

Kapitel 3

Experimentelle Methoden

3.1 Meßaufbau

Für die Bestimmung der Zerstörschwellen wurde ein Ablationsmeßplatz aufgebaut, dessen schematische Skizze in Abb 3.1 dargestellt ist. Alle für die Strahlführung verwendeten Spiegel waren mit einer dispersionsminimierten dielektrischen HR¹-Beschichtung versehen.

Bei den Messungen wurde eine Computersteuerung genutzt, um sowohl die Strahlungsquelle als auch die Probenposition zu kontrollieren. Dabei war es möglich, die Pulsenergie zu variieren und voreingestellte Pulszüge zu starten. Die Laserpuls-Steuerung erlaubte es, die Anzahl der Laserpulse eines Pulszuges und die Folgefrequenz einzustellen. Das Lasersystem selbst ist in Abschnitt 3.2 näher beschrieben.

Eine einseitig entspiegelte Quarzglasplatte diente als Strahlteiler und lenkte stets etwa 5 % der Laserstrahlung auf eine Fotodiode, die als Online-Monitor für die Pulsenergie genutzt wurde. Die Diodensignale wurden für jeden einzelnen Laserpuls eines Pulszuges erfaßt und im Computer abgespeichert. Der Online-Monitor wurde jeweils vor den Experimenten mittels eines pyroelektrischen Energiemeßgerätes kalibriert. Der entsprechende Energiemeßkopf konnte an geeigneter Stelle in den Strahlengang geschoben werden. Für die durchgeführten Messungen wurde in der Regel der Mittelwert über alle aufgezeichneten Signale des jeweiligen Pulszuges ausgewertet.

Über Klappspiegel konnte die Laserstrahlung vor oder zwischen den Messungen auf zusätzliche Diagnosegeräte gelenkt werden, um das Strahlprofil (mittels CCD-Kamera), das Laserspektrum (durch ein Spektrometer) oder die Pulsdauer (per Autokorrelation) zu bestimmen.

Daran schlossen sich die Fokussiereinheit und die in drei Raumachsen positionierbare Probenhalterung an. Über die Computersteuerung wurde die Probe jeweils zwischen aufeinanderfolgenden Pulszügen verschoben, um immer eine unbestrahlte Stelle zu untersuchen. Die Probenoberfläche war stets um etwa 1° gegen den Laserstrahl geneigt, um eine Rückkopplung in den Verstärker und die damit verbundenen Leistungsschwankungen zu vermeiden.

Nach der Bestrahlung wurden die Proben unter einem Lichtmikroskop (Nikon Eclipse L200) inspiziert und die lateralen und horizontalen Ausdehnungen der Ablations-

¹Hoch-Reflektierend

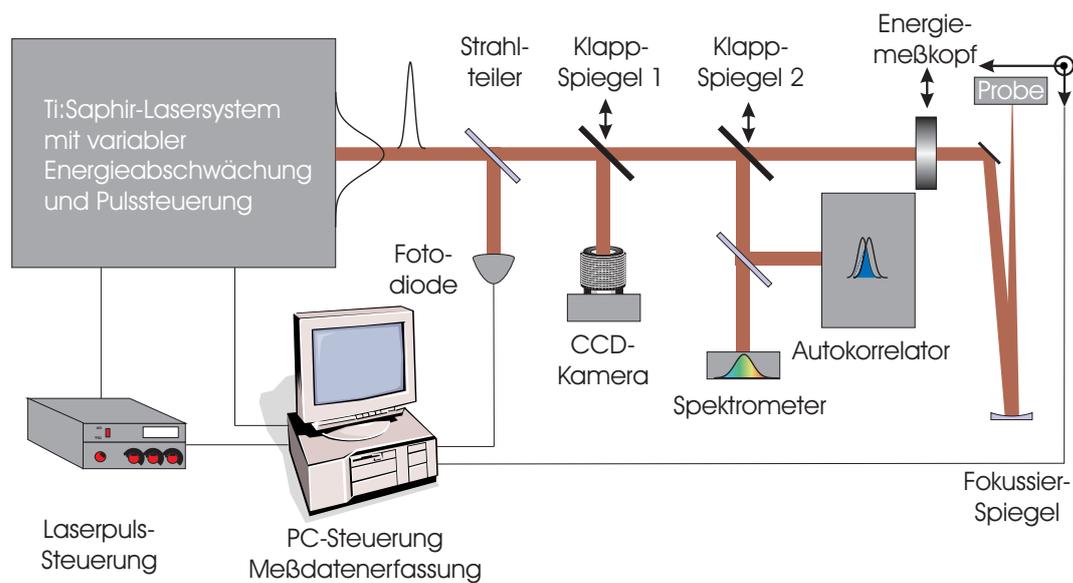


Abbildung 3.1: Darstellung des Ablationsmeßplatzes (schematisch)

krater vermessen. Zur besseren Abbildung von sehr schwachen Veränderungen konnte das Interferenzkontrast-Verfahren genutzt werden. Eine implementierte Digitalkamera ermöglichte die Archivierung der beobachteten Morphologien.

