

# Übertragung von Standardmessverfahren zur Charakterisierung optischer Beschichtungen in den Bereich ultrakurzer Laserpulse

Vom Fachbereich Physik der Universität Hannover

zur Erlangung des Grades

Doktor der Naturwissenschaften

- Dr. rer. nat. -

genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Phys. Kai Starke

geboren am 1.12.1971 in Rahden (Westf.)

2004

Referent: Prof. Dr. H. Welling, Universität Hannover  
Korreferent: Prof. Dr. W. Rudolph, University of New Mexico, Albuquerque NM, USA  
Tag der Promotion: 1. März 2004

## Abstract

Kai Starke

### Übertragung von Standardmessverfahren zur Charakterisierung optischer Beschichtungen in den Bereich ultrakurzer Laserpulse

Ultrakurzpuls-Lasersysteme haben in der vergangenen Dekade eine enorme Entwicklung von komplexen und wartungsintensiven Laboraufbauten hin zu kompakten und kosteneffizienten Strahlquellen für die industrielle Anwendung erfahren. Um bei der Weiterentwicklung der Systeme mit den stetig wachsenden Ansprüchen in Bezug auf Ausgangsleistung und Repetitionsrate Schritt halten zu können, kommt der Steigerung der Strahlungsresistenz sowie der Minimierung der optischen Verluste von optischen Komponenten eine Schlüsselrolle zu. Im Rahmen der vorliegenden Arbeit wurden die in anderen Pulsdauerbereichen bewährten Normverfahren zur Zerstörschwellen- und Absorptionsmessung sowie der Bestimmung des Reflexions- und Transmissionsgrades bezüglich ihrer Anwendbarkeit im Bereich der ultrakurzen Laserpulse evaluiert und Optimierungsvorschläge erarbeitet.

Auf Grund der geringen Laserfestigkeit von Dielektrika für ultrakurze Pulse kommt der Zerstörschwellenmessung nach ISO 11254 eine zentrale Bedeutung zu. Neben der normkonformen Umsetzung wurden eine Reihe von apparativen und methodologischen Verbesserungen in das Messkonzept implementiert, um eine zuverlässige und weitgehend automatisierte Zerstörschwellenmessung zu erreichen. Mit dieser Messapparatur ist erstmals eine systematische Untersuchung des Akkumulationseffekts mit wachsender Pulszahl für eine Vielzahl unterschiedlicher Laserkomponenten erfolgt. Des Weiteren konnte an Hand von theoretischen Modellrechnungen das sprunghafte Ansteigen der Elektronendichte nahe der Zerstörschwelle als Ursprung für das extrem deterministische Zerstörverhalten identifiziert werden.

Im Zuge der erfolgten Umsetzung der laserkalorimetrische Absorptionmessung gemäß ISO 11551 ist eine Empfindlichkeit von bis zu 10 ppm erreicht worden. Bei der Variation der Leistungsdichte zeigte jedes der untersuchten Dielektrika ein nichtlineares Absorptionsverhalten, das nicht von der Höhe der linearen Absorption abhängig ist. Es konnten teilweise Steigerungen des Absorptionsgrades um das 140-fache des Ursprungswertes ermittelt werden, ohne eine dauerhafte Zerstörung auszulösen. Das beobachtete nichtlineare Absorptionsverhalten konnte durch theoretische Modellbildungen motiviert werden.

Ebenfalls erstmalig konnte das Verfahren zur hochpräzisen Reflexions- und Transmissionsmessung nach ISO/CD 13697 mit einer gepulsten Strahlquelle umgesetzt werden. Neben der Bestätigung von Linearität und Kalibrierbarkeit des Messverfahrens ist das Reflexions- und Transmissionsverhalten von  $\text{TiO}_2$ -Schichten in Abhängigkeit von der Leistungsdichte analysiert worden. Entgegen der theoretischen Annahme war keine durch den Kerr-Effekt bedingte Erhöhung des Reflexionsgrades für dieses Beschichtungsmaterial detektierbar.

Die vorliegende Arbeit verifiziert die grundsätzliche Umsetzbarkeit der genannten Messnormen im Bereich der ultrakurzen Laserpulse und liefert wertvolle Beiträge für kommende Revisionen im Standardisierungsprozess.

**Schlagnworte:** *Standardisierung, Optikcharakterisierung, ultrakurze Pulse, Mehrpuls-Zerstörschwellenmessung, Laserkalorimetrie, Reflexionsmessung, Transmissionsmessung.*

## Abstract

Kai Starke

### Transfer of Standard Measurement Procedures for Optics Characterization in the Field of Ultrashort Pulses

Within the previous decade, the development of ultrashort pulse laser systems has experienced an enormous progress starting from complex laboratory set-ups towards compact and reliable tools for various industrial applications. Impelled by the steadily growing demand in respect to output power and repetition frequency, the improvement of optical components concerning damage resistance and optical losses plays a major role. In the framework of this thesis, the standard procedures for measuring laser-induced damage, absorptance, reflectance and transmittance were evaluated for ultrashort laser pulses. Furthermore, suggestions for optimizing these procedures were elaborated.

Due to the low damage resistance of dielectric materials to ultrashort pulses, the laser-induced damage testing according to ISO 11254 is the most interesting topic. Beside the implementation of the standard method, numerous new features concerning the apparatus and the test procedures were developed to achieve reliable and automated damage measurements. With the presented set-up, a systematic investigation in the accumulation effects of various dielectrics connected to a rising number of pulses was performed. Moreover, theoretical calculations indicated a drastic increase of the electron density in the vicinity of the damage threshold leading to the commonly known deterministic breakdown occurrence.

In the course of the successful transfer of laser calorimetric absorptance measurements according to ISO 11551 in the area of ultrashort pulses, a measurement sensitivity of 10 ppm has been accomplished. For the variation of the power density, each examined dielectric material revealed a nonlinear absorptance behavior. The nonlinearity was not depending on the magnitude of the linear absorptance. During the investigations, an increase in absorptance by a factor of 140 compared to the linear absorption has been identified for some samples without initiating any observable damage. The nonlinear increase could have been motivated by theoretical models.

Furthermore, the high precision procedure for measuring reflectance and transmittance according to ISO/CD 13697 has been adapted to a pulsed laser system for the first time. Beside the verification of signal linearity and the calibration of the set-up, the power density dependence of the reflectance and transmittance of TiO<sub>2</sub>-samples was investigated. In contrast to the theoretical assumption, no increase in reflectance due to the Kerr-effect could be observed for this coating material.

The presented thesis confirmed the possibility of transferring the mentioned standard measurement procedures in the field of ultrashort pulses and provides valuable contributions to future revisions within the standardization process.

**Keywords:** *Standardization, optics characterization, ultrashort pulses, multiple-pulse laser-induced damage, laser calorimetry, reflectance measurement, transmittance measurement.*

# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Wechselwirkung ultrakurzer Pulse mit Dielektrika</b>	<b>5</b>
2.1	Propagation ultrakurzer Pulse in Dielektrika . . . . .	6
2.1.1	Kerr-Effekt in dielektrischen Schichten . . . . .	6
2.1.2	Nichtlinearität durch inverse Bremsstrahlung . . . . .	9
2.2	Dynamik der Elektronendichte . . . . .	12
2.2.1	Photoionisation im intensiven Strahlungsfeld . . . . .	12
2.2.2	Avalanche-Ionisation . . . . .	15
2.2.3	Anregungszustände und Relaxationsprozesse . . . . .	17
2.3	Numerische Modellierung der Wechselwirkung . . . . .	18
2.3.1	Berechnung der Elektronendichte in Quarz . . . . .	18
2.3.2	Brechungsindexvariation bei Einwirkung ultrakurzer Pulse . . . . .	21
2.4	Zusammenfassung der theoretischen Modellierung . . . . .	26
<b>3</b>	<b>Messung der laserinduzierten Zerstörschwelle</b>	<b>27</b>
3.1	Zerstörschwellenmessung nach ISO 11254 . . . . .	28
3.1.1	Anwendungsbereiche der Norm . . . . .	28
3.1.2	Konzept der Mehrpuls-Zerstörschwellenmessung . . . . .	28
3.2	Optimierung des Auswerteverfahrens . . . . .	32
3.2.1	Logistischer Regressionsalgorithmus für binäre Daten . . . . .	33
3.2.2	Nichtlineare Regressionsalgorithmen . . . . .	35
3.2.3	Modellfunktionen zur Beschreibung der Zerstörwahrscheinlichkeit . . . . .	38
3.3	Umsetzung der Zerstörschwellenmessung für den fs-Bereich . . . . .	39
3.3.1	Überblick Messapparatur . . . . .	39
3.3.2	Messung des räumlichen Strahlprofils . . . . .	40
3.3.3	Bestimmung der Pulsdauer . . . . .	42
3.3.4	Messung der Pulsenergie . . . . .	44
3.3.5	Zerstörungsdetektion . . . . .	45
3.3.6	Automatisierte Messprozedur . . . . .	49

3.4	Parametrisierung der Einflussfaktoren . . . . .	52
3.4.1	Beschichtungsmaterialien und -prozesse . . . . .	52
3.4.2	Optisches Design . . . . .	54
3.4.3	Pulsdauer . . . . .	58
3.4.4	Durchmesser des Prüfstrahls . . . . .	59
3.4.5	Bestrahlung mit unterbrochenen Pulszügen . . . . .	60
3.5	Evaluierung der Standardisierbarkeit . . . . .	63
<b>4</b>	<b>Laserkalorimetrische Absorptionsmessung</b>	<b>65</b>
4.1	Absorptionsmessung nach ISO 11551 . . . . .	66
4.2	Adaption der Laserkalorimetrie für fs-Pulse . . . . .	68
4.2.1	Messapparatur . . . . .	68
4.2.2	Kalibrierung . . . . .	70
4.2.3	Nachweisgrenze . . . . .	72
4.3	Untersuchungen zur nichtlinearen Absorption . . . . .	73
4.3.1	Absorptionsmessung bei variierter Pulsdauer . . . . .	74
4.3.2	Absorptionsmessung bei variiertem Strahldurchmesser . . . . .	77
4.4	Abschließende Betrachtungen zur Absorptionsmessung . . . . .	81
<b>5</b>	<b>Messung des Übertragungsverhaltens</b>	<b>83</b>
5.1	Reflexions- und Transmissionsmessung nach ISO/CD 13697 . . . . .	84
5.2	Adaption für ultrakurze Laserpulse . . . . .	87
5.2.1	Beschreibung des Messaufbaus . . . . .	87
5.2.2	Prüfung auf Linearität . . . . .	89
5.2.3	Bestimmung der Chopperreflektivität . . . . .	91
5.3	Übertragungsverhalten bei variierter Leistungsdichte . . . . .	92
5.3.1	Reflexionsverhalten eines TiO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub> -Spiegels . . . . .	92
5.3.2	Transmissionsverhalten einer TiO <sub>2</sub> -Einzelschicht . . . . .	96
5.4	Beurteilung des Messverfahrens . . . . .	97
<b>6</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>99</b>
<b>A</b>	<b>Laserkalorimetrie mit fs-Pulsen</b>	<b>103</b>
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>106</b>

# Kapitel 1

## Einleitung

Die Entwicklung von leistungsfähigen Ultrakurzpuls-Lasersystemen hat in der vergangenen Dekade eine Vielzahl von Anwendungen in der Mikromaterialbearbeitung, der Medizin, der zeitaufgelösten Analytik und der physikalischen Grundlagenforschung nach sich gezogen. Für den industriell wichtigen Bereich der Materialbearbeitung bedeutet der Übergang zu Pulsdauern von wenigen Pikosekunden und darunter einen Quantensprung durch die extrem eng begrenzte Wechselwirkungszone bei der Bearbeitung verschiedenster Materialien [8, 35, 54, 110].

Für die wirtschaftliche Durchsetzungsfähigkeit dieser Technologie ist die Einhaltung der Spezifikationen des Lasersystems über lange Zeiträume erforderlich, um den Anforderungen an hoher Produktgüte und geringen Stückkosten zu genügen. Die hierzu notwendige, stetige Steigerung von Pulsenergie und Langzeitstabilität bei gleichzeitig möglichst hoher Repetitionsrate der Lasersysteme wird im Wesentlichen durch die Verfügbarkeit von Laserkomponenten hoher Güte limitiert. Die entscheidenden Qualitätsfaktoren sind die Resistenz gegenüber laserinduzierter Zerstörung, die Höhe an optischen Verlusten sowie die spektralen Eigenschaften bezüglich Reflexion und Transmission. Verlässliche Verfahren zur Charakterisierung dieser Eigenschaften sind mithin für die Entwicklung neuartiger Laserkomponenten, wie z. B. spezieller phasenadaptierender Spiegel (sog. *chirped mirrors*) [17, 67], und das Qualitätsmanagement in der industriellen Fertigung unerlässlich. Darüber hinaus muss für die Laserhersteller eine objektive Vergleichbarkeit von Produkteigenschaften in der Eingangskontrolle gewährleistet sein. Die Aufgabe der nationalen und internationalen Normungsgremien besteht in der Bereitstellung von Standardmessverfahren für die Optikcharakterisierung und in deren Anpassung an die fortschreitende technologische Entwicklung [22].

Seit nunmehr einer Dekade ist, relativ unbeeinflusst von bestehenden Standardmessverfahren [5], die Charakterisierung von Dielektrika, Metallen und Halbleitern mit Ultrakurzpuls-Lasersystemen von einer Vielzahl von Forschungsgruppen außerhalb der reinen Grundla-

---

genforschung vorangetrieben worden. Die Untersuchungen zur Zerstörfestigkeit waren hierbei hauptsächlich durch die Frage nach der Ablationsschwelle verschiedenster Materialien motiviert, die in der Entwicklung von Materialbearbeitungsprozessen eine hohe Bedeutung hat. Der Schwerpunkt der Publikationen liegt auf Ablationsexperimenten von dielektrischen Bulkmaterialien und beschichteten Laserkomponenten sowie einer Vielzahl von weiteren, industrierelevanten Stoffen [12, 14, 30, 56, 87, 98].

Das den Ultrakurzpuls-Lasersystemen zu Grunde liegende Prinzip des *chirped pulse amplification* erlaubt das Überstreichen eines weiten Pulsdauerbereichs beginnend bei 5 fs bis hin zu wenigen Nanosekunden. Dies eröffnet die Möglichkeit, Untersuchungen zur Zerstörfestigkeit in Abhängigkeit der Pulsdauer durchzuführen und somit einen Zugang zu den Zerstörmechanismen zu erhalten [24, 57, 60, 90, 99]. Aus den ermittelten Daten ergab sich eine Reihe von Ansätzen, die Zerstörphänomene durch Modelle zu deuten, wobei zumeist das Erreichen einer kritischen Elektronendichte im Dielektrikum als auslösendes Moment für das Auftreten von Zerstörung betrachtet wird [7, 27, 49, 74, 97, 102]. In der Vielzahl von Publikationen besteht weitestgehend Einvernehmen über das Auftreten von präzise definierten Zerstörschwellen für verschiedenste Dielektrika. Beim Übergang in den Bereich der ultrakurzen Laserpulse ist die laserinduzierte Zerstörung demnach im Wesentlichen durch die intrinsischen Eigenschaften der Dielektrika bestimmt und weniger durch extrinsische Faktoren, wie z. B. Einschlüsse in der Beschichtung bei Bestrahlung mit Pulsen im Nanosekundenbereich.

Ein weiterer, vielfach für Dielektrika bestätigter Effekt ist das Absinken der Zerstörschwelle mit zunehmender Pulszahl, der mit Akkumulation bzw. Inkubation bezeichnet wird. Eine systematische Untersuchung dieses Phänomens, das wahrscheinlich auf die Bildung von permanenten Farbzentren zurückgeht, hat bislang für den Bereich der ultrakurzen Laserpulse kaum stattgefunden [47, 77]. Erst in jüngster Vergangenheit ist der Einfluss von Akkumulation auf die Zerstörschwelle am Beispiel von Laserschutzmaterialien für einem weiten Pulszahlbereich quantifiziert worden [55, 65].

Eine nähere Betrachtung des Absorptions-, Reflexions- und Transmissionsverhaltens optischer Komponenten bei der Verwendung ultrakurzer Laserpulse ist im Rahmen von *pump-probe*-Experimenten durchgeführt worden [47, 59, 69, 77, 81, 84, 90]. Diese Untersuchungen hatten zum Ziel, die optischen Eigenschaften der bestrahlten Materialien vor, während und nach der Wechselwirkung mit dem Puls aufzulösen. Anhand des zeitlichen Verhaltens von Brechungsindex und Absorptionsgrad konnten Rückschlüsse auf die Population von Elektronen im Leitungsband und die Bildung von exzitonischen Anregungszuständen gezogen werden und trug damit wesentlich zum Verständnis der Wechselwirkungsmechanismen bei. Von Experimenten, das nichtlineare Verhalten von optischen Materialien in Bezug auf die praxisrelevanten Größen Absorption, Reflexion und Transmission im Bereich der ultrakurzen Laserpulse nachzuweisen, ist bislang nichts bekannt geworden.

Das Ziel dieser Arbeit ist es, die für andere Pulsdauerbereiche bewährten, praxisnahen

Konzepte für die Messung der Mehrpuls-Zerstörschwelle, des Absorptions-, Reflexions- und Transmissionsvermögens auf ihre Anwendbarkeit im Bereich der ultrakurzen Laserpulse zu prüfen und gegebenenfalls Vorschläge zur Optimierung der bestehenden Messstandards zu erarbeiten. Als Grundlage für die nachfolgenden Betrachtungen werden in Kapitel 2 die wesentlichen Mechanismen der Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit Dielektrika dargestellt. Hierzu werden die relevanten Prozesse zur Erzeugung von Leitungsbandelektronen erläutert, die resultierende Ratengleichung unter Verwendung aus Publikationen bekannter Modellparameter numerisch gelöst und am Beispiel von Quarz mit gemessenen Zerstörschwellen verglichen. Des Weiteren wird die zeitliche Variation des komplexen Brechungsindex bei der Propagation von ultrakurzen Laserpulsen durch Dielektrika betrachtet, welche aus dem Kerr-Effekt und dem Einfluss von Leitungsbandelektronen resultiert. Mittels der Integration dieses Verlaufs wird unter Berücksichtigung des zeitlichen Pulsprofils auf das Reflexions- und Transmissionsvermögen sowie auf die Absorption von Dielektrika geschlossen.

Der Schwerpunkt dieser Arbeit liegt auf der Messung der Mehrpuls-Zerstörschwelle im Bereich der ultrakurzen Laserpulse, die in Kapitel 3 thematisiert wird. Hierzu wird zunächst die apparative Umsetzung des Standardverfahrens nach ISO 11254 detailliert beschrieben sowie notwendige Adaptionen und sinnvolle Optimierungen des Messstandards erläutert. Mit Hilfe dieser Apparatur ist die Untersuchung typischer Laserkomponenten für den Einsatz in Ultrakurzpuls-Lasersystemen möglich. Die Beurteilung der Standardisierbarkeit erfolgt im Wesentlichen über die Prüfung des Einflusses verschiedener Prüfparameter, um die Stabilität von Messresultaten abschätzen zu können.

In Kapitel 4 wird die Umsetzung des Prinzips der laserkalorimetrischen Absorptionsmessung nach ISO 11551 unter Verwendung einer Ultrakurzpuls-Strahlquelle geschildert. Die wesentliche Problemstellung bei diesem Messverfahren stellt das Erreichen einer hinreichenden Nachweisempfindlichkeit und Kalibrierbarkeit dar, um die zu erwartenden nichtlinearen Effekte qualitativ und quantitativ sicher nachweisen zu können. Anhand von Modellschichtsystemen wird das nichtlineare Absorptionsverhalten für typische Beschichtungsmaterialien untersucht und im Rahmen der theoretischen Betrachtungen diskutiert.

Die Umsetzung des für kontinuierliche Lasersysteme bereits erfolgreich angewandten Messprinzips der Reflexions- und Transmissionsmessung gemäß Normentwurf ISO/CD 13697 mit einer Ultrakurzpuls-Strahlquelle wird in Kapitel 5 diskutiert. Bei der Verwendung von repetierenden Strahlquellen sind hierzu Adaptionen insbesondere bei der Signalerzeugung erforderlich. Von entscheidender Bedeutung für die Genauigkeit des Messverfahrens ist die Kalibrierung der Apparatur und die Prüfung der Linearität, die für unterschiedliche Prüfparameter durchgeführt werden. Das nichtlineare Reflexions- und Transmissionsverhalten bei Variation der Leistungsdichte wird am Beispiel von Ionenstrahl-gesputtertem Titanoxid untersucht. Anschließend werden die Präzision sowie die Fehlerquellen des Messaufbaus analysiert.

---

Auf der Grundlage der in dieser Arbeit erläuterten theoretischen Modelle und experimentellen Untersuchungen sollen die genannten Standardverfahren bezüglich ihrer Anwendbarkeit im Bereich der ultrakurzen Laserpulse diskutiert werden. Die für diesen Pulsdauerbereich notwendigen apparativen und konzeptionellen Verbesserungen sollen umfassend erläutert werden, um die Standardisierung bei folgenden Revisionen der Messnormen zu unterstützen. Darüber hinaus sollen die dargestellten Ergebnisse das Verständnis der Wechselwirkungsmechanismen von ultrakurzen Pulsen mit Dielektrika fördern und die aus der Wechselwirkung resultierenden Beeinflussungen der optischen Eigenschaften quantifizieren.

# Kapitel 2

## Wechselwirkung ultrakurzer Pulse mit Dielektrika

Seit der Erfindung des Lasers und des erstmaligen Auftretens von laserinduzierter Zerstörung ist das Verständnis der zu Grunde liegenden Mechanismen ein vielschichtiges und interessantes Forschungsfeld. Mit der fortschreitenden Verkürzung der Pulsdauer und der Steigerung der Pulsspitzenleistungen mussten die Theorien, die zur Beschreibung von laserduzierter Zerstörung entwickelt wurden, regelmäßig angepasst werden. Bei Erreichen von Pulsdauern unter einer Pikosekunde unterscheiden sich die Zerstörmechanismen grundlegend von denen im ns-Bereich, da die Energiedeposition bereits abgeschlossen ist, bevor ein defektauslösender Transfer dieser Energie in die Materiematrix stattfinden kann.

In den letzten Jahren beschäftigten sich eine Vielzahl von Publikationen mit der Wechselwirkung ultrakurzer Pulse mit Dielektrika, wobei vornehmlich verschiedene Bulkmaterialien (insbesondere Quarz), nicht zuletzt wegen der einfacheren Modellbildung, betrachtet wurden [24, 97]. Die Berücksichtigung der besonderen Eigenschaften von dielektrischen Schichten und Schichtsystemen bei der Modellierung der Wechselwirkung mit dem Ziel der Deutung von Zerstörphänomenen hat dagegen bislang kaum stattgefunden [14, 44, 69].

Im folgenden Kapitel sollen die wesentlichen Effekte erläutert werden, die für transiente und permanente Modifikationen von Dielektrika durch ultrakurze Laserpulse verantwortlich sind. Dabei werden zunächst die zusätzlichen nichtlinearen Beiträge zum komplexen Brechungsindex erläutert. Dies ist zum Einen der Kerr-Effekt, der auf einer nichtlinearen Wechselwirkung dritter Ordnung basiert. Zum Anderen werden freie Ladungsträger durch inverse Bremsstrahlung im Dielektrikum erzeugt und zu Schwingungen angeregt. Die resultierende induzierte Polarisation ruft eine Brechungsindexänderung hervor. Die Größe der Änderung ist von der Kollisionszeit abhängig, die auf Grundlage eines einfachen Modells diskutiert wird.

Der Schwerpunkt der theoretischen Ausführungen liegt auf der sich anschließenden Beschreibung der Ladungsträgerdynamik, welche insbesondere für die Deutung der beobachteten

Zerstörschwellen notwendig ist. Die Erhöhung der Ladungsträgerdichte wird im Wesentlichen durch die Photo- sowie die Avalancheionisation bewirkt, während Rekombinationsprozesse dieser Steigerung entgegenwirken. Das Kapitel schließt mit Simulationsrechnungen zur induzierten Ladungsträgerdichte für Leistungsdichten nahe der Zerstörschwelle am Beispiel von Quarz. Des Weiteren wird auf der Basis der beschriebenen Modelle die Reflektivität und Absorption eines Quarzsubstrates berechnet, welchem auf Grund der Wechselwirkung mit dem ultrakurzen Puls eine nichtlineare Änderung von Brechungsindex und Absorptionskoeffizient widerfährt.

## 2.1 Propagation ultrakurzer Pulse in Dielektrika

### 2.1.1 Kerr-Effekt in dielektrischen Schichten

Zur Beschreibung der Nichtlinearität des Brechungsindex wird von der Maxwellschen Wellengleichung für die Feldstärke  $\mathbf{E}$  ausgegangen, die im Falle eines nicht-magnetischen, ladungsfreien und nicht-leitenden Mediums folgende Form annimmt [10]:

$$\Delta \mathbf{E} - \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \mathbf{E}}{\partial t^2} - \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{(l)}}{\partial t^2} = \mu_0 \frac{\partial^2 \mathbf{P}^{(nl)}}{\partial t^2} \quad (2.1)$$

wobei die Polarisation in einen linearen ( $\mathbf{P}^{(l)}$ ) und einen nichtlinearen Anteil ( $\mathbf{P}^{(nl)}$ ) aufgeteilt ist. Da  $\mathbf{P}^{(l)}(t, \mathbf{r}) \gg \mathbf{P}^{(nl)}(t, \mathbf{r})$  gilt, treten signifikante Effekte erst bei sehr hohen Feldstärken, wie z. B. bei ultrakurzen Laserpulsen auf.

Es wird im Folgenden von einem homogenen, verlustfreien Medium ausgegangen, das eine kubische Kristallstruktur aufweist. In diesem Fall verschwindet die Suszeptibilität zweiter Ordnung und die nichtlineare Polarisation wird im Wesentlichen durch die dritte Ordnung beschrieben [2, 4, 21].

$$\begin{aligned} \mathbf{P}^{(l)}(t, \mathbf{r}) &= \varepsilon_0 \int_0^\infty \hat{\chi}^{(1)}(t_1) \mathbf{E}(t - t_1, \mathbf{r}) dt_1, \\ \mathbf{P}^{(nl)}(t, \mathbf{r}) &= \varepsilon_0 \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \hat{\chi}^{(3)}(t_1, t_2, t_3) \mathbf{E}(t - t_1, \mathbf{r}) \mathbf{E}(t - t_1 - t_2, \mathbf{r}) \mathbf{E}(t - t_1 - t_2 - t_3, \mathbf{r}) dt_1 dt_2 dt_3, \end{aligned} \quad (2.2)$$

wobei  $\hat{\chi}^{(1)}(t)$  die Suszeptibilität für das lineare Verhalten des Materials (erster Ordnung) und  $\hat{\chi}^{(3)}(t_1, t_2, t_3)$  die Suszeptibilität dritter Ordnung darstellt.  $\hat{\chi}^{(3)}$  ist ein Tensor 4. Stufe, dessen Komponenten einen Wert ungleich Null zeigen und dessen gleichlautende Indizes nur in gerader Anzahl vorkommen [103]:

$$\chi_{xxyy}^{(3)} = \chi_{yyxx}^{(3)} = \chi_{xxzz}^{(3)} = \dots = \chi_{yyzz}^{(3)} \quad \chi_{xxxx}^{(3)} = \chi_{yyyy}^{(3)} = \chi_{zzzz}^{(3)}. \quad (2.3)$$

Da im Folgenden die Selbstwirkung des nichtlinearen Mediums auf den auslösenden, intensiven Puls betrachtet wird und Anisotropien im Dielektrikum keine Rolle spielen sollen, gilt überdem  $\chi_{aaaa}^{(3)} = 3 \cdot \chi_{aabb}^{(3)}$ .

Auf Grund der vorausgesetzten Isotropie kann ohne Beschränkung der Allgemeinheit von einer quasi-monochromatischen Welle ausgegangen werden, die in  $x$ -Richtung  $\mathbf{e}_x$  linear polarisiert ist und durch den Ausdruck

$$\mathbf{E}(t, z) = \frac{1}{2} \mathbf{e}_x A(t, z) e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} + c.c., \quad (2.4)$$

beschrieben wird. Hierbei wird mit  $A(t, z)$  die komplexe Amplitudenfunktion und mit  $k_0 = n_0 \frac{\omega_0}{c} = n_0 \frac{2\pi}{\lambda_0}$  die Wellenzahl bezeichnet. Des Weiteren ist  $n_0$  der Brechungsindex des Dielektrikums bei einer Mittenfrequenz von  $\omega_0$ .

Bei einer quasi-monochromatischen Welle ist die spektrale Breite klein gegen die Mittenfrequenz ( $\Delta\omega \ll \omega_0$ ). Dies ist gleichbedeutend mit der Aussage, dass einige optische Zyklen in der Einhüllenden des zeitlichen Pulsprofils liegen. In diesem Fall ändert sich  $A(t, z)$  innerhalb eines optischen Zyklus nur wenig.

In analoger Weise kann dieser Ansatz der langsam variierenden Amplitudenfunktion für die Polarisation verfolgt werden [4, 103]. Der Tensor 4. Stufe der nichtlinearen Suszeptibilität  $\hat{\chi}^{(3)}$  reduziert sich dann auf die verbleibende Komponente  $\chi^{(3)} = \chi_{xxxx}^{(3)}$ :

$$P^{(nl)}(\omega_0, t, z) = \frac{1}{2} P^{(nl)}(t, z) e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} + c.c., \quad (2.5)$$

mit

$$P^{(nl)}(t, z) = \frac{3}{4} \varepsilon_0 \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \chi^{(3)}(t_1, t_2 - t_1, t_3 - t_2 - t_1) \\ * A(t - t_1, z) A(t - t_2, z) A^*(t - t_3, z) e^{-i\omega_0(t_3 - t_2 - t_1)} dt_1 dt_2 dt_3. \quad (2.6)$$

Wird die Amplitudenfunktion bis zur ersten Ordnung in einer Taylorreihe entwickelt

$$A(t - t_j, z) = A(t, z) - \frac{\partial A(t, z)}{\partial t} t_j, \quad (2.7)$$

kann 2.6 vereinfacht werden:

$$P^{(nl)}(t, z) = \frac{3}{4} \varepsilon_0 \left[ \chi^{(3)}(\omega_0) |A(t, z)|^2 A(t, z) + i \chi_{\omega_0}^{(3)} \frac{\partial}{\partial t} (|A(t, z)|^2 A(t, z)) \right], \quad (2.8)$$

mit

$$\chi^{(3)}(\omega_0) = \chi^{(3)}(\omega_0, \omega_0, \omega_0, -\omega_0) = \int_0^\infty \int_0^\infty \int_0^\infty \chi^{(3)}(t_1, t_2 - t_1, t_3 - t_2 - t_1) e^{-i\omega_0(t_1 + t_2 - t_3)} dt_1 dt_2 dt_3, \\ \chi_{\omega_0}^{(3)} = \frac{\partial \chi^{(3)}(\omega_0)}{\partial \omega_0}. \quad (2.9)$$

Weiterhin kann der zweite Term vernachlässigt werden, wenn die Zeitdauer der nichtlinearen Reaktion des Dielektrikums  $\tau_{nl}$  kleiner als die Pulsdauer<sup>1</sup>  $\tau_p$  ist ( $\mu_{nl} = \frac{\tau_{nl}}{\tau_p} \ll 1$ ). In diesem

---

<sup>1</sup>Die Reaktion für nicht-resonante elektronische Wechselwirkung ist z. B. für Quarz etwa 1 fs [46] bzw. für Glas im Bereich 1-10 fs [21]

Fall der Approximation nullter Ordnung folgt für die zeitliche Ableitung der Polarisation:

$$\frac{\partial^2 P^{(nl)}}{\partial t^2} = -\frac{3}{8}\varepsilon_0\omega_0^2\chi^{(3)}(\omega_0) \left[ |A|^2 A + i\frac{2}{\omega_0}\frac{\partial}{\partial t} (|A|^2 A) - \frac{1}{\omega_0^2}\frac{\partial^2}{\partial t^2} (|A|^2 A) \right] e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} + c.c. \quad (2.10)$$

Wird  $\frac{\partial}{\partial t}(|A|^2 A)$  durch die Näherung  $\frac{|A|^2 A}{\tau_p}$  ersetzt, dann ist ersichtlich, dass die beiden letzteren Terme für  $\omega_0\tau_p \gg 1$  einen vernachlässigbaren Beitrag liefern, womit Gl. 2.10 weiter vereinfacht werden kann:

$$\frac{\partial^2 P^{(nl)}}{\partial t^2} = -\frac{3}{8}\varepsilon_0\omega_0^2\chi^{(3)}|A(t,z)|^2 A(t,z)e^{i(\omega_0 t - k_0 z)} + c.c. \quad (2.11)$$

Die Näherung der nichtlinearen Polarisation kann nun in die Wellengleichung 2.1 eingesetzt werden. Die darin enthaltene Integralform für die lineare Polarisation (Gl. 2.2) kann in analoger Weise durch die Betrachtung einer ebenen Welle und einer Taylorentwicklung in eine Differenzialform überführt werden. In einer Näherung zweiter Ordnung folgt dann für die Wellengleichung:

$$\begin{aligned} \left[ \frac{\partial}{\partial z} + \frac{1}{u}\frac{\partial}{\partial t} - i\frac{1}{2}k_2\frac{\partial^2}{\partial t^2} \right] A(t,z) &= i\frac{\mu_0}{k_0}\frac{\partial^2 P^{(nl)}}{\partial t^2} \\ &= -i\frac{3}{8}\frac{\omega_0^2\chi^{(3)}}{c^2k_0}|A(t,z)|^2 A(t,z) \\ &= -i\frac{n_{2,K}k_0}{n_0}|A(t,z)|^2 A(t,z) \\ &= -ik_0\Delta n_K A(t,z), \end{aligned} \quad (2.12)$$

mit der Gruppengeschwindigkeit  $u = \left[ \left( \frac{\partial k}{\partial \omega} \right)_{\omega_0} \right]^{-1}$  und der Gruppengeschwindigkeitsdispersion  $k_2 = \left( \frac{\partial^2 k}{\partial \omega^2} \right)_{\omega_0}$ , sowie dem nichtlinearen Brechungsindex-Koeffizienten  $n_{2,K}$  bzw. der normierten Brechungsindexänderung  $\Delta n_K$ :

$$n_{2,K} = \frac{3}{8}\frac{\chi^{(3)}(\omega_0)}{n_0} \quad \Delta n_K = \frac{n_{2,K}|A(t,z)|^2}{n_0}. \quad (2.13)$$

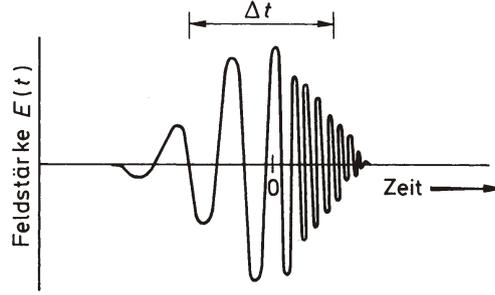
Da für die Betrachtung des Kerr-Effekts  $\chi^{(3)}$  rein reell ist, wirkt die Änderung durch das Strahlungsfeld lediglich auf den Realteil des komplexen Brechungsindex. Der aus der Einwirkung resultierende Brechungsindex berechnet sich wie folgt:

$$\begin{aligned} n &= n_0 + n_{2,K}|A(t,z)|^2 \\ &= n_0 + \bar{n}_{2,K}I(t,z), \end{aligned} \quad (2.14)$$

mit  $\bar{n}_{2,K} = \frac{2n_{2,K}}{\varepsilon_0 n_0}$ .

Der quadratische Term auf der linken Seite der Differenzialgleichung 2.12 beschreibt die zeitliche Verbreiterung der Laserpulse im dispersiven Medium. Diese kann aber vernachlässigt werden, wenn die sog. Dispersionslänge  $L_D = \frac{\tau_p^2}{|k_2|}$  nicht überschritten wird ( $z \ll L_D$ ). In diesem Fall reduziert sich die Differenzialgleichung 2.12 weiter zu:

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{1}{u}\frac{\partial A}{\partial t} + i\frac{n_{2,K}k_0}{n_0}|A(t,z)|^2 A(t,z) = 0, \quad (2.15)$$



**Abbildung 2.1:** Änderung der Frequenz eines ultrakurzen Laserpulses (*chirp*) in Folge der Selbstphasenmodulation (aus [10]).

zu der im strahlbegleitenden Koordinatensystem  $\eta = t - \frac{z}{u}$  folgende Lösungsfunktion angegeben werden kann:

$$A(\eta, z) = A_0(\eta) e^{-i \frac{n_{2,K} k_0}{n_0} |A_0(\eta)|^2 z}, \quad (2.16)$$

wobei  $A_0$  die Amplitude vor dem Eintreten der Welle in das Medium darstellt. Die Phase der ursprünglichen Amplitudenfunktion wird abhängig von der Pulsspitzenleistung während der Propagation durch das nichtlineare Medium verändert:

$$\varphi_{nl}(\eta, z) = - \frac{n_{2,K} k_0}{n_0} |A_0(\eta)|^2 z, \quad (2.17)$$

und somit eine Phasenmodulation

$$\frac{\partial \varphi}{\partial t} = \frac{\partial \varphi_0}{\partial t} - \frac{n_{2,K} k_0}{n_0} z \frac{\partial}{\partial t} |A_0(\eta)|^2 \quad (2.18)$$

bewirkt. Da sich der Brechungsindex  $n$  praktisch instantan mit der Pulsamplitude ändert, durchlaufen die verschiedenen Teile des Pulses unterschiedliche Brechungsindizes, so dass innerhalb des Pulses die Phase verändert wird. Dieser Effekt der Selbstphasenmodulation hat zur Folge, dass neue Frequenzanteile entstehen und das Spektrum des Pulses verbreitert wird. Die Ausbildung dieses *chirp* ist in Abbildung 2.1 verdeutlicht. Da die Selbstphasenmodulation bereits bei kleinen Wechselwirkungslängen auftritt, sollte sie im Gegensatz zur Pulsverbreiterung durch die Gruppengeschwindigkeitsdispersion bei der Betrachtung von dünnen dielektrischen Schichten berücksichtigt werden.

### 2.1.2 Nichtlinearität durch inverse Bremsstrahlung

Ein zusätzlicher Beitrag zum Brechungsindex wird durch die Präsenz von freien Ladungsträgern in dem dielektrischen Medium hervorgerufen. Wenn durch Mehrphotonen- und Avalanche-Ionisationsprozesse, die in Abschnitt 2.2 näher erläutert werden, ein Plasma erzeugt wird, können die enthaltenen Elektronen im Strahlungsfeld zu Schwingungen angeregt werden. Die erzeugten Leitungsbandelektronen können als freies Elektronengas aufgefasst

werden, deren zusätzlicher Beitrag zum komplexen Brechungsindex mit Hilfe der Drude-Theorie beschrieben wird.

Die Permittivität eines Dielektrikums lautet in Abwesenheit von Leitungsbandelektronen [10, 52, 63]:

$$\varepsilon(\omega_0) = 1 + \chi(\omega_0) = 1 + \frac{\omega_p^2}{\omega_{12}^2 - \omega_0^2 + i\frac{\omega_0}{\tau_{12}}}, \quad (2.19)$$

wobei  $\omega_{12}$  die Frequenz und  $\frac{1}{\tau_{12}}$  die Breite des Übergangs vom Valenz- in das Leitungsband angibt. Werden Leitungsbandelektronen durch Ionisation erzeugt, können sie in Folge der fehlenden Kopplung an Atome ( $\omega_{12} = 0$ ) von der Strahlung zu Schwingungen angeregt werden. Eine Dämpfung erfahren die Elektronen im Wesentlichen durch Stöße mit dem Gitter, welche mit einer Zeitkonstanten  $\tau_c$  auftreten. Die zusätzlich durch das Plasma hervorgerufene Suszeptibilität lautet somit [103]:

$$\begin{aligned} \chi_P(\omega_0) &= -\frac{\omega_p^2}{\omega_0^2 - i\frac{\omega_0}{\tau_c}} \\ &= -\frac{\omega_p^2(\omega_0^2\tau_c^2 + i\frac{\omega_0}{\tau_c})}{\omega_0^2(1 + \omega_0^2\tau_c^2)}, \end{aligned} \quad (2.20)$$

wobei

$$\omega_p = \sqrt{\frac{\rho e^2}{m\varepsilon_0}} \quad (2.21)$$

die Plasmafrequenz,  $m$  die reduzierte Masse des Elektrons im Leitungsband, sowie  $\tau_c$  die typische Kollisionszeit der Elektronen mit dem Gitter darstellt. Der durch das Plasma hervorgerufene zusätzliche Anteil zum komplexen Brechungsindex<sup>2</sup> berechnet sich auf Grund der Additivität der Polarisierung aus der Differenz<sup>3</sup>:

$$n_0\tilde{n}_{2,P}(\omega_0) = \sqrt{1 + \chi(\omega_0) + \chi_P(\omega_0)} - \sqrt{1 + \chi(\omega_0)}. \quad (2.22)$$

Die Wurzeln können in Potenzreihen entwickelt werden, wobei unter der Annahme kleiner Suszeptibilitäten  $\chi(\omega)$  und  $\chi_P(\omega)$  in erster Näherung ( $\sqrt{1 + \delta} \approx 1 + \frac{1}{2}\delta$ ) folgende Näherung gilt:

$$\tilde{n}_{2,P}(\omega_0) = -\frac{\omega_p^2(\omega_0^2\tau_c^2 + i\omega_0\tau_c)}{2n_0\omega_0^2(1 + \omega_0^2\tau_c^2)}. \quad (2.23)$$

---

<sup>2</sup>Zur besseren Unterscheidung wird der komplexe im Gegensatz zum reellen Brechungsindex mit einer Tilde gekennzeichnet.

<sup>3</sup>In einem weiterführenden Modell von Martin et al. [63] werden darüber hinaus auch die Elektronen berücksichtigt, die bei der Bildung von STEs (*self-trapped excitons*), d. h. lokalen Elektron-Loch-Paaren entstehen. Die zugehörige Suszeptibilität hat die gleiche Struktur wie der zweite Term von Gl. 2.19, allerdings mit Bandlückenabstand  $\omega_{tr}$  und -breite  $\tau_{tr}$  des STEs. Das Vorzeichen des zusätzlichen Beitrags zur Permittivität ist dadurch festgelegt, ob die Bandlücke kleiner (-) oder größer (+) als die Photonenenergie ist. Da die Kopplung der STEs an das Strahlungsfeld deutlich kleiner als für Leitungsbandelektronen ist, wird deren Beitrag zum Brechungsindex für das beschriebene Modell vernachlässigt.

In Analogie zur Brechungsindexvariation durch den Kerr-Effekt leitet sich daraus ab:

$$\begin{aligned}\Delta\tilde{n}_P &= \frac{\tilde{n}_{2,P}}{n_0} \\ &= -\frac{\omega_p^2(\omega_0^2\tau_c^2 + i\omega_0\tau_c)}{2n_0^2\omega_0^2(1 + \omega_0^2\tau_c^2)},\end{aligned}\quad (2.24)$$

Dieser Anteil  $\Delta\tilde{n}_P$  wird in die Wellengleichung 2.12 eingesetzt

$$-ik_0\Delta\tilde{n}_PA(t,z) = -\frac{1}{2}\sigma(1 - i\omega_0\tau_c)\rho A(t,z),\quad (2.25)$$

mit dem Absorptionsquerschnitt

$$\sigma = \frac{k_0\omega_0\tau_c}{n_0^2\rho_c(1 + \omega_0^2\tau_c^2)},\quad (2.26)$$

und der kritischen Plasmadichte

$$\rho_c = \frac{\varepsilon_0 m \omega_0^2}{e^2}\quad (2.27)$$

Die physikalische Bedeutung der kritischen Plasmadichte ist, dass ein rapides Anwachsen der Absorption des Mediums für die eingestrahlte Welle bei Erreichen dieses charakteristischen Wertes zu beobachten ist. Daher wird dieser Wert in einer Vielzahl von Veröffentlichungen mit dem Einsetzen von laserinduzierter Zerstörung in Verbindung gebracht.

Der erste Term von Gl. 2.25 beschreibt die Absorption des Strahlungsfeldes durch das Plasma, wobei die Höhe der Absorption durch den Absorptionskoeffizienten

$$\alpha = \sigma\rho\quad (2.28)$$

bestimmt wird. Die Absorption bei Durchdringung der Strecke  $z$  im Medium kann über das Lambertsche Gesetz  $I(t,z) = I(t,0)e^{-\alpha z}$  ermittelt. Der zweite Term bestimmt die durch die freien Elektronen ausgelöste Variation des reellen Brechungsindexes.

Abschließend kann die durch Kerr-Effekt und Plasma induzierte Änderung des reellen Brechungsindexes in der folgenden Form angegeben werden, wobei Gln. 2.13 und 2.23 Berücksichtigung finden:

$$\begin{aligned}n_0\Delta n &= n_0(\Delta n_K + \text{Re}(\Delta\tilde{n}_P)) \\ &= \frac{3}{8}\frac{\chi^{(3)}(\omega_0)}{n_0}|A(t,z)|^2 - \frac{\omega_p^2\tau_c^2}{2n_0(1 + \omega_0^2\tau_c^2)}.\end{aligned}\quad (2.29)$$

Die Wellengleichung, deren Anteile sich aus Gln. 2.12 und 2.25 zusammensetzen, lautet folglich:

$$\frac{\partial A}{\partial z} + \frac{1}{u}\frac{\partial A}{\partial t} = \left[-ik_0\Delta n + \frac{1}{2}\alpha\right]A(t,z),\quad (2.30)$$

Eine Abschätzung der Kollisionszeit  $\tau_c$  lässt sich über die folgende Modellvorstellung gewinnen [103]. Bei der inversen Bremsstrahlung werden Stöße zwischen Elektronen und Ionen

vollführt. Die Kollisionsrate kann über die mittlere Wahrscheinlichkeit für das Eintreten eines Elektrons in den Bereich des Ions ermittelt werden:

$$\tau_c^{-1} = \rho \langle v \sigma_{ei} \rangle \simeq \rho \langle v \rangle \langle \sigma_{ei} \rangle, \quad (2.31)$$

wobei  $\langle v \rangle$  die mittlere thermische Geschwindigkeit und  $\sigma_{ei}$  der Wirkungsquerschnitt für eine Elektron-Ion-Kollision bezeichnet. Die mittlere Elektronengeschwindigkeit bei einer Temperatur  $T_e$  und der damit verbundenen kinetischen Energie  $E_{kin} = \frac{3}{2}k_B T_e$  beträgt:

$$\langle v \rangle = \sqrt{\frac{2E_{kin}}{m}} = \sqrt{\frac{3k_B T_e}{m}}. \quad (2.32)$$

Der Kollisionswirkungsquerschnitt kann mit  $\sigma_{ei} \approx \pi \langle R_0 \rangle^2$  abgeschätzt werden. Der mittlere Atomradius wird über das Coulomb-Potenzial abgeschätzt, wobei Abschirmungseffekte im Plasma vernachlässigt werden.

$$\langle R_0 \rangle^2 = \left( \frac{1}{4\pi\epsilon_0} \frac{e^2}{E_{kin}} \right)^2 \quad (2.33)$$

Durch Einsetzen von 2.32 und 2.33 in den Ansatz 2.31 ergibt sich:

$$\begin{aligned} \tau_c &= \frac{16\pi\epsilon_0^2 \sqrt{mE_{kin}^3}}{\sqrt{2}e^4\rho} \\ &= \frac{12\sqrt{3}\epsilon_0^2 \sqrt{mk_B^3 T_e^3}}{e^4\rho}. \end{aligned} \quad (2.34)$$

## 2.2 Dynamik der Elektronendichte

Im folgenden Abschnitt werden die für die nichtlinearen Effekte im Dielektrikum ursächlichen Ionisierungsprozesse erläutert. Die Dynamik bei der Elektronendichte wird im Wesentlichen durch die folgende Rategleichung beschrieben:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = W_{PI} + W_{Av} - W_r. \quad (2.35)$$

Dabei liefern die Terme der Photoionisation  $W_{PI}$  und der Avalancheionisation  $W_{Av}$  einen Zuwachs der Elektronendichte im Medium, denen die Rekombination  $W_r$  mit einer Zeitkonstante  $\tau_r$  entgegenwirkt.

### 2.2.1 Photoionisation im intensiven Strahlungsfeld

Bei der Wechselwirkung eines Dielektrikums mit einem intensiven elektromagnetischen Strahlungsfeld werden Elektronen von diskreten Energiezuständen in das kontinuierliche Leitungsband gehoben. Für die in dieser Arbeit untersuchten Dielektrika ist dabei wesentlich, dass die Absorption eines einzelnen Photons nicht ausreicht, die Bandlücke zu überwinden.

Bei intensiver Laserstrahlung, wie z. B. ultrakurzen Pulsen, ist dennoch ein signifikanter Wirkungsquerschnitt für Photoionisation vorhanden, der auf Mehrphotonen- bzw. Tunnelionisation zurückzuführen ist.

Im Falle der Mehrphotonenionisation werden quasi-simultan zwei oder mehrere Photonen absorbiert, um ein Elektron über die Bandlücke zu heben. Der Wirkungsquerschnitt  $\sigma_k$  für die Anregung mit  $k$  Photonen wird mit wachsendem  $k$  zunehmend kleiner, da dieser im Wesentlichen durch die Wahrscheinlichkeit beeinflusst wird, dass sich  $k$  Photonen in einer Zeitspanne von ca. 10 fs im Bereich des Atoms aufhalten [10]. Bei der Tunnelionisation hingegen werden die Atompotenziale durch das elektrische Feld des Laserpulses derart verformt, dass ein Elektron eine signifikante Wahrscheinlichkeit zur Durchtunnelung der gebildeten Potenzialbarriere erhält. Hierzu sind allerdings noch höhere Feldstärken als für die Mehrphotonenionisation notwendig.

