSYROWICZ: „Femtosecond laser-induced damage and filamentary propagation in fused silica“. *Physical Review Letters* (2002), Bd. 89(18): S. 186601 (siehe S. 13).
- [Sug10] SUGIOKA, KOJI, MICHEL MEUNIER und ALBERTO PIQUÉ: *Laser precision microfabrication*. Springer, 2010 (siehe S. 13).
- [Sul92] SULLIVAN, BRIAN T und JA DOBROWOLSKI: „Deposition error compensation for optical multilayer coatings. I. Theoretical description“. *Applied optics* (1992), Bd. 31(19): S. 3821–3835 (siehe S. 34).
- [Szi97] SZIPOCS, R. und A. KOHAZI-KIS: „Theory and design of chirped dielectric laser mirrors“. *Applied Physics B: Lasers and Optics* (1997), Bd. 65.2: S. 115–135 (siehe S. 8).

- [Tak82] TAKEDA, MITSUO, HIDEKI INA und SEIJI KOBAYASHI: „Fourier-transform method of fringe-pattern analysis for computer-based topography and interferometry“. *JosA* (1982), Bd. 72(1): S. 156–160 (siehe S. 54).
- [Tau74] TAUC, JAN: *Amorphous and liquid semiconductors*. Springer Science & Business Media, 1974 (siehe S. 39).
- [The02] THELEN, ALFRED, MARKUS TILSCH, ALEXANDER V TIKHONRAVOV, MICHAEL K TRUBETSKOV und ULF BRAUNECK: „Topical meeting on optical interference coatings (OIC2001): design contest results“. *Applied optics* (2002), Bd. 41(16): S. 3022–3038 (siehe S. 49).
- [Tho68] THOMPSON, MW: „II. The energy spectrum of ejected atoms during the high energy sputtering of gold“. *Philosophical Magazine* (1968), Bd. 18(152): S. 377–414 (siehe S. 30).
- [TJ93] TIKHONOV JR, AN, ALEKSANDR VLADIMIROVICH TIKHONRAVOV und MIKHAIL KIRILLOVICH TRUBETSKOV: „Second-order optimization methods in the synthesis of multilayer coatings“. *Computational mathematics and mathematical physics* (1993), Bd. 33(10): S. 1339–1352 (siehe S. 49, 50).
- [Tik96] TIKHONRAVOV, ALEXANDER V, MICHAEL K TRUBETSKOV und GARY W DEBELL: „Application of the needle optimization technique to the design of optical coatings“. *Applied optics* (1996), Bd. 35(28): S. 5493–5508 (siehe S. 48).
- [Tik11] TIKHONRAVOV, ALEXANDER V, MICHAEL K TRUBETSKOV und TATIANA V AMOTCHKINA: „Investigation of the error self-compensation effect associated with broadband optical monitoring“. *Applied optics* (2011), Bd. 50(9): S. C111–C116 (siehe S. 34).
- [Tik04] TIKHONRAVOV, ALEXANDER V, MICHAEL K TRUBETSKOV, TATIANA V AMOTCHKINA und MICHAEL A KOKAREV: „Key role of the coating total optical thickness in solving design problems“. *Advances in Optical Thin Films*. Bd. 5250. International Society for Optics und Photonics. 2004: S. 312–322 (siehe S. 49).
- [Tur15a] TUROWSKI, MARCUS, MARCO JUPÉ, THOMAS MELZIG, PAVEL MOSKOVKIN, ALAIN DANIEL, ANDREAS PFLUG, STÉPHANE LUCAS und DETLEV RISTAU: „Practice-oriented optical thin film growth simulation via multiple scale approach“. *Thin Solid Films* (2015), Bd. 592: S. 240–247 (siehe S. 31).
- [Tur15b] TUROWSKI, MARCUS, MARCO JUPÉ, HENRIK EHLERS, THOMAS MELZIG, ANDREAS PFLUG und DETLEV RISTAU: „Simulation in thin film technology“. *Optical Systems Design 2015: Advances in Optical Thin Films V*. Bd. 9627. International Society for Optics und Photonics. 2015: S. 962707 (siehe S. 31).