Zur Berechnung der Photoionisation durch intensive Laserpulse wird in der Literatur im Wesentlichen die Lösung nach Keldysh [50] bzw. hierauf aufbauende Weiterentwicklungen [26, 80] verwendet, wobei hier dem verbreiteteren Originalausdruck gefolgt wird:

$$W_{PI}(|A|) = \frac{2\omega_0}{9\pi} \left( \frac{\omega_0 m}{\hbar \sqrt{\Gamma}} \right)^{\frac{3}{2}} Q(\gamma, x) \exp \left\{ -\pi \frac{K(\sqrt{\Gamma}) - E(\sqrt{\Gamma})}{E(\sqrt{\xi})} ]x + 1[ \right\}, \quad (2.36)$$

mit der reduzierten Elektronenmasse  $m$ . Der Ausdruck  $]y[$  beschreibt den ganzzahligen Anteil von  $y$ . Weitere Abkürzungen sind:

$$\gamma = \omega_0 \frac{\sqrt{mU_i}}{e|A|} \quad \Gamma = \frac{\gamma^2}{\gamma^2 + 1} \quad \xi = \frac{1}{1 + \gamma^2} \quad (2.37)$$

$$\eta = \frac{\pi^2}{2K(\sqrt{\xi})E(\sqrt{\xi})} \quad x = \frac{2}{\pi} \frac{U_i}{\hbar\omega_0} \frac{1}{\sqrt{\Gamma}} E(\sqrt{\xi}) \quad \mu = ]x + 1[-x \quad (2.38)$$

$$Q(\gamma, x) = \sqrt{\frac{\pi}{2K(\sqrt{\xi})}} \sum_{n=0}^{\infty} \exp \left\{ -n\pi \frac{K(\sqrt{\Gamma}) - E(\sqrt{\Gamma})}{E(\sqrt{\xi})} \right\} \Phi \left( \sqrt{\eta(n + 2\mu)} \right). \quad (2.39)$$

wobei  $K(z)$  und  $E(z)$  die vollständigen elliptischen Integrale der ersten und zweiten Gattung sind [18], sowie

$$\Phi(z) = \int_0^z \exp \{ y^2 - z^2 \} dy \quad (2.40)$$

die Dawson-Funktion [100] beschreibt. Weiterhin bezeichnet  $n_0$  den Brechungsindex des Dielektrikums bei der Wellenlänge  $\lambda_0$  und  $U_i$  den Bandabstand. Der sogenannte adiabatische Keldysh-Parameter  $\gamma$  gilt als Maß dafür, ob Multiphotonen- ( $\gamma \gg 1$ ) oder Tunnelionisation ( $\gamma \ll 1$ ) bei der Photoionisation im intensiven Strahlungsfeld die dominierende Rolle einnimmt. Für  $\gamma = 1$  kann bei gegebenen Test- und Materialparametern unter Verwendung von

$$I(t) = \frac{1}{2} c n_0 \varepsilon_0 |A(t)|^2 \quad (2.41)$$

eine Übergangs-Leistungsdichte  $I_{tr}$  berechnet werden:

$$I_{tr} = \frac{\omega_0^2 c n_0 \varepsilon_0 m U_i}{2e^2}. \quad (2.42)$$

Bei einer Dominanz der Mehrphotonen-Ionisation, d. h. im Bereich  $I \ll I_{tr}$  reduziert sich Gl. 2.36 zu:

$$W_{MPI}(|A|) = \frac{2\omega_0}{9\pi} \left( \frac{\omega_0 m}{\hbar} \right)^{\frac{3}{2}} \Phi \left( \sqrt{2 \left( k - \frac{\tilde{U}_i}{\hbar\omega_0} \right)} \right) (4\gamma)^{-2k} \exp \left\{ 2k \left( 1 - \frac{1}{4\gamma^2} \right) \right\}, \quad (2.43)$$

wobei die Abkürzungen

$$k = \left\lceil 1 + \frac{\tilde{U}_i}{\hbar\omega_0} \right\rceil, \quad \tilde{U}_i = U_i \left( 1 + \frac{1}{4\gamma^2} \right). \quad (2.44)$$

verwendet werden. Im Falle von Leistungsdichten oberhalb des Übergangswertes  $I \gg I_{tr}$  und somit im Bereich von vorherrschender Tunnelionisation kann ebenfalls eine Näherungsformel angegeben werden:

$$W_{TI}(|A|) = \frac{2}{9\pi^2} \frac{U_i}{\hbar} \left( \frac{mU_i}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \left( \frac{\hbar\omega_0}{\gamma U_i} \right)^{\frac{5}{2}} \exp \left\{ -\frac{\pi}{2} \frac{\gamma U_i}{\hbar\omega_0} \left( 1 - \frac{1}{8}\gamma^2 \right) \right\}. \quad (2.45)$$

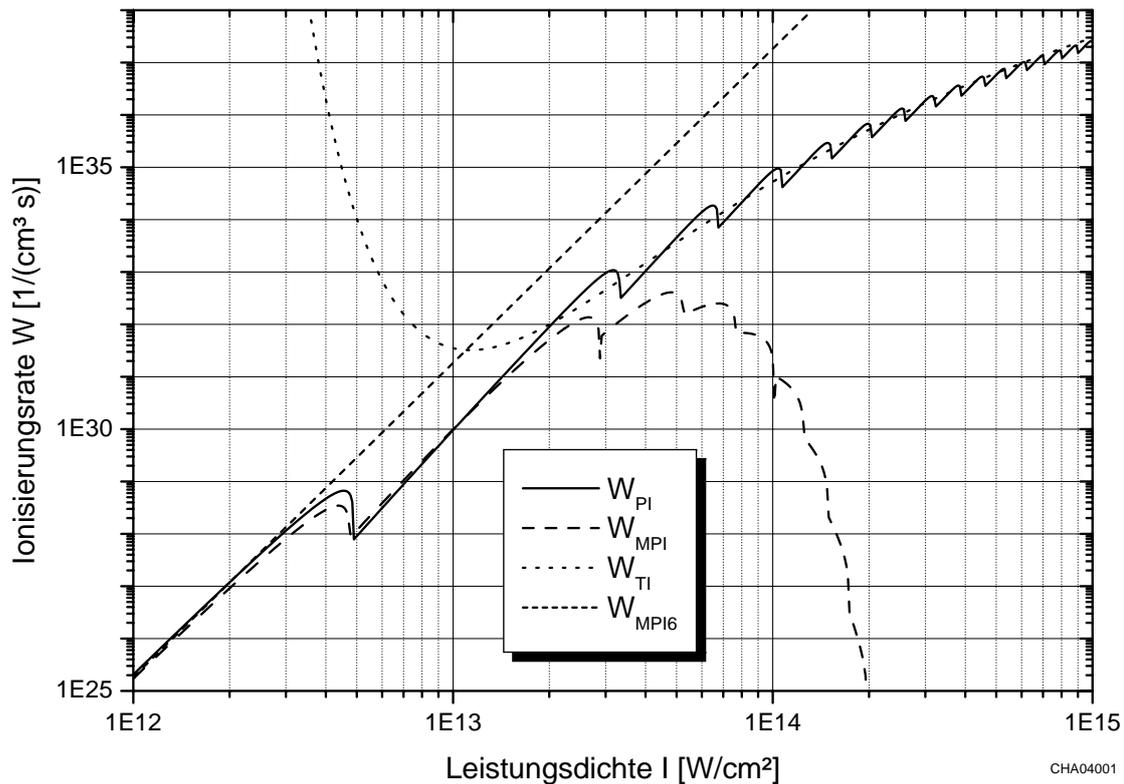
Zur Verdeutlichung des Verhaltens der Ionisationsrate im Übergangsbereich von Mehrphotonen- hin zur Tunnelionisation sind die Raten aus Gln. 2.36, 2.43 und 2.45 in Abbildung 2.2 dargestellt<sup>4</sup>. Für diese Beispielrechnung wurden als Parameter der Brechwert von Quarz  $n_0 = 1,45$ , die reduzierte Elektronenmasse<sup>5</sup>  $m = 0,635 m_e$ , sowie als Laserwellenlänge  $\lambda_0 = 800$  nm und als Pulsdauer  $\tau_p = 160$  fs gewählt. Die dargestellten Raten spiegeln exakt die von Sudrie et al. [100] beschriebenen Verläufe wider<sup>6</sup>. Die Abbildung verdeutlicht die hervorragende Übereinstimmung der Näherungsausdrücke für Mehrphotonen- bzw. Tunnelionisation nach Keldysh im jeweiligen Anwendungsbereich. Dagegen eignet sich die oftmals verwendete Beschreibungsform für die Mehrphotonenionisation im Bereich  $I \ll I_{tr}$  nach dem Muster  $W = \sigma_k I^k$  offensichtlich nicht als Näherung der exakten Keldysh-Rate, wenn intensivere Laserpulse betrachtet werden. Der Grund hierfür ist, dass das effektive Potential  $\tilde{U}_i$  bereits bei Leistungsdichten, die beinahe eine Größenordnung unter dem Übergangswert  $I_{tr}$  liegen, so weit ansteigt, dass  $k$  Photonen nicht mehr ausreichen, ein Elektron über die nunmehr vergrößerte Bandlücke zu heben. Dieses Verhalten äußert sich durch das Auftreten von Stufen in den Ratenfunktionen nach Keldysh. In diesem Fall wird die Ionisationsrate

---

<sup>4</sup>Die numerischen Berechnungen wurden mit MathCad 8 durchgeführt [66]

<sup>5</sup>Polaron-korrigierte effektive Masse des Elektrons [28].

<sup>6</sup>Obwohl sich in der genannten Veröffentlichung auf die exakte Rate nach Keldysh bezogen wird, weicht die von Sudrie angegebene Rate vom Originalausdruck 2.36 in Folge einer alternativen Definition der elliptischen Integrale ab [20].



**Abbildung 2.2:** Berechnete Photoionisierungsraten durch Laserpulse ( $\tau_p=160$  fs und  $\lambda_0=800$  nm) in Quarz in Abhängigkeit der Leistungsdichte  $I$ ;  $W_{PI}$ : exakte Keldysh-Rate,  $W_{MPI}$ : Näherung für Mehrphotonenionisation,  $W_{TI}$ : Näherung für Tunnelionisation,  $W_{MPI6}$ : MPI-Rate der Form  $W_{MPI6} = \sigma_6 I^6$  mit  $\sigma_6 = 1,8 \cdot 10^{-47} \frac{\text{cm}^9}{\text{sW}^6}$ ; Übergangsleistungsdichte  $I_{tr} = 35 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ .

etwa um eine Größenordnung und bei der Übergangsleistungsdichte bereits um zwei Größenordnungen überschätzt. Der physikalische Hintergrund für die Vergrößerung der Bandlücke ist die Steigerung der mittleren kinetischen Energie der in das Leitungsband gehobenen Elektronen bei höheren Leistungsdichten, die zusätzlich zum Bandabstand aufgewendet werden muss [45].

## 2.2.2 Avalanche-Ionisation

Die in das Leitungsband gehobenen Elektronen erhalten im Strahlungsfeld des ultrakurzen Laserpulses zusätzliche Energie durch inverse Bremsstrahlung. Bei einem hinreichend großen Energieeintrag können die „heißen“ Elektronen über inelastische Stöße weitere Atome ionisieren, die wiederum während der Dauer des Pulses beschleunigt werden. Eine Abschätzung für die hierfür relevante Kollisionszeit wurde bereits in Gl. 2.34 angegeben. Für die quantitative Beschreibung der Avalanche-Ionisation sind in der Literatur eine Reihe von Modellen

zu finden, die sich im Ergebnis deutlich unterscheiden können [11, 25, 27, 47]. Für die in dieser Arbeit durchgeführten Abschätzungen wird ein Modell nach Tikhonravov [100, 103] verwendet.

Während eines optischen Zyklus  $T_0 = \frac{2\pi}{\omega_0}$  nimmt ein Elektron im intensiven Laserfeld mit der Feldstärke  $E(t)$  die mittlere Leistung  $P = \langle eE(t)v(t) \rangle$  auf. Wenn das Elektron zum Zeitpunkt  $t_0$  direkt nach einer Kollision die Anfangsgeschwindigkeit  $v_0$  hat, dann verhält sich die Geschwindigkeit des beschleunigten Elektrons zur Zeit  $t$  nach:

$$v(t, t_0) = \left[ \int_{t_0}^t \frac{eA_0}{2m} e^{i\omega_0 t'} dt' + c.c. \right] + v_0. \quad (2.46)$$

Bei der Berechnung des Geschwindigkeitsmittels  $v(t)$  ist die Verteilungsfunktion für die Kollisionszeitpunkte zu berücksichtigen ( $t > t_0$ ):

$$w(t, t_0) = \frac{1}{\tau_c} \exp \left\{ -\frac{t - t_0}{\tau_c} \right\}. \quad (2.47)$$

Hieraus folgt mit  $\langle v_0 \rangle = 0$ :

$$v(t) = \langle v(t, t_0) \rangle = \frac{1}{2} V \exp\{i\omega_0 t\} + c.c., \quad (2.48)$$

mit:

$$V = -i \frac{eA_0}{m\omega_0} + \frac{eA_0}{m\omega_0(\omega_0\tau_c - i)}. \quad (2.49)$$

Für die mittlere, auf das Elektron übertragene Leistung folgt dann:

$$P = \frac{\tau_c}{1 + (\omega_0\tau_c)^2} \frac{e^2 A_0^2}{2m}. \quad (2.50)$$

Bei der Kollision mit einem Atom der Masse  $M$  erleidet ein Elektron den Energieverlust:

$$E_{loss} = 2 \frac{m}{M} (1 - \cos \theta) E_{kin}, \quad (2.51)$$

mit der kinetischen Energie des Elektrons  $E_{kin}$  und dem Streuwinkel des Elektrons  $\theta$ . Die Verlustleistung durch Kollision ist dann:

$$P_{loss} = 2 \frac{m}{M\tau_c} E_{kin}, \quad (2.52)$$

wobei eine Gleichverteilung der Streuwinkel  $\langle \cos \theta \rangle = 0$  angenommen werden kann. Aus 2.50 und 2.52 kann die Energiebilanz für ein Elektron im Strahlungsfeld angegeben werden:

$$\frac{\partial E_{kin}}{\partial t} = \frac{\tau_c}{1 + (\omega_0\tau_c)^2} \frac{e^2 A_0^2}{2m} - 2 \frac{m}{M\tau_c} E_{kin}. \quad (2.53)$$

Mit der Einführung der folgenden Bezeichnungen:

$$E_{kin}^{max} = \frac{e^2 A_0^2 M \tau_c^2}{4m^2 [1 + (\omega_0\tau_c)^2]} \quad \tau^* = \frac{M}{2m} \tau_c \quad (2.54)$$

lautet die Lösung dieser Differenzialgleichung für  $t < t^*$ :

$$E_{kin}(t) = E_{kin}^{max} \left( 1 - \exp \left\{ -\frac{t}{\tau^*} \right\} \right) \approx E_{kin}^{max} \frac{t}{t^*}. \quad (2.55)$$

Nach der Zeit  $\tau_i$  hat das Elektron die kinetische Energie erlangt, um durch den inelastischen Stoß mit einem Atom ein weiteres Elektron über die Bandlücke  $U_i$  zu heben:

$$U_i = E_{kin}(\tau_i) = E_{kin}^{max} \frac{\tau_i}{\tau^*}. \quad (2.56)$$

Dieser Ausdruck nimmt unter Verwendung von 2.26, 2.27 und 2.41 folgende Form an:

$$\tau_i^{-1} = \sigma \frac{I}{U_i} \quad (2.57)$$

und die Ionisierungsrate kann über

$$W_{Av} = \frac{\rho}{\tau_i} = \frac{\sigma}{U_i} \rho I \quad (2.58)$$

berechnet werden.

### 2.2.3 Anregungszustände und Relaxationsprozesse

Die Untersuchung der Relaxationsprozesse von Leitungsbandelektronen in Dielektrika ist ein weites Forschungsfeld, und soll daher nur für das in dieser Arbeit relevante Zeitregime von wenigen 100 fs nach dem Puls und für langlebige Anregungszustände angeschnitten werden. Grundsätzlich zählen zu den wichtigsten Verlustkanälen für Leitungsbandelektronen die sog. Primärdefekte *self-trapped excitons* (STEs) und F-H-Paare [47]. Als STEs werden solche Anregungszustände bezeichnet, deren Energieniveaus nur geringfügig unter dem Leitungsband bzw. oberhalb des Valenzbandes liegen und im Allgemeinen nur eine kurze Lebensdauer haben. Für Quarz konnten Deformationen von Sauerstoff- und Siliziumatomen in der Kristallstruktur als Auslöser für STEs durch Simulationsrechnungen identifiziert werden [91]. Dagegen zerfallen F-H-Paare, die z. B. durch unterbrochene Bindungen und Fehlstellen gebildet werden, mit einer größeren Zeitkonstanten und relaxieren bei Raumtemperatur in den Grundzustand oder bilden stabile F-Zentren. Einen weiteren Verlustkanal für Leitungsbandelektronen stellt die spontane Emission dar, deren Zeitkonstante im Bereich mehrerer 100 ps bis wenige ns liegt [88]. Jeder der genannten Defekte kann zur Absorption beitragen und somit als Quelle für Ladungsträger dienen. Dieser zusätzliche Anteil soll aber in der hier dargestellten Modellierung vernachlässigt werden.

Die bei der Relaxation über primäre Defekte zu beobachtenden Zeitkonstanten sind wesentlich von den in dem Dielektrikum möglichen Rekombinationkanälen abhängig. So kann beispielsweise für Quarz nach der Elektronenanregung ein schneller Relaxationsprozess ( $\tau_r \approx 250$  fs [84] bzw.  $\tau_r \approx 150$  fs [9, 63]) zur Bildung von F-H-Paaren (*nonbridging oxygen*

*hole centers* und Silizium E'-Zentren) führen. Für den Fall dielektrischer Schichten wurden in *pump-probe*-Experimenten ebenfalls schnelle Relaxationsprozesse für Quarz ( $\tau_r \approx 220$  fs), Tantaloxid ( $\tau_r \approx 160$  fs [45] bzw. 520 fs [69]) und Titanoxid ( $\tau_r \approx 200$  fs) [69] festgestellt. Dagegen finden bei Aluminiumoxid ( $\tau_r \approx 100$  ps) und Magnesiumoxid ( $\tau_r \approx 50$  ps) wesentlich langsamere Relaxationsprozesse statt [77].

Für die Abschätzung der Elektronendichte wird also im Folgenden ebenfalls von einer Relaxationszeitkonstanten von  $\tau_r = 150$  fs ausgegangen, womit für die Relaxationsrate folgender Ausdruck angegeben werden kann:

$$W_r = \frac{\rho}{\tau_r}. \quad (2.59)$$

Die Bildung von stabilen Defektzuständen wird als Ursache für das Auftreten von Akkumulationseffekten bei der Mehrpuls-Zerstörschwellenmessung diskutiert. Demnach könnten langlebige Defektzustände durch nachfolgende Pulse neu angeregt werden und besonders in der Aufbauphase der Elektronendichte auf der ansteigenden Flanke des Pulses zusätzliche Ladungsträger bereitstellen [45]. Des Weiteren kann die Erzeugung von stabilen F-Zentren mechanischen Stress im Dielektrikum auslösen [47]. So konnte bei der Bildung von Frenkel-Defekten z. B. in KBr eine Volumenvergrößerung festgestellt werden. Wenn sich F-Zentren im Bereich des Fokus akkumulieren, kann sich folglich ein Stress gegenüber dem umgebenden, nicht bestrahlten Dielektrikum ergeben. Dieser Einfluss wurde durch ein Experiment verifiziert, in dem die Bildung von F-Zentren durch niedrige Umgebungstemperaturen (bis 55 K) unterdrückt wurde und eine wesentlich höhere Mehrpuls-Zerstörschwelle ermittelt werden konnte. Zu einem analogen Ergebnis gelangte Guizard et al. [32], der Quarzsubstrate bzgl. der die Absorption von Farbzentren bei 10 K und 300 K untersuchte und ebenfalls eine deutlich verminderte Bildung von permanenten Farbzentren bei niedriger Proben temperatur nachwies. Das Auftreten von Akkumulation im Bereich ultrakurzer Laserpulse wird nach der Darstellung eigener Messergebnisse in Abschnitt 3.4.5 diskutiert.

## 2.3 Numerische Modellierung der Wechselwirkung

### 2.3.1 Berechnung der Elektronendichte in Quarz

Nachdem alle wesentlichen Anteile zur Dynamik der Elektronendichte bei der Wechselwirkung von ultrakurzen Laserpulsen mit Dielektrika quantitativ abgeschätzt wurden, soll in diesem Abschnitt die Elektronendichte in Quarz unter Berücksichtigung der für Zerstörschwellenmessungen üblichen Testparameter berechnet werden. Im Folgenden wird von einem typischen Wert für die Schwelle von Oberflächenzerstörungen bei Quarzsubstraten von

$H \approx 2,8 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  [57] ( $\lambda_0 \approx 800 \text{ nm}, \tau_p = 100 \text{ fs}$ ) ausgegangen<sup>7</sup>. Wird weiterhin ein Gauß-förmiges zeitliches Leistungsdichteprofil zu Grunde gelegt [21]:

$$I(t) = I_0 \exp \left\{ -4 \ln(2) \frac{t^2}{\tau_p^2} \right\}, \quad (2.60)$$

ist die Leistungsdichte am Scheitelpunkt bei einer Energiedichte  $H$

$$I_0 = H \cdot \frac{2\sqrt{\ln(2)}}{\tau_p\sqrt{\pi}} = 26 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}, \quad (2.61)$$

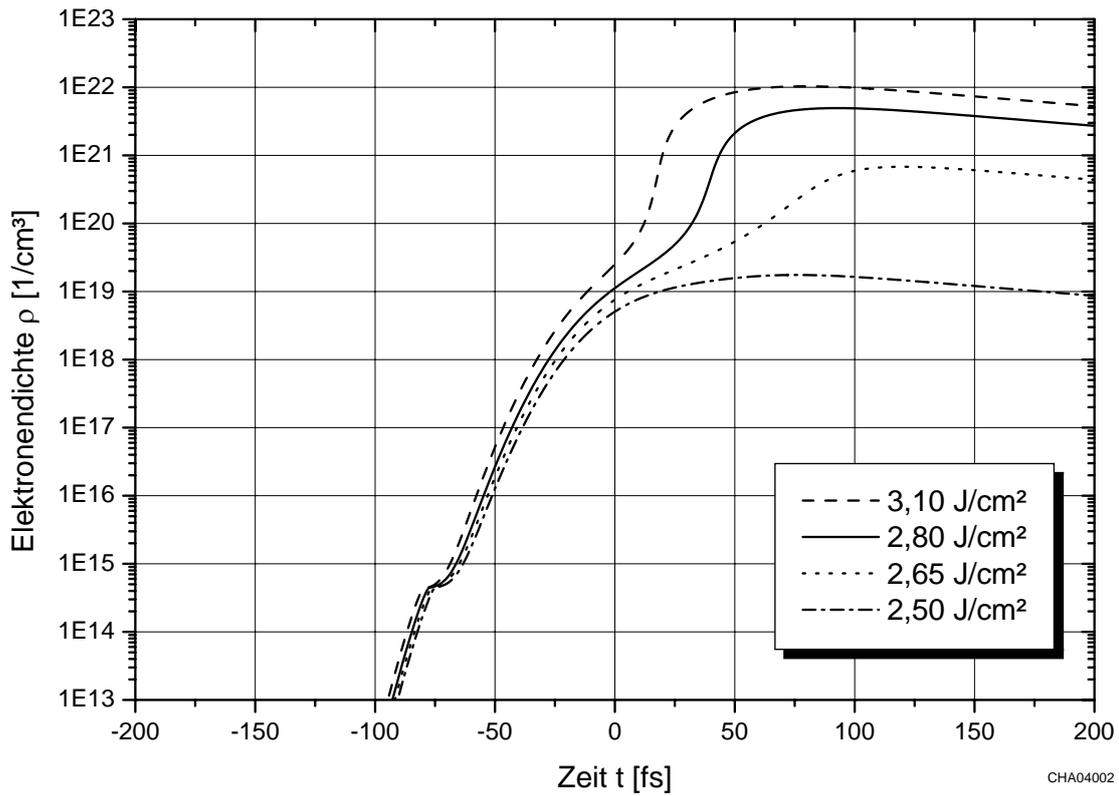
da Energie- und Leistungsdichte über  $H = \int I(t)dt = I_0 \int e^{-a^2t^2} dt = I_0 \frac{\sqrt{\pi}}{a}$  [18] verknüpft sind. Wie bereits in Abbildung 2.2 dargestellt, lautet für Quarz die Übergangs-Leistungsdichte  $I_{tr} = 35 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  und der Maximalwert des Keldysh-Parameters  $\gamma = 1,2$ . Für die Berechnung der Ionisierungsrate ist mithin die exakte Keldysh-Formel zu verwenden. Des Weiteren ist der Absorptionsquerschnitt (Gl. 2.26) der Avalanche-Ionisation über die Kollisionszeit der Elektronen im Plasma  $\tau_c$  (Gl. 2.34) ebenfalls von  $\rho$  abhängig. Dies erschwert die Angabe einer analytischen Lösung der resultierenden Ratengleichung, die sich aus den genannten Einzelbeiträgen 2.36, 2.58 und 2.59 wie folgt zusammensetzt:

$$\frac{\partial \rho}{\partial t} = W_{PI}(I) + \frac{\sigma(\rho)}{U_i} \rho I - \frac{\rho}{\tau_r}. \quad (2.62)$$

Daher wird in dieser Arbeit ein numerisches Verfahren zur Berechnung der Elektronendichte eingesetzt: Ausgehend von einer initialen Elektronendichte  $\rho(t_0)$  kann der Zuwachs an Elektronen in einem kleinen Zeitintervall  $\Delta t$  durch Photo- und Avalanche-Ionisation bzw. die Abnahme durch Rekombination berechnet werden. Hierfür wird die zu diesem Zeitpunkt  $t_1 = \Delta t + t_0$  vorherrschende Leistungsdichte  $I(t_1)$  zu Grunde gelegt. Im nächsten Berechnungsschritt für  $t_2 = \Delta t + t_1$  wird die so berechnete Elektronendichte  $\rho(t_1)$  als Ausgangspunkt für die nächsten Zu- und Abgänge an Elektronen verwendet. Durch schrittweise Addition der Beiträge über den relevanten Zeitbereich kann die Elektronendichte ermittelt werden. Wie bereits bei der Abschätzung der Photoionisation wird von einer reduzierten Elektronenmasse  $m = 0,635 m_e$  ausgegangen, sowie eine Rekombinationszeit von  $\tau_r = 150 \text{ fs}$  gewählt. Der noch fehlende Parameter der mittleren kinetischen Energie der Elektronen im Plasma, der für die Bestimmung der Kollisionszeit (Gl. 2.34) notwendig ist, wird mit  $E_{kin} = 0,1 U_i$  abgeschätzt<sup>8</sup>. Die hieraus resultierende Kollisionszeit  $\tau_c$  verringert sich hierbei in einem Elektronendichtebereich von  $10^{20} - 10^{21} \text{ cm}^{-3}$  von 1,8 fs auf 0,18 fs, und umfasst somit den Wert von 0,67 fs, der für ein Modell mit konstantem  $\tau_c$  verwendet wurde [63].

<sup>7</sup>Dieser Wert kann durch lineare Extrapolation eigener Mehrpuls-Zerstörschwellenmessungen auf den Einzelschusswert [93], bzw. aus Einzelpuls-Schwelle von Ionenstrahl-gesputterten SiO<sub>2</sub>-Schichten (s. Abbildung 3.15) bestätigt werden

<sup>8</sup>Dieser Wert folgt aus einer groben theoretisch Abschätzung und ist nicht durch konkrete Messwerte verifiziert [103].



**Abbildung 2.3:** Berechneter zeitlicher Verlauf der Elektronendichte  $\rho$  in Quarz ( $n_0 = 1,45$ ) für verschiedene Energiedichten  $H$  ( $\tau = 100$  fs,  $\lambda_0 = 800$  nm, Puls zentriert um  $t = 0$  s), kritische Elektronendichte  $\rho_c = 1,1 \cdot 10^{21}$  cm $^{-3}$ .

Der zeitliche Verlauf der Elektronendichte bei der Einstrahlung eines Pulses mit der in Gl. 2.60 beschriebenen zeitlichen Pulsform ist für verschiedene Energiedichten in Abbildung 2.3 dargestellt. In dieser Abbildung ist zu erkennen, dass relativ unabhängig von der Energiedichte die Elektronendichte im Bereich der ansteigenden Flanke des Pulses anwächst, bis im Bereich der Pulsspitze eine Elektronendichte von ca.  $10^{19}$  cm $^{-3}$  erreicht wird. Weiterhin ist bei  $t \approx -70$  fs das Auftreten einer Stufe festzustellen, die von dem Übergang der 6- hin zur 7-Photonenionisation herrührt, welcher, wie in Abbildung 2.2 erkennbar, in Quarz bei einer Leistungsdichte von  $I \approx 5 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  stattfindet. Nach Erreichen der Pulsspitze ist eine weitere Stufe zu erkennen, deren Höhe sensitiv von der Energiedichte abhängt. Die Erzeugung von Elektronen durch Avalanche-Ionisation wird offenbar schwellenartig von der Elektronendichte im Bereich der Pulsspitze beeinflusst. Während für eine um 10% niedrigere Energiedichte kein stufenartiger Anstieg auftritt und die Elektronendichte bei etwa  $10^{19}$  cm $^{-3}$  verbleibt, erhöht sie sich bereits auf ca.  $7 \cdot 10^{20}$  cm $^{-3}$  für einen um 5% unter der Zerstörschwelle liegenden Wert. Bei Erreichen der Zerstörschwelle übersteigt die Elektronendichte mit ca.  $5 \cdot 10^{21}$  cm $^{-3}$  deutlich die kritische Dichte  $\rho_c = 1,1 \cdot 10^{21}$  cm $^{-3}$ . Eine weitere Erhöhung um 10% lässt die Elektronendichte auf über  $10^{22}$  cm $^{-3}$  anwachsen. An das jeweilige Maximum schließt sich ein

Bereich abfallender Elektronendichte an, der durch die Relaxationszeit  $\tau_r$  bestimmt wird. Weiterhin ist in Simulationsrechnungen von Stuart et al. [98] sowie unter Berücksichtigung von Rekombinationen von Apostolova et al. [7] ebenfalls eine Steigerung der Elektronendichte nach Erreichen der Pulsspitze von deutlich mehr als einer Größenordnung ermittelt worden.

Zunächst lässt sich feststellen, dass das in diesem Abschnitt beschriebene Modell offensichtlich gut geeignet ist, das Einsetzen von Zerstörung bei Erreichen einer Schwellen-Energiedichte (insbesondere im Hinblick auf die typischen Fehlermargen bei Zerstörschwellenmessungen von etwa 20%) am Beispiel von Quarz zu reproduzieren. Es sei darauf hingewiesen, dass die Modellparameter nicht an experimentelle Daten des Zerstörschwellentests angepasst werden, sondern aus anderen Quellen stammen.

Um dennoch die Sensitivität des Modells bezüglich dieser Parameter abschätzen zu können, wurde die theoretische Zerstörschwelle, d. h. die Energiedichte zur Erlangung der kritischen Elektronendichte, für variierte Modellparameter ermittelt: Während für den ursprünglichen Parametersatz ein Wert von  $2,65 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  ermittelt werden kann, lässt eine reduzierte Masse von  $m = 0,5 m_e$  (in [57]) die Zerstörschwelle auf  $2,17 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  sinken und eine Abschätzung  $m = m_e$  diesen Wert auf  $3,95 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  (in [45]) ansteigen. Die reduzierte Masse ist folglich eine Größe, deren genaue Kenntnis für das Modell von großer Wichtigkeit ist. Ebenfalls einen großen Einfluss auf die Zerstörschwelle hat die mittlere kinetische Energie der Elektronen: Bei einer Energie von  $E_{kin} = 0,03 U_i$  sinkt die Zerstörschwelle auf  $2,30 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ , wogegen ein Wert von  $E_{kin} = 0,3 U_i$  mit einer Schwelle von  $3,44 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  verbunden ist. Im Gegensatz dazu ist das Modell sehr tolerant gegenüber veränderten Relaxationszeiten: Während die Schwelle für  $\tau_r = 100 \text{ fs}$  auf  $2,71 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  steigt, ergibt sich für  $\tau_r = 250 \text{ fs}$  (in [84]) oder  $\tau_r = 500 \text{ fs}$  (in [69]) lediglich eine Erniedrigung auf  $2,63 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  bzw.  $2,60 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ .

Die vorgestellten Betrachtungen legen nahe, dass das aus vielen Publikationen bekannte deterministische Zerstörungsverhalten von Dielektrika im fs-Bereich offensichtlich durch das besondere Zusammenwirken von Photo- und Avalanche-Ionisation in Form des schwellenartigen Ansteigens der Avalanche-Ionisation hervorgerufen wird: Liegt die Energiedichte nur wenige Prozent unterhalb der Schwelle, so ist die durch den Puls hervorgerufene Elektronendichte um 1-2 Größenordnungen unter der kritischen Dichte, deren Erreichen mit dem Einsetzen laserinduzierter Zerstörung in Zusammenhang gebracht wird.

### 2.3.2 Brechungsindexvariation bei Einwirkung ultrakurzer Pulse

Im Folgenden sollen die nichtlinearen Einflüsse des Kerr-Effektes und des Plasmas auf den komplexen Brechungsindex und damit auf das Übertragungsverhalten und die Absorption von Dielektrika am Beispiel von Quarz diskutiert werden. Die nichtlinearen Anteile zum Realteil des Brechungsindex aus Gl. 2.29 sowie der Absorptionskoeffizient aus Gl. 2.28

seien hier noch einmal wiedergegeben:

$$n_0 \Delta n = n_0 (\Delta n_K + \text{Re}(\Delta \tilde{n}_P)) = \frac{3}{8} \frac{\chi^{(3)}(\omega_0)}{n_0} |A(t, z)|^2 - \frac{\omega_p^2 \tau_c^2}{2n_0(1 + \omega_0^2 \tau_c^2)} \quad (2.63)$$

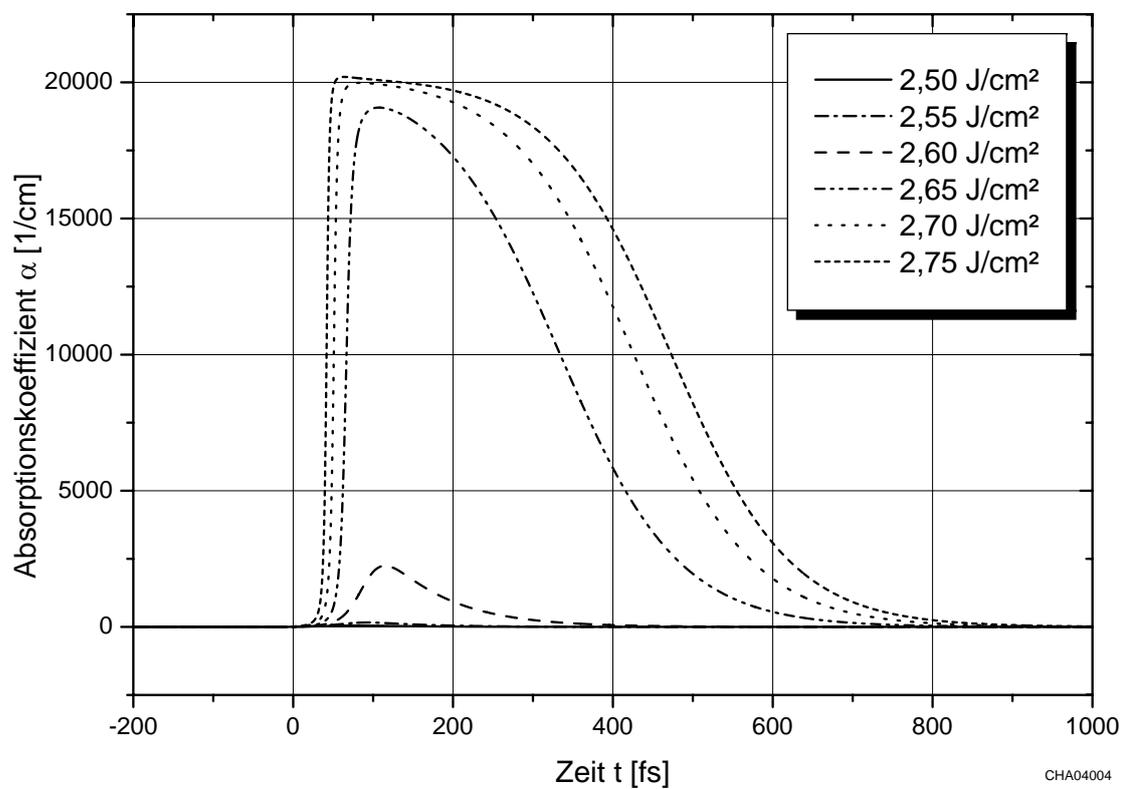
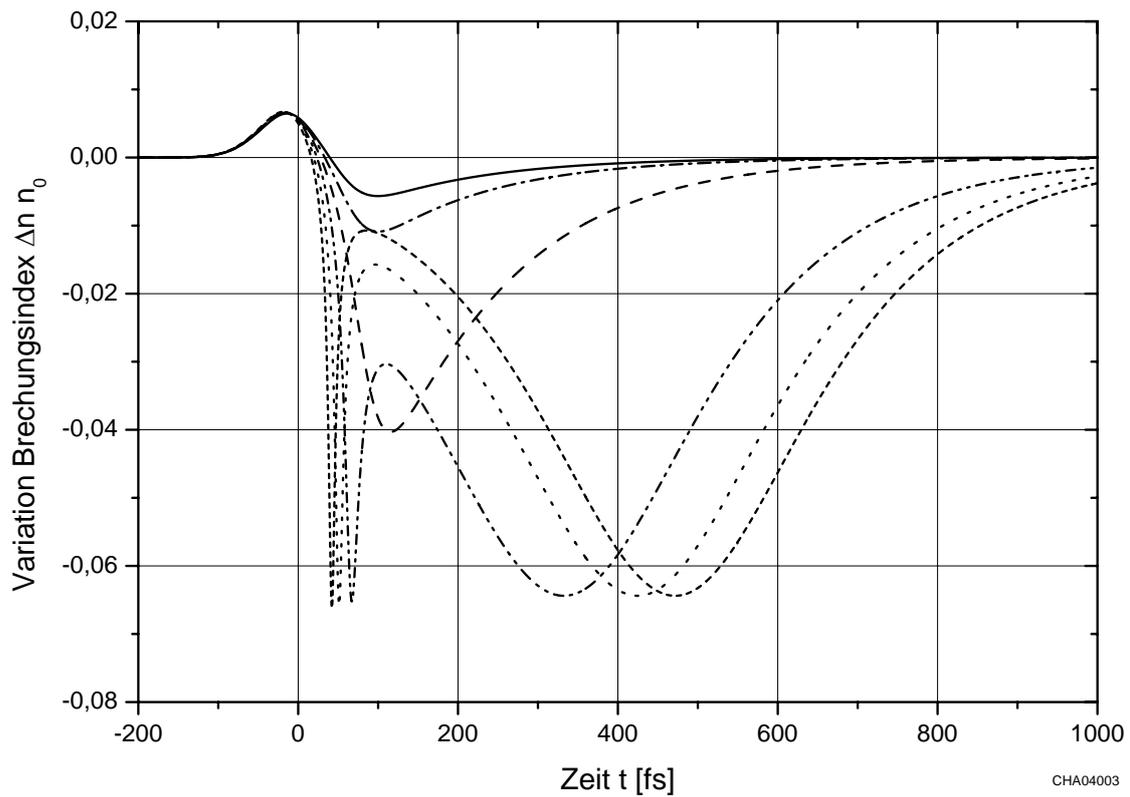
$$\alpha = \sigma \rho. \quad (2.64)$$

Bezüglich der Änderung des reellen Brechungsindex ist zu erkennen, dass die beiden Terme mit entgegengesetztem Vorzeichen beitragen: Während der Kerr-Effekt den Brechungsindex erhöht, wirkt die plasmainduzierte Brechungsindexvariation in negativer Richtung. Welcher dieser Anteile überwiegt, hängt wesentlich von der Feldstärke und von der Elektronendichte ab. Wie bereits im vorigen Abschnitt beschrieben, variieren sowohl die Feldstärke des Laserpulses als auch die Elektronendichte erheblich, wenn ein ultrakurzer Pulse mit dem Dielektrikum wechselwirkt.

Zur quantitativen Beschreibung des Verhaltens von nichtlinearer Brechungsindexänderung und Absorption können die im vorigen Abschnitt beschriebenen numerischen Methoden zur Berechnung der Leistungs- und Elektronendichte verwendet werden. Während die vom Kerr-Effekt ausgelöste Variation über  $\bar{n}_{2,K} I(t, z)$  mit  $\bar{n}_{2,K} = 3,2 \cdot 10^{-16} \frac{\text{cm}^2}{\text{W}}$  [1] beiträgt, wird  $\text{Re}(\Delta \tilde{n}_P)$  durch Einsetzen von  $\rho$  in  $\omega_p$  und  $\tau_c$  berechnet. Für die folgenden Berechnungen zur Variation des reellen Brechungsindex und der Absorption von Quarz in der Nähe der Zerstörschwelle, deren Resultate in Abbildung 2.4 dargestellt sind, wurden die bisherigen Modellparameter beibehalten ( $m = 0,635 m_e$ ;  $E_{kin} = 0,1 U_i$ ;  $\tau_r = 150$  fs).

Die berechneten zeitlichen Verläufe von reellem Brechungsindex und Absorptionskoeffizienten zeigen erhebliche Unterschiede, wenn die Energiedichte in einem engen Bereich um die Zerstörschwelle herum variiert wird. Im oberen Diagramm von Abbildung 2.4 ist zu erkennen, dass bis zum Zeitpunkt der Pulsspitze der Kerr-Effekt den Brechungsindex für jede der gewählten Energiedichten annähernd gleich ansteigen lässt. Dies ist auf die lediglich geringe Änderung der Leistungsdichte in dem gewählten Energiedichtebereich zurückzuführen. Der Einfluss des Plasmas auf den Brechungsindex ist demgegenüber wesentlich gravierender. Während für  $H = 2,5 - 2,55 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  eine maximale negative Änderung von etwa  $-0,01$  bei  $t \approx 100$  fs erzeugt wird, steigt diese Änderung für  $2,6 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  bereits auf  $-0,04$  an. Für den Absorptionskoeffizienten ist ebenfalls für  $2,6 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  eine signifikante Steigerung festzustellen. Wird die Energiedichte auf  $2,65 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  gesteigert, kehrt sich die Tendenz bei  $t \approx 100$  fs um, d. h. die negative Änderung des reellen Brechungsindex sinkt, wenn die Elektronendichte in den Bereich des kritischen Wertes gelangt. Dieses Verhalten geht einher mit einer erheblichen Steigerung des Absorptionskoeffizienten, der sich für diese Energiedichte bereits in die Nähe des Sättigungswertes von  $\alpha \approx 2 \cdot 10^4 \frac{1}{\text{cm}}$  bewegt.

Die beschriebenen Kalkulationen stehen für Energiedichten unterhalb der Zerstörschwelle im Einklang mit den Ergebnissen von *pump-probe*-Experimenten [9, 63]. In diesen Experimenten konnte für Quarz bereits bei relativ geringen Leistungsdichten eine deutliche positive



**Abbildung 2.4:** Berechnete Variation des reellen Brechungsindex  $n_0\Delta n$  und des Absorptionskoeffizienten  $\alpha$  in Quarz ( $n_0 = 1,45$ ) für verschiedene Energiedichten  $H$  ( $\tau = 100$  fs,  $\lambda_0 = 800$  nm, Puls zentriert um  $t = 0$  s).

Phasenverschiebung in der ansteigenden Flanke bis kurz nach Puls gemessen werden, der sich sofort ein Bereich mit negativer Phasenverschiebung anschließt. Dabei ist die maximale Höhe der negativen Phasenverschiebung für  $4 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  um einen Faktor 5 größer als für  $3 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ , wogegen sich der Maximalwert in positiver Richtung nur etwa verdoppelt. Diese Ergebnisse verdeutlichen den entscheidenden Einfluss des Plasmas auf den komplexen Brechungsindex und somit auf das Übertragungsverhalten und die Absorption von Quarz.

Nachdem die zeitlich veränderlichen Verläufe des reellen Brechungsindex und des Absorptionskoeffizienten bekannt sind, kann nunmehr geklärt werden, wie sich die geänderten optischen Parameter auf die Reflexion und Absorption des auslösenden ultrakurzen Pulses auswirken. Der Reflexionsgrad  $R$  einer Grenzfläche unter Berücksichtigung der nichtlinearen Brechungsindexanteile ist gegeben durch [61]:

$$R = \left( \frac{n-1}{n+1} \right)^2 = \left( \frac{n_0(1+\Delta n)-1}{n_0(1+\Delta n)+1} \right)^2. \quad (2.65)$$

Sowohl der Reflexionsgrad als auch die Leistungsdichte ändern sich zeitlich, weshalb der Reflexionsgrad mit dem zeitlichen Pulsprofil gewichtet werden muss:

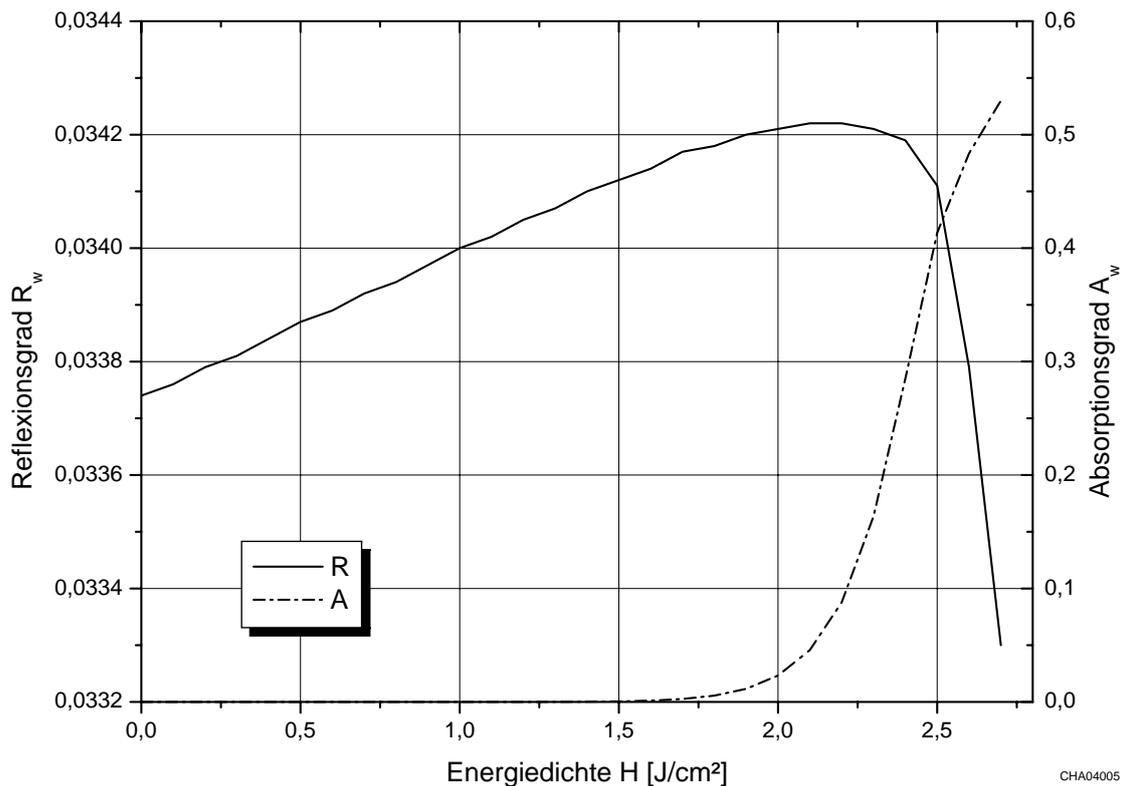
$$R_w = \frac{\int I(t)R(t)dt}{\int I(t)dt} \approx \frac{\sum_i I(t_i)R(t_i)}{\sum_i I(t_i)}. \quad (2.66)$$

Die Zeitpunkte  $t_i$ , zu denen Leistungsdichte und Reflexionsgrad bestimmt werden, müssen für die Summationsnäherung, d. h. der Approximation der Integration durch eine Summation, eng beieinander liegen.

Analog zur Bestimmung des Reflexionsgrades kann die Absorption  $A$  eines Laserpulses bei der Durchstrahlung eines Quarzsubstrates der Dicke  $d$  aus dem Absorptionskoeffizienten  $\alpha$  ermittelt werden. Unter der Annahme, dass  $\alpha$  über die Propagation annähernd konstant bleibt, gilt nach dem Lambertschen Absorptionsgesetz  $A = 1 - e^{-\alpha d}$  für die gewichtete Absorption:

$$A_w \approx \frac{\sum_i I(t_i)A(t_i)}{\sum_i I(t_i)}. \quad (2.67)$$

In Abbildung 2.5 ist die über Gl. 2.66 berechnete, gemittelte Reflexion einer Grenzfläche sowie die Absorption, die ein ultrakurzer Puls mit  $\tau = 100$  fs und  $\lambda_0 = 800$  nm nach Gl. 2.67 bei der Propagation durch ein Quarzsubstrat der Dicke 1 mm erfährt, in Abhängigkeit der Energiedichte  $H$  dargestellt. Bezüglich des Reflexionsgrades ist ein annähernd linearer Anstieg für Energiedichte bis ca.  $H = 1,8 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  in Folge des Kerr-Effektes zu verzeichnen. Für größere Energiedichten führt der negative Einfluss der signifikant erhöhten Elektronendichte dazu, dass der Reflexionsgrad bei  $H = 2,2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  einen Maximalwert durchläuft. Bei der weiteren Zunahme hin zur Zerstörschwelle fällt der Reflexionsgrad deutlich und unterschreitet sogar den Wert der unbestrahlten Oberfläche. Die Absorption ist bis  $H = 1,5 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  noch



**Abbildung 2.5:** Kalkulation des gewichteten Reflexionsgrades einer Vakuum/Quarz-Grenzfläche sowie des gewichteten Absorptionsgrades eines Quarzsubstrates (Dicke 1 mm) in Abhängigkeit der Energiedichte  $H$ .

kleiner als 1000 ppm, erhöht sich aber rapide mit der zunehmenden Elektronendichte im Dielektrikum.

Diese Modellrechnung für Quarz verdeutlicht den Einfluss, den der Kerr-Effekt bzw. die erzeugte Elektronendichte bereits erheblich unterhalb der kritischen Dichte auf den Reflexions- und Absorptionsgrad ausüben kann. Während im vorigen Abschnitt das Auftreten von laserinduzierter Zerstörung mit dem Einsetzen der Avalanche-Ionisation knapp unterhalb des Schwellwertes in Zusammenhang gebracht werden konnte, wird der Reflexionsgrad deutlich unter der Schwelle durch den Kerr-Effekt erhöht, bzw. durch das Plasma erniedrig. Hinsichtlich des Absorptionsgrades führten offenbar die allein durch die Photoionisation erzeugten Elektronen bereits zu einer gesteigerten Absorption. Obwohl die modellhafte Annahme einer homogen verteilten Plasmadichte entlang des Propagationsweges wahrscheinlich zu einer Überschätzung des Absorptionsgrads führt, könnte die Erwärmung der optischen Komponente unterhalb der Zerstörschwelle, neben langlebigen Anregungszuständen (s. Abschn. 2.2.3), zu dem Auftreten von Akkumulationseffekten und damit einem Mehrpuls-Zerstörungsverhalten führen.

## 2.4 Zusammenfassung der theoretischen Modellierung

In diesem Kapitel wurden die Wechselwirkungsmechanismen von ultrakurzen Laserpulsen mit Dielektrika erläutert, die für die Veränderung der optischen Eigenschaften von optischen Komponenten in Bezug auf Zerstörschwelle, Absorption und Übertragungsverhalten wesentlich sind. Unter Einbeziehung des Kerr-Effekts ist eine Herleitung der Wellengleichung erfolgt, aus der die nichtlineare Änderung des Brechungsindex ersichtlich wurde. Diese Wellengleichung wurde um den Einfluss der inversen Bremsstrahlung erweitert, welcher sich in einer Brechungsindexänderung sowohl für den realen als auch für den imaginären Teil äußerte. Hieraus konnte ermittelt werden, dass der Realteil des Brechungsindex vom Kerr-Effekt in positiver und von der inversen Bremsstrahlung in negativer Richtung beeinflusst wird. Mit Hilfe des zeitlichen Pulsprofils gelang eine Gewichtung des zeitlichen Verlaufs von reellem Brechungsindex und Absorptionskoeffizient. Hieraus konnten Approximationen für die Reflexion und Absorption eines Quarzsubstrates in Abhängigkeit der Energiedichte eines ultrakurzen Pulses berechnet werden.

Des Weiteren wurde die Ratengleichung zur Entwicklung der Elektronendichte im Leitungsband aufgestellt. Hierzu wurde die Photoionisation nach Keldysh, die Avalanche-Ionisation sowie die Rekombination durch Bildung von *self-trapped excitons* berücksichtigt. Am Beispiel von Quarz wurde die Ratengleichung mit Hilfe publizierter Modellparameter numerisch gelöst. Für Energiedichten im Bereich der Zerstörschwelle konnte ein sprunghafter Anstieg der Elektronendichte bis über einen Wert von  $10^{21} \text{ cm}^{-3}$  ermittelt werden und steht somit in Einklang mit der weithin bekannten Beobachtung, dass das Einsetzen von laserinduzierter Zerstörung im Bereich ultrakurzer Laserpulse in einem eng begrenzten Energiedichtebereich stattfindet.

# Kapitel 3

## Messung der laserinduzierten Zerstörschwelle

Eine wesentliche Voraussetzung für die Verwendung von Hochleistungslasern in der Materialbearbeitung ist die Erzeugung hinreichend hoher Energie- bzw. Leistungsdichten. Eine weitere Erhöhung der Leistungsfähigkeit dieser Systeme ist hauptsächlich durch die Laserstrahlresistenz der verwendeten Laserkomponenten limitiert. Daher kommt der Schwelle für laserinduzierte Zerstörung eine zentrale Bedeutung im Bereich der Entwicklung von Hochleistungslasern zu. Die technologische Evolution bei der Steigerung der Leistungsfestigkeit von Laserkomponenten spiegelt sich schwerpunktmäßig in den Veröffentlichungen des seit 1968 jährlich stattfindenden Boulder Damage Symposiums wider. Erst durch die dort präsentierten, extensiven Forschungsarbeiten und den internationalen Diskurs wurde die Entwicklung eines Standards zur Messung der Zerstörschwelle ermöglicht.

Das Standardverfahren zur Messung der Zerstörschwelle gemäß der Normenreihe ISO 11254 [38–40] wird im Folgenden kurz erläutert. Hieran schließt sich die Vorstellung der optimierten Mess- und Auswertungsprozeduren an, deren Motivation die zielgerichtete und automatisierte Zerstörschwellenmessung ist. Auf Grund der rasanten technologischen Entwicklung praxistauglicher UKP-Lasersysteme und somit der wachsenden Nachfrage nach leistungsfeisten Laserkomponenten muss die Messvorschrift zur Zerstörschwellenmessung bezüglich ihrer Anwendbarkeit in diesem Pulsdauerbereich evaluiert werden. Daher wird im Folgenden die experimentelle Umsetzung des Normverfahrens mit einer UKP-Strahlquelle detailliert dargestellt. Besonderes Augenmerk wird hierbei auf die notwendigen Adaptionen und sinnvollen Optimierungen des Messstandards gelegt. Des Weiteren werden Ergebnisse zur Untersuchung typischer UKP-Komponenten vorgestellt sowie der Einfluss wichtiger Prüfparameter demonstriert. Abschließend werden die Ergebnisse mit den Modellvorstellungen verglichen sowie die Anwendbarkeit und notwendige Adaptionen der ISO 11254 für den Bereich ultrakurzer Pulse diskutiert.

### 3.1 Zerstörschwellenmessung nach ISO 11254

#### 3.1.1 Anwendungsbereiche der Norm

Das in der Norm ISO 11254 beschriebene Prinzip zur Messung der laserinduzierten Zerstörschwelle ist für die große Bandbreite an unterschiedlichen Lasersystemen identisch. Als Zerstörung wird dabei jede permanente und durch Laserstrahlung induzierte Modifikation bezeichnet, die durch die Inspektion mittels Nomarski-Mikroskopie identifizierbar ist. Als Zerstörschwelle wird die größte Energie- bzw. Leistungsdichte bezeichnet, bei der die extrapolierte Wahrscheinlichkeit für das Auftreten von laserinduzierter Schädigung Null ist. Die Vorschrift zur Durchführung von Zerstörschwellenmessungen ist in drei Teile untergliedert. Der erste Teil beschreibt das Messverfahren unter Verwendung von Einzelpulsen bzw. kontinuierlicher Laserstrahlung [38]. Diese sogenannte 1 on 1-Messung, deren Entwicklung mit der Evolution gütegeschalteter Impulslaser hoher Pulsenergie einherging, wurde bereits zu einem frühen Zeitpunkt für die Untersuchung von grundlegenden Zerstörmechanismen eingesetzt und ist in Wissenschaft und Industrie als Qualifizierungsprozedur etabliert.

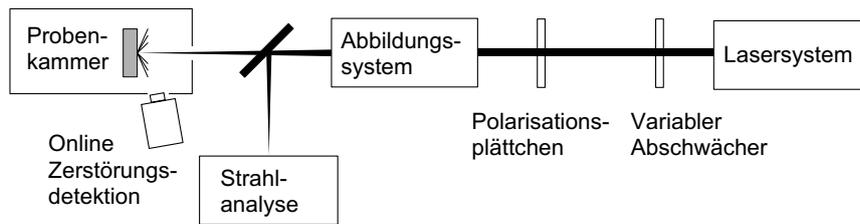
Mit der Steigerung von Pulswiederholraten bei modernen Festkörper- und Gaslasersystemen stellen Modifikationen in Laserkomponenten, die sich erst nach einer Beaufschlagung mit  $10^8$  und mehr Pulsen ergeben, ein beträchtliches Problem für die Abschätzung der Langzeitstabilität dieser Optiken dar. Um die Abnahme der Zerstörschwelle mit wachsender Pulszahl zu quantifizieren, ist die Norm um einen zweiten Teil (ISO 11254-2 [39]), der sich mit der praxisrelevanteren Mehrpuls-Zerstörschwellenmessung befasst, erweitert worden. Bei der mit S on 1 bezeichneten Zerstörschwellenmessung wird ein Prüfort mit einer Anzahl von S Pulsen gleicher Energiedichte bestrahlt.

Die Untersuchung der Einzelpuls- und Mehrpuls-Zerstörschwelle sind naturgemäß destruktive Prüfverfahren und können daher nur eine Aussage über die Strahlungsfestigkeit einer Vergleichsoptik bieten. Der direkten Zertifizierung der Leistungsbeständigkeit einer Laserkomponente unter Verwendung eines zerstörungsfreien Verfahrens ist durch einen Normentwurf möglich, welcher den dritten Teil der Norm darstellt [40].

Auf Grund der für die Materialbearbeitung mit Ultrakurzpuls-Lasersysteme typischen Repe-titionsraten im kHz-Bereich, ist für die folgenden Betrachtungen zur Charakterisierung der Zerstörschwelle die Mehrpuls-Zerstörschwellenmessung zu preferieren.

#### 3.1.2 Konzept der Mehrpuls-Zerstörschwellenmessung

Der grundlegende Aufbau einer S on 1-Messung ist in Abbildung 3.1 dargestellt. Die von einem Lasersystem erzeugten Pulse werden mit einem variablen Abschwächer und einer Fokussiereinheit in ihrer räumlichen Energieverteilung geformt, so dass die Energiedichte für das gewählte Strahlprofil eine Zerstörung der Prüfoberfläche erlaubt. Ein Teil der Strahlung



**Abbildung 3.1:** Prinzipieller Aufbau einer Apparatur zur Messung der laserinduzierten Zerstörschwelle (aus [39]).

wird zur Strahlanalyse ausgekoppelt, um Schwankungen bzgl. der Pulsenergie, sowie des zeitlichen und räumlichen Strahlprofils zu detektieren.

Die zu untersuchende Probe befindet sich einem Halter, der über die Bewegung einer Translatoreinheit das Erreichen mehrerer Prüforte auf der Probenoberfläche ermöglicht. Für die Bestimmung der S on 1-Zerstörschwelle wird jeder Prüfort mit S Pulsen einer eingestellten Energiedichte beaufschlagt. Mit Hilfe eines online-Zerstörungsdetektors kann bei erfolgter Zerstörung die hierfür notwendige Pulszahl ermittelt werden. Durch die Variation der Energiedichte für die unterschiedlichen Prüforte wird der interessierende Übergangsbereich der Wahrscheinlichkeit von verschwindender hin zu sicherer Zerstörung untersucht. Eine abschließende Inspektion der bestrahlten Probenorte erfolgt nach der Messung mit einem Nomarski-DIK<sup>1</sup>-Mikroskop. Das Ergebnis ist ein Datensatz, in dem jedem Prüfort eine Energiedichte und eine Pulszahl sowie der Zerstörungszustand zugeordnet ist. Die Auswertung der Daten erfolgt über die Darstellung der charakteristischen Zerstörungskurve. Hierbei wird der Datensatz für jede interessierende Auswertepulszahl bezüglich des Zerstörungszustandes analysiert und als Zerstörwahrscheinlichkeitskurve dargestellt. Mit Hilfe eines geeignet gewählten Modells kann die Zerstörschwelle für jede Auswertepulszahl extrapoliert und in der charakteristischen Zerstörungskurve gegen die Pulszahl aufgetragen werden<sup>2</sup>.

### Räumliches Strahlprofil

Durch die Fokussiereinheit sollte ein definiertes räumliches Strahlprofil, vorzugsweise Gauß- oder Flat-Top-förmig, auf der Probenoberfläche erzeugt werden. Zur verbesserten Vergleichbarkeit ist für die Berechnung der Energiedichte<sup>3</sup>  $H_{max}$  die effektive Fläche  $A_{T,eff}$ , auf die

<sup>1</sup>differentielle Interferenzkontrastverstärkung

<sup>2</sup>Für die Darstellung der charakteristischen Zerstörungskurve eine umfangreiche Datenmenge notwendig. Bei Bedarf kann auch ein vereinfachter Test mit niedriger Genauigkeit auf Grundlage des Extrapolationsverfahrens durchgeführt werden. Dieses Verfahren ist ebenfalls in der Norm erläutert.

<sup>3</sup>Da im Rahmen dieser Arbeit ausschließlich gepulste Laserstrahlung für Zerstörschwellentests zum Einsatz kam, wird auf analoge Definitionen für kontinuierliche Strahlung verzichtet.

typische Pulse mit der Energie  $Q$  einwirken, heranzuziehen:

$$H_{max} = \frac{Q}{A_{T,eff}} \quad (3.1)$$

Die effektive Fläche ist vom räumlichen Strahlprofil abhängig und wird durch Messung der Energiedichte-Verteilungsfunktion  $H(x,y)$  am Ort der Probenoberfläche bestimmt.

$$A_{T,eff} = \frac{Q}{H_{max}} = \frac{\int_{-\infty}^{\infty} \int_{-\infty}^{\infty} H(x,y) dx dy}{H_{max}} \quad (3.2)$$

Für einen radialsymmetrischen Gauß-Strahl mit dem  $1/e^2$ -Strahldurchmesser  $d_{86,5}$  ergibt sich:

$$A_{T,eff} = \frac{2\pi H_{max} \int_0^{\infty} e^{-8\frac{r^2}{d_{86,5}^2}} r dr}{H_{max}} = \frac{1}{8}\pi d_{86,5}^2, \quad (3.3)$$

sowie für ein Flat-Top-Profil mit Strahldurchmesser  $d_{100}$ :

$$A_{T,eff} = \frac{H_{max}\pi d_{100}^2}{H_{max}} = \frac{1}{4}\pi d_{100}^2 \quad (3.4)$$

Der zu dieser Fläche zugehörige effektive Strahldurchmesser  $d_{T,eff}$  berechnet sich aus:

$$d_{T,eff} = 2\sqrt{\frac{A_{T,eff}}{\pi}}. \quad (3.5)$$

Somit ist der effektive Durchmesser mit dem Flat-Top-Durchmesser  $d_{100}$  identisch, jedoch bei Gauß-Profilen um einen Faktor  $\sqrt{2}$  kleiner als der  $1/e^2$ -Durchmesser.

Das Strahlanalysesystem hat testbegleitend neben dem räumlichen Strahlprofil  $H(x,y)$  und der Pulsenergie  $Q$  auch das zeitliche Pulsprofil  $P(t)$  in der Prüfebene zu ermitteln. Um eine von der expliziten Form des zeitlichen Pulsprofils  $P(t)$  unabhängige Definition der Pulsdauer zu erlangen, wird statt der Halbwertsbreite  $\tau_H$  die effektive Pulsdauer verwendet. Da die Pulsenergie dem Integral des Pulsprofils entspricht, ist die effektive Pulsdauer

$$\tau_{eff} = \frac{Q}{P_{pk}} = \frac{\int_0^{1/f_p} P(t) dt}{P_{pk}}, \quad (3.6)$$

wobei  $f_p$  der Repetitionsrate und  $P_{pk}$  der Pulsspitzenleistung entspricht.

### Anforderungen an die Aufbaukomponenten

Die Bestandteile des Messaufbaus müssen einer Reihe von Anforderungen genügen, die für die Abschätzung des Fehlers und die Aussagekraft der Resultate eine zentrale Bedeutung haben. Da bislang für den Parameterbereich ultrakurzer Laserpulse keine speziellen Vorgaben existieren, werden die in der Normvorschrift beschriebenen Mindestanforderungen zu Grunde gelegt:

**Tabelle 3.1:** Auswahl wesentlicher Anforderungen an den S on 1-Messplatz

max. Schwankung Repetitionsrate $f_p$	1%
max. Schwankung Pulsenergie $f_p$	5%
max. Schwankung eff. Fläche $A_{T,eff}$	6%
max. Schwankung Energiedichte $H_{max}$	20%
Genauigkeit Pulsenergiemessung $Q$	5%
empf. Fokusbereich auf der Probe $d_{\sigma 0}$	0,2 mm

### Auswerteverfahren

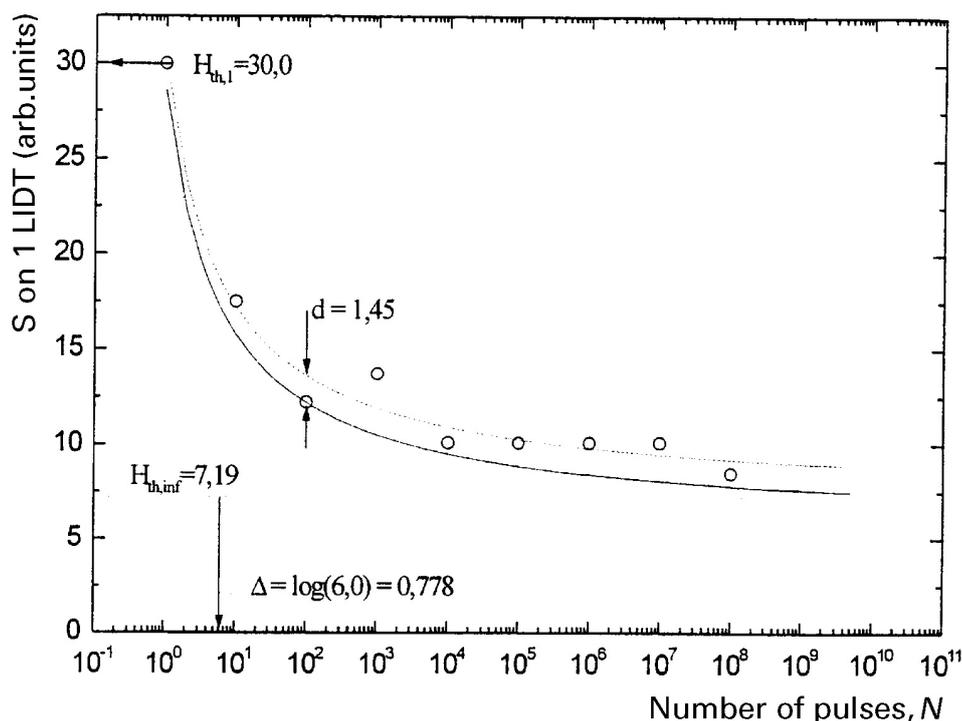
Das Ziel der S on 1-Zerstörschwellenmessung ist die Modellierung der Abnahme der Zerstörschwelle mit wachsender Pulszahl mittels der charakteristischen Zerstörungskurve. Zur Berechnung der Zerstörschwellenwerte wird der aus der Messung ermittelte Datensatz, der die applizierte Energiedichte und Pulszahl für jeden Prüfort dokumentiert, auf die jeweilige Auswertepulszahl projiziert und eine Zerstörwahrscheinlichkeitskurve ermittelt. Hierzu wird die Energiedichtenachse in Intervalle eingeteilt, die relativen Häufigkeiten für Zerstörung innerhalb der Intervalle bestimmt und eine Gerade als Modellfunktion an die Häufigkeitspunkte angepasst, um auf die 0%-Zerstörwahrscheinlichkeit zu extrapolieren. Zur Sicherstellung der statistischen Belastbarkeit sollten in jedem Intervall mindestens 10 Messwerte lokalisiert sein. Außerdem sollten ebenfalls Intervalle mit Zerstörwahrscheinlichkeit Null und Eins existieren.

Werden die Zerstörschwellenwerte in der charakteristischen Zerstörungskurve gegen die Auswertepulszahl aufgetragen, kann bei genügender Datenbasis eine empirische Anpassungsfunktion zur Extrapolation der Zerstörschwelle außerhalb des Testbereichs genutzt werden [39]:

$$H_{th}(N) = H_{th,\infty} + \frac{H_{th,1} - H_{th,\infty}}{1 + \frac{1}{\Delta} \log_{10}(N)}, \quad (3.7)$$

wobei die Einzelpuls-Zerstörschwelle  $H_{th,1}$ , die Zerstörschwelle für die Schusszahl unendlich  $H_{th,\infty}$  als Fitparameter Verwendung finden. Der dritte Fitparameter  $\Delta$  ist gleichbedeutend mit dem Logarithmus der Pulszahl, an der die Tangente im Punkt  $(1, H_{th,1})$  das Niveau  $H_{th,\infty}$  schneidet, und somit ein Maß für die Krümmung der charakteristischen Zerstörungskurve. Als Beispiel ist in Abbildung 3.2 eine charakteristische Zerstörungskurve dargestellt, an welche die in Gl. 3.7 beschriebene Funktion angepasst wurde. Offensichtlich ist die Anzahl von bis zu  $10^8$  Testpulsen für den präsentierten Zerstörschwellentest ausreichend, um ein Sättigungsverhalten zu identifizieren und mithin eine belastbare Extrapolation der Zerstörschwelle für größere Pulszahlen zu ermöglichen<sup>4</sup>.

<sup>4</sup>Die Verschiebung der Anpassungskurve stellt eine konservative Abschätzung dar, bei der alle gemessenen



**Abbildung 3.2:** Gemessene S on 1-Zerstörschwelle als Funktion der Pulszahl; gepunktete Kurve: Anpassung gemäß Gl. 3.7, durchgezogene Kurve: um  $d = 1,45$  nach unten verschobene Anpassungskurve (aus [39]).

## 3.2 Optimierung des Auswerteverfahrens

Der wesentliche Nachteil des im Standard beschriebenen Auswerteverfahrens ist die Notwendigkeit, Position und Breite der Energieintervalle in der Zerstörwahrscheinlichkeitskurve manuell durch den Operateur einzustellen. Am Beispiel von Zerstörschwellenmessungen mit CO<sub>2</sub>-Laserstrahlung wurde festgestellt, dass die Variation dieser Auswerteparameter bei akzeptablen Zerstörwahrscheinlichkeitskurven zu Abweichungen der 0%-Zerstörschwelle von über 10% führt [105]. Diese Unsicherheit rührt von dem Informationsverlust her, der sich durch die Einordnung der Energiedichtewerte in die Intervalle ergibt. Um den subjektiven Einfluss des Operateurs zu eliminieren und eine Automatisierung der Auswertung zu ermöglichen, werden für die in dieser Arbeit durchgeführten Zerstörschwellenmessungen Regressionsalgorithmen angewendet, welche die direkte Anpassung von Modellfunktionen an die binären Daten erlauben. Diese optimierten Auswerteverfahren kommen ohne eine Einteilung der Energiedichtenachse in Intervalle aus und stellen mithin die Basis für eine automatisierte Zerstörschwellenmessung dar.

---

Daten gerade oberhalb dieser Kurve lokalisiert sind.

### 3.2.1 Logistischer Regressionsalgorithmus für binäre Daten

Bei den zu betrachtenden Zerstöreexperimenten können die Ausgänge  $y_i$  von  $n$  Zufallsexperimenten  $\mathbf{Y} = (y_1, \dots, y_n)$  in erster Ordnung als stochastisch unabhängig voneinander angenommen werden, wobei die Wahrscheinlichkeit für Zerstörung  $P(y_i = 1|\mathbf{x}_i) = \pi(\mathbf{x}_i)$  sowie für Nicht-Zerstörung  $P(y_i = 0|\mathbf{x}_i) = 1 - \pi(\mathbf{x}_i)$  durch ein oder mehrere Größen  $\mathbf{x}_i$  beeinflusst werden. Zur Modellierung der binären und binomialverteilten<sup>5</sup> Daten eines solchen Zufallsexperimentes ist die logistische Regression als Standardverfahren der angewandten Statistik bekannt [33, 68]. Ausgangspunkt für die Modellierung ist die lineare Unabhängigkeit der  $p$  Einflussgrößen<sup>6</sup>  $\mathbf{x}_i = (1, x_{i1}, \dots, x_{ip})$  und somit die lineare Form der Modellfunktion

$$\eta_i = \sum_{j=0}^p x_{ij}\beta_j \quad i = 0, \dots, p \quad \text{bzw.} \quad (3.8)$$

$$\boldsymbol{\eta} = \mathbf{X}\boldsymbol{\beta},$$

wobei die zu bestimmenden Modellparameter mit  $\boldsymbol{\beta} = (\beta_0, \dots, \beta_p)$  bezeichnet werden. Um den unbeschränkten Wertebereich der Modellfunktion  $\boldsymbol{\eta}$  auf das Intervall  $[0,1]$  zu projizieren, wird die für binäre Daten häufig verwendete *logit-Transformation* genutzt

$$\eta_i = g(\pi_i) = \log \frac{\pi_i}{1 - \pi_i} = \sum_{j=0}^p x_{ij}\beta_j. \quad (3.9)$$

Die zum besten Schätzer<sup>7</sup>  $\hat{\boldsymbol{\beta}}$  gehörige Wahrscheinlichkeitsfunktion ist folglich

$$\hat{\pi}(\mathbf{x}) = \frac{\exp\{\hat{\boldsymbol{\beta}} \cdot \mathbf{x}\}}{\exp\{\hat{\boldsymbol{\beta}} \cdot \mathbf{x}\} + 1}, \quad (3.10)$$

und wird über einen Regressionsalgorithmus bestimmt. Die Strategie zur Berechnung des besten Schätzers liegt in der Maximierung der Likelihood-Funktion<sup>8</sup> bezüglich des Parametersatzes  $\boldsymbol{\beta}$ , die sich aus dem Produkt der Einzelwahrscheinlichkeiten ergibt:

$$\tilde{l}(\boldsymbol{\beta}) = \prod_{i=1}^n \pi(\mathbf{x}_i)^{y_i} (1 - \pi(\mathbf{x}_i))^{1-y_i}. \quad (3.11)$$

An Stelle dieser Gleichung wird der streng monotone Logarithmus der Likelihood-Funktion

<sup>5</sup>Das Auftreten von laserinduzierter Zerstörung ist nur im übertragenen Sinn binomialverteilt, da  $\pi$  durch die Variation der Einflussfaktoren  $\mathbf{x}_i$  nicht über die  $n$  Zufallsexperimente konstant gehalten wird [83]

<sup>6</sup>Der Index  $i = 0$  berücksichtigt einen zusätzlichen konstanten Einflussfaktor  $x_{i0} = 1$

<sup>7</sup>Auf Grund des begrenzten Stichprobenumfanges kann der Parametersatz  $\boldsymbol{\beta}$  prinzipiell nur geschätzt werden, wobei der entsprechende beste Schätzer mit einem Dach gekennzeichnet wird.

<sup>8</sup>Die bekanntere Methode der geringsten Fehlerquadrate stellt einen einfachen Spezialfall dieses allgemeinen Prinzips dar. Anschaulich drückt die Likelihood-Funktion die Wahrscheinlichkeit aus, bei einem gewählten Parametersatz  $\boldsymbol{\beta}$  den beobachteten Versuchsausgang  $\mathbf{Y}$  zu erhalten.

maximiert, wobei die logistische Funktion als Modellfunktion eingesetzt wird:

$$\begin{aligned}
 l(\boldsymbol{\beta}) &= \ln \left\{ \tilde{l}(\boldsymbol{\beta}) \right\} = \sum_{i=1}^n y_i \ln \{ \pi(\mathbf{x}_i) \} + (1 - y_i) \ln \{ 1 - \pi(\mathbf{x}_i) \} \\
 &= \sum_{i=1}^n \left( y_i \ln \left\{ \frac{\exp \eta_i}{\exp \eta_i + 1} \right\} + (1 - y_i) \ln \left\{ 1 - \frac{\exp \eta_i}{\exp \eta_i + 1} \right\} \right) \\
 &= \sum_{i=1}^n (y_i \eta_i - y_i \ln \{ \exp \eta_i + 1 \} + (1 - y_i)(-\ln \{ \exp \eta_i + 1 \})) \\
 &= \sum_{i=1}^n \left( \sum_{j=0}^p y_i x_{ij} \beta_j - \ln \left\{ \exp \left\{ \sum_{j=0}^p x_{ij} \beta_j \right\} + 1 \right\} \right).
 \end{aligned} \tag{3.12}$$

Das Nullsetzen der partiellen Ableitungen der log-Likelihood-Funktion  $l(\boldsymbol{\beta})$  nach den Parametern  $\beta_r$  liefert das folgende nichtlineare Gleichungssystem:

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial l(\boldsymbol{\beta})}{\partial \beta_r} &= \sum_{i=1}^n \left( y_i x_{ir} - \frac{\exp \left\{ \sum_{j=0}^p x_{ij} \beta_j \right\}}{\exp \left\{ \sum_{j=0}^p x_{ij} \beta_j \right\} + 1} x_{ir} \right) \\
 &= \sum_{i=1}^n (y_i x_{ir} - \pi_i x_{ir}) \stackrel{!}{=} 0
 \end{aligned} \tag{3.13}$$

bzw. in Matrixschreibweise

$$\frac{\partial l(\boldsymbol{\beta})}{\partial \boldsymbol{\beta}} = \mathbf{X}^T (\mathbf{Y} - \boldsymbol{\pi}(\mathbf{x})) \stackrel{!}{=} \mathbf{0}. \tag{3.14}$$

Zur Lösung dieses Gleichungssystems wird das *iterative weighted least squares*-Verfahren vorgeschlagen [68]. Hierzu wird eine neue Zufallsvariable  $\mathbf{Z}$  benötigt:

$$z_i = \hat{\eta}_i + (Y_i - \hat{\pi}_i) \frac{d\eta_i}{d\pi_i} \Big|_{\hat{\pi}_i}. \tag{3.15}$$

Der Kehrwert der angegebenen Ableitung, ausgewertet an der Stelle  $\hat{\pi}_i$ , kann für die logistische Funktion berechnet werden

$$\begin{aligned}
 \frac{d\pi_i}{d\eta_i} &= \frac{d}{d\eta_i} \frac{\exp \eta_i}{1 + \exp \eta_i} \\
 &= \frac{\exp \eta_i (1 + \exp \eta_i) - \exp \eta_i \exp \eta_i}{(1 + \exp \eta_i)^2} \\
 &= \frac{\exp \eta_i}{(1 + \exp \eta_i)^2} \\
 &= \pi_i (1 - \pi_i) = \sigma_i^2,
 \end{aligned} \tag{3.16}$$

da für jedes einzelne Zufallsexperiment  $i$  eine Binomialverteilung vorliegt. Damit vereinfacht sich Gl. 3.15 zu

$$z_i = \hat{\eta}_i + \frac{Y_i - \hat{\pi}_i}{\hat{\sigma}_i^2} \tag{3.17}$$

Darüber hinaus wird eine Diagonalmatrix mit Gewichtungsfaktoren eingeführt:

$$W_{ii} = \frac{\left(\frac{d\pi_i}{d\eta_i}\right)^2}{\sigma_i^2} = \sigma_i^2 \quad (3.18)$$

Es kann bewiesen werden [68], dass der beste Schätzer  $\hat{\beta}$  sowohl das Likelihood-Gleichungssystem 3.14 als auch das folgende Gleichungssystem löst:

$$\mathbf{X}^T \mathbf{W} \mathbf{X} \hat{\beta} = \mathbf{X}^T \mathbf{W} \mathbf{Z}. \quad (3.19)$$

Der Iterationsschritt ist folglich

$$\hat{\beta}_{s+1} = (\mathbf{X}^T \mathbf{W} \mathbf{X})^{-1} \mathbf{X}^T \mathbf{W} \mathbf{Z}, \quad (3.20)$$

Die Varianz  $\hat{\sigma}^2(\hat{\beta}_j)$  ist in den Diagonalelementen der Matrix<sup>9</sup>  $I^{-1} = X^T W X$  enthalten und kann ohne zusätzlichen Aufwand für die Bewertung der Anpassung genutzt werden.

Die Eleganz in der mathematische Darstellung der Iteration erleichtert ebenfalls die programmtechnische Umsetzung, so dass jeweils eine Realisierung in den Programmierumgebungen Origin [70] und Mathcad [66] vorliegt. Mit Hilfe der logistischen Regression konnten die beobachteten Zerstörwahrscheinlichkeitskurven zufrieden stellend ausgewertet und erstmals eine automatisierte Zerstörschwellenmessung durch testbegleitende Auswertung erreicht werden. Um die Beschränkung in der Wahl der Modellfunktion zu überwinden, wurde über die beschriebene logistische Regression hinaus ein nichtlinearer Regressionsalgorithmus in die Auswertung implementiert, der im folgenden Abschnitt erläutert wird.

### 3.2.2 Nichtlineare Regressionsalgorithmen

Legen die experimentellen Befunde die Verwendung abweichender Modellfunktionen nahe, ist die Wahl nichtlinearer Funktionen wahrscheinlich. Diese Funktionen sind dadurch gekennzeichnet, dass sie sich nicht linearisieren lassen, d. h. nicht in der folgenden Form dargestellt werden können [23]:

$$Y = \beta_0 + \beta_1 Z_1 + \dots + \beta_p Z_p + \varepsilon, \quad (3.21)$$

wobei  $Y$  den Ausgang eines Zufallsexperimentes beschreibt und die  $Z_i$  beliebige Funktionen der Zufallsvariablen  $X_1, \dots, X_k$  sind<sup>10</sup>. Hier bezeichnen die  $\beta_i$  die Modellparameter und das  $\varepsilon$  einen normalverteilten Fehlerterm mit Erwartungswert  $E(\varepsilon) = 0$  und Varianz  $V(\varepsilon) = \sigma^2$ .

Bei der Verwendung nichtlinearer Funktionen werden zum Zweck der Unterscheidung die Zufallsvariablen mit  $\xi_1, \dots, \xi_k$  und die Parameter mit  $\theta_1, \dots, \theta_p$  bezeichnet, sowie das Modell durch

$$Y = f(\xi_1, \dots, \xi_k; \theta_1, \dots, \theta_p) + \varepsilon = f(\boldsymbol{\xi}; \boldsymbol{\theta}) + \varepsilon \quad (3.22)$$

---

<sup>9</sup>Inverse Fisher-Informationsmatrix

<sup>10</sup>Diese Schreibweise schließt somit die Möglichkeit der Transformation mit ein.

beschrieben. Sind nach der  $n$ -maligen Durchführung des Zufallsexperimentes die Beobachtungen  $Y_u, \xi_{1u}, \dots, \xi_{ku}$  mit  $u = 1, \dots, n$  verfügbar, kann statt Gl. 3.22 die Abkürzung

$$Y_u = f(\xi_u, \boldsymbol{\theta}) + \varepsilon_u \quad (3.23)$$

angegeben werden. Als Maß für die Güte der Anpassung bei einem gewählten Parametersatz  $\boldsymbol{\theta}$  wird die Fehlerquadratsumme  $S(\boldsymbol{\theta})$  verwendet

$$S(\boldsymbol{\theta}) = \sum_{u=1}^n (Y_u - f(\xi_u, \boldsymbol{\theta}))^2. \quad (3.24)$$

Ziel der Optimierung ist es, den besten Schätzer  $\hat{\boldsymbol{\theta}}$  zu finden, der die Fehlerquadratsumme  $S(\boldsymbol{\theta})$  minimiert. Da die analytische Durchführung der partiellen Differentiation von Gl. 3.24 bei komplexen Funktionen zumeist schwierig ist, werden in der Literatur im Wesentlichen drei numerische Lösungsverfahren angegeben: die Linearisierung, das Gradientenverfahren und das Levenberg-Marquardt-Verfahren [23].

### Linearisierung

Bei diesem Verfahren wird die Modellfunktion  $f(\xi_u, \boldsymbol{\theta})$  in der Nähe des initialen Schätzers  $\boldsymbol{\theta}_0$  in einer Taylorreihe entwickelt, wobei lediglich der ersten beiden Terme berücksichtigt werden

$$f(\xi_u, \boldsymbol{\theta}) = f(\xi_u, \boldsymbol{\theta}_0) + \sum_{i=1}^p \left[ \frac{\partial f(\xi_u, \boldsymbol{\theta})}{\partial \theta_i} \right]_{\boldsymbol{\theta}=\boldsymbol{\theta}_0} (\theta_i - \theta_{i0}). \quad (3.25)$$

Wird dieser Ausdruck mittels

$$\begin{aligned} f_u^0 &= f(\xi_u, \boldsymbol{\theta}_0) \\ \beta_i^0 &= \theta_i - \theta_{i0} \\ Z_{iu}^0 &= \left[ \frac{\partial f(\xi_u, \boldsymbol{\theta})}{\partial \theta_i} \right]_{\boldsymbol{\theta}=\boldsymbol{\theta}_0} \end{aligned} \quad (3.26)$$

umgeformt, kann Gl. 3.23 in eine aus Gl. 3.21 bekannte, linearisierte Form überführt und die Fehlerquadratsumme  $SS(\boldsymbol{\theta})$  berechnet werden:

$$\begin{aligned} Y_u - f_u^0 &= \sum_{i=1}^p \beta_i^0 Z_{iu}^0 + \varepsilon_u \\ SS(\boldsymbol{\theta}) &= \sum_{u=1}^n \left\{ Y_u - f(\xi_u, \boldsymbol{\theta}_0) - \sum_{i=1}^p \beta_i^0 Z_{iu}^0 \right\}^2. \end{aligned} \quad (3.27)$$

Der beste Schätzer  $\hat{\boldsymbol{\theta}}$  kann durch diese Linearisierung mit den aus dem Abschnitt über die logistische Regression bekannten Methoden iterativ ermittelt werden. Die wesentlichen Schwierigkeiten dieses Verfahrens liegen bei der geringen Konvergenzgeschwindigkeit und der Notwendigkeit einer guten Initialschätzung, weshalb weitere Verfeinerungen im Iterationsprozess notwendig werden.

## Gradientenverfahren

Im Gegensatz zu der Linearisierung wird bei dem Gradientenverfahren eine partielle Differentiation der Fehlerquadratsumme  $S(\boldsymbol{\theta})$  aus Gl. 3.24 direkt vorgenommen, um die Richtung und Größe des Iterationsschrittes festzulegen

$$-\frac{\partial S(\boldsymbol{\theta})}{\partial \theta_1}, \dots, -\frac{\partial S(\boldsymbol{\theta})}{\partial \theta_p} \quad (3.28)$$

Dieses Verfahren zeichnet sich im Allgemeinen durch eine schnelle Konvergenz aus, wenn die Initialschätzung  $\boldsymbol{\theta}_0$  weit von  $\hat{\boldsymbol{\theta}}$  entfernt ist. Nähert sich der aktuelle Schätzer dem besten Wert, neigt das Gradientenverfahren zu einem „Zick-zack-Kurs“, der mit einer langsamen Konvergenz in diesem Bereich des  $\boldsymbol{\theta}$ -Raumes einhergeht.

## Levenberg-Marquardt-Verfahren

Dieses Verfahren stellt einen Kompromiss zwischen der Linearisierung und dem Gradientenverfahren dar und kombiniert die günstigen Eigenschaften beider Methoden. Der entscheidende Vorteil ist, dass dieses Verfahren in fast allen Anwendungsfällen zuverlässig und hinreichend schnell konvergiert, worin auch die weite Verbreitung in Programmen zur Datenanalyse begründet liegt. Ausgehend von einem Initialschätzer  $\boldsymbol{\theta}_0$  zeigen die Vektoren für den Iterationsschritt für die Linearisierung und das Gradientenverfahren in unterschiedliche Richtungen. Für das Levenberg-Marquardt-Verfahren zeigt sich, dass diese Richtungen für eine Vielzahl praktischer Fälle eine feste Winkelbeziehung haben und durch geeignete Interpolation zwischen diesen Winkeln eine optimierte Strategie erreicht werden kann [62].

Auf Grund ihrer hohen Akzeptanz in der anwendungsorientierten Forschung wurde das Levenberg-Marquardt-Verfahren neben der in Abschnitt 3.2.1 erläuterten logistischen Regression für die Auswertung von Zerstörschwellenmessungen verwendet. Die Umsetzung in das Mess- und Auswertungsprogramm erfolgte durch Implementierung eines Programmmoduls, das zum Basispaket der Programmierumgebung LabVIEW [71] gehört. Diesem Programmmodul werden die binären Daten und die gewählte Modellfunktion übergeben, aus denen die Anpassungsparameter berechnet werden. Der mit der nichtlinearen Anpassung verbundene zusätzliche Rechenaufwand fällt bei handelsüblichen Messrechnern nicht ins Gewicht. Analog zur logistischen Regression kann bei dem Levenberg-Marquardt-Verfahren aus den Diagonalelementen der Kovarianzmatrix die Varianz der Modellparameter ermittelt werden [83].

### 3.2.3 Modellfunktionen zur Beschreibung der Zerstörwahrscheinlichkeit

Das Zerstörungsverhalten kann im Allgemeinen in drei Bereiche untergliedert werden: Einem Bereich niedriger Energiedichte mit vernachlässigbarer Zerstörwahrscheinlichkeit, einem Bereich hoher Energiedichte mit praktisch sicherem Auftreten von Zerstörung und einem zwischen diesen lokalisierten dritten Bereich.

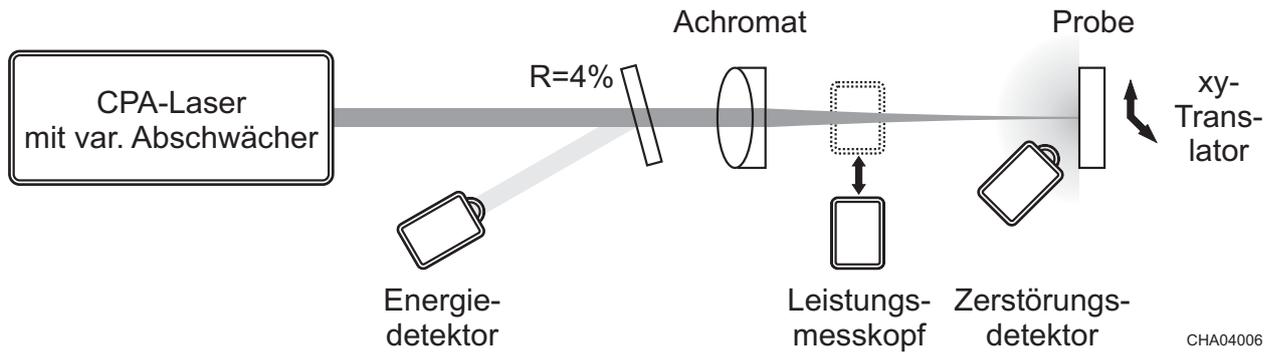
Die Genauigkeit des Auswerteverfahrens ist grundsätzlich von der gewählten Modellfunktion abhängig, die für die Extrapolation der Zerstörschwelle verwendet wird. Eine Modellfunktion soll für die praktische Umsetzung des Normverfahrens in erster Linie der empirischen Beschreibung der Zerstörwahrscheinlichkeit dienen. Die explizite Modellierung, die die zu Grunde liegenden Zerstörungsphänomene widerspiegelt, ist bei der Anwendung der Norm nicht von primärer Bedeutung, da der Geltungsbereich in Bezug auf Spektralbereich, Pulsdauer, Spotdurchmesser, Probenotyp etc. bei weitem zu groß ist.

Obwohl die Angabe einer Zerstörschwelle von Anwenderseite gewünscht wird, führt diese Forderung zu grundlegenden Problemen. Zunächst ist streng physikalisch betrachtet die Zerstörwahrscheinlichkeit einer Optikkomponente grundsätzlich von Null verschieden und daher eine 0%-Zerstörwahrscheinlichkeit nur für eine Pulsenergie gleich Null sicher zu stellen. Über diesen rein akademischen Fall hinaus deuten theoretische Betrachtungen von Zerstörphänomenen darauf hin [53], dass laserinduzierte Zerstörung nicht zwangsläufig mit einem Schwellenverhalten einhergehen muss, sondern in bestimmten Fällen eher einen S-Kurven-förmigen Verlauf zeigt. Für eine solche Modellfunktion wäre lediglich die Extrapolation auf ein höheres Wahrscheinlichkeitsniveau als 0% sinnvoll.

Im Folgenden soll daher, neben der weithin gebräuchlichen Rampenfunktion, ebenfalls die logistische Funktion (Gl. 3.10) für die Auswertung von Zerstörschwellenmessungen diskutiert werden. Über diese Funktion hinaus ließen sich zahlreiche weitere Ausdrücke für kurvenförmige Modellfunktionen finden, die im Einzelfall zur Beschreibung des Zerstörungsverhaltens sinnvoll sein könnten. Da die Breite des Übergangsbereiches  $\Delta H$  für Zerstörschwellenmessungen mit ultrakurzen Laserpulsen generell vergleichsweise gering ist und somit kein wesentlicher Unterschied zwischen einer Gerade und einer S-Kurve bestände, wird die logistische Funktion im Rahmen dieser Arbeit lediglich als Alternative vorgestellt. Der jeweilige Kurvenverlauf sowie die Energiedichte  $H_z$  für das gewünschte Zerstörwahrscheinlichkeitsniveau  $z$  werden durch die folgenden Ausdrücke beschrieben:

Rampenfunktion:

$$P_R(H) = \begin{cases} 0 & \text{für } H < H_{0,5} - \frac{\Delta H}{2} \\ \frac{H - H_{0,5}}{\Delta H} + \frac{1}{2} & \text{für } H_{0,5} - \frac{\Delta H}{2} \leq H \leq H_{0,5} + \frac{\Delta H}{2} \\ 1 & \text{für } H > H_{0,5} + \frac{\Delta H}{2} \end{cases} \quad (3.29)$$



**Abbildung 3.3:** Apparatur zur Messung der laserinduzierten Zerstörschwelle mit ultrakurzen Laserpulsen.

$$H_z = H_{0,5} + \Delta H \left( z - \frac{1}{2} \right) \quad (3.30)$$

Logistische Funktion:

$$P_L(H) = \frac{1}{1 + \exp\left(\frac{H_{0,5}-H}{\Delta H}\right)} \quad (3.31)$$

$$H_z = H_{0,5} - \Delta H \ln\left(\frac{1-z}{z}\right) \quad (3.32)$$

Für beide Modellfunktionen stellt  $H_{0,5}$  die extrapolierte Energiedichte für eine 50%-Zerstörwahrscheinlichkeit und somit die Mitte des Übergangsbereiches dar. Der Parameter  $\Delta H$  charakterisiert die Breite des Übergangsbereiches von geringer zu hoher Zerstörwahrscheinlichkeit.

## 3.3 Umsetzung der Zerstörschwellenmessung für den fs-Bereich

### 3.3.1 Überblick Messapparatur

Die wesentlichen Elemente des für den Ultrakurzpulsbereich adaptierten Zerstörschwellen-Messaufbaus sind in Abbildung 3.3 dargestellt. Um eine möglichst praxisnahe Umsetzung der Standard-Messprozedur für die Zerstörschwellenmessung im Bereich ultrakurzer Pulse zu erreichen, ist die Auswahl von anwendungsrelevanten Messaufbaukomponenten und Prüfobjekten von hoher Bedeutung. Aus diesem Grund wurde auf ein kommerzielles, in Forschung und Entwicklung zahlreich vertretendes Lasersystem als zentralen Bestandteil zurückgegriffen. Dieses System von der Firma Spektra-Physics besteht aus einem fs-Oszillator (TSUNAMI), in dem Seed-Pulse von ca. 100 fs Pulsdauer und einer Repetitionsrate von 82 MHz erzeugt

werden, und einer CPA<sup>11</sup>-Verstärkereinheit (SPITFIRE). Das am Laser Zentrum Hannover installierte CPA-System zeichnet sich durch eine zusätzliche double-pass Nachverstärkerstufe aus, womit im Idealfall Pulsenergien von maximal 2 mJ bei einer Repetitionsrate von 1 kHz realisiert werden können. Die Pulsdauer kann durch Verschieben der Kompressorgitter stufenlos in einem Bereich von ca. 150 fs bis mehrere 10 ps variiert werden.

Mit der variablen Abschwächung kann die Pulsenergie bis auf unter 1  $\mu\text{J}$  reduziert werden, womit ein hohen Dynamikbereich für die Zerstörschwellenmessung erreicht wird. Dieser Abschwächer besteht aus einem drehbaren  $\lambda/2$ -Plättchen, das vor den Kompressorgittern lokalisiert ist. Bei Drehung des Plättchens relativ zur Gitterorientierung wird auf Grund der polarisationsabhängigen Beugungseffizienz eine Abschwächung erzeugt [76], die durch Verwendung eines motorisierten Drehtisches über einen Messrechner gesteuert wird. Mit Hilfe eines dünnen, einseitig entspiegelten Quarzsubstrates wird ein Teil des Laserstrahls für die Energiedetektion ausgekoppelt. Die Kalibrierung des Energiedetektors erfolgt durch das Einbringen eines Leistungsmesskopfes in den Strahlengang.

Als Fokussierelement werden im Falle des Ultrakurzpulslasers Achromate verwendet, da hierbei im Vergleich zu sphärischen Linsen geringere Wellenfront- und Pulsdeformationen zu verzeichnen sind [15, 16]. Die zu untersuchende Prüfoberfläche befindet sich in der Fokusebene und kann mittels einer 3-Achsen-Translationseinheit verschoben werden. Durch Verschiebung senkrecht zur Propagationsrichtung  $z$  können verschiedene Prüforte eingestellt werden. Zur effizienten Nutzung der Oberfläche sind die Positionen in einer hexagonalen Matrix angeordnet. Die Positionierung in  $z$ -Richtung wird für die Vermessung der Strahlkaustik benötigt. Tritt eine Zerstörung während der Bestrahlung auf, so wird die Laserstrahlung an dem entstandenen Defekt vermehrt gestreut und kann mit Hilfe eines Detektors nachgewiesen werden. Die Apparatur wird von einem Messrechner gesteuert, so dass die Beaufschlagung der verfügbaren Positionen auf der Probenoberfläche nebst der Auswertung vollständig automatisiert abläuft.

#### 3.3.2 Messung des räumlichen Strahlprofils

Bei der Zerstörschwellenmessung kommt der Bestimmung des räumlichen Strahlprofils besondere Bedeutung zu. Einerseits geht z. B. bei radialsymmetrischen Profilen der Fehler bei der Messung des Strahldurchmessers quadratisch in die Energiedichte ein und trägt somit erheblich zum Gesamtfehlerbudget bei. Andererseits ist die Vermessung relativ kleiner Fokussdurchmesser im Bereich von 100  $\mu\text{m}$  und darunter auf Grund des mangelnden räumlichen Auflösungsvermögens von Detektorsystemen problematisch. Die am Laser Zentrum Hannover vorhandenen kamerabasierten Strahlprofil-Messsysteme verfügen über eine Pixelgröße von minimal 14  $\mu\text{m}$  und bieten mithin kein hinreichendes Auflösungsvermögen.

---

<sup>11</sup> *chirped pulse amplification*

Aus diesen Gründen konnte eine zuverlässige Online-Strahlprofilmessung in der Referenzebene, wie sie in ISO 11146 [37] beschrieben ist, für die Zerstörschwellenmessung im Bereich ultrakurzer Pulse nicht realisiert werden. Jedoch war auf Grund der hohen Stabilität des verwendeten Lasersystems die Offline-Kontrolle des Strahlprofils hinreichend. Alternativ zu einer direkten Bestimmung der räumlichen Energiedichte-Verteilungsfunktion wurde das vereinfachte Verfahren der bewegten Messerschneide gewählt.

Bei diesem Verfahren wird der Laserstrahl an einer Position  $z$  entlang der Kaustik mit einer geeigneten Messerschneide senkrecht zur Ausbreitungsrichtung durchgeschnitten und damit einen Teil der Strahlung abgeblendet. Ein hinter der Schneide lokalisierter, großflächiger Detektor misst die transmittierte Leistung in Abhängigkeit der Schneidenposition  $x$ . Der unkorrigierte<sup>12</sup> Strahldurchmesser  $d_k$  berechnet sich aus den Schneidenpositionen  $x_1$  und  $x_2$ , an denen der transmittierte Anteil 84% und 16% beträgt:

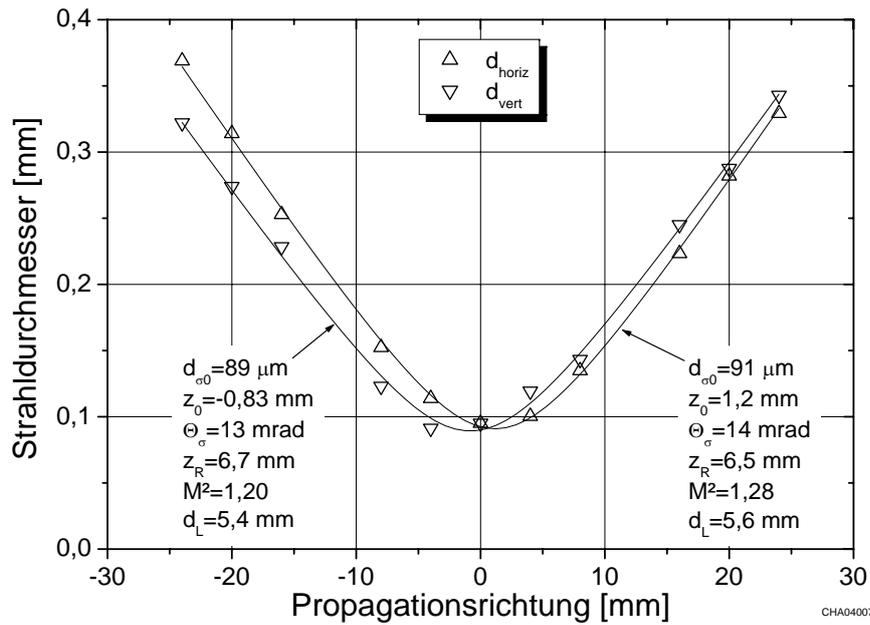
$$d_k = 2(x_2 - x_1) \quad (3.33)$$

Die für die Zerstörschwellenmessung relevanten Strahlparameter, wie Taillendurchmesser  $d_{\sigma 0}$ , Fokusposition  $z_0$  und Rayleigh-Länge  $z_R$ , werden durch Anpassung des hyperbolischen Propagationsgesetzes an die entlang der  $z$ -Richtung gemessenen Strahldurchmesser ermittelt. Zur Charakterisierung des Ultrakurzpulslasers wurde in die Zerstörschwellenapparatur eine Einrichtung zur Kaustikmessung implementiert. Hierfür wird statt einer Probe eine geeignete Klinge in die Probenhalterung eingesetzt. Mit Hilfe der zusätzlichen Translationsachse in  $z$ -Richtung ist eine Strahlprofilmessung entweder in vertikaler oder horizontaler Richtung entlang der Kaustik möglich. Da mit dem Einbau der Klinge an Stelle einer Probe der Zerstörschwellen-Messplatz nicht verändert wird, eignet sich diese Einrichtung zu Verifizierung des Strahlprofils auch innerhalb einer Messserie. Das für die Kaustikmessung entwickelte Programm, das automatisiert die Ansteuerung der Translatoren und die Datenerfassung und Auswertung vornimmt, sorgt für die in der Norm vorgeschriebene Messebenenverteilung entlang der Propagationsachse, so dass Nah- und Fernfeld bei der hyperbolischen Anpassung in gleichem Maße gewichtet werden.

In Abbildung 3.4 ist das Ergebnis der Strahlcharakterisierung für den verwendeten Ultrakurzpulslaser dargestellt. Als Fokussierelement wurde ein Achromat mit einer Brennweite von 400 mm verwendet und der Laser bei der minimalen Pulsdauer von ca. 150 fs betrieben.

---

<sup>12</sup>Bei der Vermessung von Strahlen mit einem Anteil an höheren transversalen Moden ergeben sich im Vergleich zum Standardverfahren systematische Abweichungen in der Durchmesserbestimmung, die mittels eines Korrekturfaktors zu kompensieren sind:  $d_{\sigma} = \frac{d_k}{\sqrt{M_k^2}} [0,81 \cdot (\sqrt{M_k^2} - 1) + 1]$ . Für geringe Abweichungen von  $M_k^2$  vom Idealwert 1 ist lediglich ein geringer Fehler zu verzeichnen. Die Korrektur würde im Falle des Spitfire-CPA-Systems mit  $M_k^2 \leq 1,3$  demnach etwa 2% betragen. Da die nach Schneidenmethode bestimmten Fokussdurchmesser systematisch zu groß sind, werden die Zerstörschwellen konservativ nach unten abgeschätzt.



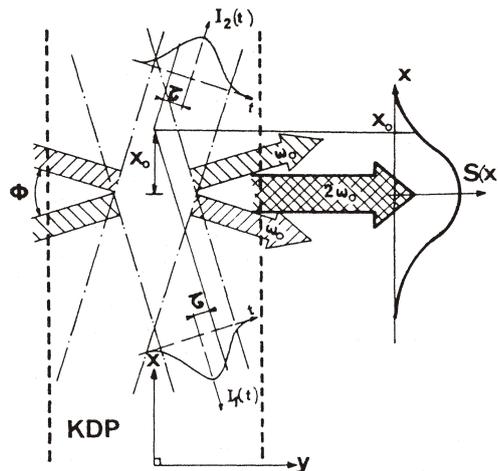
**Abbildung 3.4:** Strahlkaustik in horizontaler und vertikaler Richtung im Bereich des Fokus eines Achromaten ( $f = 400$  mm), aufgenommen mit dem Verfahren der bewegten Messerschneide; Berechnung der Strahlparameter: Taillendurchmesser  $d_{\sigma 0}$ , Fokusslage  $z_0$ , Fernfelddivergenzwinkel  $\Theta_{\sigma}$ , Rayleigh-Länge  $z_R$ , Beugungsmaßzahl  $M^2$ , sowie dem extrapolierten Strahldurchmesser am Ort des Achromaten  $d_L$ .

Anhand der Kaustiken ist deutlich erkennbar, dass dieser Strahl über den gesamten Messbereich sehr symmetrisch ist. Taillendurchmesser und Fernfelddivergenzwinkel sind jeweils etwa gleich groß, lediglich ein leichter Astigmatismus ist festzustellen. Die ermittelte Beugungsmaßzahl ist mit 1,20 in vertikaler und 1,28 in horizontaler Richtung verhältnismäßig klein. Auf Grund des geringen Anteils höherer transversaler Moden genügt dieses Lasersystem mithin den Anforderungen für die Zerstörschwellenmessung.

### 3.3.3 Bestimmung der Pulsdauer

Während für ns-Pulslaser die Messung der Pulsdauer mit Photodioden geringer Kapazität relativ einfach zu realisieren ist, muss zur Charakterisierung des zeitlichen Pulsprofils im Pikosekundenbereich und darunter auf komplexere Messanordnungen zurückgegriffen werden. Für die Messung von Pulsdauern im Bereich um 100 fs sind Autokorrelationsmethoden notwendig.