- [Urb53] URBACH, F.: „The long-wavelength edge of photographic sensitivity and of the electronic absorption of solids“. *Physical Review* (1953), Bd. 92: S. 1324 (siehe S. 66).
- [Wal01] WALMSLEY, IAN, LEON WAXER und CHRISTOPHE DORRER: „The role of dispersion in ultrafast optics“. *Review of Scientific Instruments* (2001), Bd. 72(1): S. 1–29 (siehe S. 7).
- [Weh70] WEHNER, GOTTFRIED K und GERALD S ANDERSON: „The nature of physical sputtering“. *Handbook of thin film technology* (1970), Bd.: S. 1–35 (siehe S. 30).
- [Wei14] WEISBUCH, CLAUDE und BORGE VINTER: *Quantum semiconductor structures: fundamentals and applications*. Academic press, 2014 (siehe S. 19, 26).
- [Wes85] WEST, LC und SJ EGLASH: „First observation of an extremely large-dipole infrared transition within the conduction band of a GaAs quantum well“. *Applied Physics Letters* (1985), Bd. 46(12): S. 1156–1158 (siehe S. 26).
- [Wid13] WIDMANN, DIETRICH, HERMANN MADER und HANS FRIEDRICH: *Technologie hochintegrierter Schaltungen*. Bd. 19. Springer-Verlag, 2013 (siehe S. 31).
- [Wil16] WILLEMSSEN, THOMAS, PATRICK GEERKE, MARCO JUPÉ, LAURENT GALLAIS und DETLEV RISTAU: „Electronic quantization in dielectric nanolaminates“. *Laser-Induced Damage in Optical Materials 2016*. Bd. 10014. International Society for Optics und Photonics. 2016: S. 100140C (siehe S. 15).
- [Yua07] YUAN, LEI, YUANAN ZHAO, CONGJUAN WANG, HONGBO HE, ZHENGXIU FAN und JIANDA SHAO: „Effect of SiO₂ protective layer on the femtosecond laser-induced damage of HfO₂/SiO₂ multilayer high-reflective coatings“. *Applied surface science* (2007), Bd. 253(7): S. 3450–3454 (siehe S. 13).

Abbildungsverzeichnis

2.1	Gauß-Puls mit zeitlich ansteigender Trägerfrequenz. Es kommt zu einer Verbreiterung und Amplitudenabnahme aufgrund der Dispersion 2. Ordnung nach [Pas17].	8
2.2	Auswirkungen von Schichtdickenfehlern für einen phasenkomprimierenden Spiegel mit einer Ziel-GDD von -6000 fs^2	8
2.3	Feldstärkenverteilung in einem phasensensitiven GTI-Spiegel mit einer spektralen Bandbreite von 10 nm. Die skizzierten Spacer-Schichten erzeugen Resonanzen und damit eine hohe GDD von -6000 fs^2	9
2.4	Von V. Pervak et al. postulierter empirischer Zusammenhang zwischen GDD und maximal möglicher spektraler Bandbreite in Abhängigkeit der physikalischen Gesamtdicke für Spiegel aus Ta_2O_5 und SiO_2 , nach [Per13].	9
2.5	Schematische Darstellung der Kaskadenionisation nach dem MRE-Modell nach [Jup12].	15
2.6	Berechnete Temperatur- und Elektronendichte in HfO_2 . Die Dichtefunktionen sind mit einer Zentralwellenlänge von 1030 nm und einer Pulsdauer von 850 fs berechnet.	15
3.1	Schema der Lage der Energieniveaus im Valenz- und Leitungsband	19
3.2	Schema zum endlichen Potentialtopf	22
3.3	Graphische Lösung der zeitunabhängigen Schrödingergleichung	23
3.4	Mögliche Übergänge in einem Quanten Well im Leitungsband	25
4.1	Mögliche Interaktion beschleunigter Ionen mit einer Oberfläche nach [Cha80]	30
4.2	Schematische Darstellung des Zerstäubens durch lineare Stoßkaskaden von Ionen an Oberflächen nach [Fra13]	30
4.3	Schematischer Aufbau der IBS-Anlage	33
4.4	Optimierungszyklus mit der Software Umgebung ReCalc-ReOpt	34
4.5	Bestimmung der optischen Bandkante	40
4.6	Schematischer Aufbau zur Vermessung der laserinduzierten Zerstörschwelle	41
4.7	Exemplarische Überlebenskurve einer dielektrischen Komponente für eine festgelegte Pulsklasse.	43
4.8	Beispiel für resultierende Zerstörschwellen aufgetragen über die Pulsklassen.	43