Bei der Autokorrelation wird der Puls selbst zu der Messung seiner Länge benutzt. Hierzu wird der Puls mit einer zeitlich verschobenen Kopie in einem nichtlinearen Medium überlagert. Die dabei generierte frequenzkonvertierte Strahlung in Abhängigkeit der zeitlichen



**Abbildung 3.5:** Wechselwirkung zweier Teilstrahlen mit zeitlichem Pulsprofil  $I_1(t) = I_2(t) = I(t)$  und Frequenz  $\omega_0$ , die eine Verzögerung von  $\tau$  zeigen, in einem nichtlinearen Kristall (z. B. KDP); Erzeugung der Autokorrelationsfunktion zweiter Ordnung  $S(x)$  durch räumliche Detektion der Oberwelle  $2\omega_0$  (aus [85]).

Verschiebung stellt die Autokorrelation dar. Die Ordnung der Autokorrelation wird durch die Potenz der nichtlinearen Wechselwirkung bestimmt, so dass die Höhe des hierzu gehörenden Signals stark von der Leistungsdichte im Medium abhängig ist. Obwohl eine Vielzahl von Methoden verschiedener Ordnungen bereits eingesetzt wurden [21], ist der Einsatz der Autokorrelation zweiter Ordnung am weitesten verbreitet. Im Falle von CPA-Systemen mit relativ geringer Repetitionsrate gehört die Autokorrelation eines einzelnen Pulses zu dem am häufigsten Verwendung findenden Verfahren. Hierbei wird das zeitliche Leistungsdichteprofil der Grundwelle  $\omega_0$  in ein räumliches Profil der Oberwelle  $2\omega_0$  übersetzt, welches z. B. mit einer CCD-Zeile aufgenommen wird [85] (s. Abb. 3.5). Dieses Prinzip wird standardmäßig für die Vermessung der am Laser Zentrum Hannover installierten UKP-Systeme mit  $\tau_p > 100$  fs Pulsdauer eingesetzt [75]. Hierzu wird der Laserstrahl über einen Klappspiegel in den Autokorrelator geführt.

Obwohl sich das Verfahren für Pulsdauern von ca. 150 fs und mehr bewährt hat, mussten im Rahmen der Absorptionsmessungen (s. Abschnitt 4.3.1) für geringere Werte erhebliche Defizite festgestellt werden. So waren bei der Verwendung des HURRICANE-CPA-Systems [92] die größten nichtlinearen Effekte nicht bei der als geringsten Pulsdauer gemessenen Einstellung des Kompressors zu erzielen. Dieser Effekt wurde durch das Zünden eines Plasmas in Luft, das mit einem kurzbrennweitigen Achromaten erzeugt wurde, bestätigt. Die charakteristische Blauverschiebung der im Plasma frequenzkonvertierten Strahlung, die auf eine minimierte Pulsdauer hindeutet, wurde nicht für die mit dem Autokorrelator ermittelte

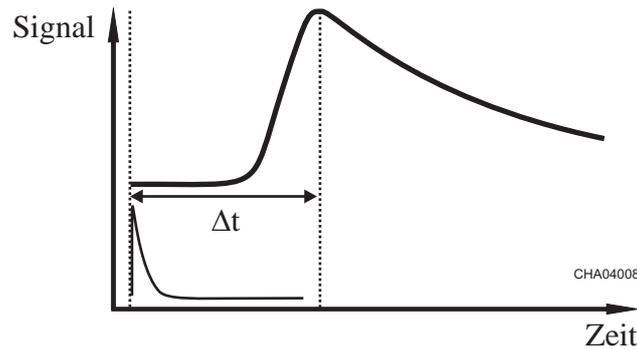
kürzeste Pulsdauer erreicht. Folglich prägen die im Autokorrelator eingesetzten optischen Elemente dem ultrakurzen Puls einen *chirp* auf, der sich von dem der verwendeten Achromaten signifikant unterscheidet. Aus diesem Grund sind die Messungen in Abschnitt 4.3.1 für Pulsdauern von unter 150 fs mit einem erheblichen Fehler versehen.

#### 3.3.4 Messung der Pulsenergie

Ein weiteres entscheidendes Element bei der Bestimmung der Zerstörschwelle ist die Messung der Pulsenergie. Während bei Lasern mit niedriger Repetitionsrate im 10 Hz-Bereich kommerzielle Energiemonitore ausreichend sind, ist bei Kilohertz-Raten eine Einzelpulsauflösung mit industrierelevanten Analysesystemen nicht mehr möglich. Daher kann nach ISO 11254-2 für hochrepetierende Strahlquellen alternativ die Bestimmung der Pulsenergie aus der durchschnittlichen Leistung erfolgen. Der entscheidende Nachteil der Leistungsmessung ist die relativ große Zeitkonstante von typischerweise mehreren 100 ms, welche sich durch die Verwendung üblicher Thermosäulen-Detektoren ergibt. Sollten Pulsenergieschwankungen im Zeitregime unter 100 ms auftreten, könnte ein möglicher Einfluss auf das Zerstörungsverhalten nicht nachgewiesen werden.

Daher wurde im Zuge dieser Arbeit ein Detektionssystem entwickelt, mit dem eine Energiemessung im kHz-Bereich mit Einzelpulsauflösung möglich ist. Hierzu wird der vom Teststrahl separierte Anteil auf eine Si-Photodiode gelenkt, deren aktive Fläche mit  $1 \text{ cm}^2$  groß gegen den zu detektierenden Strahlfleck ist. Die durch den Laserpuls getrennten Ladungsträger erzeugen einen Photostrom, der mittels eines Operationsverstärkers in ein Spannungssignal konvertiert wird. Das Integral dieses mehrere Mikrosekunden langen Spannungsimpulses ist proportional zur Pulsenergie. Die Form des Impulses ist bei relativ kurzen Laserpulsen ausschließlich durch die intrinsische Kapazität der Photodiode bestimmt und mithin invariant gegenüber dem zeitlichen Laserpulsprofil. Daher ist die Erfassung des Maximums an Stelle des gesamten Verlaufs der Impulstransiente zur Charakterisierung der Energie eines Pulses hinreichend. Die Sampling-Rate ist in diesem Fall mit der Repetitionsrate identisch, wobei eine Synchronisation der Datenerfassung mit dem Erreichen des Maximums der Transiente erforderlich ist (siehe Abbildung 3.6).

Um den Einfluss elektrischer Störungen zu minimieren, sollte das Signal für den interessierenden Energiebereich durch Wahl geeigneter Neutralfilter auf wenige Volt eingestellt werden. Für eine typische Zerstörschwellenmessung insbesondere bei deterministischem Zerstörungsverhalten ist ein Dynamikbereich des Energiedetektors von etwa einer Dekade ausreichend, wenn der Detektor für diesen Messbereich kalibriert ist. Die Kalibrierung erfolgt durch Abgleich mit einem hinter der Fokussiereinheit lokalisierten Leistungsmesskopf (Spectra-Physics 407A), in dem für verschiedene Einstellungen des variablen Abschwächers Leistungsmesskopf und Energiedetektor parallel ausgelesen werden. Das Ergebnis einer typischen Kalibrierung



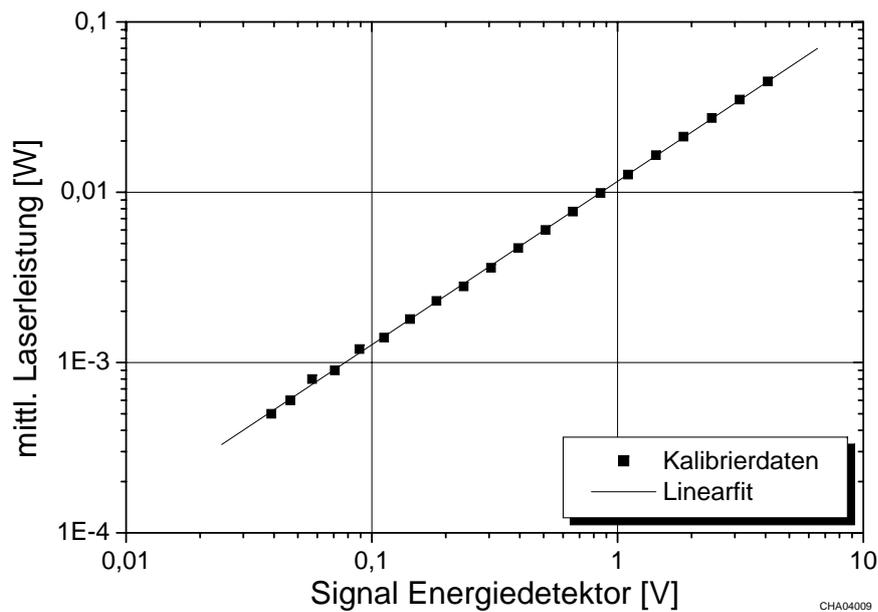
**Abbildung 3.6:** Synchronisation der Energiemessung mit Einzelpulsdetektor; oben: Transiente des Energiedetektors, unten: Triggerimpuls des Lasersystems mit einzustellender Verzögerungszeit  $\Delta t$ .

nebst linearer Regression ist in Abbildung 3.7 dargestellt. Diese Kalibrierkurve verdeutlicht die Eignung des beschriebenen Detektors für die Mehrpuls-Zerstörschwellenmessung.

### 3.3.5 Zerstörungsdetektion

Für die Identifizierung auch geringster Veränderungen der Optik während der Bestrahlung, die *per definitionem* als Zerstörung zu werten sind, wird gemäß ISO 11254 eine mikroskopische Inspektion gefordert. Trotz der enormen technologischen Entwicklung in den letzten Jahren im Bereich kameragestützter Bildverarbeitungssysteme ist gegenwärtig noch kein bildgebender (und kosteneffizienter) Detektor verfügbar, um die Entstehung eines Defektes innerhalb einer Millisekunde oder weniger zuverlässig zu erkennen. Daher ist zum gegenwärtigen Zeitpunkt eine Mikroskopinspektion innerhalb eines Pulszuges zur testbegleitenden Zerstörungsdetektion für die geforderten Repetitionsraten nicht möglich [108]. Eine Nomarski-mikroskopische Untersuchung erfolgt in diesem Fall lediglich nach beendeter Bestrahlung für die abschließende Beurteilung des Zerstörungszustandes.

Um dennoch eine online-Zerstörungserkennung zu realisieren, die eine Bestimmung der für die Zerstörung verantwortlichen Pulszahl gewährleistet, wurde für die beschriebene Messapparatur die Methode der Streulichtdetektion gewählt. Wenn durch die Beaufschlagung der Probe mit Laserpulsen ein Oberflächendefekt entsteht, kann das Streulicht, das von nachfolgenden Pulsen an dem Defekt generiert wird, mit einer Photodiode nachgewiesen werden. Hierzu wird eine großflächige Silizium-Photodiode, die mit einer Verstärkerschaltung ausgestattet ist, in der Nähe der Probenoberfläche lokalisiert. Der Signalverlauf des Streulichtdetektors entspricht dem der bereits beschriebenen Energiemessung, da wiederum die Transiente im Wesentlichen durch die Kapazität der Photodiode bestimmt wird. Die notwendige Schnelligkeit der Detektion wird über die Kopplung an die Energiemessung erreicht: Eine zweite, zur Energiemessung synchron getriggerte A/D-Wandlerkarte nimmt das Streusignal jedes

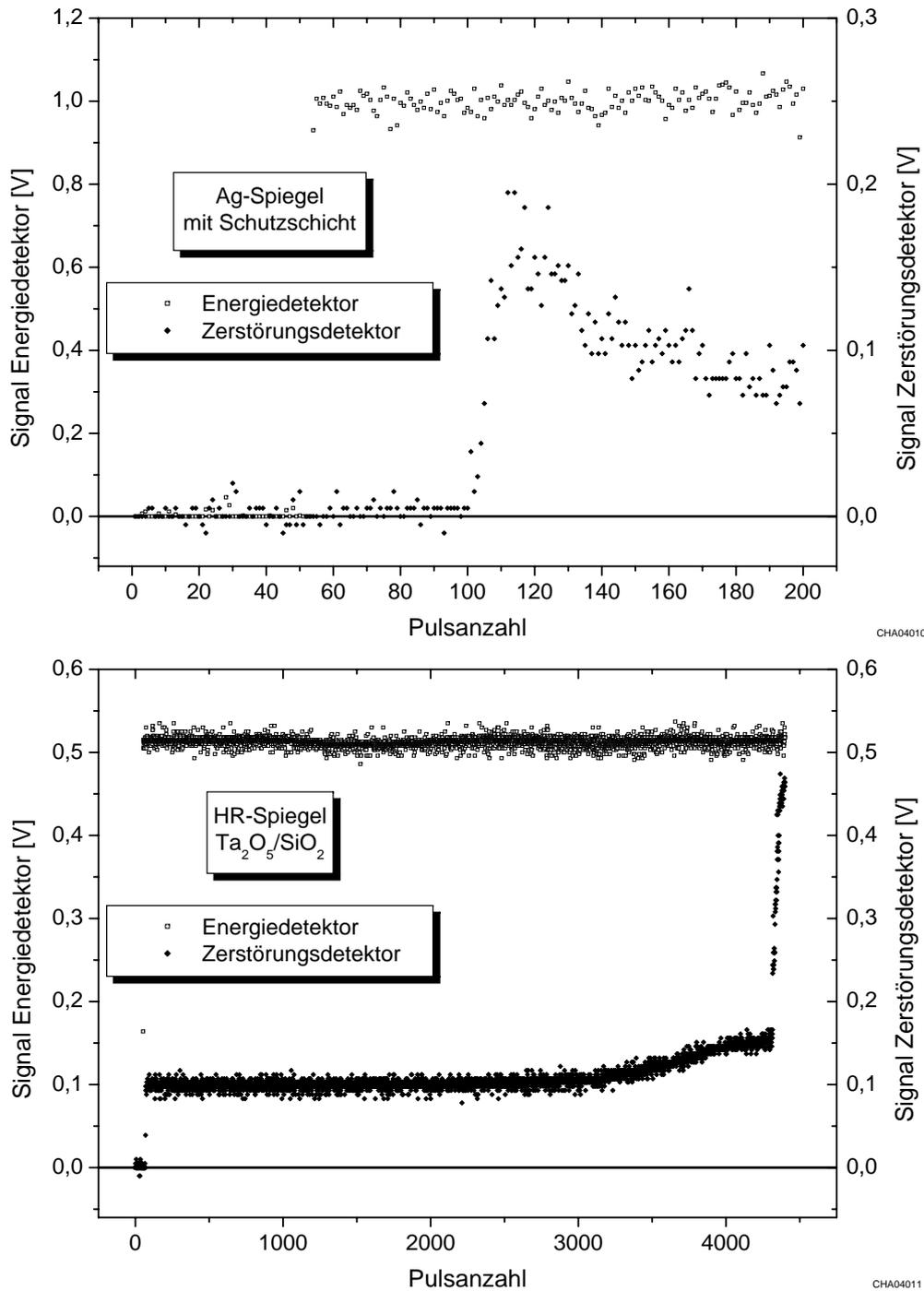


**Abbildung 3.7:** Kalibrierung des Einzelpuls-Energiedetektors gegen einen Thermosäulendetektor über 2 Dekaden; lineare Anpassung der Kalibrierdaten in der log-log-Darstellung (Korrelationskoeffizient  $R=0,99983$ ).

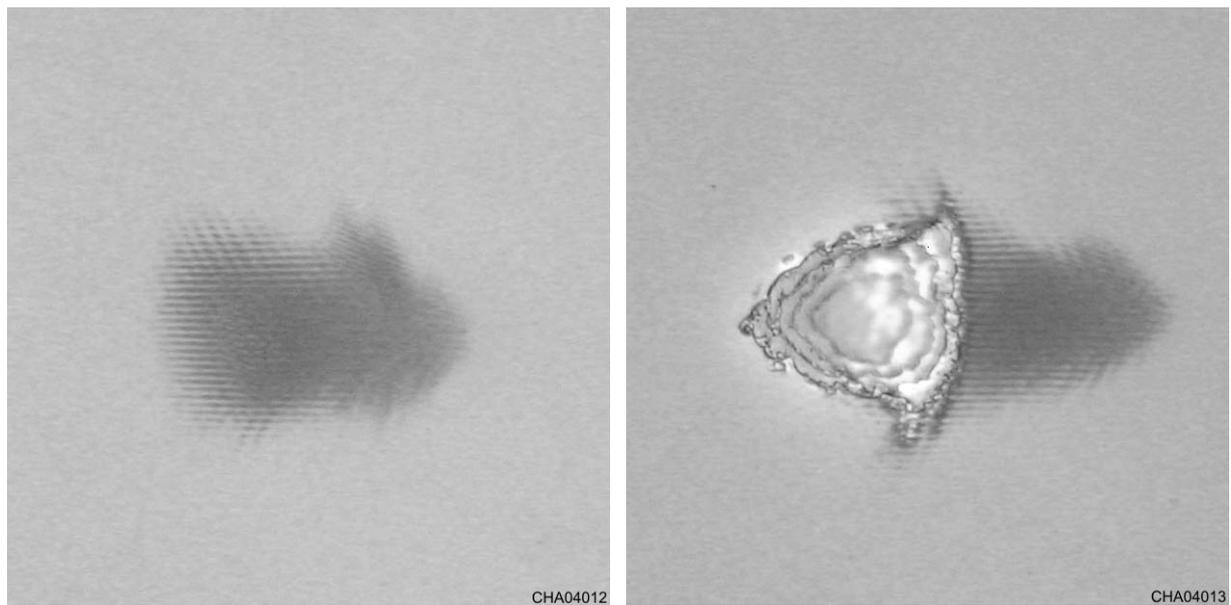
Pulses im Pulszug auf. Somit kann durch die direkte Kopplung von Energiemessung und Zerstörungsdetektion das Auftreten einer Zerstörung einer Pulsnummer und einer Pulsenergie zugeordnet werden. Nach erfolgter Detektion durch Überschreitung eines Schwellwertes stoppt das Messprogramm die weitere Bestrahlung, um die Untersuchung der Defektmorphologie zu gewährleisten. Im Falle eines rapide ansteigenden Streusignals in Folge eines praktisch instantan entstehenden Defektes, der für den überwiegenden Anteil der im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Proben zutrifft, ist der Zerstörungszeitpunkt bis auf wenige Pulse genau bestimmbar.

Bei einigen Probentypen können hiervon abweichende Signalverläufe beobachtet werden, die dem Einsatz der Streulichtdetektion zur online-Kontrolle Grenzen setzen. In Abbildung 3.8 sind beispielhaft zwei problematische Signalverläufe dargestellt. Im oberen Beispiel wächst das Streusignal für einen Silberspiegel zwar mit Einsetzen der Zerstörung an, jedoch verringert es sich für die nachfolgenden Pulse auf Grund einer Glättung der Zerstörmorphologie wieder. Erhebt sich der Maximalwert im Messsignal nur geringfügig von der Streuung des unzerstörten Oberflächen, ist meist eine Präzisierung des Zerstörungszeitpunktes notwendig. Hierfür kann der Signalverlauf nachträglich analysiert und die korrekte Pulszahl durch eine Extrapolation ermittelt werden.

Das im unteren Diagramm dargestellte Beispiel verdeutlicht das Auftreten eines leicht erhöhten Streusignals, in dem Fall des  $Ta_2O_5/SiO_2$ -Umlenkens ausgelöst durch eine gering



**Abbildung 3.8:** Beispiele für nicht ideal zu detektierende Zerstörungen; oben: Silberbeschichtung mit Quarz-Schutzschicht, unten: dielektrischer Umlenkspiegel (Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub>, magnetron-gesputtert), AOI 45° p-Pol., Beginn der Bestrahlung bei Puls Nummer 50.



(a) Pos. 57,  $H = 0,431 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ ,  $S = 30.000$

(b) Pos. 58,  $H = 0,434 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ ,  $S = 4.270$

**Abbildung 3.9:** Nomarski-mikroskopische Aufnahmen zweier Zerstörstellen auf einem  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ -Umlenker, AOI  $45^\circ$  p-Pol., Darstellung der Magenta-Komponente des Farbbildes, Kantenlänge des Ausschnitts ca.  $500 \mu\text{m}$ .

streuende Farbmodifikation in der Beschichtung. Die Morphologie ist jeweils für eine exemplarische Zerstörstelle unterhalb und oberhalb des Auftretens katastrophaler Zerstörung in Abbildung 3.9 dargestellt. Offensichtlich eilt die Farbveränderung, die für den genannten Probenotyp eine kräftige violette Färbung hat, der katastrophalen Zerstörung des Schichtsystems voraus. Im Sinne der Norm ist die beschriebene Farbzentrenbildung bereits als Zerstörung zu werten, so dass in diesem Fall der Zerstörungszeitpunkt ebenfalls nachträglich präzisiert werden muss.

Allerdings war insbesondere im Falle der phasenadaptierenden Spiegel (*chirped mirrors*) mit dieser Modifikation, die vermutlich auf die Bildung von Farbzentren zurückzuführen ist, keine signifikante Erhöhung des Streuwertes verbunden. Somit ist eine präzise online-Kontrolle dieses Probenotyps über die Streudetektion nicht möglich, und es muss auf das vereinfachte Messverfahren mit manueller Wahl von Pulsenergie und -anzahl ausgewichen werden.

Ähnliche Defizite wurden bei der Untersuchung von AR-beschichteten Quarzfenstern offenbar. Für diesen Probenotyp ist festzustellen, dass die Zerstörschwelle der Rückseitenbeschichtung und vor allem des Bulks auf Grund von Selbstfokussierungseffekten [21, 86, 89] verglichen mit der Frontseitenbeschichtung deutlich niedriger ist [96]. Da Tiefenerstörungen im Bulk lediglich mit mikroskopisch kleinen Kavitäten beginnen, von denen keine zuverlässig detektierbare Streustrahlung ausgeht, sind solche Fenster ebenfalls nur durch das vereinfachte Messverfahren zu untersuchen.

### 3.3.6 Automatisierte Messprozedur

Für die Optimierung von Beschichtungsprozessen und Designkonzepten bezüglich der erreichbaren Leistungsverträglichkeit wird eine hohe relative Messgenauigkeit gefordert, damit auch geringe Verbesserungen sicher identifiziert werden können. Um mögliche Einflüsse auf Grund von Änderungen der Messapparatur zu minimieren, sollten die zu vergleichenden Messungen möglichst zeitnah und ohne wesentliche Eingriffe in das Lasersystem und die Strahlführung durchgeführt werden.

Des Weiteren hängt bei der manuellen Zerstörschwellenmessung die Effizienz, d. h. die statistische Belastbarkeit pro Anzahl von Prüfpositionen, stark von der Erfahrung des Operators ab, der die zu applizierenden Energiedichten zur Eingrenzung des relevanten Bereichs einstellt. Zur Erhöhung der Effizienz sollte die Energiedichte mittels eines geeigneten iterativen Algorithmus auf der Basis der im Test gesammelten Daten berechnet werden. Ein solcher Algorithmus in Kombination mit einer zuverlässigen online-Zerstörungsdetektion, wie in Abschnitt 3.3.5 beschrieben, stellt die Grundlage für die Automatisierung des Messverfahrens dar. Mit ihrer Hilfe kann eine wesentliche Reduzierung der Messdauer pro Probe bei gleichzeitiger Erhöhung der Effizienz erreicht werden.

Die Automatisierungsroutinen wurden in der Programmierumgebung LabVIEW der Firma National Instruments realisiert. Das Steuerprogramm erlaubt nach einer kurzen manuellen Initialisierungsphase, in der der Energiedichtebereich für laserinduzierte Zerstörung grob lokalisiert wird<sup>13</sup>, eine selbsttätig ablaufende Messung ohne weitere Eingriffe des Operators. Hierzu wird vor der Bestrahlung einer Probenposition der bereits gewonnene Datensatz für verschiedene Pulszahlen ausgewertet, d. h. je eine Rampenfunktion<sup>14</sup> an die 0 und 1-Werte in den Zerstörwahrscheinlichkeitskurven angepasst. Mit dieser Rampe wird der für die Bestimmung der Zerstörschwelle relevante Übergangsbereich der Zerstörwahrscheinlichkeit von 0% auf 100% für jede Auswertepulszahl bestimmt. Um das Ergebnis der Auswertung zu präzisieren, sollten für die nachfolgenden Probenpositionen ebenfalls Energiedichten im Bereich der Rampe gewählt werden.

Zur Berechnung der für die folgende Prüfposition optimalen Energiedichte sind im Rahmen dieser Arbeit zwei unterschiedliche Algorithmen entwickelt worden: Bei dem ersten Verfahren (DA-Algorithmus) wird, analog zu der ursprünglichen Erstellung der Zerstörwahrscheinlichkeitskurve, der Energiedichtebereich unter der Rampe in Intervalle eingeteilt und die Häufigkeit von Datenpunkten pro Intervall berechnet. Ziel dieses Algorithmus ist die Gleich-

---

<sup>13</sup>Die minimale Datenbasis für die Initialisierung ist je eine zerstörte und eine nicht zerstörte Probenposition pro Auswertepulszahl.

<sup>14</sup>Für die folgenden Erläuterungen wird als Modellfunktion eine Rampe gewählt. Alternativ können ebenso abweichende Modellfunktionen, wie z. B. die in Abschnitt 3.2.3 beschriebene logistische Funktion, für den Algorithmus genutzt werden.

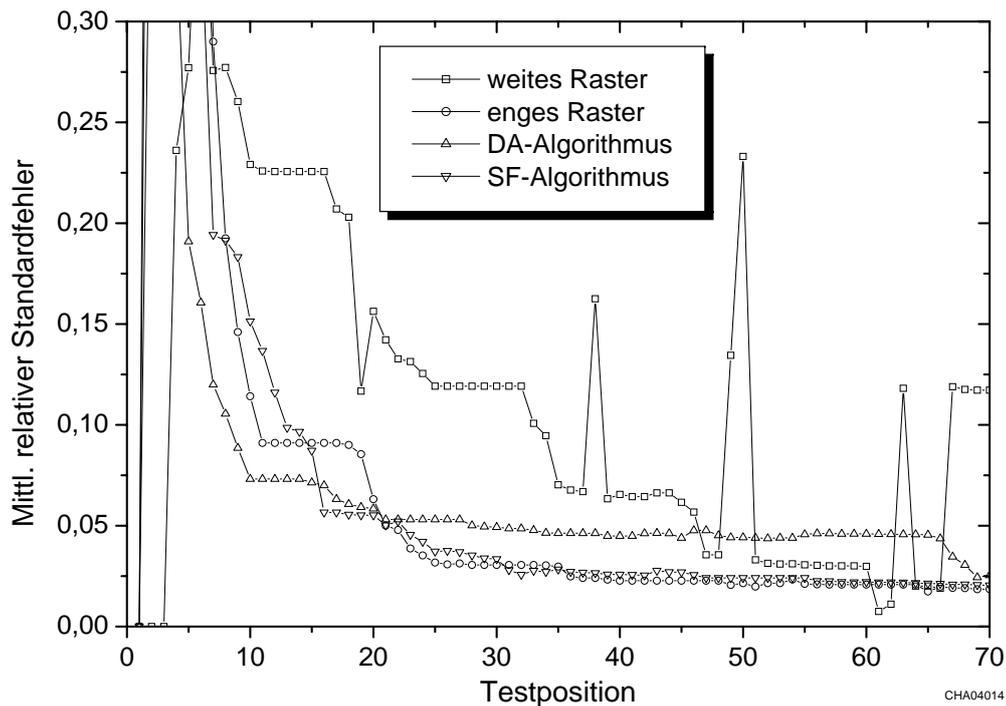
verteilung von Datenpunkten im Rampenbereich. Dabei wird die Rampe bei jedem hinzugefügten Datenpunkt neu berechnet und so eine iterative Verbesserung der statistischen Belastbarkeit der Zerstörschwellenbestimmung erreicht. Um die statistische Absicherung für jede der gewünschten Auswertepulszahlen zu gewährleisten, wird die Gleichverteilung der Datenpunkte vom Algorithmus über jede Rampe überwacht. Für den überwiegenden Anteil der in dieser Arbeit automatisiert durchgeführten Messungen wurde dieser Algorithmus genutzt und die Zuverlässigkeit für die meisten Probenotypen validiert.

Um den Problemstellungen zur manuellen Einteilung der Intervallgröße, die zu Beginn dieses Abschnittes erläutert wurden, Rechnung zu tragen, ist ein zweiter Algorithmus (SF-Algorithmus) implementiert worden. Grundlage hierfür ist die Verwendung der Standardfehler, die aus der Kovarianzmatrix der Regressionsalgorithmen im Rampenbereich berechnet werden. Mittels Gaußscher Fehlerfortpflanzung [101] wird die Unsicherheit der Zerstörschwelle aus der Varianz der Modellparameter ermittelt<sup>15</sup>. Auch bei diesem Algorithmus wird die Größe des Standardfehlers für die interessierenden Auswertepulszahlen bestimmt. Für die Pulszahl mit der höchsten Unsicherheit wird ein per Zufallsgenerator berechneter Energiedichtewert im Rampenbereich für die folgende Testposition platziert. Der Vorteil dieses Verfahrens ist die direkte Verfügbarkeit der mit dem Zerstörschwellenwert verknüpften Unsicherheit. Die Messprozedur kann bei Erreichen einer gewünschten statistischen Sicherheit beendet und so die Messzeit verkürzt werden.

Zum Vergleich der genannten iterativen Algorithmen mit der simplen Einteilung in Energiedichten-Intervalle ist eine Messreihe an vergleichbaren Proben durchgeführt worden. Für diese Untersuchung wurden Ionenstrahl-gesputterte TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>-Spiegel (AOI 0°) aus der gleichen Beschichtungscharge gewählt und automatisierte Zerstörschwellenmessungen mit den Testparametern 150 fs Pulsdauer, 1 kHz Repetitionsrate und ca. 90 μm Strahldurchmesser durchgeführt. Der interessierende Energiedichtebereich liegt für diesen Probenotyp bei 0,4 bis 0,55  $\frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ , wenn Auswertepulszahlen zwischen 30 und 30.000 Pulse betrachtet werden. Für jede Messung kann die Propagation der mittleren Relativunsicherheit, die sich aus 10 Auswertepulszahlen berechnet, mit der bei jeder Testposition anwachsenden Datenbasis analysiert werden. Das Ergebnis dieser Untersuchung ist in Abbildung 3.10 dargestellt. Im Falle eines weiten Rasters, bei dem zyklisch 15 Energiedichten zwischen 0,2 und 0,7  $\frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  (ab Position 30 zwischen 0,3 und 0,6  $\frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ ) eingestellt werden, ist ein stufenförmiges Absinken der Unsicherheit zu erkennen, wobei ein Unsicherheitsniveau von 5% bei Position 47 erreicht wird. Wird mit Intervallen zwischen 0,4 und 0,65  $\frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  ein engeres Raster gewählt, sinkt die Unsicherheit ebenfalls stufenförmig, jedoch deutlich schneller mit zunehmender Datenmenge

---

<sup>15</sup>Die Fehlerpropagation  $dH_x$  für das Wahrscheinlichkeitsniveau  $x$  bzgl. Schwankungen der Modellparameter  $H_{0,5}$  und  $\Delta H$  beträgt im Falle einer Rampe  $dH_x = \sqrt{(x - 0,5)^2 \sigma_{\Delta H}^2 + \sigma_{H_{0,5}}^2}$  bzw. der log. Funktion  $dH_x = \sqrt{\ln(1 - x/x)^2 \sigma_{\Delta H}^2 + \sigma_{H_{0,5}}^2}$



**Abbildung 3.10:** Veränderung der Unsicherheit der 50%-Zerstörschwelle mit wachsender Datenbasis für verschiedene automatisierte Messprozeduren; mittlerer relativer Standardfehler, berechnet aus den Standardfehlern für 10 Auswertepulszahlen von 30 bis 30.000 Pulse, aufgetragen gegen die Anzahl der Testposition auf der Probe, Spitzen im Verlauf stellt Artefakt da.

als beim weiten Raster ab. Das 5%-Niveau für das enge Raster wird bereits bei Position 21 erreicht. Ein vergleichbares Absinken ist für den Datenanzahl-gesteuerten Algorithmus (DA) zu erkennen, allerdings verharrt die mittlere Unsicherheit bei ca. 5%, obwohl die Anzahl der Testpositionen von 20 auf 65 ansteigt. Bei der Verwendung des Standardfehler-gesteuerten Algorithmus (SF) ist zusätzlich zur rapiden Reduktion der Unsicherheit während der ersten 20 Testpositionen ein weitere stetige Verbesserung der statistischen Belastbarkeit für die nachfolgenden Probenorte festzustellen.

Dieser Vergleich verdeutlicht, dass bei einem weiten Raster, wie es für Proben mit unbekanntem Zerstörungsverhalten notwendig wäre, eine große Anzahl von Testpositionen zur Zerstörschwellenbestimmung notwendig ist, um eine hohe Genauigkeit zu erreichen. Ist der interessierende Energiedichtebereich hinreichend bekannt, so ist das enge Raster naturgemäß in Bezug auf Genauigkeit und Effizienz überlegen. Für die in dieser Arbeit entwickelten iterativen Algorithmen ist eine mit dem engen Raster vergleichbare, schnelle Konvergenz festzustellen. Somit kann mit diesen Algorithmen im Vergleich zum Standardverfahren ohne die besondere Kenntnis des Zerstörungsverhaltens ein effizienter Zerstörschwellentest durchgeführt werden. Bei dem DA-Algorithmus kann jedoch z. B. durch ein Driften des Rampenbereichs

der Fall eintreten, dass bei einer ungünstigen Häufung von Messpunkten trotz der großen Datenbasis eine relativ große Unsicherheit verknüpft ist. Dagegen ist beim SF-Algorithmus durch den direkten Zugriff auf den Standardfehler eine zielgerichtete Wahl der Energiedichte gewährleistet.

### 3.4 Parametrisierung der Einflussfaktoren

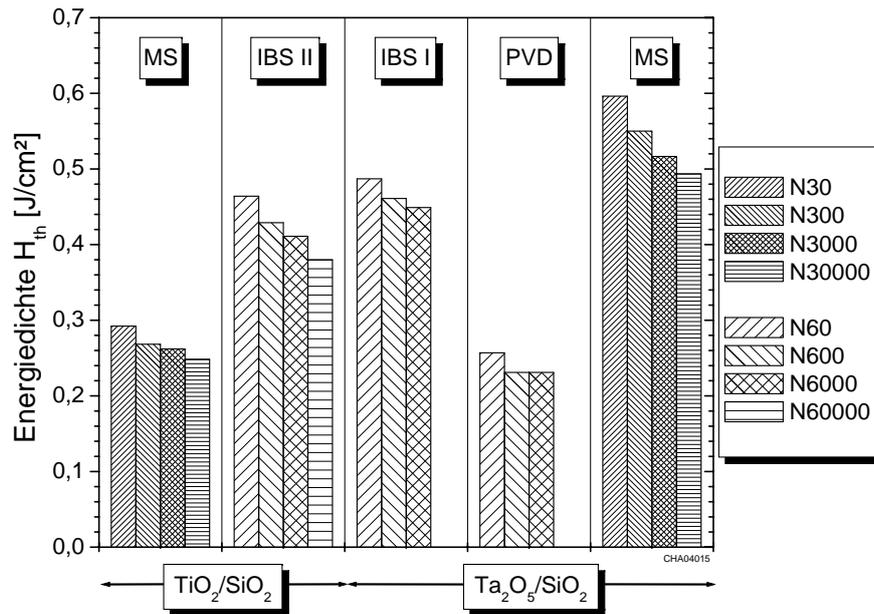
Die Identifizierung und Parametrisierung der Einflussfaktoren auf die laserinduzierte Zerstörschwelle im Bereich ultrakurzer Pulse ist für die Untersuchung der Zerstörphänomene ebenso wie für die Validierung des Normverfahrens unerlässlich. Ein Schwerpunkt dieser Arbeit lag daher auf der Prüfung von anwendungsrelevanten Beschichtungen, an Hand derer der Einfluss von Probenparametern (Beschichtungsmaterialien und -prozesse, optisches Design) und Testparametern (Pulsdauer, Prüfstrahl-Durchmesser, unterbrochene Pulszüge) untersucht wurde. Im Rahmen dieser Arbeit wurden insgesamt rund 130 Optikkomponenten bezüglich ihrer Mehrpuls-Zerstörschwelle im Bereich ultrakurzer Pulse charakterisiert.

Soweit nicht abweichend angegeben, sind die im Folgenden beschriebenen Messungen der Mehrpuls-Zerstörschwelle bei einer Repetitionsrate von 1 kHz und einer Pulsdauer von ca. 150 fs durchgeführt worden. Für die Einstellung des Strahldurchmessers auf der Prüfoberfläche von ca. 90  $\mu\text{m}$  ist ein Achromat mit einer Brennweite von 400 mm verwendet worden.

#### 3.4.1 Beschichtungsmaterialien und -prozesse

Die Wahl eines adäquaten Beschichtungsmaterials und die Optimierung des Beschichtungsprozesses sind für das Erreichen einer hohen Zerstörfestigkeit wesentliche Einflussfaktoren. Dabei ist im Bereich ultrakurzer Laserpulse im Vergleich zu längeren Pulsdauern mit grundlegend verschiedenen Zerstörphänomenen zu rechnen. Für den Fall von ns-Pulsen heizen sich in vielen Fällen die während der Beschichtung eingeschlossenen Partikel bei Laserbeaufschlagung stark auf und führen dort zu einer katastrophalen Aufschmelzung des Schichtsystems [109]. Somit ist die Optimierung des Beschichtungsprozesses bezüglich der Partikelverunreinigung für die Verbesserung der Zerstörfestigkeit eine sinnvolle Strategie. Eine Beeinflussung der Zerstörschwelle durch makroskopische Einschlüsse und Partikel ist für ultrakurze Pulse kaum zu beobachten (siehe Abschn. 3.4.4).

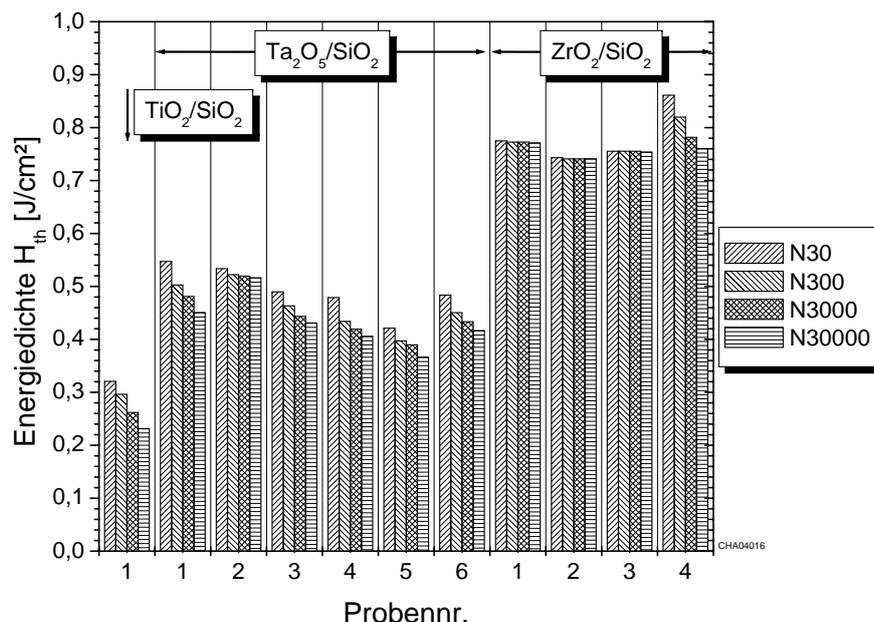
Am Beispiel  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ - und  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Schichtsystemen wurde untersucht, ob eine von der Mikrostruktur hervorgerufene Wirkung auf das Zerstörungsverhalten im Bereich ultrakurzer Pulse identifiziert werden kann. Die in Abbildung 3.11 dargestellten 50%-Zerstörschwellen verdeutlichen, dass für  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$  für beide Sputterprozesse hohe Zerstörschwellen gemessen wurden, während das mittels thermischen Verdampfens aufgebrachte Schichtsystem eine nur etwa halb so hohe Schwelle zeigte. Für die  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegel konnte zwischen den



**Abbildung 3.11:** 50%-Zerstörschwellen von Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub>- und TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>-Standardspiegeln ( $\lambda/4$ -Stapel, AOI 0°) unter Verwendung unterschiedlicher Beschichtungsprozesse (MS: Magnetron-sputtern, PVD: thermisches Verdampfen, IBS: Ionenstrahl-sputtern), Auswertepulszahlen in der Legende.

Sputterprozessen ein deutlicherer Unterschied festgestellt werden, wobei für das Magnetron-sputterte System eine erniedrigte Schwelle gemessen wurde. Dieses Ergebnis könnte ein Indiz für einen negativen Einfluss der Mikrostruktur bei PVD-Schichten (für Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub>) und möglicherweise auch bei MS-Schichten (für TiO<sub>2</sub>/SiO<sub>2</sub>) sein. So könnten in das Schichtgefüge dieser Verfahren hinreichend viele Störstellen und Versetzungen in der Bandstruktur eingefügt worden sein, um eine katastrophale Elektronendichte bereits mit vergleichsweise geringer Energiedichte zu erreichen.

Einen genaueren Einblick in die Materialabhängigkeit konnte durch die Untersuchung eines Probensatzes mit drei unterschiedlichen Materialkombinationen erreicht werden, die mit dem Magnetron-Sputterverfahren realisiert wurden. Die optischen Designs der Umlenkspiegel wurden ausgehend vom Standard- $\lambda/4$ -Stapel geringfügig variiert, um die Lage des Feldstärkemaximums im Schichtsystem zu verändern. Das Ergebnis des Zerstörschwellentests, der unter 45°, p-Pol., durchgeführt wurde, ist in Abbildung 3.12 dargelegt. Offensichtlich hat die Wahl des hochbrechenden Beschichtungsmaterials entscheidenden Einfluss auf die Höhe der Zerstörschwelle und überwiegt bei weitem die Auswirkung des variierten Designs. Das Ergebnis erlaubt eine Klassifizierung der Materialien, wonach sich ZrO<sub>2</sub> gegenüber Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> und TiO<sub>2</sub> für die Herstellung von Beschichtungen in kritischen Bereichen des fs-Lasersystems empfiehlt. Bei dem Vergleich der Zerstörschwelle mit der Größe der Bandlücke (ZrO<sub>2</sub> (Kri-



**Abbildung 3.12:** 50%-Zerstörschwellen von  $TiO_2/SiO_2$ -,  $Ta_2O_5/SiO_2$ - und  $ZrO_2/SiO_2$ -Spiegeln mit leicht variiertem Design (AOI  $45^\circ$ , p-Pol.); jedes Schichtsystem wurde mit dem Magnetron-Sputterverfahren hergestellt.

stall): 5,0 eV [106],  $Ta_2O_5$  (IBS): 3,8 eV,  $TiO_2$ (IBS): 3,3 eV [69]) kann eine eindeutige Abhängigkeit festgestellt werden. Dieses Ergebnis steht im Einklang mit Zerstörschwellenexperimenten von Mero et al. [69] an oxidischen Einzelschichten, für die ebenfalls eine klare Skalierung der Zerstörschwelle mit dem Bandabstand des Dielektrikums ermittelt wurde (s. Abbildung 3.15).

### 3.4.2 Optisches Design

Neben der Wahl der Beschichtungsmaterialien ist das optische Design ein wichtiger Parameter zur Optimierung der Zerstörfestigkeit. Für Hochleistungsfestkörperlaser im ns-Pulsdauerbereich wurde die Verwendung angepasster Designs bereits erfolgreich eingesetzt. Hierbei wurde im Wesentlichen die Feldstärke in besonders sensiblen Bereichen, wie z. B. am Interface zwischen den beiden Schichten zuoberst im Schichtstapel, entweder in ihrer Höhe reduziert oder in andere Bereiche des Stapels verschoben [6, 82]. Aus der Literatur sind typische Steigerungen im Falle von Schutzschichten von 20-40% sowie für Designs mit optimierten Feldstärkeverteilungen von 40% bekannt [106]. Im Rahmen der Publikationen, die das Themenfeld der Ablation dielektrischer Materialien behandeln, wird normalerweise von einem bulkähnlichen, untergrundlosen Substrat ausgegangen. Bei der Propagation ultrakurzer Pulse durch dielektrische Schichtsysteme müssen dagegen Interferenzeffekte im Dielektrikum durch Fresnel-Reflexionen berücksichtigt werden. Um den Einfluss des opti-

schen Designs auf die fs-Zerstörschwelle näher zu untersuchen, wurden im Rahmen dieser Arbeit verschiedene Modellschichtsysteme hergestellt und charakterisiert, von denen die Modelle variiertes Feldstärke vorgestellt werden sollen.

Das Ziel der Modellschichtsysteme ist es, innerhalb des Probensatzes die maximale im Schichtsystem vorherrschende Feldstärke zu parametrisieren. Um den Einfluss der Mikrostruktur zu minimieren, wurde das Modellschichtsystem mit dem IBS-Verfahren aus  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Schichten realisiert. Die variierte Feldstärkenüberhöhung wird in einem ersten Probensatz durch eine  $\text{SiO}_2$ -Spacerschicht erreicht, deren Dicke zwischen 2L und 1L liegt (X) und unter einer H-Deckschicht lokalisiert ist<sup>16</sup> (S(HL)<sup>8</sup> H XL H). In einem zweiten Satz, ebenfalls mit Spacerschicht, wird die Dicke der Deckschicht variiert (S(HL)<sup>8</sup> H 2L XH). Beide Sätze sind durch das 2L1H-System verbunden. Das 1L1H-System ist äquivalent zu einem Standardspiegel aus  $\lambda/4$ -Schichten.

Im ersten Satz verlagert sich das Maximum der Feldstärke mit sinkender Spacerdicke von der Mitte des  $\text{SiO}_2$ -Spacers hin zum ersten Interface, im zweiten ist das Maximum der Feldstärke für jede Probe in der Mitte des Spacers lokalisiert. Die erreichte Variation der maximalen Feldstärke im Spacer ist im oberen Teil und die gemessenen Zerstörschwellen im unteren Teil von Abbildung 3.13 dargestellt. Zum Vergleich ist außerdem die maximale Feldstärke im  $\text{TiO}_2$  angegeben, welche für den 1L-Spiegel im ersten Interface und für jede weitere Probe im dritten Interface erreicht wird. Die dargestellten Ergebnisse zeigen, dass eine höhere maximale Feldstärke im Schichtstapel mit einer deutlich niedrigeren Zerstörschwelle verknüpft ist. Dieser Effekt wird sowohl für den Probensatz mit variabler Position des Feldstärkemaximums als auch für den Satz mit fester Position in der Mitte des Spacers beobachtet<sup>17</sup>.

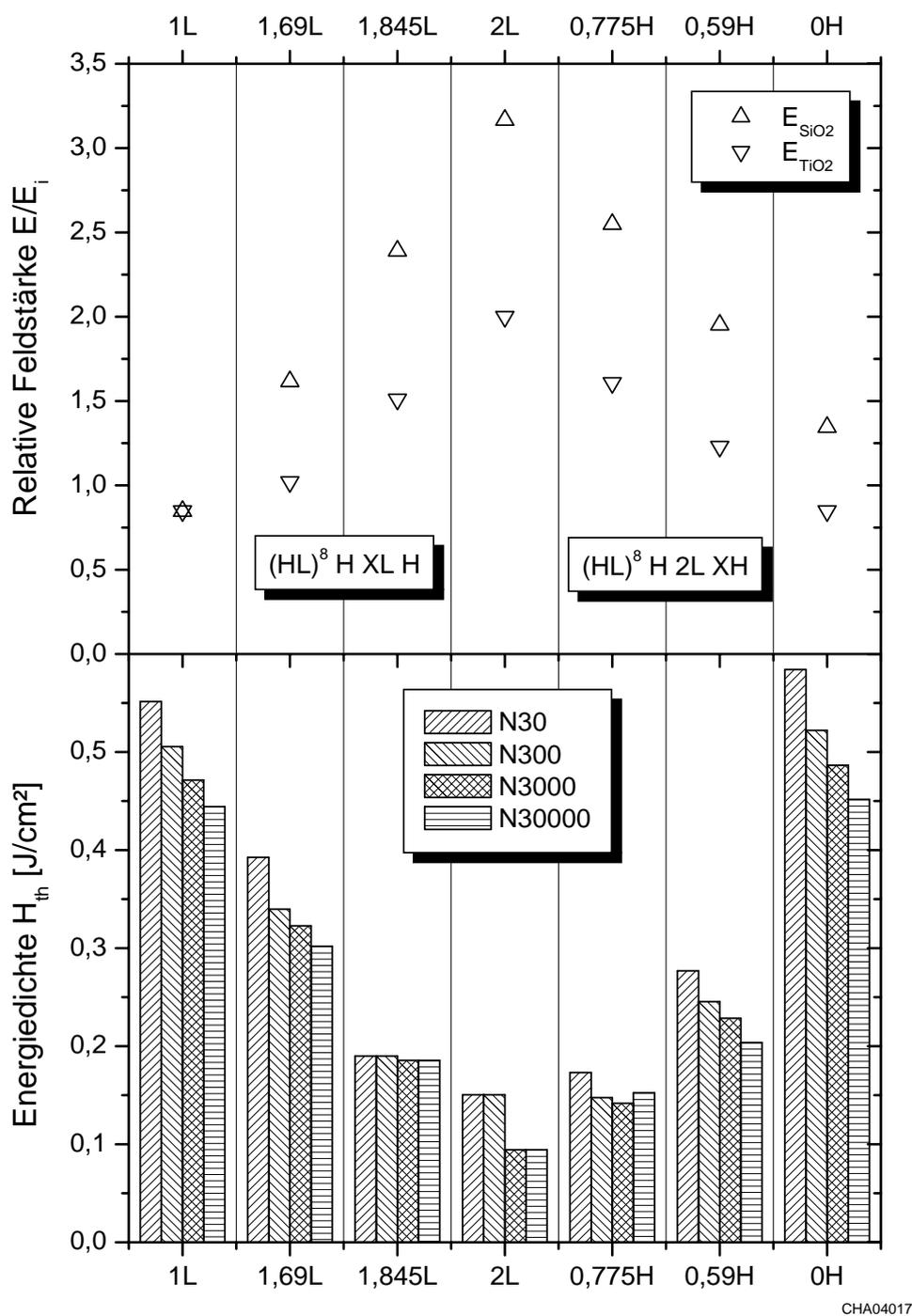
Zur näheren Untersuchung der Skalierung ist in Abbildung 3.14 das Produkt aus den Zerstörschwellenwerten für  $N = 30.000$  und dem Feldstärkequadrat  $q = (E/E_i)^2$  für die Proben der Modellsysteme dargestellt. Hierbei sind jeweils die Produkte bezüglich der Feldstärke in  $\text{SiO}_2$  bzw.  $\text{TiO}_2$  aufgetragen.

Für die maximale Feldstärke in  $\text{TiO}_2$  kann über sämtliche Schichtsysteme des Probensatzes ein näherungsweise konstanter Wert des Produktes beobachtet werden. Die relative Schwankung der Messwerte um den gemeinsamen Mittelwert von  $0,35 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  beträgt ca. 13%. Bei der Betrachtung der maximalen Feldstärke in  $\text{SiO}_2$  kann, mit Ausnahme des Standardspiegels 1L, ein vergleichbares konstantes Niveau für das Produkt ermittelt werden. Unter Vernachlässigung der 1L-Probe kann hier als Mittelwert von  $0,9 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  und als relative Schwankung eben-

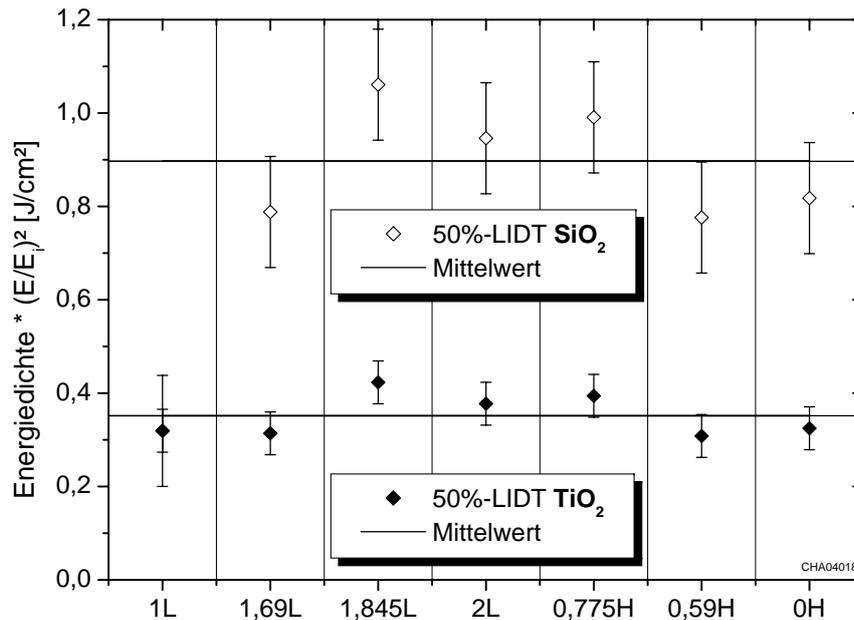
---

<sup>16</sup>Diese Notation bezeichnet mit H bzw. L eine hoch- bzw. niedrigbrechende Schicht der optischen Dicke  $\lambda/4$  und S die Position des Substrates.

<sup>17</sup>In einer früheren Messreihe zeigte ein analog aufgebauter Probensatz ein uneinheitliches Zerstörungsverhalten. Als Grund für die abweichenden Resultate werden unterschiedliche Bedingungen bei der Probenpräparation vermutet. Während für den dargestellten Probensatz jede Probe in einer einzelnen Charge beschichtet wurde, ist der vorangehende Probensatz unter mehrfachen Zwischenbelüften hergestellt worden.



**Abbildung 3.13:** 50%-Zerstörschwellen der  $TiO_2/SiO_2$ -Spiegel (IBS, AOI  $0^\circ$ ) der Feldstärke-Modellsysteme; Proben links: Variation der Dicke des L-Spacers, Proben rechts: Variation der Dicke der H-Deckschicht; Auswertepulzzahlen in der Legende. Maximale Feldstärke im Schichtsystem  $E$  für  $SiO_2$  und  $TiO_2$  bezogen auf die Feldstärke  $E_i$  der einfallenden Welle.

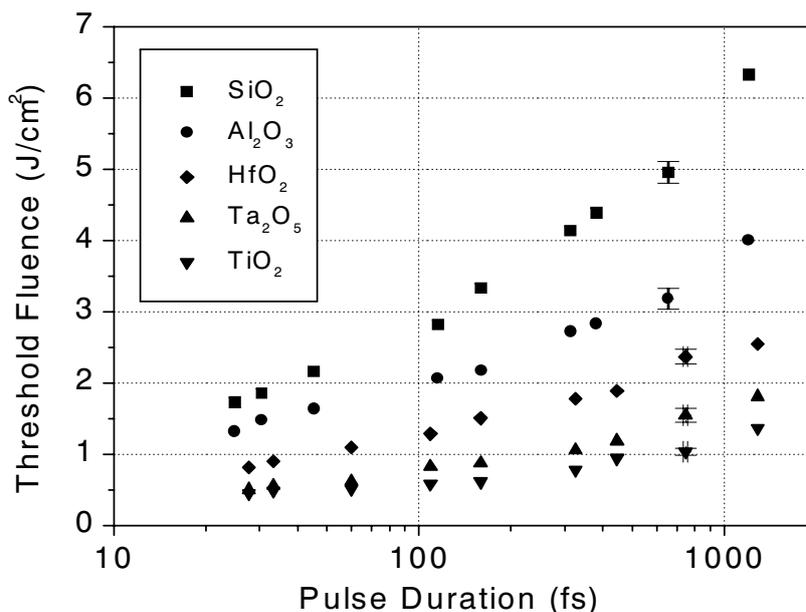


**Abbildung 3.14:** Produkt aus 50%-Zerstörschwelle (Auswertepulszahl  $N = 30.000$ ) und dem Quadrat der relativen Feldstärke  $q = (E/E_i)^2$  (oben: in SiO<sub>2</sub>, unten: in TiO<sub>2</sub>) für die Proben der Modellschichtsysteme (Werte für Probe 1L identisch); Linien und Fehlerbalken: Mittelwerte und Standardabweichungen (oben: unter Vernachlässigung von Probe 1L).

falls 13% angegeben werden. Die Streuung der Messwerte bewegt sich demnach für beide Auswertungen im Bereich der Reproduzierbarkeit der Messmethode.

Diese Ergebnisse belegen, dass wie bereits von Jasapara et al. beschrieben [44] im Rahmen der Messgenauigkeit auch für dieses Modellsystem eine Skalierung der Zerstörschwelle mit dem Quadrat der maximalen Feldstärke  $E$ , d. h. mit der Leistungsdichte  $I \propto E^2$  vorliegt. Die Beobachtungen legen die Vermutung nahe, dass trotz der weitaus höheren Feldstärke im SiO<sub>2</sub>-Spacer die Zerstörung in der TiO<sub>2</sub>-Schicht mit der größten Feldstärke initiiert wird. Diese Vermutung wird von den in Abbildung 3.15 dargestellten Resultaten unterstützt, die die Abhängigkeit des Zerstörungsverhaltens von dem verwendeten Beschichtungsmaterial beschreibt. Während die Zerstörschwelle von SiO<sub>2</sub>-Einzelschichten um mehr als einen Faktor 3 höher als der Wert für TiO<sub>2</sub> liegt, beträgt der Unterschied bzgl. des Feldstärkequadrats lediglich etwa 2,6. Dadurch übersteigt die Materialabhängigkeit der Zerstörschwelle den Effekt, der durch die Feldstärkeüberhöhung im Schichtsystem ausgelöst wird.

Dieses Ergebnis verdeutlicht, dass Strategien zur Optimierung der Feldstärkeverteilung, bei denen die Feldstärke im Material mit niedriger Bandkante minimiert wird, ebenfalls für den Bereich ultrakurzer Pulse Erfolg versprechend erscheinen.

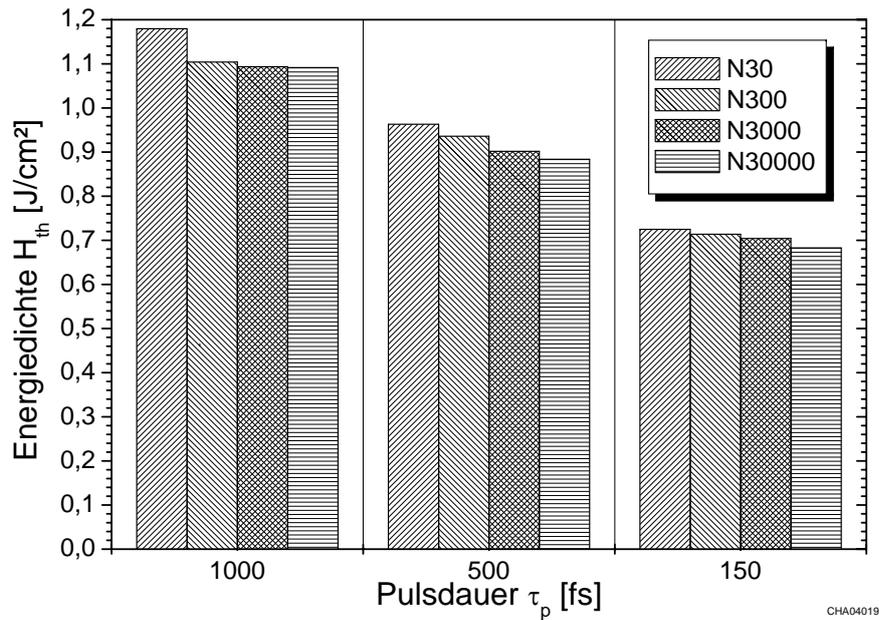


**Abbildung 3.15:** Einzelpulszerstörschwelle als Funktion der Pulsdauer (FWHM) für TiO<sub>2</sub>, Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>, HfO<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> und SiO<sub>2</sub>-Schichten (IBS) (aus [69]).

### 3.4.3 Pulsdauer

Während der Entwicklung der Zerstörschwellennorm ISO 11254 hatte sich die Pulsdauer als jener Testparameter herausgestellt, der wesentlichen Einfluss auf die Zerstörschwelle hat. So konnte in Vergleichsexperimenten z. B. für Q-switch-Lasersysteme in einem weiten Pulsdauerbereich eine  $\sqrt{\tau_p}$ -Beziehung zwischen Zerstörschwelle und Pulsdauer identifiziert werden [109]. Für den Bereich ultrakurzer Pulse hinunter bis zu wenigen 10 fs deuten zahlreiche Untersuchungen von dielektrischen Bulkmaterialien ebenfalls auf ein deutliches Absinken der Zerstörschwelle mit kürzerer Pulsdauer hin (z. B. in [74, 97]). Bezüglich der Zerstörschwelle von oxidische IBS-Einzelschichten für Pulsdauern zwischen 25 fs und 1 ps sind von Mero et al. [69] umfangreiche Messergebnisse publiziert worden, die in Abbildung 3.15 dargestellt sind. Neben der bereits in Abschnitt 3.4.1 beschriebenen Korrelation zwischen Zerstörschwelle und Bandabstand ist für jedes untersuchte Material eine stetige Abnahme der Zerstörschwelle mit der Pulsdauer festzustellen.

Inwieweit die Mehrpuls-Zerstörschwelle von der Pulsdauer beeinflusst wird, ist im Rahmen dieser Arbeit am Beispiel dielektrischer Umlenkspiegel mit Standarddesign, die mit dem Magnetron-Sputterprozess aus Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>/SiO<sub>2</sub> hergestellt wurden, für drei unterschiedliche Pulsdauern untersucht worden. Das Verhalten der Zerstörschwelle mit der Pulsdauer wird in Abbildung 3.16 demonstriert. Für die dielektrischen Umlenkspiegel ist analog zu den Einzelschichten eine stetige Abnahme festzustellen. Die Veränderung der Zerstörschwelle mit der Pulszahl ist für diesen Probensatz mit weniger als 10% eher gering und offenbar



**Abbildung 3.16:** 50%-Zerstörschwellen von Magnetron-gesputterten  $Ta_2O_5/SiO_2$ -Umlenkspiegeln für drei verschiedene Pulsdauerwerten ( $\tau_p=1$  ps, 500 fs und 150 fs), gemessen unter AOI  $45^\circ$ , p-Pol.; Auswertepulszahlen in der Legende.

nicht signifikant von der Pulsdauer abhängig. Eine ähnliche Abnahme der Zerstörschwelle ist für einen  $Ta_2O_5/SiO_2$ -Spiegel unter  $0^\circ$  Einfallswinkel beobachtet worden [45] und bestätigt somit das Zerstörungsverhalten für einen Umlenkspiegel der gleichen Materialkombination.

### 3.4.4 Durchmesser des Prüfstrahls

Neben der Pulsdauer ist der Strahldurchmesser auf der Probenoberfläche ein weiterer wichtiger Testparameter, dessen Einfluss im Bereich ultrakurzer Laserpulse für die Validierung des Messverfahrens untersucht wurde. Für längere Pulsdauern ist ein solcher Einfluss identifiziert worden, der im Wesentlichen auf der dominierenden Wirkung von Einschlüssen und Partikeln in der Beschichtung basiert [109]. Die Durchmesserabhängigkeit beruht auf der statistischen Wahrscheinlichkeit, dass in der bestrahlten Fläche wenigstens ein Einschluss lokalisiert ist, von dem die Zerstörung ausgelöst wird. Weiterhin können ebenfalls Wärmeleitungseffekte in dem Schichtsystem zu einer Abhängigkeit der Zerstörschwelle vom Prüfstrahldurchmesser führen.

Der maximal in einer Zerstörschwellenapparatur zu verwendende Strahldurchmesser ist im Wesentlichen durch die Leistungsfähigkeit des Lasersystems begrenzt. Die erreichbare Energiedichte muss hinreichend groß sein, um die Komponente sicher beschädigen zu können. Die Verwendung eines kleinen Testdurchmessers ist auf Grund der Verknüpfung von Fokussie-

rung und Rayleigh-Länge problematisch, da der Strahldurchmesser auf der Probenoberfläche präzise bekannt sein muss. Im Falle von Strahldurchmessern im Bereich 10  $\mu\text{m}$  und weniger sollte die Probenpositionierung durch Autofokus-Sensoren unterstützt werden [94].

Im Bereich der Zerstörschwellenmessung mit ultrakurzen Laserpulsen zeigt sich für die Abhängigkeit vom Strahldurchmesser in der Literatur kein einheitliches Bild. Die am Beispiel von Quarz durchgeführten Zerstörschwellenuntersuchungen von Stuart et al. [98] liefern bei  $\lambda_0 = 1053 \text{ nm}$  und  $\tau_p = 400 \text{ fs}$  für den Strahldurchmesserbereich von 0,5 mm bis 1,0 mm lediglich eine geringe Variation der Zerstörschwelle von maximal 5%. Dem gegenüber wird für Dentin bei einer Pulsdauer von 130 fs eine durch thermische Akkumulation bedingte Spotgrößenabhängigkeit berichtet [51]. Weiterhin ist für BBS-Glas<sup>18</sup> bei der Verwendung von 30 fs-Pulsen ermittelt worden, dass die Vergrößerung des Strahldurchmessers von 50 auf 850  $\mu\text{m}$  eine Verringerung der Ablationsschwelle von  $1,0 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  auf  $0,2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  [64] bewirkt. Die Spotgrößenabhängigkeit konnte qualitativ mit einem Modell beschrieben werden, das eine einschussinduzierte Zerstörung zu Grunde legt.

Um die Spotgrößenabhängigkeit am Beispiel eines dielektrischen  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegels zu untersuchen, wurden vier verschiedene Achromate mit Brennweiten zwischen 300 mm und 1330 mm verwendet. Die Dicke der Achromate sowie die aufgebrauchte Antireflexbeschichtung waren im Wesentlichen gleich. Mit diesen Fokussierelementen konnten  $1/e^2$ -Strahldurchmesser zwischen 80 und 310  $\mu\text{m}$  realisiert werden<sup>19</sup>. Die maximale Pulszahl pro Prüfort betrug 120.000 Pulse bei einer Repetitionsrate von 1 kHz. Die 50%-Zerstörschwellenwerte sind für verschiedene Auswertepulszahlen in Abbildung 3.17 dargestellt. Für die drei kleineren Strahldurchmesser liegen die Zerstörschwellen auf einem vergleichbaren Niveau. Lediglich für den mit 310  $\mu\text{m}$  größten Strahldurchmesser im Test wurde eine geringfügig kleinere Zerstörschwelle festgestellt. Diese Abweichung ist aber in Anbetracht des Fehlerbudgets von etwa 20%, der mit der Bestimmung des Strahldurchmessers von typischerweise 10% verknüpft ist (s. Abschn. 3.3.2), nicht signifikant. Diese Ergebnisse zeigen, dass die Größe des Strahldurchmessers für diesen Probenotyp bei der Verwendung ultrakurzer Pulse im untersuchten Durchmesserbereich einen zu vernachlässigenden Effekt auf die Zerstörschwelle darstellt.

### 3.4.5 Bestrahlung mit unterbrochenen Pulszügen

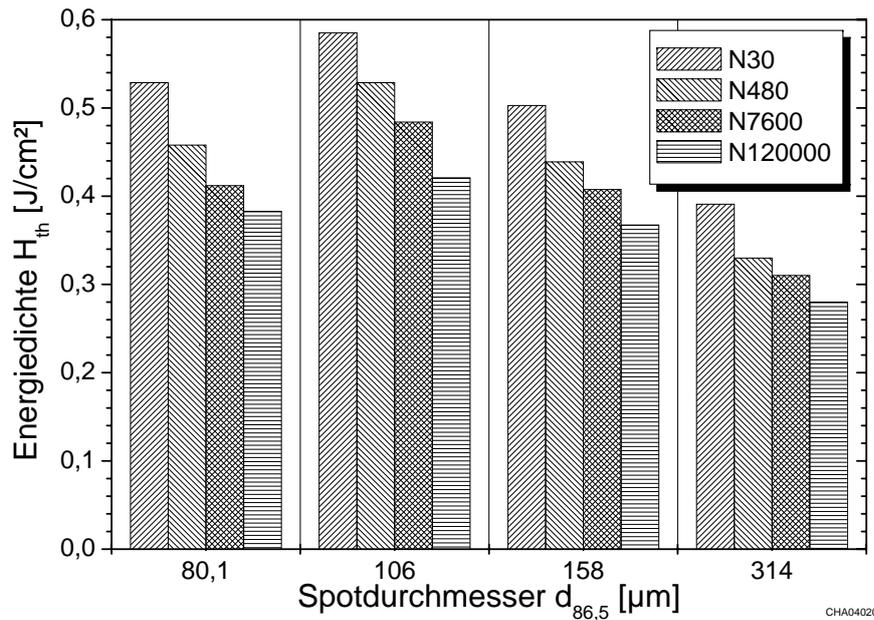
Bei der Bestrahlung von Dielektrika mit einer Vielzahl von ultrakurzen Laserpulsen ist von verschiedenen Forschungsgruppen einhellig der Effekt der Akkumulation<sup>20</sup>, d. h. der nega-

---

<sup>18</sup>Barium-Borsilikatglas (Corning 7059)

<sup>19</sup>Für noch größere Strahldurchmesser wäre mit dem verwendeten CPA-System keine Zerstörung erreichbar gewesen.

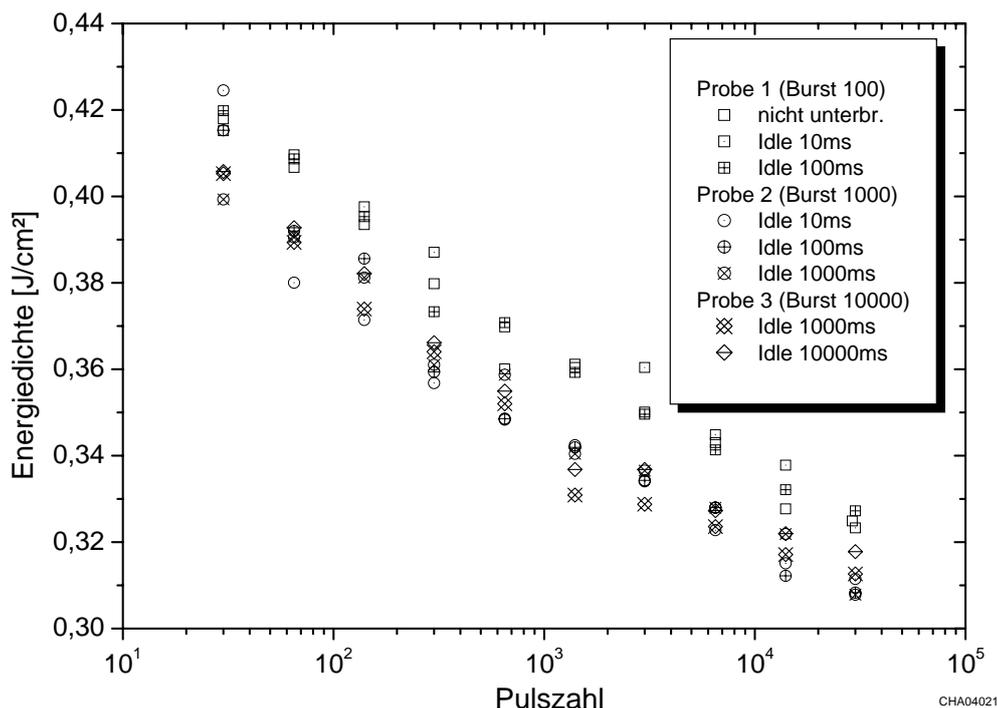
<sup>20</sup>In der Literatur wird alternativ der Begriff Inkubation verwendet.



**Abbildung 3.17:** 50%-Zerstörschwellen von Ionenstrahl-gesputterten  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Standardspiegeln in Abhängigkeit vom  $1/e^2$ -Strahldurchmesser  $d_{86,5}$  am Prüfort (AOI  $0^\circ$ ); Auswertepulszahlen in der Legende.

tiven Konditionierung durch wiederholte Bestrahlung, beschrieben worden. Wie in dieser Arbeit vielfach demonstriert, hat dieser Effekt zur Folge, dass die Zerstörschwelle mit der Anzahl von Bestrahlungspulsen stetig sinkt. Bei keiner der in dieser Arbeit untersuchten Proben konnte eine signifikante, durch eine hinreichende Datenbasis gesicherte Abweichung von diesem streng monotonen Verhalten identifiziert werden. Als Ursache für die Akkumulation im Bereich ultrakurzer Laserpulse wird zumeist die Bildung von stabilen oder transienten Farbzentren vermutet. So sank für einen Ionenstrahl-gesputterten  $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ -Spiegel die Ablationschwelle von  $0,61 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  auf  $0,36 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ , als die Repetitionsrate von 10 Hz auf 1 kHz erhöht wurde [13], was auf die Bildung von transienten Farbzentren zurückgeführt wurde. Eine kumulative thermische Beeinflussung, wie sie für Dentin beobachtet wurde [51], konnte bei dieser Untersuchung jedoch nicht ausgeschlossen werden. Des Weiteren wurde bei Zerstörschwellenuntersuchungen von  $\text{SiO}_2$  mit Doppelpulsen in *pump-probe*-Konfiguration beobachtet, dass der unterhalb der Schwellenenergie liegende Pumpimpuls eine Erniedrigung der Zerstörschwelle für den nachfolgenden Puls in Folge einer residualen Leitungsbandpopulation bewirkt [58].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde analysiert, ob permanente oder transiente Effekte das Auftreten von Akkumulation in der vielfach verwendeten Materialkombination  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$  auslösen. Um einen zusätzlichen Einfluss der Repetitionsrate auf das Zerstörungsverhalten, wie z. B. durch eine ratenabhängige Anregung von Oberflächenwellen und daraus resultie-



**Abbildung 3.18:** 50%-Zerstörschwellen von Ionenstrahl-gesputterten  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Standardspiegeln für verschiedene *burst*- und *idle*-Zeiten in Abhängigkeit der Pulszahl; Bestrahlung der Proben mit 100 bis 10.000 Pulsen pro *burst*, Variation der *idle*-Zeiten (in Millisekunden) wie in der Legende angegeben; Probe 1 (nicht unterbr.): Vergleichsmessung mit ununterbrochener Bestrahlung.

render Stressinduktion, zu vermeiden, wurde diese Untersuchung bei einer festen Rate von 1 kHz durchgeführt. Daher wurde für die Einstellung unterschiedlicher Relaxationszeiten der Ansatz der unterbrochenen Pulszüge gewählt. Hierbei wird der Pulszug mit  $S = 30.000$  Pulsen in unterschiedlich lange Pulssalven- (*burst*) und Pausenabschnitte (*idle*) unterteilt. Die Steuerung der Bestrahlung in *burst*- und *idle*-Zeiten wurde in das Mess- und Auswertungsprogramm integriert, so dass bei dem Auftreten von Zerstörung die relevante Anzahl von *burst*-Pulsen durch Aufsummierung ermittelt werden kann. Diese Untersuchung wurde an drei  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegeln aus der gleichen Beschichtungscharge durchgeführt, wobei die Pulsdauer ca. 150 fs und der Teststrahldurchmesser  $120 \mu\text{m}$  betrug. Die Testoberfläche wurde so eingeteilt, dass für jede Probe eine feste *burst*-Zeit und drei unterschiedliche *idle*-Zeiten eingestellt werden konnten.

Das Ergebnis dieses Experiments ist in Abbildung 3.18 dargelegt. Aus der Darstellung wird offenbar, dass die charakteristischen Zerstörungskurven aller drei Proben im Rahmen der Messreproduzierbarkeit übereinander liegen. Für keine der eingestellten *burst*- und *idle*-Zeiten ist eine signifikante Abweichung von der gleichartigen Abnahme der Zerstörschwelle

mit der Pulszahl zu erkennen. Die mit Probe 1 realisierten Extremfälle von 100 *burst*-Pulsen mit 100 ms Wartezeit und ununterbrochener Bestrahlung mit  $S = 30.000$  Pulsen zeigen das gleiche Zerstörungsverhalten.

Offensichtlich haben *idle*-Zeiten zwischen 10 ms bis 10 s keinen erkennbaren Effekt auf die Akkumulation bei diesem Probenotyp. Das „Gedächtnis“ der Beschichtung über die vorangegangenen Pulse bleibt innerhalb dieses Zeitbereichs erhalten. Ein transienter Einfluss, wie z. B. der Erwärmung des Materials sowie der Bildung von kurzlebigen Farbzentren, spielt für diese Materialkombination offenbar keine Rolle. Vielmehr bekräftigt dieses Experiment die Vermutung, dass die Akkumulation durch die mit der Pulszahl zunehmende Bildung von permanenten Farbzentren ausgelöst wird. Diese Fehlstellen produzieren zu einem frühen Zeitpunkt im zeitlichen Pulsverlauf eine hinreichend große Anzahl von freien Ladungsträgern, so dass auch bei einer niedrigeren Energiedichte als der theoretischen Zerstörschwelle die kritischen Elektronendichte erreicht wird.

### 3.5 Evaluierung der Standardisierbarkeit

Im Folgenden soll die Einsetzbarkeit des Messstandards ISO 11254 im Bereich ultrakurzer Pulse an Hand der in diesem Kapitel dargelegten experimentellen Befunde diskutiert werden. Zunächst ist festzustellen, dass eine experimentelle Umsetzung des Messkonzeptes wie in Abbildung 3.1 dargestellt, insbesondere für moderne CPA-Lasersysteme, mit den folgenden Einschränkungen möglich ist.

Erstens sollten Achromaten als Fokussierelemente bevorzugt werden, um mögliche Wellenfront- und Pulsdeformationen zu vermeiden. Zweitens muss wegen der relativ kleinen  $1/e^2$ - Strahldurchmesser von typischerweise 100  $\mu\text{m}$  der Einsatz von entsprechend hochauflösenden Kamerasystemen für die Strahlprofilmessung gefordert werden. Bei der Anwendung des alternativen Klängenverfahrens ist eine hohe Abschwächung unverzichtbar, um eine Ablation des Klängenmaterials zu verhindern. Dagegen führte der Verzicht auf eine online-Kontrolle des Strahlprofils für das vorgestellte Lasersystem nicht zu wesentlichen Problemen, da bei dem beschriebenen Zerstörschwellenmessaufbau die Stabilität des Lasersystems bzgl. Strahllage und -divergenz hinreichend war.

Ein schwerwiegendes Problem stellt die unzureichende online-Zerstörungsdetektion für transmittierende Proben dar. Durch die Selbstfokussierungseffekte treten im Bulk mikroskopisch kleine Tiefenzerstörungen auf, von denen kaum Streuung ausgeht und daher mit der vorliegenden Zerstörungsdetektion schwierig nachzuweisen sind. Diesem Problem kann mit dem, allerdings wenig effizienten, vereinfachten Messprotokoll begegnet werden. Bei einer Weiterentwicklung des Messaufbaus wird die mikroskopunterstützte Zerstördetektion unvermeidbar sein.

Da die experimentellen Resultate einen deutlichen Einfluss der Pulsdauer auf die Zerstörschwelle zeigen, ist die präzise Messung und Angabe dieses Parameters erforderlich. Dagegen wirkt sich auf Grund der geringen Abhängigkeit vom Strahldurchmesser, die auf intrinsische Zerstörmechanismen zurückzuführen ist, die Wahl von geringeren Spotgrößen als 0,2 mm offenbar nicht auf die Zerstörschwellenmessung aus.

Im Zuge der Untersuchung einer Vielzahl unterschiedlicher beschichteter und unbeschichteter Komponenten konnte das Mehrpuls-Zerstörverhalten mit der Formel 3.7 hinreichend gut beschrieben werden. Eine Extrapolation auf Pulszahl  $\infty$  war allerdings in den seltensten Fällen möglich, da der Testhorizont, der typischerweise zwischen 30.000 und 120.000 Pulsen gewählt wurde, zur Identifizierung einer Sättigung nicht ausreichte.

Im Rahmen von zwei Vergleichsexperimenten wurde geprüft, ob die von verschiedenen Institutionen ermittelten Zerstörschwellen übereinstimmen. In einem frühen Experiment konnte bei der Verwendung von Standardspiegeln eine gute Übereinstimmung der Werte festgestellt werden, obwohl unterschiedliche Messverfahren gewählt wurden [14]. Im Rahmen eines zur Zeit noch laufenden, internationalen Round-Robin-Experiments mit sieben beteiligten Partnern zeichnet sich für Standard- und Pumpspiegel eine ebenfalls gute Übereinstimmung bei der Charakterisierung des Mehrpuls-Zerstörungsverhaltens ab. Im Gegensatz dazu sind erhebliche Unterschiede bei Antireflexbeschichtungen aufgetreten, die im Wesentlichen auf unzureichende Zerstörungsdetektion zurückzuführen sind [96].

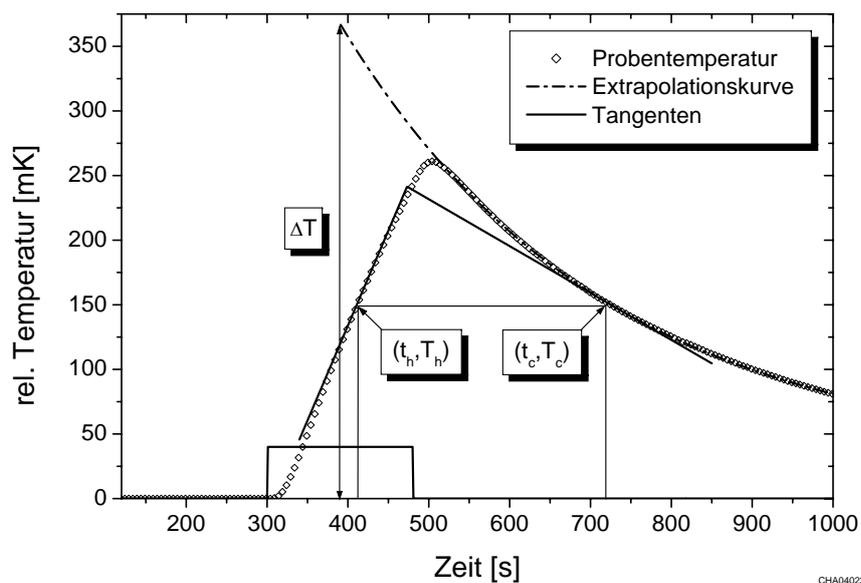
# Kapitel 4

## Laserkalorimetrische Absorptionsmessung

Optische Verluste von Laserkomponenten stellen bedeutende limitierende Faktoren bei der Erzeugung und Führung von Laserstrahlung dar, die in erheblichem Maße die Effizienz und Stabilität des Lasersystems beeinflussen. So setzen die in Resonatoren durch Absorption und Streuung hervorgerufenen Verluste der Steigerung der Ausgangsleistung von Lasersystemen generell enge Grenzen. Daher ist insbesondere für die Entwicklung von Hochleistungslasern im Nah-Infrarotbereich die Charakterisierung des Absorptionsverhaltens von hoher Bedeutung. Weiterhin kann sich die Absorption in optischen Komponenten, z. B. bei denen besondere Formtreue gefordert wird oder sich signifikante thermisch induzierter Brechungsindexvariationen ausbilden können, in erheblichem Maße negativ auf deren Funktion auswirken.

Im Bereich ultrakurzer Laserpulse sind Absorptionsmessungen im Rahmen von *pump-probe* Experimenten durchgeführt worden, die das Absorptionsverhalten des Dielektrikums nach der Einstrahlung des Pulses optisch [9, 69, 84] bzw. photoakustisch [47] charakterisieren. Eine direkte Messung der Absorption im Sinne des Standards ISO 11551 [41] von Dielektrika mit ultrakurzen Pulsen mittels Laserkalorimetrie ist von anderen Gruppen bislang nicht publiziert worden. Bis in die jüngste Vergangenheit hinein bestand Unklarheit über einen möglichen nichtlinearen Anstieg der Absorption bei genügend hoher Leistungsdichte. Daher wurde im Rahmen dieser Arbeit eruiert, ob bereits bei praxisrelevanten Pulsdauern um 150 fs nichtlineare Beiträge zur Absorption berücksichtigt werden müssen.

Im folgenden Kapitel wird das Standardverfahren zur Messung des Absorptionsgrades von optischen Komponenten nach ISO 11551 vorgestellt, welches auf dem Prinzip der Laserkalorimetrie basiert. Anschließend wird die experimentelle Umsetzung des Konzepts mit einer UKP-Strahlquelle beschrieben und wesentliche Eigenschaften der Messapparatur wie Kalibrierbarkeit und Empfindlichkeit geprüft. Weiterhin werden Resultate aus Absorptions-



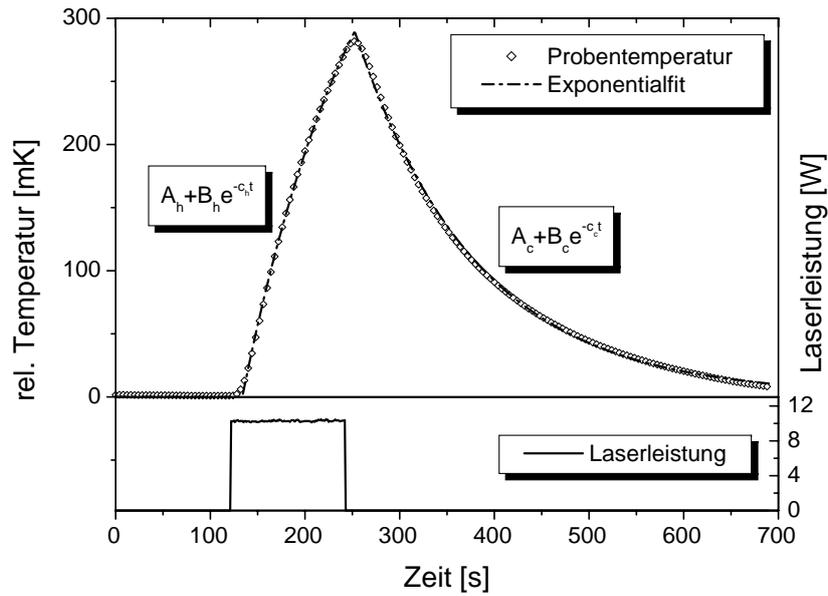
**Abbildung 4.1:** Auswertung laserkalorimetrischer Absorptionsmessungen mittels Standardverfahren; Pulsverfahren: Extrapolation der Abkühlkurve auf Mitte der Aufheizphase, Steigungsverfahren: Tangentialanpassung für gleiche Temperatur in Aufheiz- und Abkühlphase.

messungen an Modellschichtsystemen vorgestellt, die der Prüfung der Einsetzbarkeit des Messstandards im Bereich ultrakurzer Pulse dienen. Die Größe der hierbei identifizierten Nichtlinearität des Absorptionsgrades wird in Zusammenhang mit den theoretischen Modellen aus Kapitel 2 diskutiert.

## 4.1 Absorptionsmessung nach ISO 11551

Die Laserkalorimetrie gilt seit langem als präzise Methode zur Charakterisierung des Absorptionsgrades von optischen Komponenten [3, 78]. Auf Grund des vergleichsweise simplen Messprinzips und vor allem wegen der absoluten Kalibrierbarkeit ist dieses Messverfahren als Standardverfahren gewählt worden. Das Verfahren basiert auf der Erwärmung eines Prüfobjekts mittels Laserbestrahlung und der Bestimmung des Absorptionsgrades aus dem Temperaturverlauf, der während der Aufheiz- und Abkühlphase aufgenommen wird. Hierfür befindet sich die Probe in einem Halter, in dem Temperatursensoren integriert sind. Nach der Auftragung des Probestemperatursignals über der Zeit kann mit zwei unterschiedlichen Auswerteverfahren der Absorptionsgrad extrapoliert werden, die in Abbildung 4.1 skizziert sind.

Bei dem sog. Pulsverfahren wird die Abkühlkurve auf den Zeitpunkt in der Mitte der Aufheizphase extrapoliert. Die hierbei ermittelte Temperatur  $\Delta T$  entspricht dann dem analogen Fall



CHA04023

**Abbildung 4.2:** Auswertung laserkalorimetrischer Absorptionsmessungen mit dem Exponentialverfahren.

der Einstrahlung der gesamten Energiemenge  $P \cdot t_B$  zum Zeitpunkt  $t_1 + \frac{t_B}{2}$ , wobei  $t_B = t_2 - t_1$  die Bestrahlungsdauer und  $P$  die Durchschnittsleistung bezeichnet. Unter Berücksichtigung der Wärmekapazitäten von Probe und Halter ( $m_i c_{p,i}$ ) berechnet sich der Absorptionsgrad nach:

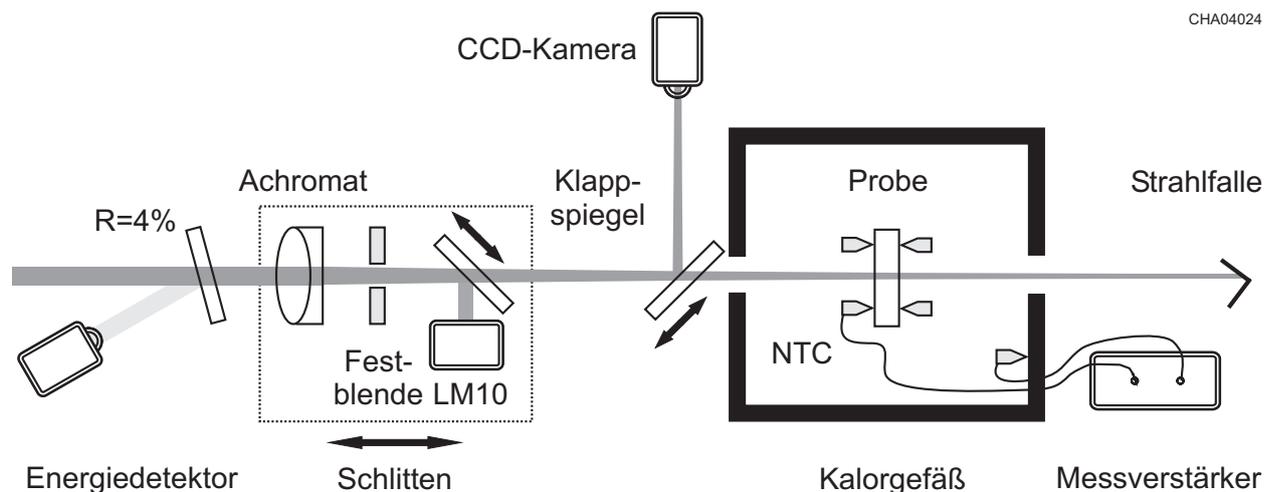
$$\alpha = \frac{(\Delta T - T(t_1)) \sum_i m_i c_{p,i}}{t_B P}. \quad (4.1)$$

Falls auf Grund geringer verfügbarer Laserleistung lediglich ein kleiner Temperaturanstieg induziert werden kann, ist eine Auswertung nach dem sog. Steigungsverfahren sinnvoll. Hierbei wird an einem in der Aufheizphase liegenden Zeitpunkt ( $t_h \approx t_1 + 0,8t_B$ ,  $T_h = T(t_h)$ ) die Steigung der Temperaturkurve bestimmt. Dies wird ebenfalls für den Zeitpunkt der Abkühlkurve durchgeführt, bei der die gleiche Temperatur erreicht wird ( $t_c > t_2$ ,  $T_c = T(t_c) = T_h$ ). Der Absorptionsgrad entspricht dann:

$$\alpha = \frac{\sum_i m_i c_{p,i}}{P} \left( \left| \frac{dT}{dt} \right|_{t_h} + \left| \frac{dT}{dt} \right|_{t_c} \right). \quad (4.2)$$

Neben diesen in der Norm beschriebenen Methoden hat sich in den letzten Jahren das sog. Exponentialverfahren [108] als ein weiteres Auswerteverfahren etabliert, das in Abbildung 4.2 skizziert ist. Dieses Verfahren basiert auf der Anpassung von exponentiellen Temperaturverläufen während der Probenheizung und -abkühlung, wenn von dem Idealfall einer homogenen Proben-temperatur ausgegangen wird<sup>1</sup>. Der Temperaturverlauf wird durch den

<sup>1</sup>Die thermische Diffusivität und damit die Ausprägung eines lateralen Temperaturprofils hat im Allgemei-



**Abbildung 4.3:** Apparatur zur laserkalorimetrischen Messung des Absorptionsgrades.

folgenden Ausdruck beschrieben:

$$T(t) = \frac{\alpha P}{\gamma \sum_i m_i c_{p,i}} \begin{cases} 0 & \text{für } t < t_1 \\ 1 - e^{-\gamma(t-t_1)} & \text{für } t_1 < t < t_2 \\ (1 - e^{-\gamma(t_2-t_1)}) e^{-\gamma(t-t_2)} & \text{für } t > t_2, \end{cases} \quad (4.3)$$

wobei aus den Anpassungsparametern der Absorptionsgrad  $\alpha$  ermittelt wird. Im Vergleich zu den beiden Standardverfahren hat das Exponentialverfahren den entscheidenden Vorteil, dass alle verfügbaren Temperaturdaten für die numerische Anpassung genutzt werden können und somit eine hohe statistische Sicherheit gewährleistet ist. Dem gegenüber ist der nutzbare Datenraum beim Pulsverfahren auf die Abkühlphase und beim Steigungsverfahren auf einen engem Bereich um die Punkte gleicher Steigung beschränkt. Da die Resultate des Puls- und Steigungsverfahrens ebenfalls bei Bedarf direkt aus den Fitparametern des Exponentialverfahrens berechnet werden könnten, werden die im Folgenden beschriebenen Absorptionsmessungen mittels der optimierten Methode ausgewertet.

## 4.2 Adaption der Laserkalorimetrie für fs-Pulse

### 4.2.1 Messapparatur

Die Apparatur zur laserkalorimetrischen Absorptionsmessung mit ultrakurzen Laserpulsen ist in Abbildung 4.3 skizziert. Von vorrangiger Bedeutung bei der Umsetzung der Messmethode für den Bereich ultrakurzer Pulse ist, wie bereits beim Zerstörschwellen-Messaufbau,

nen einen erheblichen Einfluss auf das gemessene Temperatursignal und mithin auf die ermittelte Absorption. Durch die Optimierung der radialen Fühlerposition relativ zur Probenmitte, in der der Laserstrahl die Probe erwärmt, kann dieser Einfluss allerdings nahezu eliminiert werden [107].

die Sicherstellung einer möglichst anwendungsrelevanten Prüfumgebung. Als Strahlquelle wurden die weit verbreiteten, kommerziellen Lasersysteme HURRICANE und SPITFIRE der Firma Spectra-Physics eingesetzt. Die Pulsdauer wird, wie in Abschnitt 3.3.3 beschrieben, mit einem Einzelpuls-Autokorrelator ermittelt. Die Monitorierung der durchschnittlichen Laserleistung während der Bestrahlung wird durch die Detektion eines ausgekoppelten Teilstrahls mit einer Photodiode realisiert. Die Kalibrierung dieses Leistungsmonitors erfolgt über einen simultan zur Photodiode ausgelesenen Leistungsmesskopf (Coherent LM 10), auf den außerhalb der Bestrahlungsdauer der Laserstrahl gelenkt wird.

Zur Verbesserung der Nachweisgrenze wird der Laserstrahl mit einer Reihe von Aperturen geformt. Der Strahldurchmesser auf der Probenoberfläche wird entsprechend des Abstandes zum Achromaten mit der Brennweite von  $f = 1300$  mm eingestellt, indem der auf einem Schlitten montierte Achromat in Propagationsrichtung verschoben wird. Der Strahldurchmesser in der Prüfebene wird mit einem in der konjugierten Ebene lokalisierten, kamerabasierten Strahlprofil-Messgerät (Metrolux Laser Beam Profiler) ermittelt.

Das Prüfobjekt befindet sich in einem Kalorgefäß, um eine hinreichende thermische Isolierung der Probe von den Umgebungsbedingungen zu gewährleisten. Das Kalorgefäß besteht aus einer Aluminiumkammer mit ca. 350 mm Kantenlänge und 15 mm Wandstärke, über das zur besseren thermischen Abschirmung eine Styropor-Haube gestülpt wird. Durch die große Wärmekapazität der Kammer ist der Einfluss auf die Temperatur des Gesamtsystems, z. B. bei Öffnung der Kammer zum Probenwechsel oder bei leichten Schwankungen der Umgebungstemperatur, relativ gering. Der von der Probe reflektierte Strahlanteil verlässt die Kammer wieder durch die Eingangsöffnung und wird auf einer geschwärzten Blende absorbiert. Der transmittierte Anteil wird ebenfalls in eine Strahlfalle außerhalb des Kalorgefäßes geführt.

Die Temperaturmessung am Prüfobjekt erfolgt über zwei temperaturabhängige Halbleiterwiderstände (NTC<sup>2</sup>), die in Glasröhrchen eingeschmolzen und durch einen Federmechanismus mit der Probenoberfläche kontaktiert sind. Mit Hilfe einer geeigneten Linearisierungsschaltung dieser NTCs wird eine nahezu lineare Abhängigkeit des Messsignals von der Temperatur erreicht [31]. Um die trotz der thermischen Isolierung verbleibende Temperaturdrift während der Messung zu monitorieren, ist ein Referenzhalter ebenfalls im Kalorgefäß lokalisiert, der auf langfristige Temperaturänderungen in der Messkammer reagiert. Die für die Dauer der Messung linear angenäherte Temperaturdrift wird vom Temperaturverlauf der Probenmessung subtrahiert. Die Auswertung der erfassten Temperaturverläufe nach den in Abschnitt 4.1 beschriebenen Methoden erfolgt mit Hilfe des im Rahmen des CHOCLAB-Projektes entwickelten Messdatenerfassungs- und Auswertungsprogramms [108].

---

<sup>2</sup>*negative temperature coefficient*

### 4.2.2 Kalibrierung

Der Absorptionsgrad kann aus den bei der laserkalorimetrischen Messung gewonnenen Daten berechnet werden, wenn neben den relevanten Wärmekapazitäten die Kalibrierung der Signale von Laserleistungs- und Temperaturmessung bekannt ist. Während die bereits in Abschnitt 4.2.1 erwähnte Leistungsmonitorierung bei jeder Messung kalibriert wird, ist für die Kalibrierung der Temperatursensoren eine separate Prozedur notwendig. Weiterhin ist der Einfluss des Probenhalters sowie der Probendicke auf die laserkalorimetrische Messung durch eine Halterkalibrierung festzustellen.

Die Kalibrierung der Temperaturempfindlichkeit der NTCs erfolgt über eine elektrisch beheizbare Aluminiumprobe, auf deren Rückseite ein PT100-Widerstand mit bekanntem Temperaturverhalten<sup>3</sup> befestigt ist. Stellt sich bei konstanter Heizleistung ein thermisch stabiler Zustand ein, kann das Messsignal der NTCs über die PT100-Temperaturmessung kalibriert werden. Mit Hilfe der beschriebenen Prozedur wurde eine Temperaturempfindlichkeit der verwendeten NTCs von  $15,3 \frac{\text{K}}{\text{V}}$  ermittelt.

Für die Berücksichtigung der Wärmekapazität des Probenhalters  $C_H$  ist die Einführung einer effektiven Wärmekapazität  $C_{eff}$  sinnvoll [107]:

$$C_{eff} = C_H + f_{Cal}C_P = C_H + f_{Cal}m c_P, \quad (4.4)$$

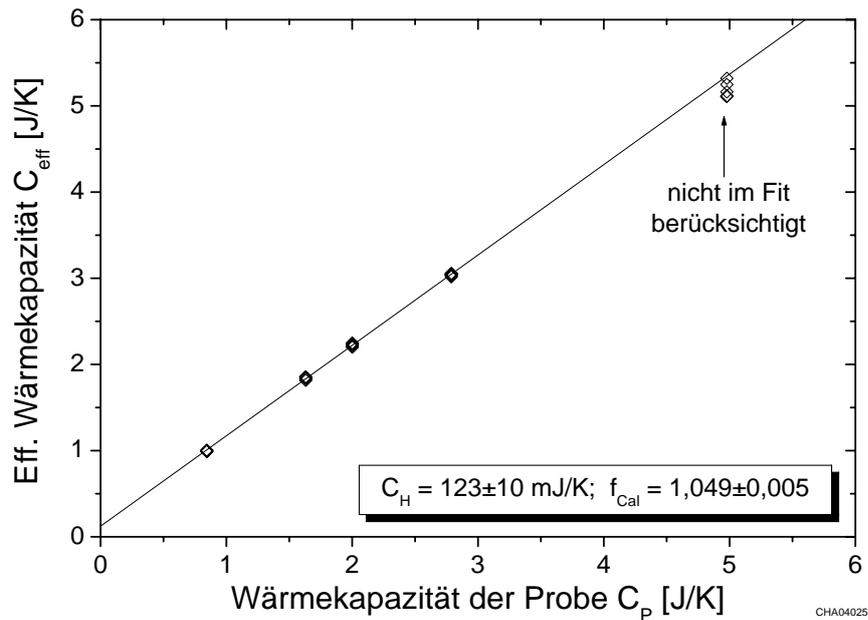
wobei die Probenwärmekapazität durch  $C_P = m c_P$  aus der Masse und der spezifischen Wärme der Probe berechnet wird. Ein Kalibrierfaktor  $f_{Cal}$  berücksichtigt darüber hinaus Abweichungen von der Näherung homogener Proben temperatur für größere Probendicken<sup>4</sup>. Diese Kalibrierung kann optisch oder elektrisch erfolgen. Bei der optischen Kalibrierung wird ein Substrat mit bekannter Wärmekapazität und definiertem Absorptionsgrad mit einer bestimmten Laserleistung beaufschlagt und die effektive Wärmekapazität aus dieser Absorptionsmessung bestimmt. Dieses Verfahren wird im Allgemeinen favorisiert, da das räumliche Temperaturprofil für Probenmessung und Kalibrierung auf Grund der gleichen Heizgeometrie identisch ist. Für die Laserkalorimetrie mit kontinuierlicher Strahlung hat sich die Verwendung von geruften Substraten bewährt, die einen Absorptionsgrad nahe 100% zeigen. Bei der Umsetzung dieser Kalibrierung mit ultrakurzen Laserpulsen trat allerdings selbst bei großer Abschwächung eine Ablation der Graphitschicht auf, die eine Verwendung der optischen Kalibrierung verhinderte.

Bei der elektrischen Kalibrierung hingegen wird die Heizleistung durch einen elektrischen Widerstand eingebracht [19], der in der Mitte einer Kalibrierprobe thermisch kontaktiert

---

<sup>3</sup>Der Widerstand eines PT100 wird im Temperaturbereich zwischen 0 und 100 °C näherungsweise durch  $R_{PT100} = 100 \Omega + 0,385 \frac{\Omega}{^\circ\text{C}} \cdot T[^\circ\text{C}]$  beschrieben. Das Temperaturverhalten und die Abweichungstoleranzen sind international genormt [34].

<sup>4</sup>Im Idealfall mit verschwindendem Einfluss des Probenhalters und homogener Proben temperatur gilt:  $C_H = 0$  und  $f_{Cal} = 1$



**Abbildung 4.4:** Bestimmung der Wärmekapazität  $C_H$  und des Kalibrierfaktors  $f_{Cal}$  für den verwendeten Probenhalter; je Probenkapazität 6 unterschiedliche Heizleistungen (0,7 bis 7 mW); Messwerte für  $5 \frac{\text{J}}{\text{K}}$  auf Grund systematischer Abweichungen vom linearen Verlauf herausgenommen.

wird. Die Ermittlung der Heizleistung erfolgt über die Messung der Heizspannung und die Kenntnis des ohmschen Widerstandes. Für die in dieser Arbeit durchgeführte Kalibrierung wurde ein Quarzsubstrat der Dicke 1 mm verwendet, das auf der Vorderseite mit einem 220  $\Omega$ -SMD-Widerstand versehen ist. Zur Einstellung mehrerer  $C_P$ -Werte wurden zusätzliche Quarzsubstrate unterschiedlicher Dicke mit der Heizprobe in Kontakt gebracht. Für jede Probenkapazität wurden sechs unterschiedliche, praxisrelevante Heizleistungen eingestellt, die effektive Wärmekapazität aus der Messung bestimmt und aus der Auftragung von  $C_{eff}$  gegen  $C_P$  die Werte für  $C_H$  und  $f_{Cal}$  ermittelt. Das Ergebnis ist in Abbildung 4.4 zu erkennen. Mit Ausnahme der größten Wärmekapazität ist eine hohe Korrelation der Anpassungsgeraden mit den Messwerten und eine verschwindende Streuung für die gewählten Heizleistungen festzustellen. Die Größe der Halterkapazität von  $C_H = 0,12 \frac{\text{J}}{\text{K}}$  zeigt deren signifikanten Einfluss auf das Messergebnis für eine typische Probenkapazität von  $C_P \approx 1 \frac{\text{J}}{\text{K}}$ . Der Kalibrierfaktor  $f_{Cal} = 1,05$  ist nahe dem Idealwert 1, womit die für das Auswerteverfahren notwendige Annahme einer homogenen Proben temperatur gerechtfertigt ist. Demgegenüber ist für die größte Wärmekapazität, welche sich für ein ca. 6 mm starkes Quarzsubstrat ergäbe, eine signifikante Abweichung bzw. Messwertstreuung zu erkennen. Folglich ist, für den Fall einer im Wesentlichen auf der Vorderseite absorbierenden Komponente, bei relativ dicken Substraten auf Grund der nicht ideal homogenen Temperaturverteilung im Substrat mit einer erhöhten Unsicherheit der ermittelten Absorptionswerte zu rechnen. Da die Heizleistung

über eine simple Spannungsmessung am Widerstand sehr präzise gemessen werden kann, ist die Kalibrierung verglichen mit der eigentlichen Laserkalorimetrie mit einer geringeren Unsicherheit behaftet, die mit weniger als 10% abgeschätzt wird.