5.1	Schema faserbasiertes Weißlichtinterferometer	53
5.2	Skizze des realisierten dualen ex-situ Weißlichtinterferometers.	56
5.3	Korrelation der GDD-Messkurve aufgenommen mit dem aufgebauten ex-situ Weißlichtinterferometer in Fourier-Domäne und einem kommerziellen Messgerät (KmLabs - Chromatis).	58
5.4	Korrelation der GDD Messkurven für einen phasenkomprimierenden GTI-Spiegel.	58
5.5	Berechnetes Referenzdesign (HR 850; -100 fs^2 ; HR 355; -100 fs^2).	59
5.6	Berechnetes und hergestelltes Design (HR 850; -450 fs^2 ; HR 355; -100 fs^2).	59
5.7	Hergestellter Spiegel abgeschaltet mit dem Phasen-BBM.	60
5.8	Hergestellter Spiegel abgeschaltet mit einem konventionellen Transmissions-BBM.	60
5.9	Evaluation der gemessenen GDD im Vergleich zum ursprünglichen und zurückgerechneten Design unter einem Einfallswinkel von 0°	61
5.10	Ursprünglich berechnetes Design und auf Basis der Resultate unter einem AOI 0° zurückgerechnetes Design für einen Einfallswinkel von 45°	61
5.11	Feldstärkeverteilung in einem GDD Spiegel	62
6.1	Schematische Darstellung der periodischen Struktur zur Formierung eines amorphen Nanolaminats	64
6.2	Spektrale Transmissionskurven für die hergestellten Nanolamine aus Tabelle 3.	66
6.3	Evaluation der optischen Bandkante und des Brechungsindex in Abhängigkeit der Quanten-Well Breite für die hergestellten Nanolamine.	66
6.4	Experimentell bestimmte optische Bandkanten korreliert mit berechneten Werten für Ta_2O_5 . Die effektive Elektronenmasse kann dabei als Fitparameter variiert werden.	67
6.5	Analog zum Ta_2O_5 Experiment durchgeführte Messreihe mit HfO_2 -Nanolaminen und den abgebildeten spektralen Transmissionsmessungen.	67
6.6	Transmissionsverhalten von Nanolaminen mit einem absolut konstanten Anteil an Ta_2O_5	69
6.7	Querschnitt einer alternierenden dielektrischen Schichtstruktur	70
6.8	Evaluation der optischen Bandkante und des Brechungsindex für Nanolamine mit einer konstanten QW-Breite von 1 nm und variierender Barrierenschichtdicke.	72
6.9	Vergleich zwischen theoretischem und experimentellen Zerstörschwellenverhalten für HfO_2 -Nanolamine.	73
6.10	1:1 Zerstörmorphologie von HfO_2 - SiO_2 Nanolaminen. L_i bezeichnet die Breite des Quanten-Well.	73

6.11	Experimentell ermittelte Zerstörschwellen für Ta ₂ O ₅ Nanolamine für 10.000:1 Messungen nach ISO21254.	74
6.12	Typische Zerstörungsmorphologie für Ta ₂ O ₅ Nanolamine nach einer Bestrahlung mit 10.000 Pulsen.	74
6.13	Gegenüberstellung der Evaluation der optischen Bandkante und des Brechungsindex für Nanolamine und ternäre Mischungen.	77
6.14	Vergleich der Absorptionswerte für ein Nanolaminat und eine ternäre Einzelschicht.	77
6.15	Vergleich von Ta ₂ O ₅ Nanolaminen und ternären Ta _x Si _y O _z Kompositen für die LIDT von $S : 1$ Messungen.	78
6.16	Vergleich der Zerstör-Morphologie für ein ternäres Ta _x Si _y O _z -Komposit und ein Ta ₂ O ₅ -SiO ₂ Nanolaminat für eine äquivalente optische Bandkante.	78
6.17	Analyse der Einzelschuss-LIDT über den Brechwert für ternäre Hf _x Si _y O _z -Mischungen und Nanolamine.	79
6.18	Schema zur Verteilung der Zustandsdichte im Leitungsband für eine quantisierte Struktur und eine nicht quantisierte Schicht mit äquivalenten optischen Bandkanten $E_1 = E_{Tern} = E_{gap}$ (nach [Ebel13]).	79
6.19	Minimale Barrieren-Dicke und Tunnelwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit eines anliegenden externen Feldes. Für eine bessere Darstellung ist die x-Achse logarithmisch aufgetragen.	83
6.20	Einzelschuss-LIDT in Abhängigkeit der Barriere Dicke für jeweils konstante Quanten-Well Breiten.	83
7.1	Spektralphotometrische Messung und Designkurve des binären HR-Spiegels.	88
7.2	Feldstärkeverteilung für einen konventionellen Bragg-Spiegel aus Ta ₂ O ₅ -SiO ₂ bei einer Zentralwellenlänge von 775 nm.	88
7.3	Spektralphotometrische Messung und Designkurve des HR Spiegels mit drei implementierten Nanolaminatsequenzen.	89
7.4	Feldstärkeverteilung für einen binären Ta ₂ O ₅ -SiO ₂ Spiegel mit Nanolaminatsequenzen bei einer Zentralwellenlänge von 775 nm.	89
7.5	Prinzip der Designstudie	92
7.6	Verteilung der Feldstärke	95
7.7	Analyse der Fehleranfälligkeit der Feldstärke	96
7.8	Gemessene GDD Kurven	98
7.9	Zerstörmorphologie der hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel.	99
7.10	Feldstärkeverteilung der klassifizierenden Spiegel	102
7.11	Ranking der gemessenen laserinduzierten Zerstörungen der hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel.	104