### 4.2.3 Nachweisgrenze

Die Nachweisgrenze einer laserkalorimetrischen Messapparatur ist im Wesentlichen durch die verfügbare Laserleistung, das Signalrauschen sowie die vom Halter absorbierte Störstrahlung bestimmt. Aus den Gleichungen 4.1-4.3 wird deutlich, dass sich die Nachweisgrenze reziprok zur Laserleistung verhält. Allerdings sind derzeit kommerziell nur Ultrakurzpuls-Lasersysteme im Bereich weniger Watt Ausgangsleistung verfügbar, so dass die Laserleistung kaum Optimierungspotenzial für die Absorptionsmessung bietet. Von größerer Bedeutung ist dagegen das Signalrauschen, das sich aus elektrischen und thermischen Anteilen zusammensetzt.

Im Falle des elektrischen Rauschens ist durch die Vielzahl von Hochfrequenz emittierenden Geräten in einem CPA-Lasersystem, wie z. B. Treiber von Pockelszellen und akusto-optischen Modulatoren, trotz Abschirmung von Messleitungen und Gehäusen ein Störeinfluss nicht gänzlich zu eliminieren. Als typische *peak-to-peak*-Amplitude für das elektrische Rauschen dieser Messapparatur kann 0,1 mK angegeben werden. Das thermische Rauschen kann durch eine geeignete Isolation des Kalorgefäßes wirkungsvoll reduziert werden, die eine möglichst große Zeitkonstante für thermische Oszillationen in der Messkammer hervorruft. Die nach der Driftkompensation verbleibenden Temperaturschwankungen liegen typischerweise unter 0,5 mK innerhalb einer Messdauer von ca. 30 min, so dass im Allgemeinen eine Proben-erwärmung in gleicher Höhe ausgewertet werden kann. Ein Beispiel für eine Messung nahe der Nachweisgrenze ist in Abbildung A.1 im Anhang darstellt.

Einen erheblichen Einfluss auf die Nachweisgrenze insbesondere bei Ultrakurzpuls-Lasersystemen stellt Störstrahlung nahe der optischen Achse dar, die direkt von den NTCs bzw. vom Halter absorbiert wird. Bei den verwendeten Lasersystemen ist ein hoher Beugungsanteil festzustellen, der auf die große Anzahl optischer Komponenten und Aperturen im CPA-System zurückzuführen ist. Diese Störstrahlung kann über verschiedene Aperturen vermindert werden, deren Durchmesser und Position im Strahlengang optimiert wurde. Die Nachweisgrenze wird über eine Leermessung mit einer schwarz eloxierten Lochblende als Probe abgeschätzt. Diejenigen Strahlungsanteile, die weiter als 5 mm vom Schwerpunkt des Strahlprofils entfernt sind, werden durch die Leerprobe nahezu vollständig absorbiert. Der aus der Messung ermittelte Absorptionsgrad stellt somit eine obere Schranke für die Nachweisgrenze dar<sup>5</sup>. Durch den Einsatz von geruhten Aperturen im Strahlengang ist es im Zuge

---

<sup>5</sup>Diese Abschätzung beruht allerdings auf der Annahme, dass das Prüfobjekt selbst keine Störstrahlung generiert, die durch Streuung an der Probe oder durch einen nicht vollständig aus dem Kalorgefäß geführten

der Optimierung gelungen, das Leersignal soweit zu reduzieren, dass keine zusätzliche Temperaturerhöhung durch die Bestrahlung der Leerprobe zu identifizieren ist. Das Messprotokoll einer Leermessung ist ebenfalls in Abbildung A.2 im Anhang angegeben. Das derzeitige Limit der Nachweisempfindlichkeit kann bei einer durchschnittlichen Laserleistung<sup>6</sup> von 200 mW auf ca. 10 ppm abgeschätzt werden.

### 4.3 Untersuchungen zur nichtlinearen Absorption

Im folgenden Abschnitt werden Messungen vorgestellt, die den Einfluss von Variationen in den Messparametern Pulsdauer und Strahldurchmesser auf das Ergebnis von laserkalorimetrischen Absorptionsmessungen untersuchen. Da eine Veränderung beider Parameter mit einer Beeinflussung der Leistungsdichte einhergeht, sind diese Messungen mithin zur Quantifizierung von nichtlinearen Absorptionseffekten geeignet.

Für diese Absorptionsmessungen ist ein Probensatz hergestellt worden, dessen Design bereits bezüglich der linearen Absorption eine signifikante Temperaturerhöhung erwarten lässt. Bei diesem Design ist eine Spacerschicht großer Dicke ( $10 \lambda/4$ ) zwischen reflektierenden Schichtstapeln lokalisiert. Das auf diese Weise gebildete Fabry-Perot-Interferometer lässt die Feldstärke im Spacer und somit auch die Absorption der Komponente ansteigen. Da die spektrale Breite des verstärkten Pulses<sup>7</sup> bei etwa 7 nm liegt, muss die Spitze der Airy-Funktion hinreichend breit sein, um wesentlichen Spektralanteilen des Pulses das Passieren des Interferenzfilters zu erlauben.

Für die Untersuchung der nichtlinearen Absorption eines hoch- und eines niedrigbrechenden Materials wurde ein Design der Form  $S(HL)^2 10H (LH)^2$  bzw. ein  $S(HL)^2H 10L H(LH)^2$  gewählt. Um eine Überlagerung mit Mikrostruktureffekten, wie bereits in Abschnitt 3.4.1 identifiziert, zu vermindern, wurden die folgenden Untersuchungen an Ionenstrahlgespütteten  $TiO_2$  bzw.  $SiO_2$ -Schichten durchgeführt. Zum Vergleich wurden ebenfalls  $TiO_2$  und  $SiO_2$ -Einzelschichten mit einer optischen Dicke von  $10 \lambda/4$  bei 800 nm abgeschieden, deren lineare Absorption allerdings aufgrund der fehlenden Feldstärkeüberhöhung wesentlich unter der des Interferenzfilters liegt.

Für die zweite Messreihe, bei der die Leistungsdichte über den Strahldurchmesser variiert wurde, standen außerdem Magnetron-gespüttete  $ZrO_2$ - und  $Ta_2O_5$ -Einzelschichten, ebenfalls mit einer optischen Dicke von  $10 \lambda/4$  bei 800 nm, zur Charakterisierung des nichtlinearen

---

Reflex hervorgerufen werden kann. Für typische dielektrische Laserkomponenten bei gleichzeitiger Sorgfalt bei der Probenjustage ist diese Annahme hier allerdings gerechtfertigt.

<sup>6</sup>Maximalwert der Laserleistung für das SPITFIRE-System im gegenwärtigen Justagezustand

<sup>7</sup>Die spektrale Breite  $\Delta\nu_p$  eines ultrakurzen Pulses mit Gauß-förmigem Pulsprofil und Halbwertsbreite  $\tau_p$  genügt der Bedingung  $\Delta\nu_p\tau_p \geq 0,441$  [21]. Vom experimentellen Standpunkt aus ist jedoch die Angabe der spektralen Breite  $\Delta\lambda$  im Ortsraum um eine Mittenfrequenz  $\lambda_0$  sinnvoller, wobei  $\Delta\nu \approx \frac{c}{\lambda_0^2} \Delta\lambda$  gilt [36].

Absorptionsverhaltens zur Verfügung. Jede der genannten Beschichtungen wurde auf Quarzsubstraten der Dicke 1 mm aufgebracht, deren lineare Absorption in nahen Infrarotbereich im Allgemeinen wenige ppm beträgt.

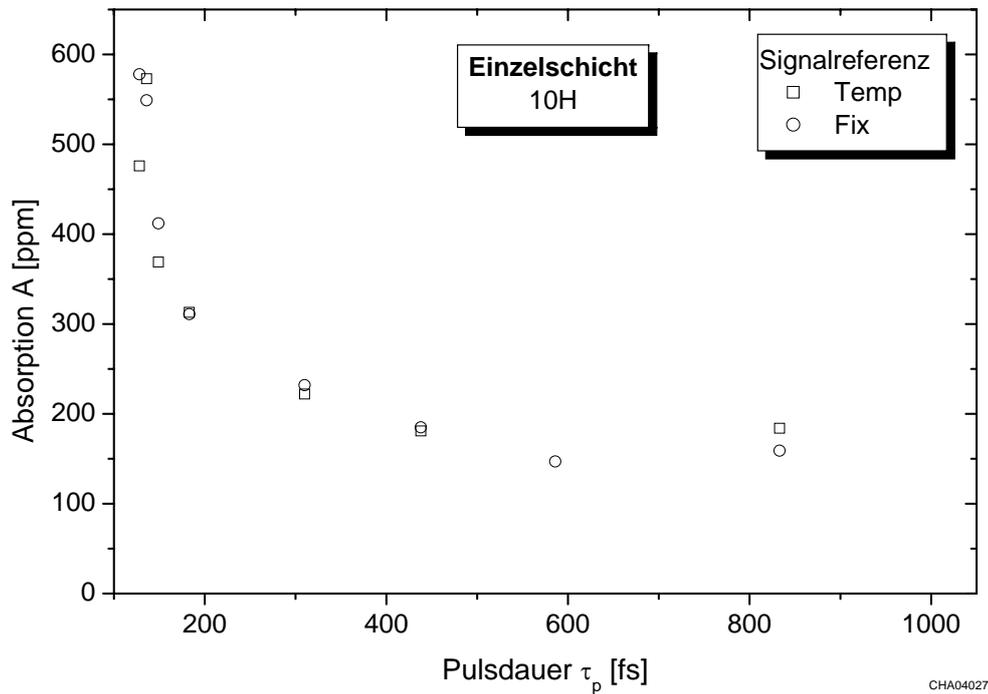
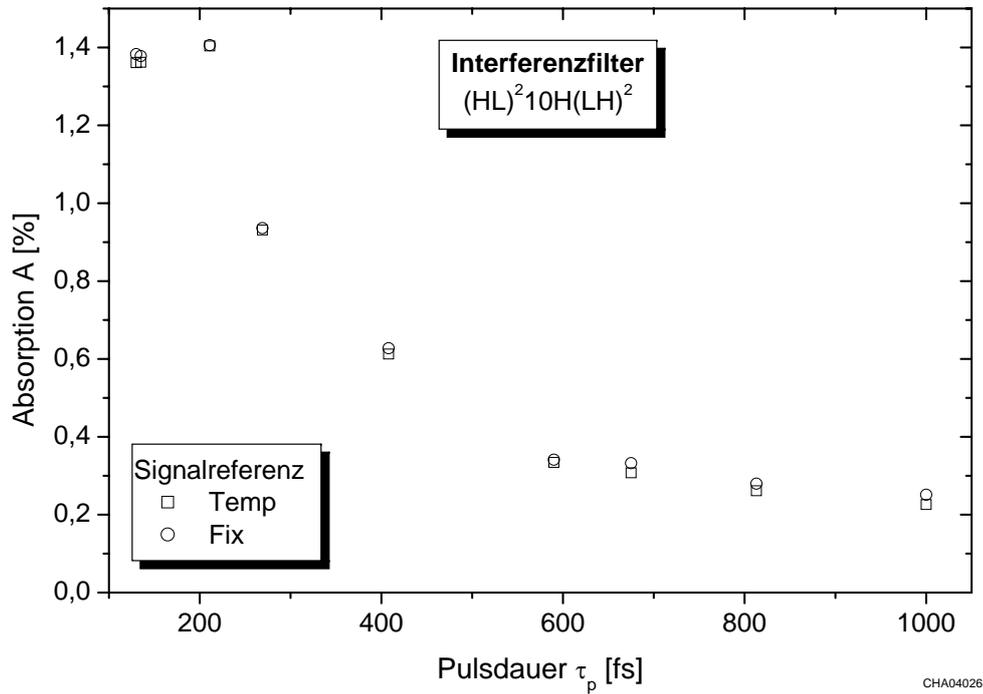
#### 4.3.1 Absorptionsmessung bei variierter Pulsdauer

Die Untersuchungen bei veränderter Pulsdauer wurde mit einem HURRICANE-CPA-System als Strahlquelle durchgeführt, dessen minimale Pulsdauer mit weniger als 130 fs spezifiziert wird [92]. Weiterhin war für diese Messreihe die Laserwellenlänge um 800 nm zentriert, bei der eine über die Messkampagne konstante Energie von ca. 1 mJ pro Puls bei einer Repetitionsrate von 1 kHz erreicht wurde. Der  $1/e^2$ -Strahldurchmesser auf der Probe betrug bei jeder Messung etwa 3 mm. Wie bereits in Abschnitt 3.3.1 für das SPITFIRE-CPA-System erläutert, kann bei diesem Laser ebenfalls die Pulsdauer durch Verschiebung der Kompressorgitter über weite Bereiche variiert werden.

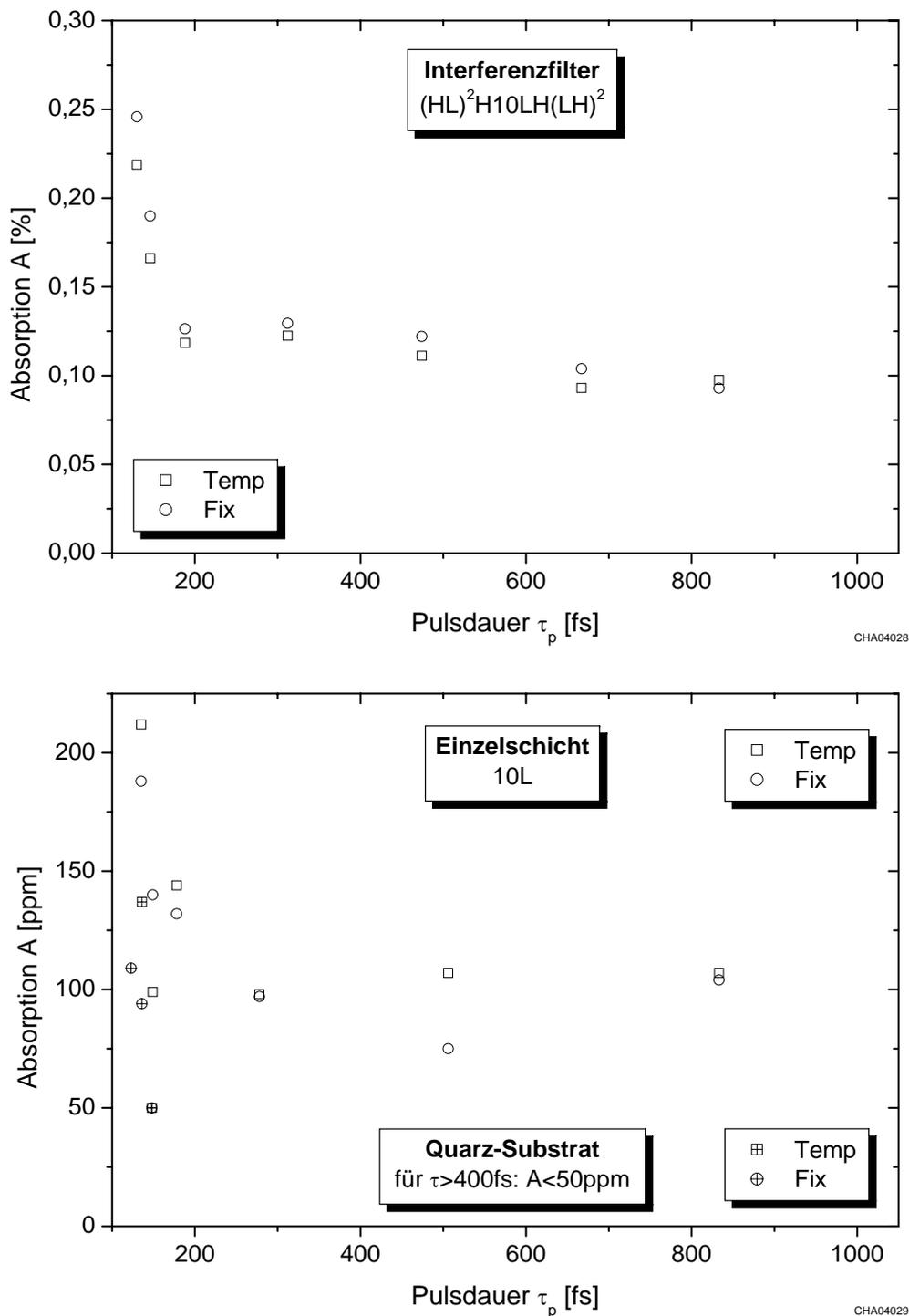
Da diese Untersuchungen mit einer frühen Version des Laserkalorimeters durchgeführt wurden, welches größere thermische Schwankungen sowie ein höheres Leersignal aufwies, lag die Nachweisgrenze für diese Messserie lediglich bei etwa 50 ppm. Das Ergebnis der Absorptionsmessungen bei variierter Pulsdauer für den oben beschriebenen Probensatz ist für  $\text{TiO}_2$  in Abbildung 4.5 und für  $\text{SiO}_2$  in Abbildung 4.6 zu erkennen.

Bezüglich des Interferenzfilters mit  $\text{TiO}_2$ -Spacer ist eine etwa um den Faktor 7 gesteigerte Absorption zu beobachten, wenn die Pulsdauer von 1 ps auf etwa 130 fs reduziert wird. Die Verkürzung der Pulsdauer lässt die Absorption dieser Komponente von einem Wert von ca. 2000 ppm bis in den Prozentbereich ansteigen. Weiterhin wird deutlich, dass oberhalb von 500 fs die Absorption lediglich geringfügig von der Pulsdauer abhängt, unterhalb dieses Wertes aber für sinkende Pulsdauer in höherem Maße ansteigt. Durch wiederholte Messung konnte sichergestellt werden, dass diese Steigerung nicht auf eine permanente Änderung des Dielektrikums zurückzuführen ist, sondern vielmehr auf einem reversiblen nichtlinearen Effekt beruht. Für die 10H-Einzelschichtprobe konnte ein qualitativ gleichartiges Anwachsen der Absorption für sinkende Pulsdauern bestimmt werden. Bei der Betrachtung der kürzesten Pulsdauern ist für beide  $\text{TiO}_2$ -Proben zu erkennen, dass der höchste nichtlineare Effekt nicht für die kürzeste, mit dem Autokorrelator gemessene Pulsdauer ermittelt wurde. Diese systematische Abweichung vom erwarteten Verlauf ist auf einen *chirp* im Autokorrelator zurückzuführen, welcher sich von dem des fokussierenden Achromaten wesentlich unterscheidet (s. Abschnitt 3.3.3).

Die Ergebnisse für die  $\text{SiO}_2$ -Proben sind in Abbildung 4.6 dargelegt. Bei der Betrachtung des Interferenzfilters mit 10L-Spacer ist für  $\text{SiO}_2$  ebenfalls ein Ansteigen der Absorption mit sinkender Pulsdauer zu erkennen. Für Pulsdauern von kleiner 600 fs kann eine geringfügige und unterhalb von 200 fs eine deutliche Zunahme der Absorption beobachtet werden, die



**Abbildung 4.5:** Laserkalorimetrische Messung der Absorption von  $TiO_2$ -Schichten in Abhängigkeit der Pulsdauer; Auswertung der Temperaturverläufe bezogen auf den Referenzhalter (Temp) sowie ein konstantes Signal (Fix); oben: Interferenzfilter  $S(HL)^2 10H (LH)^2$ , unten: Einzelschichtprobe S10H.



**Abbildung 4.6:** Laserkalorimetrische Messung der Absorption von  $\text{SiO}_2$ -Schichten in Abhängigkeit der Pulsdauer; Auswertung der Temperaturverläufe bezogen auf den Referenzhalter (Temp) sowie ein konstantes Signal (Fix); oben: Interferenzfilter  $S(HL)^2H10LH(LH)^2$ , unten: Einzelschichtprobe S10L.

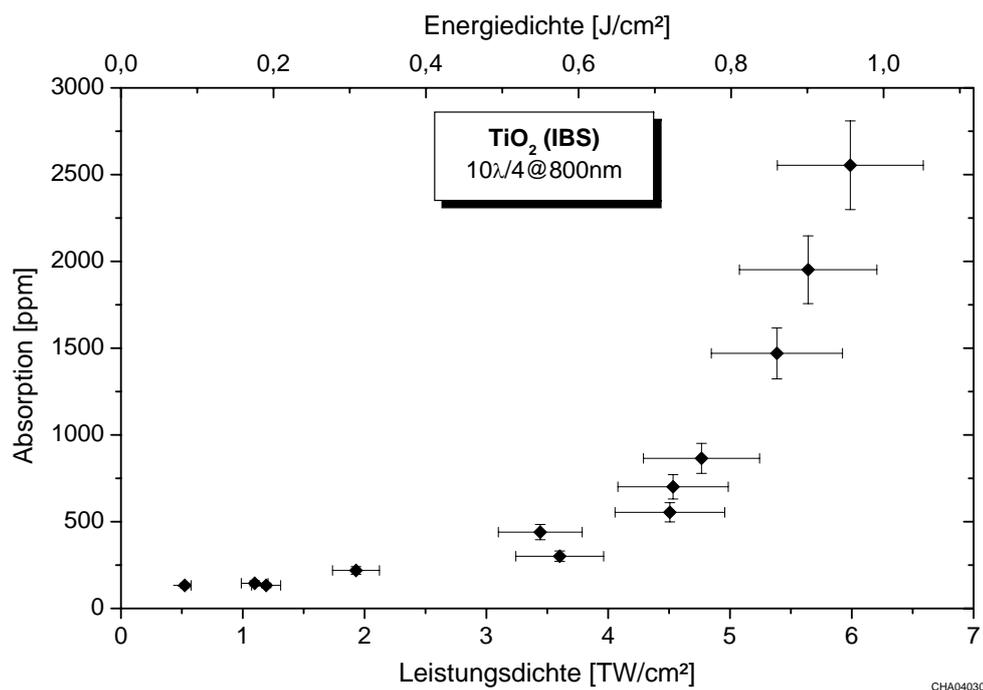
insgesamt etwa einen Faktor 2 umfasst. Für entsprechende 10L-Einzelschichtprobe ist, ausgehend von einem Absorptionsniveau von ca. 100 ppm, lediglich unterhalb von 200 fs eine erhöhte Absorption zu ermitteln. Dieses Absorptionsverhalten kann in entsprechender Weise auch für das unbeschichtete Quarzsubstrat gefunden werden, wobei allerdings die Absorption für Pulsdauern oberhalb von 400 fs unterhalb der Nachweisgrenze von 50 ppm liegt. Die Absorptionserhöhung ist für  $\text{SiO}_2$  ebenfalls reversibel. Diese Resultate legen die Vermutung nahe, dass die für den 10L-Interferenzfilter gemessene leichte Steigerung ab 600 fs auf die nichtlineare Absorption der  $\text{TiO}_2$ -Schichten zurückzuführen ist, die Absorptionserhöhung für Pulsdauern unterhalb von 200 fs hingegen im Wesentlichen durch Effekte im Quarzsubstrat ausgelöst wird.

### 4.3.2 Absorptionsmessung bei variiertem Strahldurchmesser

Obwohl bei der beschriebenen Messung der Absorption bei variiertem Pulsdauer bereits deutliche nichtlineare Effekte in den untersuchten dielektrischen Materialien identifiziert werden konnten, wurden für den vorläufigen Messaufbau Defizite bezüglich der Quantifizierung der Pulsdauer sowie der Nachweisgrenze sichtbar. Für die im Folgenden dargelegte Messserie konnte zum Einen die Nachweisempfindlichkeit nach einer Optimierungsphase durch die in Abschnitt 4.2.3 beschriebenen Maßnahmen auf etwa 10 ppm gesenkt werden. Zum Anderen wurde das Problem der unzureichenden Genauigkeit der Pulsdauermessung dadurch umgangen, dass die Pulsdauer über das Zünden eines Plasmas in Luft (s. Abschnitt 3.3.3) minimiert und die Variation in der Leistungsdichte durch unterschiedliche Bestrahlungsflächen auf der Probe erreicht werden konnte.

Die folgenden Untersuchungen wurden mit dem in Abschnitt 3.3.1 bereits beschriebenen SPITFIRE-System durchgeführt, das ultrakurze Laserpulse mit einer minimalen Pulsdauer von 150 fs bei einer Wellenlänge um 780 nm emittiert. Diese Strahlquelle wurde mit dem in Abbildung 4.3 dargestellten, optimierten Laserkalorimeter kombiniert. Für diese Experimente konnte nach der Bereinigung des räumlichen Strahlprofils durch mehrere Aperturen eine maximale Pulsenergie von etwa 0,2 mJ bei einer Repetitionsrate von 1 kHz genutzt werden, die bei jeder Messung auf dem maximal verfügbaren Wert belassen wurde. Die Variation des Strahldurchmessers wurde durch die Verschiebung des fokussierenden Achromaten entlang der optischen Achse bewerkstelligt. Der Achromat ist hierzu zusammen mit einer Strahlformungsapertur und der Leistungsmessung auf einem Schlitten montiert. Insgesamt konnte der  $1/e^2$ -Strahldurchmesser auf der Probe von 740  $\mu\text{m}$  bis 180  $\mu\text{m}$  stufenlos eingestellt werden, womit Spitzenleistungsdichten im Bereich zwischen 0,5 bis 9  $\frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  verfügbar waren.

Mit dieser Messanordnung wurden die Ionenstrahl-gesputterten Einzelschichtproben mit 10H ( $\text{TiO}_2$ ) und 10L ( $\text{SiO}_2$ ), das unbeschichtete Vergleichssubstrat sowie die genannten Magnetron-gesputterten  $\text{ZrO}_2$ - und  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ -Einzelschichten (10H) untersucht. Das Ergebnis

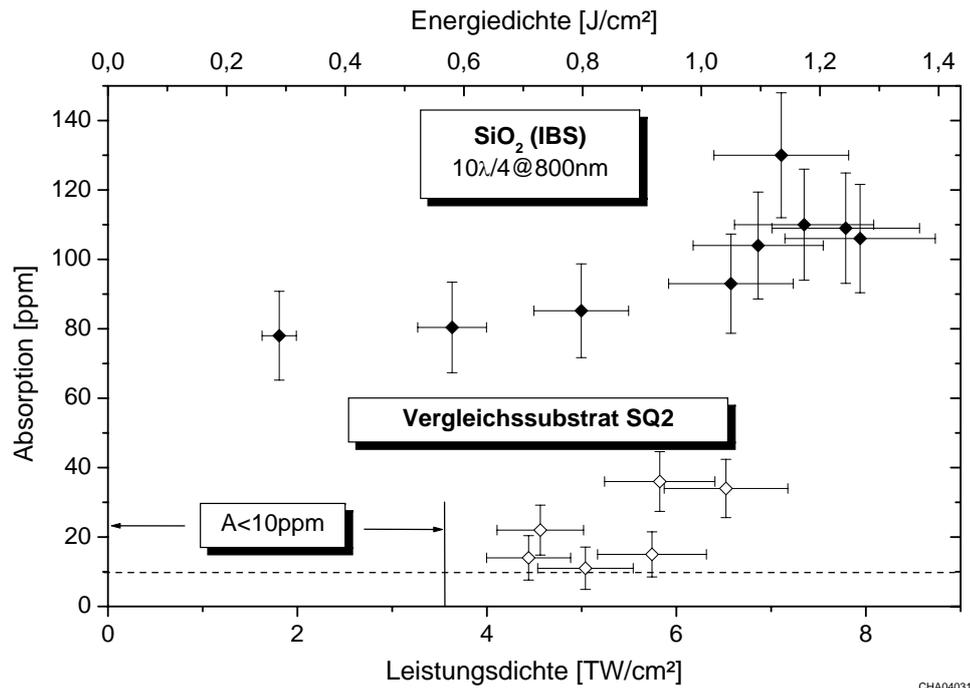


**Abbildung 4.7:** Laserkalorimetrische Messung der Absorption einer  $\text{TiO}_2$ -Schicht ( $10\lambda/4$  bei 800 nm) in Abhängigkeit der Spitzenleistungsdichte; Auswertung der Temperaturverläufe bezogen auf den Referenzhalter.

der Absorptionsmessung in Abhängigkeit von der Spitzenleistungsdichte<sup>8</sup> ist für die  $\text{TiO}_2$ -Probe in Abbildung 4.7 dargestellt. Zur weiteren Illustration ist außerdem als zweite Abszisse die Energiedichte des Pulses angegeben. Für diese Komponente ist eine erhebliche Vergrößerung der Absorption mit der Leistungsdichte festzustellen. Die Steigerung ist bereits bei Leistungsdichten von  $2 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  signifikant, erhöht sich aber überproportional bis zu knapp dem 20-fachen des Ursprungswertes für  $6 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ . Somit übertrifft die in dieser Konfiguration ermittelte Steigerung deutlich jene, die bei variiertem Pulsdauer bestimmt wurde. Zum Abschluss wurden Messungen bei niedriger Leistungsdichte wiederholt um sicher zu stellen, dass die Absorptionserhöhungen nicht permanenter Natur sind. Eine nachfolgende Nomarski-mikroskopische Inspektion des Bestrahlungsbereiches konnte ebenfalls eine Schädigung der Probe ausschließen. Die zusätzlich eingezeichneten Fehlerbalken basieren auf der Unsicherheit der Strahldurchmesserbestimmung von ca. 5% auf der Abszisse sowie des Absorptionswertes von ca. 10%.

Die Resultate bezüglich der  $\text{SiO}_2$ -Probe und des unbeschichteten Vergleichssubstrates sind in Abbildung 4.8 zu erkennen. Im Gegensatz zu der  $\text{TiO}_2$ -Schicht ist bei beiden Proben eine signifikante Erhöhung der Absorption erst oberhalb von ca.  $4 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  festzustellen. Im Falle

<sup>8</sup>Für die Berechnung wird ein Gauss-förmiges Pulsprofil mit der Halbwertsbreite von 150 fs zu Grunde gelegt.

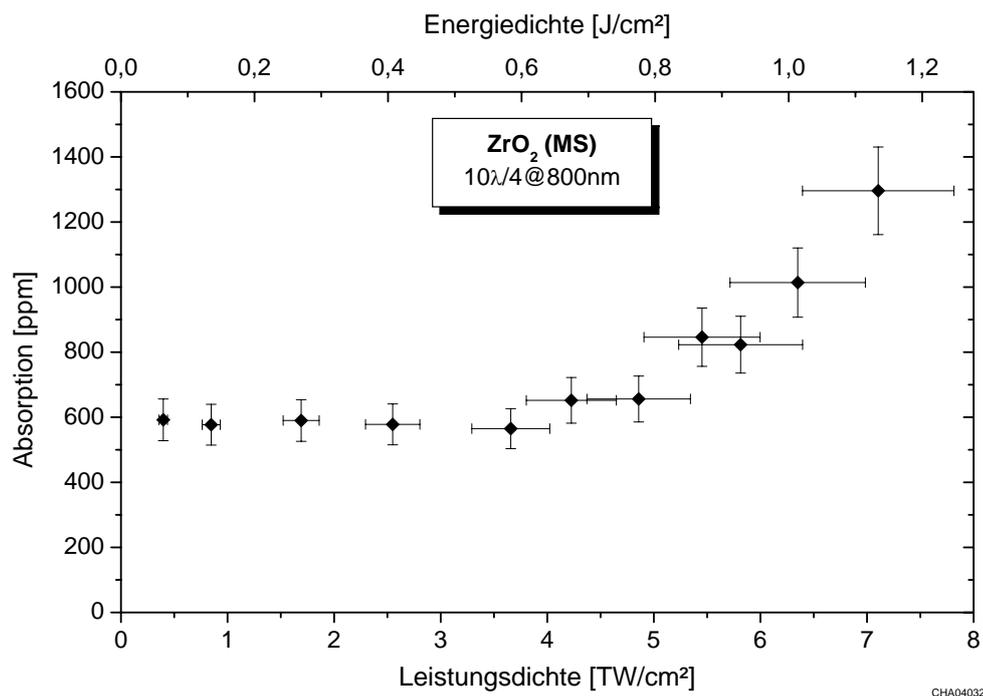


**Abbildung 4.8:** Laserkalorimetrische Messung der Absorption einer SiO<sub>2</sub>-Schicht (10λ/4 bei 800 nm) sowie des unbeschichteten Vergleichssubstrates in Abhängigkeit der Leistungsdichte; Auswertung der Temperaturverläufe bezogen auf den Referenzhalter.

der SiO<sub>2</sub>-Probe geht die Steigerung von einem Absorptionsniveau von ca. 80 ppm aus, bei dem unbeschichteten Substrat liegt dieses Niveau unterhalb der Nachweisgrenze von 10 ppm. Bezüglich der Größe der Absorptionserhöhung ist offensichtlich, dass sowohl die 10L-Probe als auch das unbeschichtete Substrat bei der Steigerung der Leistungsdichte eine vergleichbare Änderung erfährt. Diese Beobachtung legt, wie bereits bei der Pulsdauervariation, die Vermutung nahe, dass im Fall der 10L-Probe die nichtlineare Absorption im SQ2-Substrat ausgelöst wird.

Des Weiteren sind in den Abbildungen 4.9 und 4.10 die Ergebnisse der Absorptionmessungen an Magnetron-gesputterten ZrO<sub>2</sub>- und Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Einzelschichten auf SQ2-Substraten, jeweils mit einer optischen Dicke von 10 λ/4 bei 800 nm, aufgetragen.

Im Falle der Magnetron-gesputterten ZrO<sub>2</sub>-Einzelschicht ist analog zur Ionenstrahl-gesputterten TiO<sub>2</sub>-Schicht ein deutlicher Anstieg der Absorption mit der Leistungsdichte zu erkennen. Ausgehend von einer konstanten Absorption von etwa 600 ppm unterhalb von 4  $\frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$ , tritt eine näherungsweise lineare Steigerung der Absorption um einen Faktor 2 auf, wenn die Leistungsdichte bis über 7  $\frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  angehoben wird. Im Gegensatz dazu zeichnet sich die Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub>-Einzelschichtprobe durch praktisch verschwindende lineare Absorption ( $A \leq 25$  ppm) aus, jedoch erhöht sich die Absorption stetig und zunehmend mit wachsender



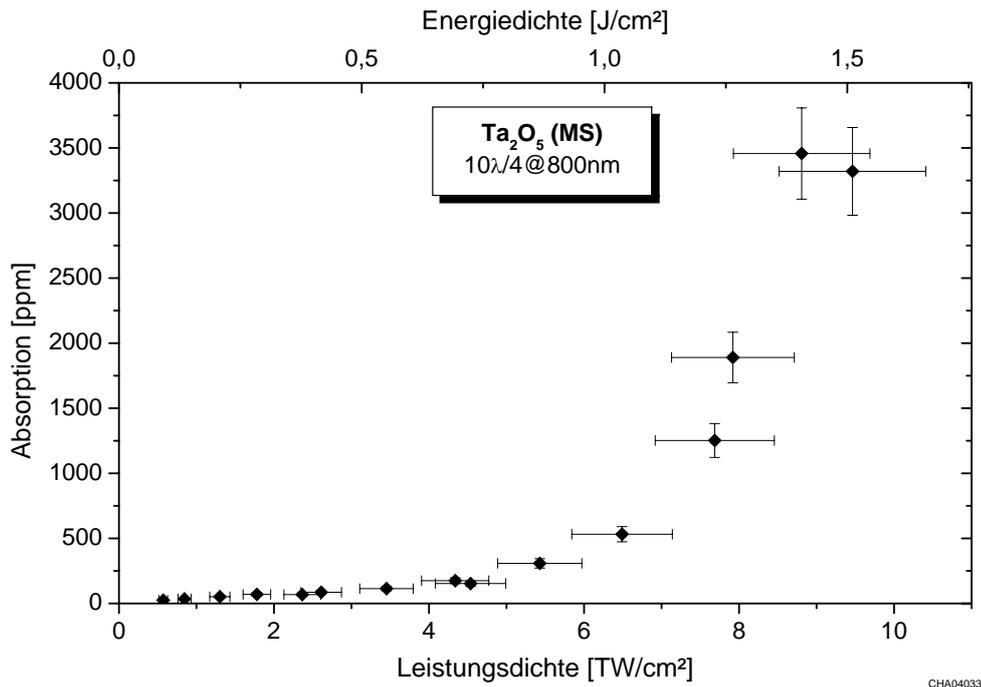
**Abbildung 4.9:** Laserkalorimetrische Messung der Absorption einer  $\text{ZrO}_2$ -Schicht ( $10\lambda/4$  bei 800 nm) in Abhängigkeit der Leistungsdichte; Auswertung der Temperaturverläufe bezogen auf den Referenzhalter.

Leistungsdichte. Bei einem Wert von etwa  $9 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  stieg die Absorption mit 3500 ppm auf den 140-fachen des Ursprungswertes<sup>9</sup>. Sowohl bei der  $\text{ZrO}_2$ - als auch bei der  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ -Probe war dieser Erhöhungseffekt nicht permanenter Natur, und eine Schädigung des Schichtmaterials konnte nicht festgestellt werden. Die beschriebenen Resultate belegen, dass bei Magnetron-gesputterten Schichten ebenfalls ein erhebliches, nichtlineares Absorptionsverhalten berücksichtigt werden muss.

Bei dem Vergleich der Resultate für die hochbrechenden Materialien ist zunächst festzustellen, dass das Absorptionsniveau für niedrige Leistungsdichten durch die lineare Absorption der dielektrischen Schicht definiert wird. Dieser Wert ist im Wesentlichen durch den Anteil von unterstöchiometrischen Beschichtungsmolekülen beeinflusst und hängt zu großen Teilen von der Qualität des Beschichtungsverfahrens ab. Bereits ein geringer Anteil von Sub-Oxiden kann als Verunreinigung erhebliche Auswirkungen auf die lineare Absorption des Dielektrikums haben. Die Schranke für das Einsetzen von signifikanter nichtlinearer Absorption ist jedoch im Wesentlichen mit der Höhe des Bandabstandes korreliert und offenbar relativ unabhängig von der linearen Absorption des Dielektrikums.

Bezüglich der Ergebnisse für die Quarz-Proben ist fest zu halten, dass das Auftreten von

<sup>9</sup>Eine weitere Steigerung der Energiedichte wurde nicht durchgeführt, da dies vermutlich die Zerstörung der Probe zur Folge gehabt hätte.



**Abbildung 4.10:** Laserkalorimetrische Messung der Absorption einer  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ -Schicht ( $10\lambda/4$  bei 800 nm) in Abhängigkeit der Leistungsdichte; Auswertung der Temperaturverläufe bezogen auf den Referenzhalter.

nichtlinearer Absorption dem Substratmaterial zugeordnet werden kann, obwohl die lineare Absorption der Ionenstrahl-gesputterten  $\text{SiO}_2$ -Schicht im Vergleich zum Substrat deutlich erhöht ist. Weder der Anteil an Sub-Oxiden noch die Mikrostruktur hat offenbar wesentlichen Einfluss auf das Einsetzen von nichtlinearer Absorption in dem untersuchten Bereich der Leistungsdichte. Die in Abschnitt 2.3.2 durchgeführten Modellrechnungen liefern für eine Energiedichte von  $1,2 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$  in einem Quarzsubstrat der Dicke 1 mm eine nichtlineare Absorption von 26 ppm. Verglichen mit den in Abbildung 4.8 dargestellten Resultaten kann mithin auch für die Absorptionsmessung eine hinreichende Übereinstimmung mit den experimentellen Befunden festgestellt werden.

#### 4.4 Abschließende Betrachtungen zur Absorptionsmessung

Die dargelegten Ergebnisse von laserkalorimetrischen Absorptionsmessungen verdeutlichen, dass eine Übertragung des Messverfahrens nach ISO 11551 in den Bereich ultrakurzer Laserpulse im Rahmen dieser Arbeit gelungen ist. Aufbauend auf den Erfahrungen, die im Rahmen des CHOCLAB-Projektes gewonnen wurden, konnten wesentliche Elemente der

Laserkalorimetrie mit kontinuierlicher Nah-Infrarotstrahlung übernommen werden. Für die Verwendung von ultrakurzen Pulsen waren relativ geringe Adaptionen, wie z. B. bei der elektrischen Kalibrierung und der Wahl spezieller Strahlführungs- und formungselemente, notwendig. Allerdings war auf Grund der geringen verfügbaren Laserleistung eine optimierte thermische Isolierung der Probe im Kalorgefäß für das Erreichen einer hinreichenden Nachweisgrenze im 10 ppm-Bereich entscheidend.

Die Untersuchungen zur nichtlinearen Absorption belegen die besondere Abhängigkeit des Absorptionsvermögens der Dielektrika von der Spitzenleistungsdichte der eingestrahnten ultrakurzen Laserpulse. Daher ist für die Berechnung der Leistungsdichte eine präzise Bestimmung der Pulsdauer unumgänglich. Die Untersuchungen zur Absorptionsmessung bei variiert Pulsdauer zeigten Defizite bei der Verwendung des am Laser Zentrum Hannover verfügbaren *single-shot*-Autokorrelators auf. Um bei einer Veränderung der Pulsdauer, wie sie z. B. in Folge eines thermischen Fortdriftens des Lasersystems beobachtet wurde, eine Korrektur des Leistungsdichtewertes zu ermöglichen, sollte im nächsten Optimierungsschritt ein zuverlässigerer Detektor Verwendung finden. Hierfür bieten sich beispielsweise GaAsP-Photodioden an, die die Pulsdauer des direkten Messstrahls charakterisieren können, ohne den Strahl durch zusätzliche, den Puls verlängernde Elemente zu lenken [79]. Da der Detektor in dieser Publikation nur als Ersatz für das nichtlineare Element in klassischen Autokorrelatoren gesehen wurde, kann allerdings zur Zeit nicht abgeschätzt werden, ob diese Photodioden dauerhaft kalibrierbar sind, wenn sie als Einzelelement-Detektor genutzt werden.

# Kapitel 5

## Messung des Übertragungsverhaltens

Die Funktionalität einer dielektrischen Beschichtung zur Strahlführung ist im Wesentlichen durch das spektrale Reflexions- bzw. Transmissionsverhalten definiert. Das theoretisch zu erreichende spektrale Übertragungsverhalten eines Beschichtungsdesigns wird üblicherweise für den Idealfall perfekter Schichten, d. h. ohne optische Verluste angegeben. Bei der Umsetzung des optischen Designs mittels eines Beschichtungsverfahrens gilt es, die optischen Verluste, wie z. B. Absorption und Streuung, so gering wie möglich zu halten. Da die direkte Messung von Absorption und Streuung vergleichsweise aufwendiger Messanordnungen bedarf, hat sich die Spektralphotometrie nach ISO/DIS 15368 [43] in der optischen Dünnschichtfertigung zur Sicherstellung der Spezifikationen bezüglich Reflexion und Transmission etabliert. Die Unsicherheit von Transmissionsmessungen liegt bei kommerziellen Spektralphotometern typischerweise im Bereich weniger Promille. Bei der Reflexionsmessung kann die Unsicherheit auf Grund der zusätzlich notwendigen Referenzmessung noch deutlich darüber [72] liegen.

Falls eine höhere Genauigkeit, z. B. bei der Bestimmung der Qualität von hochreflektierenden dielektrischen Spiegeln, erforderlich ist, muss auf komplexere Aufbauten mit verbessertem Signal-zu-Rausch-Verhältnis zurückgegriffen werden. Ein solches Verfahren ist erstmals von Voss et al. [104] beschrieben und als Normentwurf ISO/CD 13697 in das internationale Standardisierungsverfahren eingebracht worden [42]. Seither sind eine Reihe von Optimierungen im Rahmen der Projekte CHOCLAB [108] und CHOCLAB II [73] erarbeitet worden, die in eine Revision des Entwurfs einfließen werden. Das Messprinzip ist für verschiedene cw- bzw. quasi-cw Lasersysteme im nahen und fernen Infrarotbereich erfolgreich umgesetzt worden [48, 95]. Abhängig von der Stabilität der Strahlquelle ist eine Unsicherheit bei der Vermessung hochreflektierender Beschichtungen von bis zu 10 ppm [29] erreichbar.

Für die Strahlführung von ultrakurzen Laserpulsen werden häufig metallische Reflektoren (z. B. Au, Ag) eingesetzt, die sich auf Grund ihrer Reflexionsbandbreite und verschwindender Gruppengeschwindigkeitsdispersion hierfür besonders eignen. Da metallische Reflektoren allerdings signifikante optische Verluste aufweisen, muss beispielsweise in Resonatoren auf

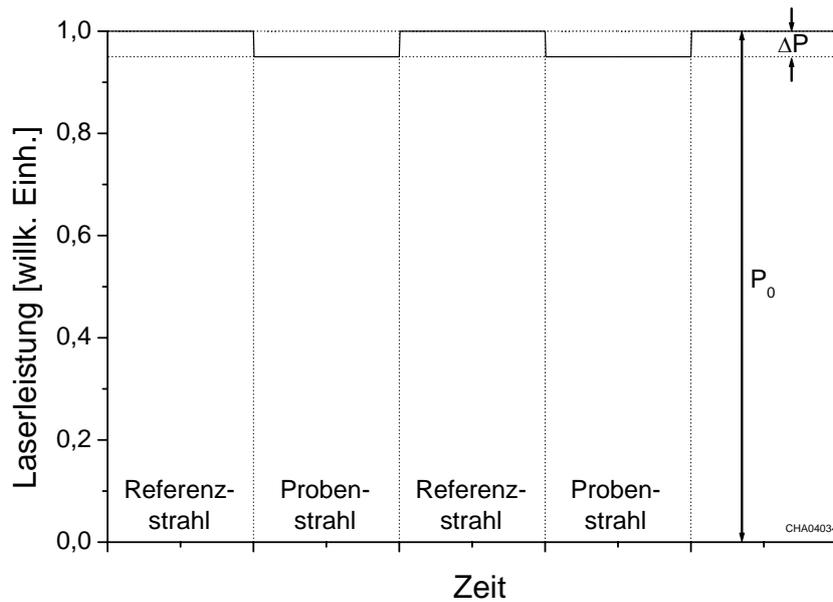
dielektrische Wechselschichtsysteme zurückgegriffen werden. Im Rahmen von *pump-probe*-Experimenten ist die zeitliche Änderung der Reflektivität von Dielektrika in Folge der Wechselwirkung mit ultrakurzen Pulsen bereits vielfach untersucht worden [59, 63, 69, 77, 84]. In wieweit sich diese Änderung bei der Reflexion und Transmission des auslösenden Pulses auswirkt, ist bislang noch völlig ungeklärt.

Ein Ziel dieser Arbeit ist daher, das Standardmessverfahren zur hochpräzisen Reflexions- und Transmissionsmessung gemäß Normentwurf ISO/CD 13697 mit ultrakurzen Laserpulsen umzusetzen. Im folgenden Kapitel werden nach der Beschreibung des Messprinzips die notwendigen Adaptionen der Messapparatur erläutert, da die Ultrakurzpuls-Strahlquelle bei einer Repetitionsrate von 1 kHz betrieben wird. Des Weiteren wird die Linearität abgeschätzt sowie die Kalibrierbarkeit des Messaufbaus für eine geringe Leistungsdichte auf den Kalibrierproben geprüft. Am Beispiel eines Ionenstrahl-gesputterten  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegels wird das Reflexionsverhalten bei Variation der Leistungsdichte analysiert. Zur Untersuchung des nichtlinearen Brechungsindex wird die Transmission einer  $\text{TiO}_2$ -Einzelschicht in Abhängigkeit der Leistungsdichte gemessen. Abschließend wird die Umsetzung des Normentwurfs im Bereich der ultrakurzen Laserpulse diskutiert.

## 5.1 Reflexions- und Transmissionsmessung nach ISO/CD 13697

Das Verfahren zur hochpräzisen Reflexions- und Transmissionsmessung basiert auf einem optischen Aufbau, bei dem ein Laser als Strahlquelle verwendet wird. Durch die vergleichsweise hohe Bestrahlungsstärke des Lasers kann zum Einen die Höhe des Messsignals im Vergleich zu einem typischen Spektralphotometer gesteigert werden. Zum Anderen wird der Laserstrahl mit Hilfe eines Choppers moduliert, wodurch bei der Detektion Lock-in-Technik zur deutlichen Reduzierung des Signalrauschens genutzt werden kann. Die Detektion erfolgt mit Hilfe einer Ulbrichtkugel, in der die Strahlung homogen verteilt wird. Das Signal des an der integrierenden Kugel lokalisierten Detektors ist mithin weitestgehend insensitive bezüglich des expliziten räumlichen Profils des Messstrahls.

Zur Messung der Reflektivität einer Probe  $R_P$  wird der kollimierte Laserstrahl zunächst über einen Chopper, der mit einer hochreflektierenden Oberfläche beschichtet ist, in geringem Winkel in Richtung der Probe reflektiert (s. Abbildung 5.2). Nach der Reflexion an der Probenoberfläche wird der Messstrahl in die Ulbrichtkugel gelenkt. Der detektierte Laserstrahl wird folglich gemäß des Produktes der Reflexionsgrade von Chopper  $R_{Ch}$  und Probe  $R_P$  abgeschwächt. Kann der Laserstrahl den Chopper im Zuge der Rotation vollständig passieren, tritt dieser Strahl ebenfalls in die Ulbrichtkugel ein und stellt den nicht geschwächten Vergleichsstrahl dar. Der an die Rotationsfrequenz gekoppelte Lock-in-Verstärker liefert den



**Abbildung 5.1:** Signalverlauf während der Rotation des Chopperblattes für eine Reflektionsmessung in Produktkonfiguration.

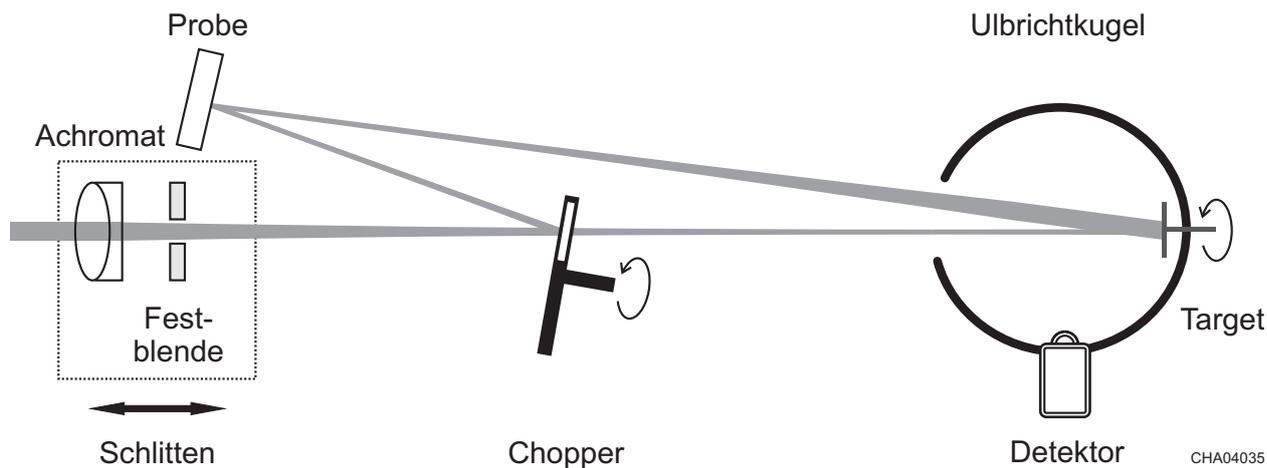
Messwert  $S$ , welcher proportional zur Leistungsdifferenz von reflektiertem und ursprünglichem Messstrahl  $S \propto \Delta P = P_0(1 - R_P R_{Ch})$  ist. Die absolute Leistung  $P_0$  des durch den Chopper hindurchtretenden Messstrahls kann durch Blockieren des reflektierten Strahls ermittelt werden, wobei der Lock-in-Verstärker ein entsprechendes proportionales Messsignal  $S_0 \propto P_0$  liefert. Da die Signale die gleiche Proportionalität besitzen, folgt für das Produkt aus Proben- und Chopperreflektivität der Zusammenhang

$$[R_P R_{Ch}] = 1 - \frac{S}{S_0}. \quad (5.1)$$

Der Signalverlauf für die Messung in der sog. Produktkonfiguration ist in Abbildung 5.1 dargestellt.

Die Reflektivität des Chopperblattes  $R_{Ch}$  wird mittels einer Kalibrierungsmessung bestimmt. In dem Normentwurf ISO/CD 13697 ist ein Kalibrierverfahren angegeben, für welches wenigstens zwei hochreflektierende Chopper und eine Probe notwendig sind, die zyklisch im Aufbau getauscht werden. Die Chopperreflektivität wird nach der Durchführung der Messung für drei relevante Konfigurationen aus der Lösung des resultierenden Gleichungssystems ermittelt. Da dieses Verfahren auf Grund der mangelnden Einbaureproduzierbarkeit problematisch ist, wurde ein alternatives Kalibrierungsverfahren vorgeschlagen [108] und bezüglich der Zuverlässigkeit optimiert [48, 95]. Dieses Verfahren basiert auf der Messung des Verhältnisses von Proben- zu Chopperreflektivität.