- 7.12 Verteilung der Intensität der Feldstärke für einen phasenkomprimierenden Spiegel mit einer GDD von -1500 fs^2 bei einer spektralen Bandbreite von 100 nm und einer physikalischen Gesamtdicke von $26 \mu\text{m}$ 104

Tabellenverzeichnis

3.1 Übersicht über die effektive Verbreiterung der Quanten-Well Schicht in Abhängigkeit der effektiven Elektronenmasse.	24
4.1 Vergleich der Parameter der eingesetzten Spektralphotometer zur Probenuntersuchung.	36
6.1 Übersicht über die hergestellten Nanolamine.	65
7.1 Vergleich wichtiger Designparameter für einen binären HR Spiegel und einen Spiegel mit enthaltenen Nanolaminatsequenzen.	90
7.2 Übersicht über die Designspezifikationen für die herzustellenden phasenkomprimierenden Optiken	91
7.3 Übersicht über die Designparameter der berechneten Designs mit den vorgegebenen Targetspezifikationen aus Tabelle (7.2)	94
7.4 Designparameter der zusätzlich hergestellten phasenkomprimierenden Spiegel.	101

Eigene Veröffentlichungen

Peer Review

- [1] Willemsen, T., Jupè, M., Gyamfi, M., Schlichting, S., Ristau, D. (2017). Enhancement of the damage resistance of ultra-fast optics by novel design approaches. *Optics express*, 25(25), 31948-31959.
- [2] Willemsen, T., Jupè, M., Gallais, L., Tetzlaff, D., Ristau, D. (2017). Tunable optical properties of amorphous Tantalum layers in a quantizing structure. *Optics Letters*, 42(21), 4502-4505.
- [3] Schlichting, S., Willemsen, T., Ehlers, H., Morgner, U., Ristau, D. (2016). Fourier-transform spectral interferometry for in situ group delay dispersion monitoring of thin film coating processes. *Optics express*, 24(20), 22516-22527.
- [4] Hoffmann, M., Nagy, T., Willemsen, T., Jupè, M., Ristau, D., Morgner, U. (2014). Pulse characterization by THG d-scan in absorbing nonlinear media. *Optics express*, 22(5), 5234-5240.

Proceedings

- [1] Willemsen, T., Brinkmann, M., Jupè, M., Gyamfi, M., Schlichting, S., Ristau, D. (2017). Approaches toward optimized laser-induced damage thresholds of dispersive compensating mirrors applying nanolaminates. *Proc. of SPIE*, Vol. 10447.
- [2] Willemsen, T., Schlichting, S., Gyamfi, M., Jupè, M., Ehlers, H., Morgner, U., Ristau, D. (2016) Improved LIDT values for dielectric dispersive compensating mirrors applying ternary composites. *Proc. of SPIE*, Vol. 10014.
- [3] Willemsen, T., Geerke, P., Jupè, M., Gallais, L., Ristau, D. (2016). Electronic quantization in dielectric nanolaminates. *Proc. of SPIE*, Vol. 10014.
- [4] Gyamfi, M., Costella, M., Willemsen, T., Jürgens, P., Mende, M., Jensen, L., Ristau, D. (2016). Dual wavelength laser damage mechanisms in the ultra-short pulse regime. *Proc. of SPIE*, Vol. 10014.
- [5] Jupè, M., Willemsen, T., Schuba, K., Malobabic, S., Ristau, D. (2016). Phase separating coating by filtered Ion Beam Sputtering. In *Optical Interference Coatings* (pp. MB-9). Optical Society of America.
- [6] Jupè, M., Willemsen, T., Malobabic, S., Schuba, K., Ristau, D. (2015). Optimization of novel phase separating IBS process. *Proc. of SPIE*, Vol. 9627.
- [7] Schlichting, S., Willemsen, T., Ehlers, H., Morgner, U., Ristau, D. (2015). Direct in