Hierzu wird die Probe hinter dem Chopperblatt positioniert, so dass der passierende Strahl von der Probe reflektiert wird (s. Abbildung 5.3). Die vom Chopper oder von der Pro-



**Abbildung 5.2:** Aufbau zur hochpräzisen Reflexionsmessung in Produktkonfiguration.

be reflektierten Strahlen werden in die Ulbrichtkugel<sup>1</sup> gelenkt und generieren im Lock-in-Verstärker ein Messsignal  $S \propto \Delta P = P_0 (R_{Ch} - R_P)$ . Auch in dieser sog. Verhältniskonfiguration kann der Probenstrahl zur Feststellung der Referenzleistung geblockt und ein Referenzsignal  $S_0 \propto P_0 R_{Ch}$  erzeugt werden. Für das Reflektivitätsverhältnis gilt dann:

$$\left[ \frac{R_P}{R_{Ch}} \right] = 1 - \frac{S}{S_0}. \quad (5.2)$$

Nach der Vermessung einer Probe in Produkt- und Verhältniskonfiguration ist die Reflektivität von Chopper und Probe vollständig bestimmt:

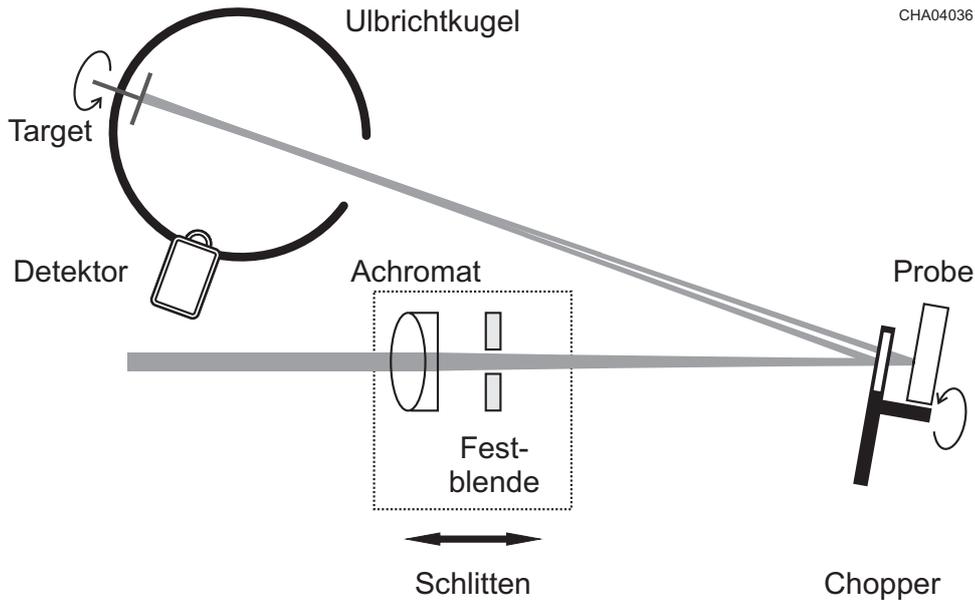
$$R_P = \sqrt{[R_P R_{Ch}] \cdot \left[ \frac{R_P}{R_{Ch}} \right]} \quad R_{Ch} = \sqrt{\frac{[R_P R_{Ch}]}{\left[ \frac{R_P}{R_{Ch}} \right]}}. \quad (5.3)$$

Bei dem Wechsel der Konfigurationen ist die Bestrahlung der gleichen Position auf dem Prüfling von großer Bedeutung, da auf Grund von lateralen Inhomogenitäten im Reflexionsgrad erhebliche Fehler bei der Kalibrierung auftreten können. Ist aus der Kalibrierung die Reflektivität des Choppers bekannt, kann eine Messserie mit der ermittelten Kalibrierung in einer der beiden Konfigurationen durchgeführt werden. Wesentlich ist es allerdings, die Lage des Messstrahls relativ zum Chopper unverändert zu lassen, da auch die Chopperbeschichtung erhebliche Inhomogenitäten im Reflexionsgrad aufweisen kann.

Der Messaufbau für die Transmission baut auf die Reflexionsmessung in Produktkonfiguration auf, wobei ein Reflektor mit der Reflektivität  $R_{Ref}$  an Stelle der Probe sowie die Probe in den ursprünglichen Referenzstrahlengang gebracht wird<sup>2</sup> (s. Abbildung 5.4). Sei o.B.d.A

<sup>1</sup>In der Praxis wird lediglich eine Ulbrichtkugel verwendet, deren Position entsprechend der gewünschten Konfigurationen gewählt wird.

<sup>2</sup>Die transmittierende Probe kann ebenfalls im ursprünglichen Probenstrahl lokalisiert werden, wodurch sich die Transmission aus dem Kehrwert des in Gl. 5.4 angegebenen Ausdrucks ergibt.



**Abbildung 5.3:** Aufbau zur hochpräzisen Reflexionsmessung in Verhältniskonfiguration.

die Leistung  $P_0 = 1$  und das Reflektivitätsprodukt bei Abwesenheit der Transmissionsprobe  $R_{Refl}R_{Ch}$ . Dann ist das Signal für den Messstrahl mit Probe  $\tilde{S} \propto T_P - R_{Refl}R_{Ch}$  und für den geblockten Vergleichsstrahl  $\tilde{S}_0 \propto T_P$ . Für die Transmission  $T_P$  gilt folglich:

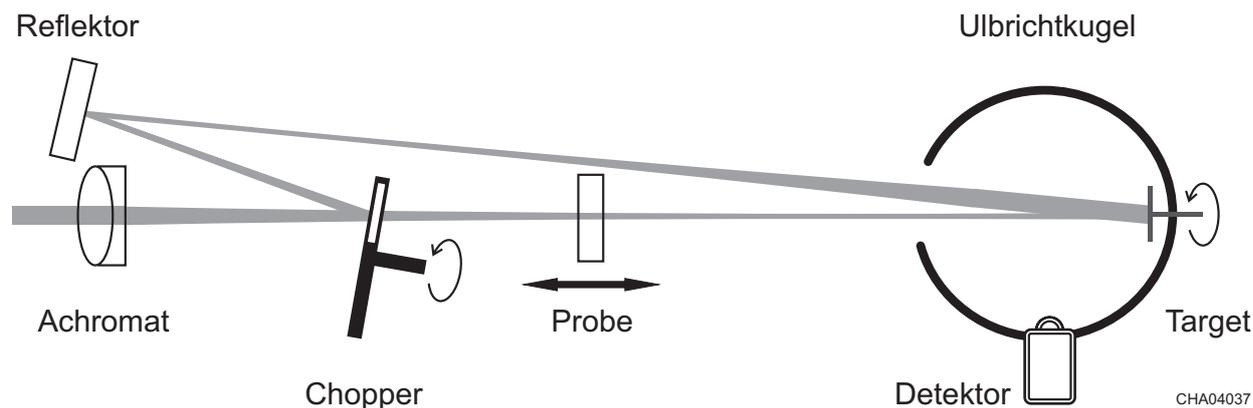
$$\begin{aligned} \frac{\tilde{S}}{\tilde{S}_0} &= 1 - \frac{[R_{Refl}R_{Ch}]}{T_P} \\ T_P &= \frac{[R_{Refl}R_{Ch}]}{1 - \frac{\tilde{S}}{\tilde{S}_0}}. \end{aligned} \quad (5.4)$$

Ein Vergleich mit Gl. 5.1 zeigt, dass der Ausdruck im Nenner einer Reflexionsmessung mit transmittierender Probe entspricht. Da im Zähler lediglich das Reflektivitätsprodukt von Chopper und Reflektor ohne Probe steht, ist eine zusätzliche Kalibrierung der Einzelreflektivitäten hier nicht notwendig. Die Transmission ist durch die Produktmessungen mit und ohne Probe vollständig bestimmt.

## 5.2 Adaption für ultrakurze Laserpulse

### 5.2.1 Beschreibung des Messaufbaus

Die Realisierung der hochpräzisen Reflexions- und Transmissionsmessung mit einem Ultrakurzpuls-Laser ist in den Abbildungen 5.2-5.4 skizziert. Als Strahlquelle wird, analog zu der in Kapitel 4 erläuterten laserkalorimetrischen Absorptionsmessung ein SPITFIRE CPA-Lasersystem genutzt. Die Pulsdauer wird für alle folgenden Messungen, mit Ausnahme der in Abschnitt 5.2.3 beschriebenen Kalibrierung, bei ca. 150 fs belassen. Die Kontrolle der



**Abbildung 5.4:** Aufbau zur hochpräzisen Transmissionsmessung.

Pulsdauer erfolgt über die Betrachtung einer Plasmabildung in Luft (s. Abschnitt 3.3.3). Für die Variation der Leistungsdichte wird der gleiche Aufbau verwendet, der bereits für die Laserkalorimetrie eine zuverlässige Einstellung verschiedener Strahldurchmesser in einer Prüfebene erlaubte. Hierzu wird ein Achromat der Brennweite  $f = 1300$  mm und eine nachfolgenden Festblende auf einem Schlitten montiert und zur Variation des Strahldurchmessers am Probenort in Propagationsrichtung verschoben. Die Messung der durchschnittlichen Laserleistung (Spectra-Physics 407A) zur Bestimmung der Leistungsdichte erfolgt nach dem Passieren dieser Strahlformungsblende. Die Strahlprofilmessung ist weiterhin durch den Metrolux Laser Beam Profiler gewährleistet, der an einem zur Prüfebene konjugierten Ort lokalisiert ist.

Da bei der Variation des Strahldurchmessers auf der Probe ebenfalls eine vergrößerte Leistungsdichte am Ort des Choppers einhergeht, ist mit Ionenstrahl-gesputtertem  $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{TiO}_2$  eine Materialkombination mit möglichst großem Bandabstand und somit besonders großer zu erwartender Zerstörfestigkeit gewählt worden. Bei der Verwendung von ultrakurzen Laserpulsen (Halbwertsbreite ca. 6 nm) könnte sich allerdings die geringe Breite des Reflexionstopfes ( $\lambda/4$ -Stapel) von rund 30 nm ( $R > 99\%$ ) als problematisch erweisen. Bei der Winkeljustage des Chopperblattes konnte aber über einen Bereich von mehreren Grad keine signifikante Änderung des Reflexionsverhaltens festgestellt werden, so dass von einer hinreichenden Zentrierung des Reflexionstopfes um die Mittenwellenlänge von 780 nm ausgegangen werden kann. Die Rückseite des Choppers wurde mit einer absorbierenden Folie beklebt, um die Verfälschung des Messsignals durch die Resttransmission der dielektrischen Chopperbeschichtung zu vermeiden. Die Chopperfrequenz beträgt für die folgenden Messungen rund 15 Hz.

In Abbildung 5.2 ist die Reflexionsmessung in Produktkonfiguration dargestellt. Der Laserstrahl trifft nach dem Passieren der Strahlformungseinheit den rotierenden Chopper, wobei der hindurchtretenden Strahl direkt in die Ulbrichtkugel fällt, der umgelenkte Strahl erst

über eine weitere Reflexion an der Probe in Richtung Integrationselement geführt wird. Die beiden Strahlen vereinigen sich in der Kugel auf dem rotierenden Target, das aus einem Pellet gepresstem Teflonpulver besteht und der Bildung eines statischen Punktmusters der Streustrahlung (*speckles*) entgegen wirkt. Als Detektor wird eine Silizium-Photodiode genutzt, die in Sperrrichtung betrieben wird sowie mit einem Tiefpass ( $C = 0,1 \mu\text{F}$ ,  $R = 56 \text{k}\Omega$ ) versehen ist<sup>3</sup>.

Der Aufbau für die Reflexionsmessung in Verhältniskonfiguration wird in Abbildung 5.3 geschildert. Hierbei gelangt der vom Chopper reflektierte Referenzstrahl direkt in die Ulbrichtkugel. Der vom Chopper hindurch gelassene Probenstrahl trifft auf die direkt hinter dem Chopper platzierte Probe und von dort aus ebenfalls in das Integrationselement. Ein geringer Abstand zwischen Chopper und Probe erlaubt, die Strahlprofile von Referenz- und Probenstrahl auf dem Target annähernd gleich zu halten<sup>4</sup>. Dieser vorteilhafte geringe Abstand wird bei der Kalibrierung (Abschnitt 5.2.3) genutzt. Für die Messungen, bei denen der Strahldurchmesser in der Testebene variiert wird (Abschnitt 5.3.1), könnte eine hohe Leistungsdichte auf dem Chopper möglicherweise Einfluss auf die Messung haben. Daher wird für diese Messserie die Probe in einem zur Produktkonfiguration vergleichbaren Abstand positioniert.

Bezüglich der Transmissionsmessung ist ein modifizierter Ansatz gewählt worden, der in Abbildung 5.4 dargelegt ist. Aufgrund der in Abschnitt 5.3.1 noch zu erläuternden Probleme mit der Konstanz der Chopperreflektivität wird bei der Transmissionsmessung an Stelle der Strahlformungseinheit die Probe für die Variation des Strahldurchmessers in der Testebene entlang der Propagationsrichtung verschoben. Hierzu wird der Achromat nahe an den Chopper gebracht, um sowohl auf dem Chopper als auch dem Reflektor eine geringe Leistungsdichte sicherzustellen. Im Falle des gewählten Ansatzes wird sich allerdings ein möglicher Einfluss auf Chopper und Reflektor nicht auf die Messung auswirken, da dieser unabhängig von der Präsenz einer Probe in gleicher Weise aufträte.

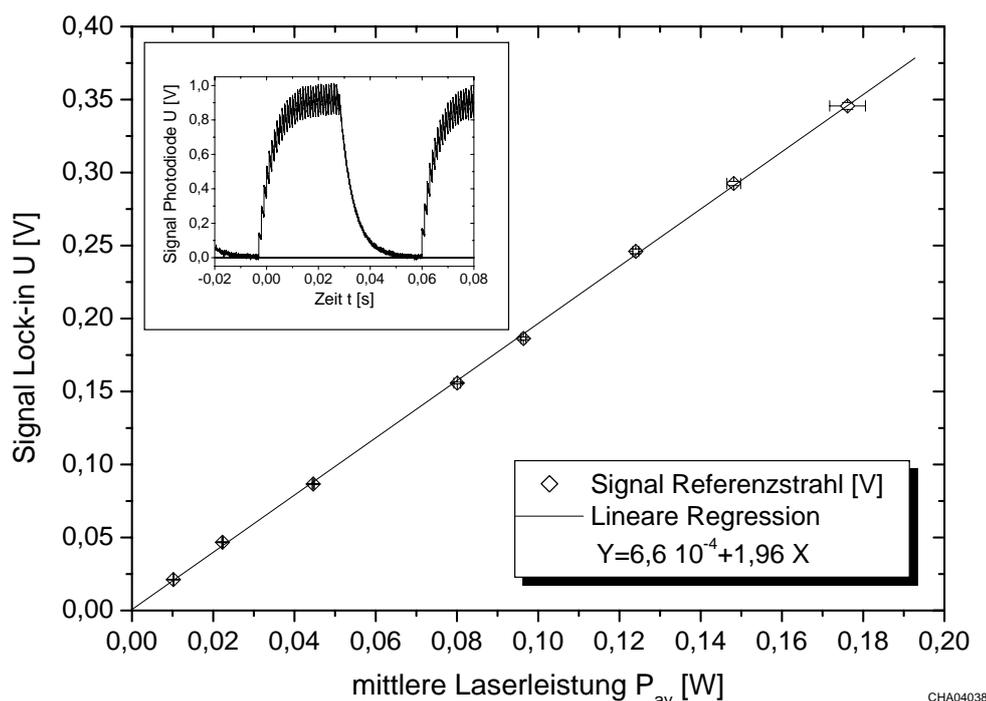
### 5.2.2 Prüfung auf Linearität

Im Normentwurf ISO/CD 13697 wird von einer kontinuierlichen Strahlquelle ausgegangen, für welche der Signalverlauf in Produktkonfiguration dem in Abbildung 5.1 skizzierten Idealfall nahe kommt. Da der für diese Untersuchungen verwendete Ultrakurzpulslaser eine

---

<sup>3</sup>Obwohl der Strahldurchmesser relativ zum ursprünglichen Strahl für kleine Abstände zwischen Schlitzen und Chopper deutlich verkleinert wird, ist eine bestrahlungsbedingte Veränderung des Targets nicht beobachtet worden.

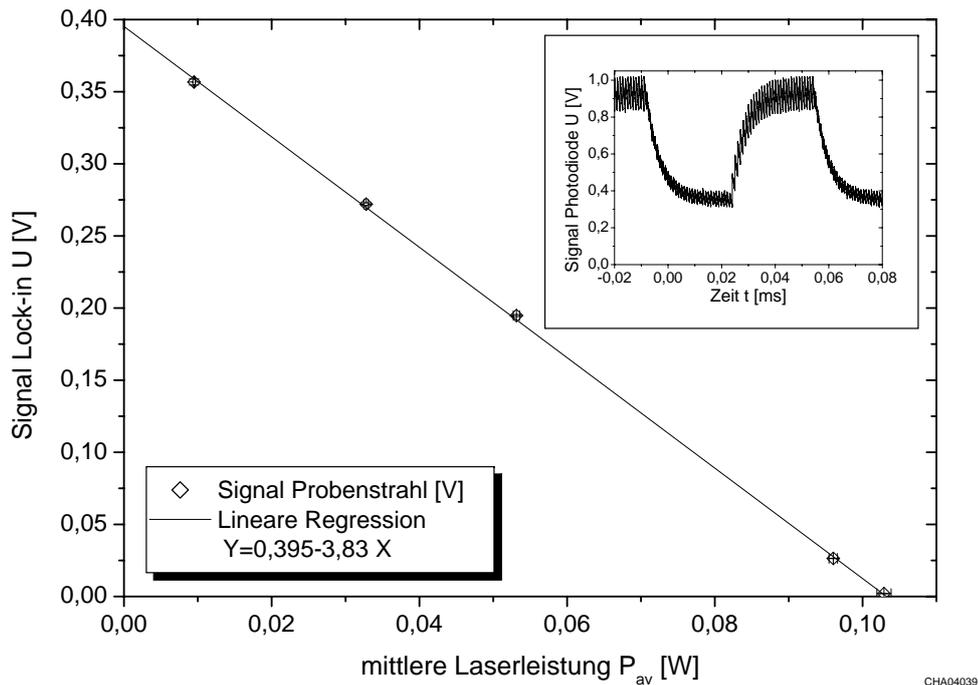
<sup>4</sup>In Folge einer leichten Krümmung des Choppers, ist der reflektierte Strahl während der Drehung nicht ideal punktförmig, sondern beschreibt einen kleinen Halbkreis, dessen Durchmesser auf dem Target etwa 5 mm beträgt.



**Abbildung 5.5:** Prüfung der Linearität des Messwertes  $S_0$  mit einem Leistungsmessgerät, Standardabweichung für 10 Messwerte als Fehlerbalken, Korrelationskoeffizient  $R = 0,99985$ ; eingesetzte Abb.: typischer Signalverlauf für Referenzmessung.

Repetitionsrate von 1 kHz aufweist, wird das Signal der Photodiode mittels eines Tiefpasses geformt. Ob diese Konditionierung zu einer linearen Abhängigkeit des Messergebnisses von der durchschnittlichen Laserleistung führt, wird in Produktkonfiguration für Proben- und Referenzstrahl geprüft.

Zur Abschwächung von Proben- bzw. Referenzstrahl dienen dielektrische Beschichtungen, die unterschiedliche Transmissionsgrade aufweisen und im Strahlengang vor der Detektion mit Leistungsmesskopf oder Ulbrichtkugel lokalisiert sind. Für jeden Datenpunkt werden nacheinander jeweils 10 Messwerte aufgenommen. Die Prüfung der Linearität des Messwertes  $S_0$  wird in Abbildung 5.5 und für  $S$  in Abbildung 5.6 dokumentiert. Sowohl für die Referenz- als auch für die Probenmessung kann keine bedeutende Abweichung der Messwerte  $S_0$  bzw.  $S$  vom linearen Verhalten bei veränderter durchschnittlicher Laserleistung festgestellt werden. Trotz des deutlich vom idealen Rechteckverlauf abweichenden Detektorsignals liefert die beschriebene Signalkonditionierung offenbar auswertbare Messwerte. Darüber hinaus kann für die Referenzmessung kein störender Einfluss von Fremdlicht auf den Wert von  $S_0$  identifiziert werden, woraus eine zufriedenstellende Modulation und Demodulation des Detektorsignals bei der Chopperfrequenz einhergeht.

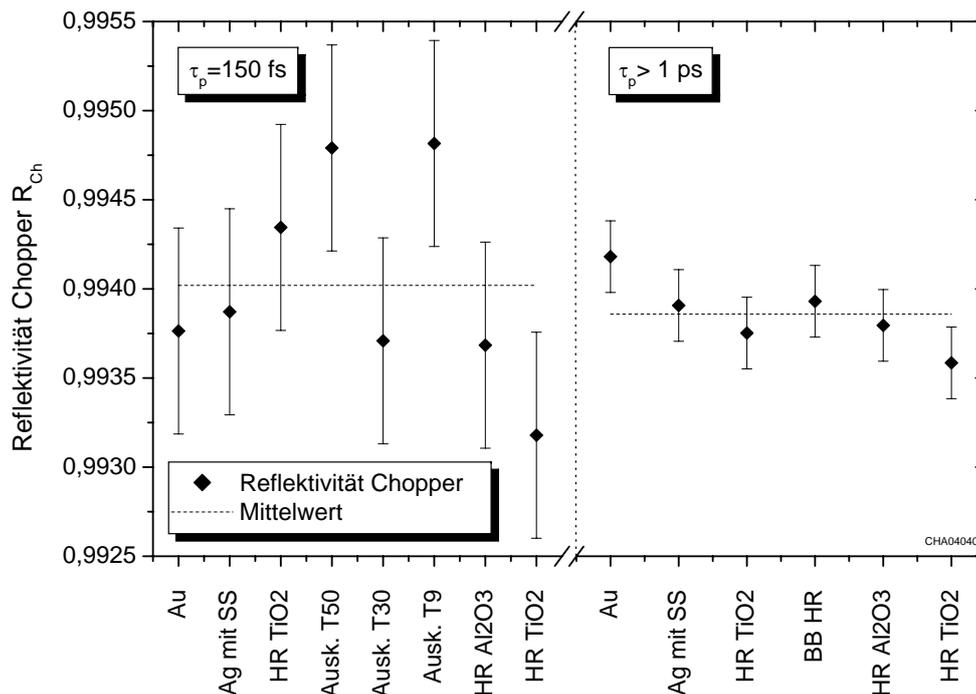


**Abbildung 5.6:** Prüfung der Linearität des Messwertes  $S$  mit einem Leistungsmessgerät, Standardabweichung für 10 Messwerte als Fehlerbalken, Korrelationskoeffizient  $R = -0,99961$ ; eingesetzte Abb.: typischer Signalverlauf für Probenmessung.

### 5.2.3 Bestimmung der Chopperreflektivität

Die Bestimmung der Chopperreflektivität mit dem Ziel, die Messapparatur zu kalibrieren, wird an Hand eines Satzes von metallischen und dielektrischen Reflektoren durchgeführt. Hierzu wird der Achromat in geringem Abstand zum Chopper positioniert, um einen möglichen Leistungsdichteinfluss zu minimieren. Des Weiteren wird die Kalibrierung bei minimierter Pulsdauer ( $t_p = 150$  fs) sowie bei deutlich verlängerter Pulsdauer ( $t_p > 1$  ps) durchgeführt. Das Ergebnis der Kalibriermessungen wird in Abbildung 5.7 erörtert.

Sowohl für die kurzen als auch die verlängerten Pulse ist eine Standardabweichung der ermittelten Chopperreflektivitäten im Bereich  $10^{-4}$  zu erkennen ( $0,9940 \pm 6 \cdot 10^{-4}$  für 150 fs sowie  $0,9939 \pm 2 \cdot 10^{-4}$  für  $> 1$  ps). Der Vergleich zwischen der Kalibrierung mit kurzen und längeren Pulsen liefert keinen signifikanten Unterschied bezüglich des Mittelwertes. Nach den gewonnenen Erfahrungen im Rahmen der hochpräzisen Reflexions- und Transmissionsmessung ist die Höhe der Schwankung entgegen des dargestellten experimentellen Befundes nicht durch die Pulsdauer, sondern durch die allgemeine Betriebsstabilität des Lasersystems bestimmt. Im Vergleich zum Messplatz bei 1.064 nm, bei dem ein hochstabiler monolithischer Ringlaser als Strahlquelle verwendet wird, ist die hier beobachtete Schwankung um eine



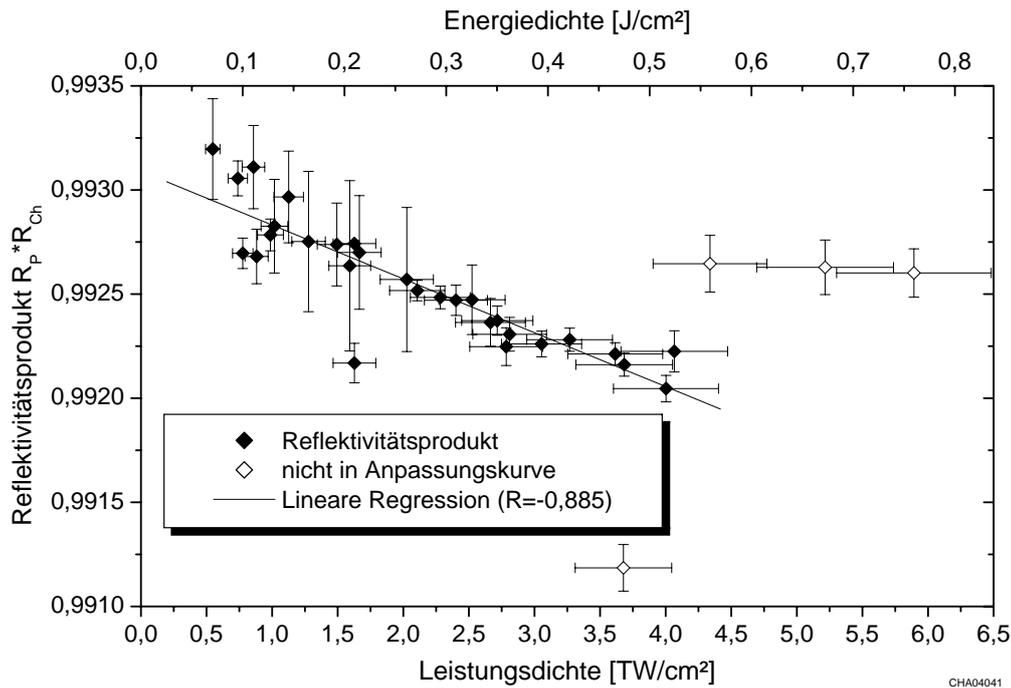
**Abbildung 5.7:** Bestimmung der Reflektivität des Choppers unter Verwendung verschiedener Kalibrierproben: Metallreflektoren aus Gold und Silber (mit Schutzschicht), Standardspiegel ( $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ ), Auskoppler ( $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ ) verschiedener Reflexionsgrade, Standardspiegel ( $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ ), Breitbandreflektor ( $\text{Ta}_2\text{O}_5/\text{SiO}_2$ ) 600-900 nm; Kalibrierung bei  $t_p = 150$  fs und  $t_p > 1$  ps.

Größenordnung größer [48]. Die erreichte Genauigkeit der Absolutkalibrierung, die an Hand der ermittelten Schwankung mit etwa 0,1% abgeschätzt wird, kann insbesondere verglichen mit einer typischen spektralphotometrischen Reflexionsmessung als durchaus akzeptabel bezeichnet werden.

## 5.3 Übertragungsverhalten bei variiertem Leistungsdichte

### 5.3.1 Reflexionsverhalten eines $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegels

Ein Ziel bei der Umsetzung des Verfahrens der hochpräzisen Reflexions- und Transmissionsmessung ist es, das Verhalten typischer Laserkomponenten bei der Bestrahlung mit ultrakurzen Laserpulsen hoher Leistungsdichte zu untersuchen. Am Beispiel eines Standardspiegels auf Basis von Ionenstrahl-gesputterten  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Schichten wird die Reflektivität unter Variation des Strahldurchmessers in Produktkonfiguration gemessen. Hierzu wird der auf einem

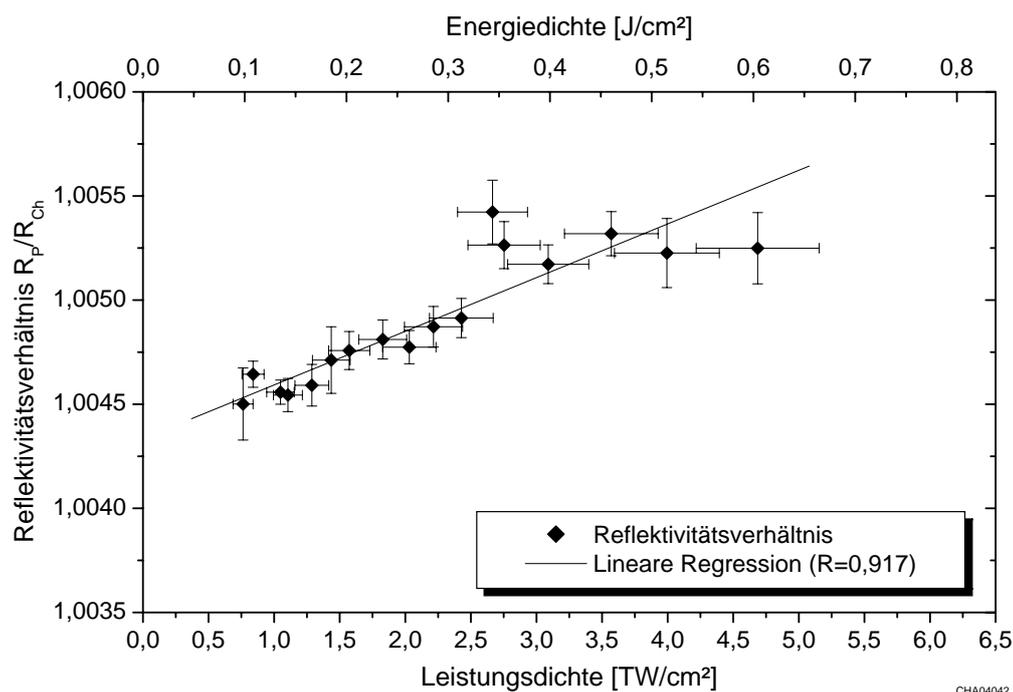


**Abbildung 5.8:** Messung des Reflektivitätsprodukts  $R_P R_{Ch}$  für einen  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegel in Abhängigkeit der Leistungsdichte, Fehlerbalken: 10% Fehler bei der Strahlprofilbestimmung und Standardabweichung für 10 Einzelmessungen der Reflektivität pro Messpunkt, Anpassungskurve: lineare Regression.

Schlitten montierte Achromat ausgehend vom minimal möglichen Abstand um ca. 40 cm vom Chopper fort bewegt. Im Zuge der Verschiebung wird der Strahldurchmesser von  $740 \mu\text{m}$  auf  $210 \mu\text{m}$  verringert. Bei jeder Messung wird die durchschnittliche Leistung ermittelt, um eine möglichst präzise Aussage über die Leistungsdichte zu erhalten. Das Ergebnis der Messungen in Produktkonfiguration ist in Abbildung 5.8 dargestellt.

Bei der Steigerung der Leistungsdichte auf der Probe ist eine deutliche Abnahme des Reflektivitätsproduktes erkennbar, die für die überwiegende Anzahl von Datenpunkten näherungsweise eine lineare Abhängigkeit zeigt. Während die statistische Sicherheit der Datenpunkte, die aus der Standardabweichung von je 10 Einzelmessungen gewonnen wird, analog zur bereits beschriebenen Kalibrierungsmessung im Bereich  $10^{-4}$  und besser ist, sind jedoch besonders für hohe Leistungsdichten Abweichungen von dem linearen Verlauf sichtbar. Folglich ist die Angabe der Schwankung bezüglich der Einzelmessungen als Kriterium für die Einschätzung der Genauigkeit nicht hinreichend. Als Grund für die gesteigerte Schwankung wird vermutet, dass Partikel auf der Oberfläche bzw. Einschlüsse oder Kristallite im Schichtsystem lokale Inhomogenitäten des Reflexionsgrades bewirken, aus denen wiederum bei kleinen Testdurchmessern signifikante Abweichungen folgen können [48].

Da bei dieser Messung lediglich das Reflektivitätsprodukt ermittelt wurde, muss die ver-



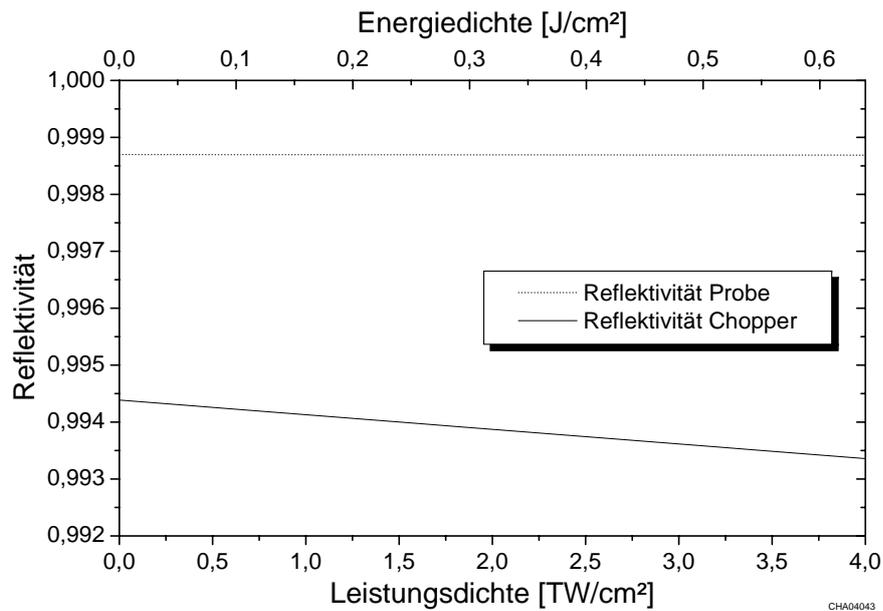
**Abbildung 5.9:** Messung des Reflektivitätsverhältnisses  $R_P/R_{Ch}$  für einen  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegel in Abhängigkeit der Leistungsdichte, Fehlerbalken: 10% Fehler bei der Strahlprofilbestimmung und Standardabweichung für 10 Einzelmessungen der Reflektivität pro Messpunkt, Anpassungskurve: lineare Regression.

bleibende Frage, ob der Effekt von der Probe oder vom Chopper ausgelöst wird, durch eine entsprechende Messung in Verhältniskonfiguration geklärt werden. Das Ergebnis dieser Untersuchung wird in Abbildung 5.9 erörtert.

In Verhältniskonfiguration ist ebenfalls eine lineare Abhängigkeit des Messergebnisses zu erkennen, allerdings mit positivem Vorzeichen. Die lineare Regression liefert hierbei annähernd die gleiche Steigung wie in Produktkonfiguration. Aus diesem Verhalten resultiert, dass die beobachtete Veränderung der Messwerte bei variiertem Leistungsdichte auf einen Effekt zurückzuführen ist, der von der Chopperbeschichtung ausgeht.

Des Weiteren kann ebenfalls in Verhältniskonfiguration eine erhöhte Streuung der Messwerte für große Leistungsdichten identifiziert werden. Aus dem Verlauf der Anpassungsgeraden in Produkt- und Verhältniskonfiguration können Proben- und Chopperreflektivität als Funktion der Leistungsdichte berechnet werden. Der resultierende Verlauf ist in Abbildung 5.10 skizziert.

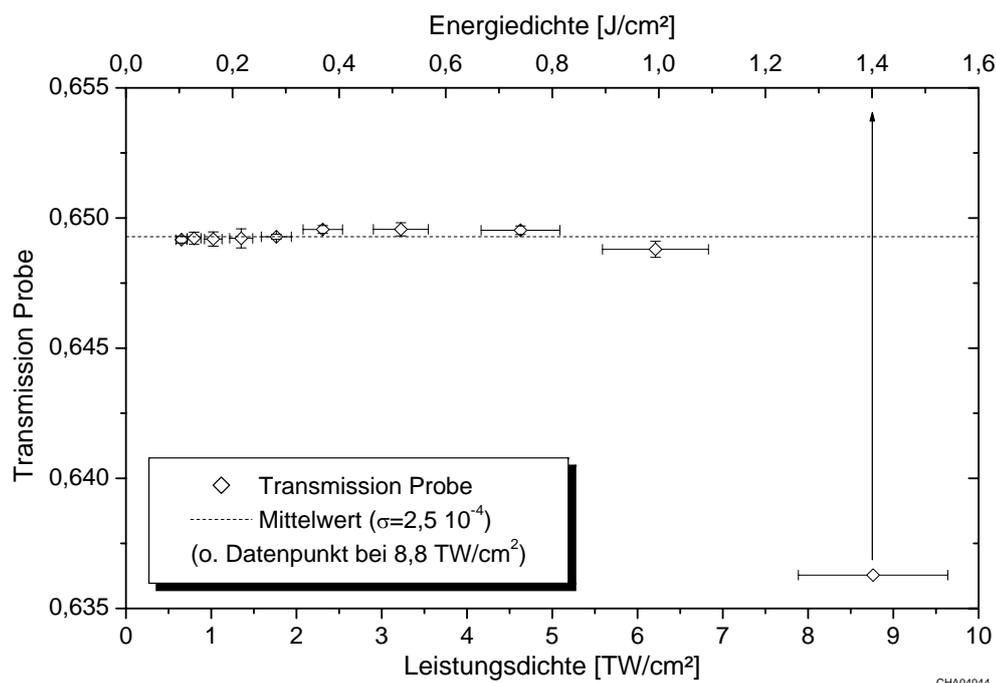
Bezüglich der Probenreflektivität kann auf Grund der bis auf das Vorzeichen praktisch identischen Steigung der Anpassungsgeraden eine über den untersuchten Leistungsdichtebereich konstante Reflektivität von  $R_P = 0,9987$  festgestellt werden. Die Reflektivität verändert sich im Leistungsdichtebereich von 0 bis  $4 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  um  $1 \cdot 10^{-5}$ . Demnach ist im Rahmen der Messge-



**Abbildung 5.10:** Aus den Anpassungskurven für Reflektivitätsprodukt und -Verhältnis berechnete Reflektivität von Chopper und  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegel in Abhängigkeit der Leistungsdichte.

nauigkeit eine nichtlineare Veränderung des Reflexionsgrades dieses dielektrischen Spiegels nicht erkennbar.

Im Gegensatz dazu beträgt in diesem Leistungsdichtebereich die Änderung der Chopperreflektivität  $1 \cdot 10^{-3}$  und liegt mithin deutlich oberhalb der Relativgenauigkeit von wenigen  $10^{-4}$ . Hierbei beträgt die Chopperreflektivität für geringe Leistungsdichten  $R_{Ch} = 0,9944$ , und ist somit in hinreichender Übereinstimmung mit der in Abschnitt 5.2.3 beschriebenen Kalibrierung. Die Abnahme der Reflektivität der Chopperbeschichtung ist insofern erstaunlich, als dass die Chopperbeschichtung einer weit geringeren Leistungsdichte als die zu testende Probe ausgesetzt war. Als Ursache dieses Messartefakts kann zum Einen vermutet werden, dass sich durch die Verschiebung der Achromaten der Bestrahlungsort auf dem Chopper lateral geändert und zusammen mit einer inhomogenen Beschichtung zu einer geänderten Chopperreflektivität geführt hat. Diese Annahme wird durch die Erkenntnis unterstützt, dass Ionenstrahl-gesputterte Schichten oftmals auf Grund der schmalen Bedampfungskeule einen kräftigen lateralen Dickenverlauf zeigen. Für den hier vorliegenden Fall eines schmalen Reflektionstopfes wäre demnach eine Veränderung in dieser Größenordnung denkbar. Andererseits kann ein nichtlineares Verhalten der Chopperbeschichtung ( $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ ) trotz der vergleichsweise geringen Leistungsdichte nicht ausgeschlossen werden. Zur näheren Klärung dieses Phänomens sind weitere Untersuchungen unumgänglich.



**Abbildung 5.11:** Messung der Transmission  $T_P$  für eine  $\lambda/4$ -Schicht  $\text{TiO}_2$  in Abhängigkeit der Leistungsdichte, Fehlerbalken: 10% Fehler bei der Strahlprofilbestimmung und Standardabweichung für 10 Einzelmessungen der Transmission pro Messpunkt.

### 5.3.2 Transmissionsverhalten einer $\text{TiO}_2$ -Einzelschicht

Um den Schwierigkeiten bzgl. der Reflektivitätsänderung des Choppers zu begegnen, soll für die Untersuchung des nichtlinearen Verhaltens einer  $\text{TiO}_2$ -Einzelschicht der Abstand des Achromaten vom Chopper minimal und über die Messserie konstant sein. Diese Randbedingungen können durch die hochpräzise Transmissionsmessung erfüllt werden, bei der Chopper und Reflektor ortsfest bleiben und die Probe auf einem Schlitten im Referenzstrahlengang im Bereich vor Erreichen des Fokus bestrahlt wird. Wie bereits bei der Beschreibung der Transmissionsmessung erwähnt, ist die aufeinander folgende Reflexionsmessung mit und ohne Probe in Produktkonfiguration für die Angabe der Proben­transmission hinreichend.

Als Probeobjekt wird eine Ionenstrahl-gesputterte  $\text{TiO}_2$ -Einzelschicht mit einer optischen Dicke von  $1 \lambda/4$  bei 780 nm gewählt, wobei die Schicht auf ein 1 mm starkes Quarzsubstrat aufgebracht wurde. Die bei der Bestrahlung entstehenden Reflexe werden in Strahlfallen gelenkt, so dass lediglich die Reintransmission durch die Messung mit der Ulbrichtkugel berücksichtigt wird. Der Reflexionsgrad des verwendeten dielektrischen Reflektors ( $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ ) beträgt ca. 70% und liegt damit in der Nähe der prognostizierten Proben­transmission, so dass relativ kleine Messwert­schwankungen zu erwarten sind. Der Strahldurchmesser auf der Probe

wird im Bereich zwischen 660 und 180  $\mu\text{m}$  variiert und die durchschnittliche Laserleistung bei jeder Transmissionsmessung bestimmt. Das Ergebnis der Transmissionsmessungen ist in Abbildung 5.11 dargelegt.

Aus dem Diagramm ist erkennbar, dass die Transmission für einen weiten Leistungsdichtebereich von 0,5 bis 6  $\frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  praktisch konstant ist. Die Schwankung der Messwerte um den gemeinsamen Mittelwert von  $T_P = 0,6493$  beträgt lediglich  $2,5 \cdot 10^{-4}$  und liegt somit innerhalb der zu erwartenden Fehlermarge. Eine Erniedrigung der Transmission in Folge des Kerr-Effektes, wie aus den theoretischen Überlegungen in Kapitel 2 für Materialien mit großem nichtlinearen Brechungsindex-Koeffizienten erwartet, kann für Ionenstrahl-gesputtertes  $\text{TiO}_2$  im Rahmen der Messgenauigkeit nicht bestätigt werden. Die Änderung des Brechungsindex läge demnach unterhalb von etwa  $2 \cdot 10^{-4}$  in dem diskutierten Leistungsdichtebereich.

Für eine Leistungsdichte von 8,8  $\frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  ist zu Beginn der Messung eine deutlich niedrigere Transmission ermittelt worden, die aber im Zuge der Messungen eine kräftige Steigerung erfuhr. Eine anschließende Mikroskopinspektion konnte die Zerstörung der Beschichtung als Ursache für die Transmissionssteigerung bestätigen. In Zusammenhang mit dem verschwindenden Einfluss des Kerr-Effektes für geringe Leistungsdichten ist ein Anstieg der Absorption (s. Abschn. 4.3.2) vermutlich die Ursache für die Erniedrigung der Transmission im Bereich der Zerstörschwelle des Materials.

## 5.4 Beurteilung des Messverfahrens

Die Übertragung des Messverfahrens zur Reflexions- und Transmissionsmessung gemäß des Normentwurfs ISO/CD 13697 in den Bereich der ultrakurzen Laserpulse kann bis auf Probleme bei der Leistungsdichtevariation als erfolgreich bezeichnet werden. So ist es gelungen, die Signalerzeugung für Laser mit relativ geringer Repetitionsrate dahin gehend anzupassen, dass eine Signalanalyse mittels Lock-in-Technik möglich wird. Hierbei muss allerdings eine relativ kleine Chopperfrequenz von 15 Hz gewählt und somit ein erhöhtes  $1/f$ -Rauschen in Kauf genommen werden. Die Prüfung der Linearität für die Proben- und Referenzmessung ergab keine wesentlichen Abweichungen vom erwarteten Verlauf. Bezüglich der Kalibrierung der Chopperreflektivität mittels verschiedener Kalibrierproben, die bei geringer Leistungsdichte durchgeführt wurde, konnte eine Schwankung im Bereich weniger  $5 \cdot 10^{-4}$  erreicht werden. Die erreichte Absolutgenauigkeit von etwa 0,1% wäre demnach weitaus besser als bei einer spektralphotometrischen Messung der Reflektivität.

Das Ziel einer Reflexionsmessung bei variiertem Leistungsdichte auf der Probe konnte nicht vollständig befriedigend erreicht werden. Im Zuge der Untersuchungen, bei denen der Strahldurchmesser durch eine Verschiebung des fokussierenden Achromaten verändert wurde, ist offenbar geworden, dass die Reflektivität der Chopperbeschichtung einer weit größeren Va-

riation unterlag als die untersuchte Spiegelbeschichtung. Diesem Messartefakt kann wahrscheinlich durch die Herstellung einer verbesserten Chopperbeschichtung, wie z. B. durch ein homogeneres Beschichtungsverfahren bzw. mit einer anderen Materialkombination, begegnet werden. Des Weiteren ist für kleine Strahldurchmesser eine erhöhte Messwertstreuung festzustellen, die vermutlich von lokalen Reflektivitätsschwankungen der Beschichtung ausgelöst wird. Daher sollte zum Einen der Strahldurchmesser auf der Probe nicht zu klein sein. Für das Erreichen hinreichend hoher Leistungsdichten wäre hierfür allerdings ein leistungsfähigeres Lasersystem notwendig. Zum Anderen sollte die Einstellung der Leistungsdichte möglichst ohne Strahlprofiländerung erfolgen, wie es durch Pulsdauervariation oder, bei Verfügbarkeit einer höheren Pulsenergie, mittels variabler Abschwächung des Strahls möglich wäre. Für die Pulsdauervariation müsste allerdings das mehrfach geschilderte Problem der präzisen Charakterisierung des zeitlichen Pulsprofils gelöst werden.

Die Schwierigkeit der sich ändernden Chopperreflektivität konnte im Zuge der Transmissionsmessung umgangen werden, bei der lediglich die zu untersuchende Probe entlang der Strahlkaustik translatiert wurde. Diese Messmethode ist der Reflexionsmessung in Bezug auf Justageempfindlichkeit und Kalibrierungsaufwand überlegen. Dennoch ist es auf Grund der in diesem Leistungsdichtebereich auftretenden nichtlinearen Absorption nicht möglich, über  $R \approx 1 - T$  auf die Reflektivität zu schließen.

Zukünftige Arbeiten zur Reflexions- und Transmissionsmessung mit ultrakurzen Pulsen sollten neben den geschilderten Optimierungspunkten ebenfalls vom Normentwurf abweichende Aufbauten berücksichtigen. Ein wesentlicher Unterschied bei der Verwendung gepulster Strahlquellen im Vergleich zu den im Normentwurf beschriebenen Apparaturen besteht in der Verfügbarkeit eines bereits phasenstabil modulierten Laserstrahls. So wäre es beispielsweise denkbar, auf ein rotierendes Chopperblatt zu verzichten und den Lock-in-Verstärker auf die Repetitionsrate des Lasersystems einzustellen. Durch diese grundlegende Änderung des Konzeptes könnten eine Reihe von experimentellen Schwierigkeiten, die mit einem hochreflektierenden Chopperblatts verbunden sind, wie z. B. Inhomogenität der Beschichtung, Strahlablenkung durch Krümmung und Vibrationen sowie nichtlineare Veränderungen des Reflexionsgrades vermieden werden.

# Kapitel 6

## Zusammenfassung

Im Rahmen der Entwicklung und Optimierung von Hochleistungslasern sind Standardmessverfahren für die Charakterisierung der optischen Eigenschaften von Laserkomponenten unverzichtbar. Mit der fortschreitenden Verbreitung von Ultrakurzpuls-Lasersystemen rückt der Bedarf an Messverfahren zur Qualitätskontrolle von Substraten und beschichteten Komponenten, die mit intensiven ultrakurzen Laserpulsen wechselwirken, zunehmend in den Vordergrund der Standardisierungsbemühungen. Das Ziel dieser Arbeit bestand darin, die Anwendbarkeit der relevanten Standardverfahren zur Mehrpulszerstörschwelle-, Absorptions-, Reflexions- und Transmissionsmessung im Bereich der ultrakurzen Laserpulse zu evaluieren und gegebenenfalls Optimierungsvorschläge zu erarbeiten.

Für das Verständnis der im Rahmen der vorliegenden Untersuchungen beobachteten Effekte ist die Betrachtung der zu Grunde liegenden Wechselwirkungsmechanismen ultrakurzer Laserpulse mit Dielektrika von großer Bedeutung. Da das Auftreten von laserinduzierter Zerstörung für den Bereich ultrakurzer Laserpulse mit dem Erreichen einer kritischen Dichte von Leitungsbandelektronen einhergeht, wurde zunächst die Ratengleichung für die Ladungsträgerpopulation aufgestellt. In der Ladungsträgerdynamik fanden die Photo- und Avalanche-Ionisation sowie die Bildung von *self-trapped excitons* Berücksichtigung. Am Beispiel von Quarz wurde die Ratengleichung numerisch gelöst und die Abhängigkeit der Ladungsträgerdichte von der Energiedichte des Laserpulses unter Verwendung von publizierten Modellparametern ermittelt. Der sprunghafte Anstieg der berechneten Elektronendichte in einem eng umgrenzten Energiedichtebereich steht in Einklang mit dem allgemein bekannten Auftreten eines deterministischen Zerstörungsverhaltens.

Des Weiteren wurde der zeitliche Verlauf des komplexen Brechungsindex im Bereich des ultrakurzen Pulses modelliert, wobei die nichtlinearen Beiträge durch den Kerr-Effekt und den Einfluss von Leitungsbandelektronen berücksichtigt wurden. Demnach führt der Kerr-Effekt im Bereich des Pulses zu einer Erhöhung des reellen Brechungsindex und die Präsenz von Leitungsbandelektronen nach Erreichen der Pulsspitze zu einer Erniedrigung des Realteils,

---

aber zu einer Erhöhung des Imaginärteils des Brechungsindex. Mittels einer numerischen Integration dieses Verlaufs konnte unter Hinzunahme des zeitlichen Pulsprofils erstmals das Reflexions- und Absorptionsverhalten von Quarz bezüglich der Propagation eines ultrakurzen Laserpulses berechnet werden.

Hinsichtlich der Mehrpuls-Zerstörschwellenmessung gemäß ISO 11254-2 konnte im Rahmen dieser Arbeit eine weitestgehende Adaption des Standardverfahrens erreicht werden. Der Messaufbau wurde über die normativen Forderungen hinaus mit einer einzelpulsauflösenden Energie- und Zerstörungsdetektion ausgestattet sowie in Bezug auf Algorithmen zur automatisierten Zerstörschwellenmessung optimiert. Mit dieser Messapparatur ist erstmals eine systematische Untersuchung des Mehrpuls-Zerstörungsverhaltens für eine Vielzahl von Optikkomponenten zur Verwendung im Ultrakurzpulzbereich gelungen. Für die Evaluierung des Messstandards wurden mehrere Proben- und Testparameter untersucht, wobei keine unüberwindbaren Schwierigkeiten bei der Anwendung des umgesetzten Standardverfahrens identifiziert werden konnten. Über die Anwendung im Bereich der ultrakurzen Laserpulse hinaus werden die im Rahmen dieser Arbeit geleisteten Optimierungen der Mehrpuls-Zerstörschwellenmessung bei einer späteren Revision der ISO 11254-2 sinnvolle Beiträge liefern können. Des Weiteren ist es durch die Bestrahlung mit zeitlich separierten Pulszügen gelungen, für typische  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegel permanente Defekte, wie z. B. Farbzentrenbildung, als Ursache für das Mehrpuls-Zerstörungsverhalten zu identifizieren.

Das Messverfahren der laserkalorimetrischen Absorptionsmessung nach ISO 11551 konnte ebenfalls erfolgreich für die Verwendung einer Ultrakurzpuls-Strahlquelle adaptiert werden. Hierzu waren auf Grund der geringen durchschnittlichen Laserleistung Optimierungen der thermischen Isolierung und des achsnahen Streulichtanteils notwendig. Mit der erreichten Nachweisempfindlichkeit von 10 ppm gelang erstmals der laserkalorimetrische Nachweis von nichtlinearer Absorption in verschiedenen oxidischen Dielektrika. Die hierfür notwendige Einstellung der auf der Probenoberfläche vorherrschenden Leistungsdichte erfolgte sowohl über eine Variation der Pulsdauer als auch des Strahldurchmessers. Für jede der untersuchten Einzelschichtproben konnte eine nichtlineare Absorptionssteigerung identifiziert werden, deren Höhe mit dem Bandabstand des verwendeten Materials korrelierte. Im Zuge der Untersuchungen konnten Steigerungen der Absorption von bis zu dem 140-fachen des Wertes bei geringer Leistungsdichte beobachtet werden. Bei dieser Absorptionssteigerung handelt es sich um einen transienten Effekt, der im Wesentlichen durch die freien Elektronen im Leitungsband ausgelöst wird.

Bezüglich des Messverfahrens zur hochpräzisen Reflexions- und Transmissionsmessung gemäß Normentwurf ISO/CD 13697 ist im Rahmen der Arbeit die Umsetzung mit einer Ultrakurzpuls-Strahlquelle erfolgt. Ein wesentlicher Problempunkt bestand darin, dass im Normentwurf die Modulation und Umlenkung des Laserstrahls über einen dielektrischen Umlenker und die Detektion über Lock-in-Technik geschieht. Für die Verwendung einer ge-

pulsten Strahlquelle war die Anpassung der Detektionseinheit notwendig. Eine anschließende Prüfung bestätigte die Linearität der Messsignale für diese Adaption. Mit dieser Apparatur wurde demnach das hochpräzise Messverfahren erstmals mit einer gepulsten Strahlquelle realisiert. Für einen Satz von unterschiedlichen Kalibrierproben konnte der Reflexionsgrad des Choppers mit einer Standardabweichung von weniger als  $5 \cdot 10^{-4}$  bestimmt werden. Die erreichte Absolutgenauigkeit wird mit etwa 0,1% abgeschätzt und somit besser als bei Reflexionsmessungen auf Basis von kommerziellen Spektralphotometern. Dem gegenüber offenbarte die Leistungsdichten-abhängige Reflexionsmessung, die mittels einer Variation des Strahldurchmessers auf der Probe realisiert wurde, erhebliche Schwierigkeiten durch die fehlende Konstanz der Chopperreflektivität. So konnte für einen  $\text{TiO}_2/\text{SiO}_2$ -Spiegel als Probe festgestellt werden, dass die Chopperreflektivität in dem untersuchten Leistungsdichtebereich um  $1 \cdot 10^{-3}$  sank, während die Probenreflektivität praktisch konstant blieb. Dieser Messartefakt erschwerte mithin die Untersuchungen zum nichtlinearen Brechungsindex. Obwohl dieses Problem bei dem Verfahren der Transmissionsmessung umgangen werden konnte, war an einer  $\text{TiO}_2$ -Einzelschicht lediglich im Bereich der Zerstörschwelle ein Absinken der Transmission, vermutlich in Folge nichtlinearer Absorption, zu erkennen. Für dieses Material konnte keine durch den Kerr-Effekt bedingte Erhöhung der Reflektivität identifiziert werden. Die im Rahmen dieser Arbeit geleisteten Untersuchungen liefern allerdings einige Ansatzpunkte für weitere Optimierungen der Apparatur, insbesondere in Bezug auf die Verbesserung der Chopperbeschichtung.

Abschließend beurteilt haben die beschriebenen Untersuchungen mittels Standardmessverfahren zur Optikcharakterisierung unter Verwendung ultrakurzer Laserpulse sowohl das grundlegende Verständnis von nichtlinearen Effekten in Dielektrika als auch die Weiterentwicklung der internationalen Normung gefördert.

Zukünftige Arbeiten im Bereich der Zerstörschwellenmessung mit ultrakurzen Pulsen sollten sich an der rapiden Entwicklung der Strahlquellen orientieren. Von Seiten der industriellen Anwender entsteht zur Zeit der drängende Wunsch einer deutlichen Steigerung der Repetitionsrate, wobei die Pulsenergie eine für die Materialbearbeitung hinreichende Höhe erreichen muss. In diesem Zuge werden Fragen zur Akkumulation in Dielektrika, die sich empfindlich auf die Mehrpulszerstörschwelle von Resonator- und Strahlführungsoptiken auswirken können, in den Mittelpunkt zukünftiger Aktivitäten treten. Um diesen Fragen nachzugehen, sind ebenfalls Strahlquellen für die Tests notwendig, deren Repetitionsrate möglichst im MHz-Bereich liegen sollten.

Darüber hinaus werden bei einer weiteren Verkürzung der Pulsdauer in industrietauglichen Lasersystemen zunehmend Probleme bei Transmissionsoptiken auftreten. So kann beispielsweise der Effekt der Selbstfokussierung bewirken, dass bei Energiedichten, die um wenigstens eine Größenordnung von der Zerstörschwelle der Oberfläche entfernt sind, bereits mikroskopische Defekte im Volumen der Optik erzeugt werden können. Diese Defekte müssen

---

in Zukunft bei Zerstörschwellentests durch verbesserte Detektionsverfahren sicher nachzuweisen sein. Des Weiteren wird die Gruppengeschwindigkeitsdispersion in Substraten und Beschichtungen an Gewicht gewinnen, für deren Messung zur Zeit lediglich vereinzelte Laboraufbauten existieren und noch kein konkreter Vorschlag für ein Standardmessverfahren in die Normungsgremien eingebracht wurde.

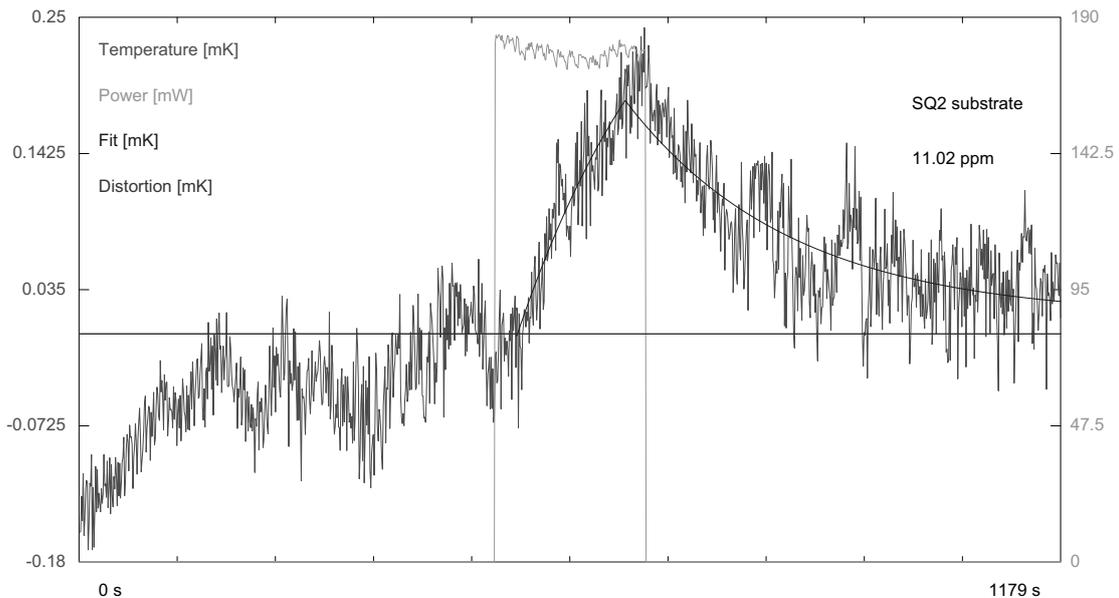
An dem in den letzten Jahren deutlich gestiegenen Interesse von Industrie und Forschung an Messverfahren zur Optikcharakterisierung mit ultrakurzen Pulsen ist erkennbar, dass mit der rasanten Verbreitung von Ultrakurzpuls-Lasersystemen ebenfalls eine größere Akzeptanz von zuverlässigen und praxisnahen Standardmessverfahren verbunden sein wird.

# Anhang A

## Laserkalorimetrie mit fs-Pulsen

Absorbance test according to ISO 11551  
 Witness substrate H=0,76J/cm<sup>2</sup>

Laser Zentrum Hannover e.V.  
 Hollerithallee 8  
 30419 Hannover

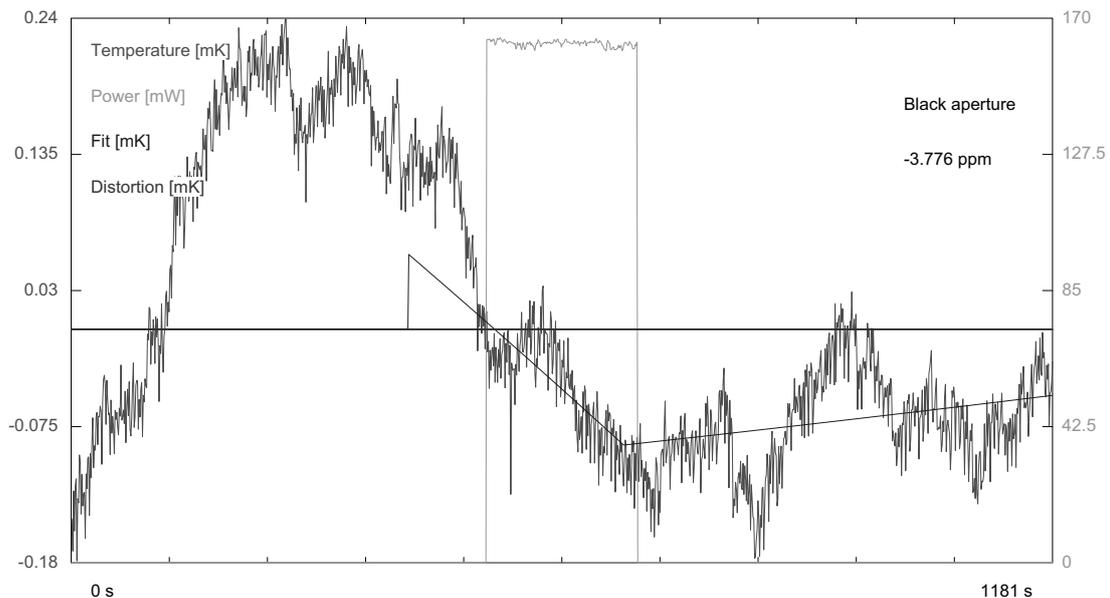


Sample ID:	SQ2 substrate	Subs. material	SQ2
Absorbance (expon. m.)	11.02 ppm	Sample mass	1.107 g
Absorbance (pulse m.)	7.682 ppm	Spec. heat cap.	0.772 J/gK
Absorbance (gradient m.)	11.4 ppm	Holder heat cap.	123 mJ/K
		Effect. heat cap.	1.02 J/K
Laser Power	179.4 mW	Temperature Drift	-9 µK/s
Wavelength	780 nm	Temp. delay	26.23 s
Polarisation	non	Temperature Leap	0 K
Irradiation time	180 s	Temperature Offset	0 K
Loss coefficient:	18.08 1/h	Data File:	21103A.CAL
Sample origin:	SE	Evaluation Date	26.10.2003
Cleaning proced.:	Acetone drag	Operator:	se
			1 inch holder mobile calorimeter

**Abbildung A.1:** Protokoll einer laserkalorimetrischen Messung nahe der Nachweisgrenze am Beispiel eines unbeschichteten Quarzsubstrates, das bei einer Leistungsdichte von  $5 \frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$  bestrahlt wurde (s. Abschnitt 4.3.2); Darstellung des Temperaturverlaufes (linke Ordinate) und der Bestrahlungsleistung (rechte Ordinate) während des Messzyklus (500 s Wartezeit, 180 s Bestrahlung, 500 s Abkühlung) sowie der exponentiellen Anpassungskurven.

Absorptance test according to ISO 11551  
 Black aperture, beam dia 0.74mm

Laser Zentrum Hannover e.V.  
 Hollerithallee 8  
 30419 Hannover



Sample ID:	Black aperture	Subs. material	Aluminium
Absorptance (expon. m.)	-3.776 ppm	Sample mass	1.079 g
Absorptance (pulse m.)	-3.504 ppm	Spec. heat cap.	0.858 J/gK
Absorptance (gradient m.)	-3.176 ppm	Holder heat cap.	123 mJ/K
		Effect. heat cap.	1.095 J/K
Laser Power	163.8 mW	Temperature Drift	-2.1 $\mu$ K/s
Wavelength	780 nm	Temp. delay	-93.84 s
Polarisation	non	Temperature Leap	0 K
Irradiation time	180 s	Temperature Offset	0 K
Loss coefficient:	-0.7968 1/h	Data File:	20103B.cal
Sample origin:	SE	Evaluation Date	26.10.2003
Cleaning proced.:	Acetone drag	Operator:	se
			1 inch holder mobile calorimeter

Abbildung A.2: Protokoll einer Leermessung mit einer eloxierten Lochblende (Apertur 11 mm) als Probe,  $1/e^2$ -Strahldurchmesser am Probenort 0,74 mm.



# Literaturverzeichnis

- [1] ADAIR, R. ; CHASE, L. L. ; PAYNE, S. A.: Nonlinear refractive index of optical crystals. In: *Phys. Rev. B* 39 (1989), S. 3337
- [2] AGRAWAL, G. P.: *Nonlinear fibre optics*. SanDiego CA, USA : Academic Press, 1989
- [3] AHRENS, H. ; WELLING, H. ; SCHEEL, H. E.: Measurement of Optical Absorption in Dielectric Reflectors. In: *Appl. Phys.* 1 (1973), S. 69–71
- [4] AKHMANOV, S. A. ; VYSLOUKH, V. A. ; CHIRKIN, A. S.: *Optics of Femtosecond Laser Pulses*. New York, USA : American Institute of Physics, 1992
- [5] ALLENSPACHER, P. ; HÜTTNER, B. ; RIEDE, W.: Ultrashort pulse damage of Si and Ge semiconductors. In: *34th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4932, SPIE, 2003, S. 358–365
- [6] APFEL, J. H.: Optical coating design with reduced electric field intensity. In: *Appl. Phys.* 16 (1977), Nr. 7, S. 1880–1885
- [7] APOSTOLOVA, T. ; HAHN, Y.: Modeling of laser-induced breakdown in dielectrics with subpicosecond pulses. In: *Journal of Applied Physics* 88(2) (2000), S. 1024–1034
- [8] ASHKENASI, D. ; HERBST, G. ; ROSENFELD, A. ; VAREL, H. ; LORENZ, M. ; STOIAN, R. ; CAMPBELL, E. E. B.: Laser ablation and structuring of transparent materials with ultrashort laser pulses. In: *Conference on High-Power Laser Ablation* Bd. 3343, SPIE, April 1998, S. 400–410
- [9] AUDEBERT, P. ; DAGUZAN, Ph. ; DOS SANTOS, A. ; GAUTHIER, J. C. ; GEINDRE, J. P. ; GUIZARD, S. ; HAMONIAUX, G. ; KRASTEV, K. ; MARTIN, P. ; PETITE, G. ; ANTONETTI, A.: Space-Time Observation of an Electron Gas in SiO<sub>2</sub>. In: *Phys. Rev. Lett.* 73 (1994), Nr. 14, S. 1990–1993
- [10] BERGMANN/SCHÄFER: *Lehrbuch der Experimentalphysik: Band 3 Optik*. Berlin : Walter de Gruyter, 1993

- [11] BLOEMBERGEN, N.: Laser-Induced Electric Breakdown in Solids. In: *IEEE J. Quantum Electron.* QE-10 (1974), S. 375–386
- [12] BÖDEFELD, R. ; THEOBALD, W. ; SCHREIBER, J. ; GESSNER, H. ; WELSCH, E. ; FEURER, T. ; SAUERBREY, R.: Damage threshold measurements of gold and dielectric coated optical components at 50fs-5ns / Friedrich Schiller-Universität Jena, Institut für Optik und Quantenelektronik. 1999. – Forschungsbericht. Annual Report
- [13] BONSE, J. ; BAUDACH, S. ; KAUTEK, W. ; WELSCH, E. ; KRÜGER, J.: Femtosecond laser damage of a high reflecting mirror. In: *Thin Solid Films* 408 (2002), S. 297–301
- [14] BONSE, J. ; BAUDACH, S. ; KRÜGER, J. ; KAUTEK, W. ; STARKE, K. ; GROSS, T. ; RISTAU, D. ; RUDOLPH, W. ; JASAPARA, J. ; WELSCH, E.: Femtosecond laser damage in dielectric coatings. In: *32th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4347, SPIE, 2001, S. 24–34
- [15] BOR, Z.: Distorsion of femtosecond laser pulses in lenses and lens systems. In: *Journal of Modern Optics* 35 (1988), Nr. 12, S. 1907–1918
- [16] BOR, Z.: Distorsion of femtosecond laser pulses in lenses. In: *Optics Letters* 14 (1989), Nr. 2, S. 119–121
- [17] BRABEC, T. ; KRAUSZ, F.: Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics. In: *Rev. Mod. Phys.* 72 (2000), Nr. 2, S. 545–591
- [18] BRONSTEIN, I. N. ; SEMENDJAJEW, K. A.: *Taschenbuch der Mathematik, 23. Auflage.* Thun und Frankfurt (Main) : Harry Deutsch, 1987
- [19] BUBENZER, A. ; KOIDL, P.: Exact expressions for calculating thin-film absorption coefficients from laser calorimetric data. In: *Appl. Opt.* 23 (1984), Nr. 17, S. 2886–2891
- [20] COUAIRON, A.: 2003. – Persönliche Korrespondenz
- [21] DIELS, J.-C. ; RUDOLPH, W.: *Ultrashort Laser Pulse Phenomena.* San Diego CA, USA : Academic Press, 1996
- [22] DIN, Deutsches Institut Für N.: *DIN-Taschenbuch 341: Charakterisierung von Laserstrahlen und Laseroptik.* Berlin : Beuth Verlag, 2000
- [23] DRAPER, N. R. ; SMITH, H.: *Applied Regression Analysis.* New York, USA : John Wiley & Sons, 1980

- [24] DU, D. ; LIU, X. ; KORN, G. ; SQUIER, J. ; MOUROU, G.: Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO<sub>2</sub> with pulse widths from 7ns to 150fs. In: *Appl. Phys. Lett.* 64 (1994), June, Nr. 23, S. 3071–3073
- [25] EPIFANOV, A. S.: Avalanche ionization induced in solid transparent dielectrics by strong laser pulses. In: *Sov. Phys. JETP* 40 (1975), Nr. 5, S. 897–902
- [26] FAISAL, F. H. M.: Multiple absorption of laser photons by atoms. In: *J. Phys. B: Atom. Molec. Phys.* 6 (1973), S. L89–L92
- [27] FEIT, M. D. ; RUBENCHIK, A. M. ; SHORE, B. W. ; STUART, B. C. ; PERRY, M. D.: Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses: II. theory, SPIE, 1995, S. 469–477
- [28] FISCHETTI, M. V. ; DIMARIA, D. J. ; BRORSON, S. D. ; THEIS, T. N. ; KIRTLEY, J. R.: Theory of high-field electron transport in silicon dioxide. In: *Phys. Rev. B* 31 (1985), Nr. 12, S. 8124–8142
- [29] FLEIG, C. ; GIESEN, A.: High Precision Reflectometer. In: LAABS, H. (Hrsg.) ; WEBER, H. (Hrsg.): *Proceedings of the 5th International Workshop on Laser Beam and Optics Characterization*, VDI-TZ, 2000, S. 333–349
- [30] FURUSAWA, K. ; TAKAHASHI, K. ; CHO, S.-H. ; KUMAGAI, H. ; MIDORIKAWA, K. ; OBARA, M.: Femtosecond laser micromachining of TiO<sub>2</sub> crystal surface for robust optical catalyst. In: *J. Appl. Phys.* 87 (2000), Nr. 4, S. 1604–1609
- [31] GROSS, Tobias: *Resonatorinterne Frequenzverdopplung für die Laserkalorimetrie bei 532 und 1064 nm*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1995
- [32] GUIZARD, S. ; MARTIN, P. ; PETITE, G. ; D’OLIVEIRA, P. ; MEYNADIER, P.: Time-resolved study of laser-induced colour centres in SiO<sub>2</sub>. In: *J. Phys.: Condens. Matter* 8 (1996), S. 1281–1290
- [33] HOSMER, D. W. ; LEMESHOW, S.: *Applied Logistic Regression*. New York, USA : John Wiley & Sons, 2000
- [34] International Electrotechnical Commission (Veranst.): *IEC 60751: Industrial platinum resistance thermometer sensors*. 1983. – International Electrotechnical Commission
- [35] IHLEMANN, J. ; WOLFF, B. ; SIMON, P.: Nanosecond and Femtosecond Excimer Laser Ablation of Fused Silica. In: *Appl. Phys. A* 54 (1992), S. 363–368
- [36] ISEMANN, Andreas: *Diodengepumpte Ultrakurzpuls-Laser und -Verstärkersysteme auf Colquiriite-Basis*, Universität Hannover, Dissertation, 2002

- [37] International Organization for Standardization, Technical Committee: Optics and Optical Instruments, subcommittee: Lasers and Laser-Related Equipment (Veranst.): *EN ISO 11146: Strahlabbmessungen, Divergenzwinkel und Strahlpropagationsfaktor*. Europäische Norm für Optik und optische Instrumente: Laser und Laseranlagen: Prüfverfahren für Laserstrahlparameter. 1997. – Deutsches Institut für Normung e.V.
- [38] International Organization for Standardization, Technical Committee: Optics and Optical Instruments, subcommittee: Lasers and Laser-Related Equipment (Veranst.): *ISO 11254-1: Test methods for laser induced damage threshold of optical surfaces. Part 1: 1 on 1 test*. International Standard. 2000. – International Organization for Standardization
- [39] International Organization for Standardization, Technical Committee: Optics and Optical Instruments, subcommittee: Lasers and Laser-Related Equipment (Veranst.): *ISO 11254-2: Test methods for laser induced damage threshold of optical surfaces. Part 2: S on 1 test*. International Standard. 2001. – International Organization for Standardization
- [40] International Organization for Standardization, Technical Committee: Optics and Optical Instruments, subcommittee: Lasers and Laser-Related Equipment (Veranst.): *ISO/DIS 11254-3: Test method for laser induced damage threshold of optical surfaces - Part 3: Certification of the laser power (energy) handling capability*. Draft International Standard. 2002. – International Organization for Standardization
- [41] International Organization for Standardization, Technical Committee: Optics and Optical Instruments, subcommittee: Lasers and Laser-Related Equipment (Veranst.): *ISO 11551: Test Method for Absorptance of Optical Laser Components*. International Standard. 1997. – International Organization for Standardization
- [42] International Organization for Standardization, Technical Committee: Optics and Optical Instruments, subcommittee: Lasers and Laser-Related Equipment (Veranst.): *ISO/CD 13697: Test Method for Reflectance and Transmittance of Optical Components*. Committee Draft of ISO TC 172/SC 9/WG 6. 2003. – International Organization for Standardization
- [43] International Organization for Standardization, Technical Committee: Optics and Optical Instruments, subcommittee: Lasers and Laser-Related Equipment (Veranst.): *ISO/DIS 15368 : Measurements for reflectance and transmittance of optical components*. Draft International Standard of ISO TC 172/SC 9/WG 6, Document N90. 1997. – International Organization for Standardization

- [44] JASAPARA, J. ; NAMPOOTHIRI, A. V. V. ; RUDOLPH, W. ; RISTAU, D. ; STARKE, K.: Femtosecond laser pulse induced breakdown in dielectric thin films. In: *Phys. Rev. B* 63 (2001), Nr. 4, S. 045117/1–5
- [45] JASAPARA, J. C.: *Characterization of a femtosecond laser and its application to the study of the breakdown in dielectric thin films*, University of New Mexico, Albuquerque, NM, USA, Dissertation, 2001
- [46] JONECKIS, L. G. ; SHAPIRO, J. H.: Quantum propagation in a Kerr medium: lossless, dispersionless fiber. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 10 (1993), Nr. 6, S. 1102–1120
- [47] JONES, S. C. ; BRÄUNLICH, P. ; CASPER, R. T. ; SHEN, X.-A. ; KELLY, P.: Recent progress on laser-induced modifications and intrinsic bulk damage of wide-gap optical materials. In: *Optical Engineering* 28 (1989), Nr. 10, S. 1039–1068
- [48] JUPÉ, M. ; GROSSMANN, F. ; STARKE, K. ; RISTAU, D.: Investigation in High-Precision Reflectivity Measurements: Improvements in the Calibration Procedure. In: *34th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4932, SPIE, 2003, S. 527–536
- [49] KAISER, A. ; RETHFELD, B. ; VICANEK, M. ; SIMON, G.: Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses. In: *Phys. Rev. B* 61 (2000), Nr. 17, S. 11437–11450
- [50] KELDYSH, L. V.: Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. In: *Sov. Phys. JETP* 20 (1965), Nr. 5, S. 1307–1314
- [51] KIM, B.-M. ; FEIT, M. D. ; RUBENCHIK, A. M. ; JOSLIN, E. J. ; EICHLER, J. ; STOLLER, P. C. ; DA SILVA, L. B.: Effects of high repetition rate and beam size on hard tissue damage due to subpicosecond laser pulses. In: *Appl. Phys. Lett.* 76 (2000), Nr. 26, S. 4001–4003
- [52] KLEIN, M. V. ; FURTAK, T. E.: *Optics*. New York, USA : John Wiley & Sons, 1986
- [53] KOLDUNOV, M. F. ; MANENKOV, A. A. ; POKOLOTILO, I. L.: Interrelation of the laser-induced damage characteristics in statistical theory. In: *Quantum Electronics* 30 (2000), Nr. 7, S. 592–596
- [54] KORTE, F. ; NOLTE, S. ; CHICHKOV, B. N. ; BAUER, T. ; KAMLAGE, G. ; WAGNER, T. ; FALLNICH, C. ; WELLING, H.: Far-field and near-field material processing with femtosecond laser pulses. In: *Appl. Phys. A* 69 (1999), S. S7–S11

- [55] KRÜGER, J. ; LENZNER, M. ; MARTIN, S. ; LENNER, M. ; SPIELMANN, Ch. ; FIEDLER, A. ; KAUTEK, W.: Single- and multi-pulse femtosecond laser ablation of optical filter materials. In: *Appl. Surf. Sci.* 208-209 (2003), S. 233–237
- [56] LENZNER, M. ; KRÜGER, J. ; KAUTEK, W. ; KRAUSZ, F.: Precise laser ablation of dielectrics in the 10-fs regime. In: *Appl. Phys. A* 68 (1999), S. 369–371
- [57] LENZNER, M. ; KRÜGER, J. ; SARTANIA, S. ; CHENG, Z. ; SPIELMANN, Ch. ; MOUROU, G. ; KAUTEK, W. ; KRAUSZ, F.: Femtosecond Optical Breakdown in Dielectrics. In: *Phys. Rev. Lett.* 80 (1998), Nr. 18, S. 4076–4079
- [58] LI, M. ; MENON, S. ; NIBARGER, J. P. ; GIBSON, G. N.: Ultrafast Electron Dynamics in Femtosecond Optical Breakdown of Dielectrics. In: *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999), Nr. 11, S. 2394–2397
- [59] LINDE, D. Von der ; SCHÜLER, H.: Breakdown threshold and plasma formation in femtosecond laser-solid interaction. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 13 (1996), Nr. 1, S. 216–222
- [60] LIU, X. ; MOUROU, G.: Laser Ablation and Micromachining with Ultrashort Laser Pulses. In: *IEEE Journal of Quantum Electronics* 33 (1997), Nr. 10, S. 1706–1716
- [61] MACLEOD, H. A. ; WELFORD, W. T. (Hrsg.) ; LAURENSEN, Simon (Hrsg.): *Thin-Film Optical Filters*. 3rd edition. Institute of Physics Publishing, Dirac House, Temple Back, Bristol BS1 6BE, UK, 2001
- [62] MARQUARDT, Donald W.: An algorithm for least-squares estimation of nonlinear parameters. In: *J. Soc. Indust. Appl. Math.* 11 (1963), Nr. 2, S. 431–441
- [63] MARTIN, P. ; GUIZARD, S. ; DAGUZAN, Ph. ; PETITE, G. ; D’OLIVEIRA, P. ; MEYNADIER, P. ; M., Perdrix: Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide band-gap crystals. In: *Phys. Rev B* 55 (1997), Nr. 9, S. 5799–5810
- [64] MARTIN, S. ; HERTWIG, A. ; LENZNER, M. ; KRÜGER, J. ; KAUTEK, W.: Spot-size dependence of the ablation threshold in dielectrics for femtosecond laser pulses. In: *Appl. Phys. A* 0 (2003), S. 1–2
- [65] MARTIN, S. ; KRÜGER, J. ; HERTWIG, A. ; FIEDLER, A. ; KAUTEK, W.: Femtosecond laser interaction with protection materials. In: *Appl. Surf. Sci.* 208-209 (2003), S. 333–339
- [66] MATHSOFT: *MathCad Version 8 Professional*. 1998. – Software zur Berechnung und Visualisierung von komplexen mathematischen Ausdrücken

- [67] MATUSCHEK, N. ; KÄRTNER, F. X. ; KELLER, U.: Theory of Double-Chirped Mirrors. In: *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 4 (1998), Nr. 2, S. 197–208
- [68] McCULLAGH, P. ; NELDER, J. A.: *Generalized Linear Models*. London, UK : Chapman and Hall, 1989
- [69] MERO, M. ; LIU, J. ; SABBAAH, A. ; JASAPARA, J. ; STARKE, K. ; RISTAU, D. ; McIVER, J. K. ; RUDOLPH, W.: Femtosecond pulse damage and pre-damage behavior of dielectric thin films. In: *34th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4932, SPIE, 2003, S. 202–212
- [70] MICROCAL: *Origin Version 6.0*. 1999. – Software zu Messdatenanalyse und -darstellung
- [71] NATIONAL-INSTRUMENTS: *LabView Version 6.1*. 2001. – Programmierumgebung für Messdatenerfassung und -analyse
- [72] NICKEL, D. ; FLEIG, C. ; ERHARD, A. ; LETSCH, A. ; GIESEN, A. ; JUPÉ, M. ; STARKE, K. ; RISTAU, D. ; WILHELM, O. ; HUBER, R. A. ; HASPEL, R. ; SCHUMANN, U. ; SCHARFENORTH, C. ; EICHLER, H. J. ; GLIECH, S. ; DUPARRÉ, A. ; SCHULZ-GROSSER, M. ; KRASILNIKOVA, A. ; HAISE, A. ; RIEDE, W. ; BALACHNINAITE, O. ; GRIGONIS, R. ; SIRUTKAITIS, V. ; KAZAKEVICH, V.: Results of a Round-Robin experiment on reflectivity measurements at a wavelength of 1.06  $\mu\text{m}$ . In: *Proceedings of the 34th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4932, SPIE, 2003, S. 520–526
- [73] NICKEL, Detlef: CHOCLAB II - Instruments and Standard Test Procedures for Laser Beam and Optics Characterization / VDI-TZ. 2003. – Forschungsbericht. Brochure to the final presentation of the Eureka project EU-2359
- [74] NIEMZ, M. H.: Threshold dependence of laser-induced optical breakdown on pulse duration. In: *Appl. Phys. Lett.* 66 (1995), Nr. 10, S. 1181–1183
- [75] NOLTE, Stefan: *Mikromaterialbearbeitung mit ultrakurzen Laserpulsen*, Universität Hannover, Dissertation, 1999
- [76] PALMER, Christopher: *Diffraction Grating Handbook*. fourth. Rochester NY, USA : Richardson Grating Laboratory, 2000
- [77] PETITE, G. ; DAGUZAN, Ph. ; GUIZARD, S. ; MARTIN, Ph.: Ultrafast Optical Measurements of Defect Creation in Laser Irradiated SiO<sub>2</sub>. In: *J. Phys. III France* 6 (1996), S. 1647–1676

- [78] PINNOW, D. A. ; RICH, T. C.: Development of a Calorimetric Method for Making Precision Optical Absorption Measurements. In: *Appl. Opt.* 12 (1973), Nr. 5, S. 984–992
- [79] RANKA, J. K. ; GAETA, A. L. ; BALTUSKA, A. ; PSHENICHNIKOV, M. S. ; WIERSMA, D. A.: Autocorrelation measurement of 6-fs pulses based on the two-photon-induced photocurrent in a GaAsP photodiode. In: *Opt. Lett.* 22 (1997), Nr. 17, S. 1344–1346
- [80] REISS, H. R.: Effect of an intense electromagnetic field on a weakly bound system. In: *Phys. Rev. A* 22 (1980), Nr. 5, S. 1786–1813
- [81] RILEY, D. ; LANGLEY, A. J. ; TADAY, P. F. ; SHAIKH, W. ; MCCORMACK, I.: Reflectivity experiments with 60 femtosecond laser pulses. In: *J. Phys. D: Appl. Phys.* 31 (1998), S. 515–518
- [82] RISTAU, D.: *Erhöhung der Zerstörschwellen dielektrischer Schichtsysteme für den Nd-Laser*, Universität Hannover, Dissertation, 1988
- [83] SACHS, L.: *Angewandte Statistik*. Springer-Verlag, Berlin, 1997
- [84] SAETA, P. N. ; GREENE, B. I.: Primary Relaxation Processes at the Band Edge of SiO<sub>2</sub>. In: *Phys. Rev. Lett* 70 (1993), Nr. 23, S. 3588–3591
- [85] SALIN, F. ; GEORGES, P. ; ROGER, G. ; BRUN, A.: Single-Shot Measurement of a 52-Fs Pulse. In: *Appl. Opt.* 26 (1987), S. 4528
- [86] SHAPIRO, S. L.: *Ultrashort Light Pulses: Picosecond Techniques and Applications*. Berlin : Springer-Verlag, 1977
- [87] SHORE, B. W. ; STUART, B. C. ; FEIT, M. D. ; RUBENCHIK, A. M. ; PERRY, M. D.: Laser Induced Damage in Multilayer Dielectric Gratings Due to Ultrashort Laser Pulses, SPIE, 1995, S. 714–723
- [88] SIEGMAN, A. E.: *Lasers*. Sausalito CA, USA : University Science Books, 1986
- [89] SOILEAU, M. J. ; WILLIAMS, W. E. ; MANSOUR, N. ; VAN STRYLAND, E. W.: Laser-induced damage and the role of self-focusing. In: *Opt. Eng.* 28 (1989), Nr. 10, S. 1133–1144
- [90] SOKOLOWSKI-TINTEN, K. ; BIALKOWSKI, J. ; CAVALLERI, A. ; BOING, M. ; SCHÜLER, H. ; LINDE, D. Von der: Dynamics of femtosecond laser induced ablation from solid surfaces. In: *Conference on High-Power Laser Ablation* Bd. 3343, SPIE, 1998, S. 46–57

- [91] SONG, J. ; JÓNSSON, H. ; CORRALES, L. R.: Self-trapped excitons in quartz. In: *Nuc. Instr. and Meth. in Phys. Research B* 166-167 (2000), S. 451–458
- [92] SPECTRA-PHYSICS: Hurricane Datasheet. 2003. – Forschungsbericht. <http://www.spectra-physics.de>
- [93] STARKE, K. ; GROSS, T. ; RISTAU, D.: Laser-induced damage threshold of optical components for ultrashort-pulse laser systems. In: *31th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 3902 LZH (Veranst.), SPIE, 2000, S. 408–417
- [94] STARKE, K. ; GROSS, T. ; RISTAU, D. ; RIGGERS, W. ; EBERT, J.: Laser-induced damage threshold of optical components for high repetition rate Nd:YAG-lasers. In: *30th Symposium on Laser Induced Damage in Optical Materials* Bd. 3578, SPIE, 1999, S. 584–593
- [95] STARKE, K. ; JUPÉ, M. ; EHLERS, H. ; RISTAU, D.: Investigation in High-Precision Reflectivity Measurements According to ISO 13697. In: *Proceedings of the 6th International Workshop of Laser Beam and Optics Characterization* LZH (Veranst.), WLT, 2001
- [96] STARKE, K. ; RISTAU, D. ; MARTIN, S. ; HERTWIG, A. ; KRÜGER, J. ; ALLENSPACHER, P. ; RIEDE, W. ; MEISTER, C. ; THEISS, C. ; SABBAAH, A. ; RUDOLPH, W. ; RAAB, V. ; GRIGONIS, R. ; RAKICKAS, T. ; SIRUTKAITIS, V.: Results of a round-robin experiment in multiple-pulse LIDT measurement with ultrashort pulses. In: *to be published in 35th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 5273 LZH (Veranst.), SPIE, 2004
- [97] STUART, B. C. ; FEIT, M. D. ; HERMAN, S. ; RUBENCHIK, A. M. ; SHORE, B. W. ; PERRY, M. D.: Nanosecond-to-Femtosecond Laser-Induced Breakdown in Dielectrics. In: *Phys. Rev. B* 53 (1996), jan, Nr. 4, S. 1749–1761
- [98] STUART, B. C. ; FEIT, M. D. ; HERMAN, S. ; RUBENCHIK, A. M. ; SHORE, B. W. ; PERRY, M. D.: Optical ablation by high-power short-pulse lasers. In: *J. Opt. Soc. Am. B* 13 (1996), Nr. 2, S. 459–468
- [99] STUART, B. C. ; HERMAN, S. ; PERRY, M. D.: Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses: I. Experimental, SPIE, 1995, S. 568–578
- [100] SUDRIE, L. ; COUAIRON, A. ; FRANCO, M. ; LAMOUREUX, B. ; PRADE, B. ; TZORTZAKIS, S. ; MYSYROWICZ, A.: Femtosecond Laser-Induced Damage and Filamentary Propagation in Fused Silica. In: *Phys. Rev. Lett.* 89 (2002), Nr. 18, S. 186601–1–4

- [101] TAYLOR, John R.: *Fehleranalyse: Eine Einführung in die Untersuchung von Unsicherheiten in physikalischen Messungen*. Weinheim : VCH, 1988
- [102] TIEN, A.-C. ; BACKUS, S. ; KAPTEYN, H. ; MURNANE, M. ; MOUROU, G.: Short-Pulse Laser Damage in Transparent Materials as a Function of Pulse Duration. In: *Phys. Rev. Lett.* 82 (1999), Nr. 19, S. 3883–3886
- [103] TIKHONRAVOV, A. V.: 2003. – Persönliche Korrespondenz
- [104] VOSS, A ; PLASS, W. ; GIESEN, A.: Simple High-Precision Method for Measuring the Specular Reflectance of Optical Components. In: *Appl. Opt.* 33 (1994), Nr. 36, S. 8370–8374
- [105] WALLAS, G.: *Zerstörfestigkeit von CO<sub>2</sub>-Laserkomponenten im repetetierlichen Betrieb*, Universität Hannover, Diplomarbeit, 1997
- [106] WEBER, M. J.: *CRC Handbook of Laser Science and Technology, Suppl. 2:Optical Materials*. Boca Raton FL, USA : CRC Press, 1995
- [107] WILLAMOWSKI, Uwe: *Standardisierbare Verfahren zur präzisen Charakterisierung des Absorptions-, Reflexions- und Transmissionsgrads optischer Komponenten*, Universität Hannover, Dissertation, 1998
- [108] WILLAMOWSKI, Uwe ; RISTAU, D. ; GROSS, T. ; KADKHODA, P. ; EHLERS, H. ; STARKE, K.: Untersuchungen zur ISO-Standardmessverfahren zur Charakterisierung optischer Laserkomponenten : EUREKA-Verbundprojekt EUROLASER CHOCLAB (EU 1269): Instruments and standard test precedures for laser beam and optics characterization / LZH. 1999. – Forschungsbericht
- [109] WOOD, Roger M.: *Laser Damage in Optical Materials*. Bristol : Adam Hilger, 1986
- [110] ZHAO, J.-X. ; HÜTTNER, B. ; MENSCHING, A.: Micromachining with Ultrashort Laser Pulses. In: *Conference on Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing IV* Bd. 3618, SPIE, 1999, S. 114–121

# Eigene Veröffentlichungen

- [1] STARKE, K. ; GROSS, T. ; RISTAU, D. ; RIGGERS, W. ; EBERT, J.: Laser induced damage threshold of optical components for high repetition rate Nd:YAG-lasers. In: *30th Symposium on Laser Induced Damage in Optical Materials* Bd. 3578, SPIE, 1999, S. 584-593
- [2] WILLAMOWSKI, U. ; RISTAU, D. ; GROSS, T. ; KADKHODA, P. ; EHLERS, H. ; STARKE, K.: Untersuchungen zur ISO-Standardmessverfahren zur Charakterisierung optischer Laserkomponenten : EUREKA-Verbundprojekt EUROLASER CHOCLAB (EU 1269): Instruments and standard test precedures for laser beam and optics characterization, LZH. 1999. Forschungsbericht
- [3] RISTAU, D. ; STARKE, K. ; KADKHODA, P. ; WELLING, H.: Round-robin Experiments in Optics Characterisation within the EUREKA-Project EUROLASER CHOCLAB. In: Laabs, H. (Hrsg.) ; Weber, H. (Hrsg.): *Proceedings of the 5th International Workshop on Laser Beam and Optics Characterization*, VDI-TZ, 2000, S. 333-349
- [4] STARKE, K. ; GROSS, T. ; LAPPSCHIES, M. ; RISTAU, D.: Rapid prototyping of optical thin film filters. In: *Proceedings on the 45th International Symposium on Optical Science and Technology* Bd. 4094, SPIE, 2000, S. 83-92
- [5] STARKE, K. ; GROSS, T. ; RISTAU, D.: Laser-induced damage threshold of optical components for ultrashort-pulse laser systems. In: *31th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 3902, SPIE, 2000, S. 408-417
- [6] BONSE, J. ; BAUDACH, S. ; KRÜGER, J. ; KAUTEK, W. ; STARKE, K. ; GROSS, T. ; RISTAU, D. ; RUDOLPH, W. ; JASAPARA, J. ; WELSCH, E.: Femtosecond laser damage in dielectric coatings. In: *32th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4347, SPIE, 2001, S. 24-34
- [7] ISEMANN, A. ; STARKE, K. ; FALLNICH, C. ; WELLING, H.: Diode-Pumped High Repetition Rate fs Regenerative Amplifier with Cr<sup>3+</sup> Doped Crystals and Up to 3  $\mu$ J Pulse Energy from an Ellipitcal Cavity Mode. In: *OSA Technical Digest*. Washington

- DC, USA : Optical Society of America, 2001, S. 246-248. Advanced Solid-State Lasers, Paper TuB5
- [8] JASAPARA, J. ; NAMPOOTHIRI, A. V. V. ; RUDOLPH, W. ; RISTAU, D. ; STARKE, K.: Femtosecond laser pulse induced breakdown in dielectric thin films. In: *Phys. Rev. B* 63 (2001), Nr. 4, S. 045117/1-5
- [9] JASAPARA, J. ; NAMPOOTHIRI, A. V. V. ; RUDOLPH, W. ; RISTAU, D. ; STARKE, K.: Physical mechanisms of femtosecond pulse induced damage in dielectric thin-films. In: *33th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4347, SPIE, 2001, S. 35-44
- [10] JASAPARA, J. ; NAMPOOTHIRI, A. V. V. ; RUDOLPH, W. ; RISTAU, D. ; STARKE, K.: Femtosecond pulse induced damage in dielectric thin-film structures. In: Corcoran, T.A.. (Hrsg.): *Proceedings of the International Conference on LASERS 2000* Bd. 4347, Soc. Opt. and Quantum Electron., 2001, S. 273-280
- [11] RISTAU, D ; STARKE, K. ; KADKHODA, P. ; WELLING, H.: Standardisation in Optics Characterisation. In: Tönshoff, H. K. (Hrsg.): *Proceedings of the 2nd International Conference THE-Coatings in Manufacturing and Engineering*. Hannover : Institut für Werkstoffkunde, Universität Hannover, 2001, S. O5-1-O5-14
- [12] GROSS, T. ; STARKE, K. ; LAPPSCHIES, M. ; RISTAU, D.: Rapid prototyping of optical thin film filters. In: Tönshoff, H. K. (Hrsg.): *Proceedings of the 2nd International Conference THE-Coatings in Manufacturing and Engineering*. Hannover : Institut für Werkstoffkunde, Universität Hannover, 2001, S. O2-1-O2-7
- [13] STARKE, K. ; GROSS, T. ; RISTAU, D.: Laser-induced damage investigation in chirped mirrors for ultrashort pulse laser systems. In: *32th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4347, SPIE, 2001, S. 528-534
- [14] STARKE, K. ; JUPÉ, M. ; EHLERS, H. ; RISTAU, D.: Investigation in High-Precision Reflectivity Measurements According to ISO 13697. In: *Proceedings of the 6th International Workshop of Laser Beam and Optics Characterization*, WLT, 2001
- [15] STARKE, K. ; CZERNER, ST. ; WILLAMOWSKI, U. ; RISTAU, D.: Beam shaping of high-power diode lasers. In: *Proceedings of the 6th International Workshop of Laser Beam and Optics Characterization*, WLT, 2001
- [16] JUPÉ, M. ; GROSSMANN, F. ; STARKE, K. ; RISTAU, D.: Investigation in High-Precision Reflectivity Measurements: Improvements in the Calibration Procedure. In:

- 34th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4932, SPIE, 2003, S. 527-536
- [17] MERO, M. ; LIU, J. ; SABBAB, A. ; JASAPARA, J. ; STARKE, K. ; RISTAU, D. ; MCIIVER, J. K. ; RUDOLPH, W.: Femtosecond pulse damage and pre-damage behavior of dielectric thin films. In: *34th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4932, SPIE, 2003, S. 202-212
- [18] NICKEL, D. ; FLEIG, C. ; ERHARD, A. ; LETSCH, A. ; GIESEN, A. ; JUPE, M. ; STARKE, K. ; RISTAU, D. ; WILHELM, O. ; HUBER, R. A. ; HASPEL, R. ; SCHUMANN, U. ; SCHARFENORTH, C. ; EICHLER, H. J. ; GLIECH, S. ; DUPARRE, A. ; SCHULZ-GROSSER, M. ; KRASILNIKOVA, A. ; HAISE, A. ; RIEDE, W. ; BALACHNINAITE, O. ; GRIGONIS, R. ; SIRUTKAITIS, V. ; KAZAKEVICH, V.: Results of a „Round-Robin“ experiment on reflectivity measurements at a wavelength of 1.06  $\mu\text{m}$ . In: *Proceedings of the 34th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4932, SPIE, 2003, S. 520-526
- [19] RISTAU, D. ; GROSS, T. ; LAPPSCHIES, M. ; STARKE, K.: Towards Rapid Prototyping in Thin Technology. In: Masetti, E. (Hrsg.) ; Ristau, D. (Hrsg.) ; Krasilnikova, A. (Hrsg.): *Proceedings of the Workshop on Optical Coatings: Theory, Production, and Characterisation*. Erice, Sizilien : International School of Quantum Electronics, 2003, S. 29-35
- [20] STARKE, K. ; RISTAU, D. ; WELLING, H.: Standard measurement procedures for the characterization of fs-laser optical components. In: *34th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 4932, SPIE, 2003, S. 482-491
- [21] GÜNSTER, S. ; STARKE, K. ; RISTAU, D. ; DANAILOV, M. B. ; DIVIACCO, B. ; GATTO, A. ; KAISER, N. ; SARTO, F.: Surface investigation of VUV-optical components after exposure to high energetic synchrotron radiation. In: *to be published in 35th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 5273, SPIE, 2004
- [22] MERO, M. ; SABBAB, A. J. ; LIU, J. ; CLAPP, B. ; ZELLER, J. ; RUDOLPH, W. ; STARKE, K. ; RISTAU, D.: Femtosecond pulse damage behavior of oxide and fluoride dielectric thin films. In: *to be published in 35th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 5273, SPIE, 2004
- [23] SANSONE, G. ; STEINMEYER, G. ; STAGIRA, S. ; NISOLI, M. ; DE SILVESTRI, S. ; VOZZI, C. ; STARKE, K. ; RISTAU, D. ; SCHENKEL, B. ; BIEGERT, J. ; GOSTEVA,

- A. ; KELLER, U.: Mirror dispersion control of a hollow fiber supercontinuum. In: *to be published in Appl. Phys. B*.
- [24] STARKE, K. ; RISTAU, D. ; WELLING, H. ; AMOTCHKINA, T. V. ; TRUBETSKOV, M. ; TIKHONRAVOV, A. A. ; CHIRKIN, A. S.: Investigations in the non-linear behavior of dielectric coatings by using ultrashort pulses. In: *to be published in 35th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 5273, SPIE, 2004
- [25] STARKE, K. ; RISTAU, D. ; MARTIN, S. ; HERTWIG, A. ; ALLENSPACHER, P. ; RIEDE, W. ; THEISS, C. ; RAAB, V. ; SIRUTKAITIS, V. ; RUDOLPH, W.: Results of a round-robin experiment in multiple-pulse LIDT measurement with ultrashort pulses. In: *to be published in 35th Annual Symposium on Optical Materials for High Power Lasers* Bd. 5273, SPIE, 2004

# Lebenslauf

Name	Kai Starke
Geburtstag	1.12.1971
Geburtsort	Rahden, Westf.
Familienstand	verheiratet, 2 Kinder
1978-1982	Grundschule Varl, Rahden
1982-1991	Söderblom-Gymnasium, Espelkamp
1991-1992	Zivildienst beim Arbeiter-Samariter-Bund, Bielefeld
1992-1994	Grundstudium Diplom-Physik, Universität Bielefeld
1994-1998	Hauptstudium Diplom-Physik, Universität Hannover
24. April 1998	Diplom
seit Mai 1998	wissenschaftlicher Mitarbeiter am Laser Zentrum Hannover e.V.
seit Jan. 2001	Leiter der Gruppe Charakterisierung, Abteilung Laserkomponenten



# Danksagung

Die hier dargestellten Arbeiten waren eingebunden in den EUREKA-Verbund CHOCLAB II sowie in den BMBF-Verbund PRIMUS, in denen Standardmessverfahren insbesondere für den Bereich ultrakurzer Laserpulse entwickelt werden sollten. In diesem Zusammenhang sind Teilergebnisse aus Prioritätsgründen vorveröffentlicht worden.

Herrn Prof. Dr. H. Welling danke ich für die Überlassung des interessanten Themas und für die Möglichkeit, die Arbeit am Laser Zentrum Hannover e.V. durchzuführen.

Herrn Dr. D. Ristau danke ich herzlich für die fortwährende Unterstützung bei der Bearbeitung des Themas, der kritischen Durchsicht der Arbeit und den vielen hilfreichen Diskussionen, die zum Gelingen der Arbeit beigetragen haben.

Für die gute Zusammenarbeit in den letzten Jahren und die Übernahme des Korreferats sei Herrn Prof. Dr. W. Rudolph von der University of New Mexico gedankt.

Den Kollegen von der Moscow State University und im Besonderen Herrn Prof. Dr. A. A. Tikhonravov und Herrn Prof. Dr. A. S. Chirkin sei dafür gedankt, dass sie die theoretische Modellierung in Gang brachten und mich bei der Deutung der Phänomene unterstützten.

Diese Arbeit wäre nicht ohne die Unterstützung der Gruppe Ultrakurzpulslaser und im Besonderen von Herrn T. Bauer, Herrn G. Kamlage und Herrn Dr. F. Korte möglich gewesen, die mich mit der Bereitstellung von Strahlzeiten und bei der Wartung der Lasersysteme unterstützten.

Allen an den Forschungsaktivitäten beteiligten Projektpartnern und Institutionen sei herzlich gedankt.

Den Mitstreitern der Gruppe Charakterisierung möchte ich für die kooperative Stimmung in den vergangenen Jahren danken, besonders Herrn M. Jupé für die bereitwillige Übernahme vieler Industrieaufträge und die Durchsicht der Arbeit. Herrn H. Blaschke danke ich für die engagierte Hilfe bei der Lösung der zahlreichen Probleme mit dem Textsatzprogramm.

Den Mitarbeitern der Abteilung Laserkomponenten möchte ich herzlich für die freundliche und konstruktive Arbeitsatmosphäre, die Bereitstellung einer Vielzahl von Testoptiken und die Kaffeerunden danken. Besonderen Dank möchte ich Herrn T. Groß aussprechen, der für die Probleme rund um die Messaufbauten stets eine gute Idee parat hatte. Weiterhin danke ich Herrn H. Ehlers für die gründliche Durchsicht der Arbeit.

Zu guter Letzt danke ich meiner Frau Vera, die mir trotz der besonderen Umstände in der Abschlussphase der Arbeit die nötigen Freiheiten einräumte.