situ GDD measurement in optical coating process. Proc. of SPIE, Vol. 9627.

[8] Willemsen, T., Schlichting, S., Kellermann, T., Jupè, M., Ehlers, H., Morgner, U., Ristau, D. (2015). Precise fabrication of ultra violet dielectric dispersion compensating mirrors. Proc. of SPIE, Vol. 9627.

Curriculum Vitae

Personalien

Name Thomas Willemsen
 geboren am 07.07.1986 in Münster
 verheiratet, deutsch

Schulbildung

05/2006 Abitur, Pascal-Gymnasium in Münster

Studium

10/2006-10/2012 Universität Hannover, Studium der Physik

 Thema der Masterarbeit: „Evaluierung nicht linearer Kontrastmechanismen in der Laserrastertomographie“, durchgeführt am Laser Zentrum Hannover e. V.

10/2012 Abschluss: Master of Science (Physik)

11/2012-jetzt Promotionsstudent an der Leibniz Universität Hannover

Praktische Erfahrungen

11/2012-jetzt Wissenschaftlicher Mitarbeiter am Laser Zentrum Hannover e. V.

Danksagung

Zuerst möchte ich mich bei Prof. Dr. Detlev Ristau bedanken für die Möglichkeit, das Thema in seiner Abteilung am Laser Zentrum Hannover e.V. zu bearbeiten, sowie für die stetigen konstruktiven Vorschläge zum Gelingen der vorliegenden Arbeit. Prof. Dr. Uwe Morgner danke ich herzlich für die Übernahme des Korreferats und die angenehme Zusammenarbeit.

Besonders bedanken möchte ich mich bei Marco Jupé für die tägliche Zusammenarbeit, die intensive Durchsicht dieser Arbeit und insbesondere für die kontinuierliche motivierende Hilfsbereitschaft im Labor und bei der Planung der Experimente, ohne die diese Arbeit sicherlich nicht in dieser Form entstanden wäre.

Meinen Studenten danke ich für ihre außergewöhnlich guten Ergebnisse, die zum Fortschritt dieser Arbeit beigetragen haben - stellvertretend bei Malte Brinkmann, Patrick Geerke, Sebastian Paschel und Tarik Kellermann.

Andrea Lissel und Dominic Tetzlaff danke ich stellvertretend für das Laboratorium für Nano- und Quantenengineering für die TEM-Analysen. Laurent Gallais vom Institut Fresnel (CNRS, Centrale Marseille) danke ich für die hervorragende Kooperation und die stets zügigen LIDT-Analysen der bereitgestellten Proben. Ebenso geht ein großes Dankeschön an Mark Gyamfi für die Unterstützungen bei den S:1 LIDT Messungen.

Sebastian Schlichting danke ich für den Aufbau und die Programmierung des Phasen-BBMs sowie für die stets gute Zusammenarbeit im Labor und die zahlreichen Bedienerhinweise zu den Beschichtungsprogrammen BBM und Recalc.

Bei meinen Kollegen Tammo Böntgen und Morten Steinecke bedanke ich mich für die harmonische Bürogemeinschaft. Weiterhin geht ein großer Dank an die gesamte Abteilung Laserkomponenten für die stetige und freundliche Hilfsbereitschaft. Namentlich möchte ich mich bei Marcus Turowski bedanken für die morgendlichen Kaffeerrunden, um den täglichen Herausforderungen im Labor etwas entspannter entgegenzugehen.

„Last but not least“ bedanke ich mich bei meiner Familie, allen voran bei meiner Frau Lina, für die nie abreißende Unterstützung!