3.2 Lasersystem

Als Strahlquelle für die Untersuchungen diente ein Femtopower Compact Pro der Firma Femtolasers GmbH. Es handelt sich hierbei um einen verstärkten Ti:Saphir-Laser bestehend aus folgenden Komponenten:

1. Ti:Saphir-Oszillator, gepumpt durch einen frequenzverdoppelten Nd:YVO₄-Laser (Coherent Verdi) im cw-Betrieb. Dieser Oszillator erzeugt Laserpulse mit einer Bandbreite (FWHM) von etwa 100 nm bei 75 MHz Pulsfolgefrequenz und 170 mW Durchschnittsleistung. Die Oszillatorpulse werden auch als Seed-Pulse für den Verstärker bezeichnet.
2. Puls-Strecker zur Verlängerung der Laserpulse auf etwa 1 ps. Dessen Hauptbestandteil ist ein 10 cm langer SF 57-Glasblock (Schott). Aus Abschnitt 2.3 ist bekannt, daß die Schwellfluenz für die Zerstörung dielektrischer Materialien für längere Pulsdauern ansteigt. Je länger die Laserpulse sind, umso mehr Energie kann von den Laserpulsen im Verstärkerkristall aufgenommen werden, ohne ihn dabei zu zerstören. Das dabei genutzte Prinzip der sogenannten „chirped-pulse-amplification“² (CPA) wurde erstmals von Strickland und Mourou [Str85] beschrieben. Darüber hinaus wird mittels spezieller Spiegel die dritte Ordnung der Dispersion vorkompensiert.

²Verstärkung dispersionsgestreckter Laserpulse

3. Ti:Saphir-Verstärker, der von einem frequenzverdoppelten Nd:YLF-Laser (Thomson CSF 621-D) bei 1 kHz Folgefrequenz gepumpt wird. Eine Pockelszelle steuert die Einkopplung der Oszillatorpulse in den Verstärker. Zeitlich angepaßt an die 1 kHz-Pumpulse wird dabei jeweils ein Seed-Puls aus dem Pulszug des Oszillators ausgewählt und durch den Verstärker geleitet. Die Energie der verstärkten Pulse beträgt bis zu 1 mJ. Dabei ist allerdings die Intensitätsverteilung des räumlichen Strahlprofils im Zentralbereich abgeplattet, was auf eine Sättigung der Verstärkung zurückzuführen ist. Zu Gunsten eines Gauß'förmigen Strahlprofils wurde für die in dieser Arbeit gezeigten Messungen nur auf maximal 600 μJ verstärkt.
4. Kompressor, bestehend aus vier Brewster-Prismen. Hier werden die Pulse auf 30 fs verkürzt. Um die Kompressor-Prismen durch die hohen Intensitäten nicht zu zerstören, wird der Laserstrahl zuvor auf etwa 2 cm Durchmesser aufgeweitet. Ein Prismenpaar ist senkrecht zum Laserstrahl verschiebbar, um durch variable Weglängen im dispersiven Material eine Feinabstimmung der Pulsdauer zu ermöglichen. Für Messungen mit längeren Laserpulsen wurde der Kompressor entsprechend dejustiert. Dabei wurde die Dispersion entweder nicht vollständig oder überkompensiert.

Für die variable Abschwächung der Pulsenergie ist eine drehbare $\frac{\lambda}{2}$ -Platte in das Lasersystem integriert. Die Prismen des Kompressors sind zur Minimierung der Verluste so positioniert, daß sie im Brewsterwinkel für die Zentralwellenlänge des Lasers passiert werden. Sie dienen so als Analysator mit einem Trennverhältnis von etwa 1:100. Eine Drehung der $\frac{\lambda}{2}$ -Platte bewirkt eine Änderung der Amplitude des elektromagnetischen Feldvektors in Durchlaßrichtung der Kompressorprismen. Hinter dem Kompressor bewirkt dies die gewünschte Energieänderung.

Zur Bestimmung der Zentralwellenlänge λ_0 und der spektralen Bandbreite $\Delta\lambda$ wurde ein Spektrometer (Ocean Optics S 2000) genutzt. In Abbildung 3.2 sind typische Spektren des verwendeten Lasersystems dargestellt. Der Oszillator kann sowohl gepulst als auch kontinuierlich betrieben werden. Im cw-Betrieb ist die spektrale Bandbreite geringer als das Auflösungsvermögen des Spektrometers von 1.5 nm. Nach Anschwingen des Oszillators vergrößert sie sich auf eine Halbwertsbreite (FWHM³) von etwa $\Delta\lambda \sim 100$ nm und wird bei der Verstärkung der Laserpulse auf $\Delta\lambda \sim 50$ nm reduziert.

Die Bestimmung der Pulsdauer erfolgte durch einen dispersionsminimierten Autokorrektor (Femtolasers). Bei der Feinabstimmung des Pulskompressors wurde die Pulsdauer mittels interferometrischer Autokorrelation [Die85] (auch als „fringe resolved“ bezeichnet) gemessen. Dabei wird die Laserstrahlung zunächst in zwei gleiche Teilstrahlen aufgespalten, zeitlich gegeneinander verzögert und schließlich kollinear in einem SHG⁴-Kristall überlagert. Aus der Verteilung der Intensität der Zweiten Harmonischen über der Verzögerung läßt sich die Pulsdauer berechnen. Ein solches Autokorrelationssignal der Laserpulse ist in Abbildung 3.3 dargestellt. Die Oszillationen (fringes) geben die Überlagerungen der elektrischen Felder der beiden Teilpulse wieder. Der Abstand der fringes entspricht der zeitlichen Periode der Feldstärke. Bei Kenntnis der Zentralwellenlänge λ_0 der Laserstrahlung läßt sich die Zeit-Achse in Abbildung 3.3 entsprechend der Periode der Oszillationen

³Full Width at Half Maximum

⁴Second Harmonic Generation... Erzeugung der Zweiten Harmonischen

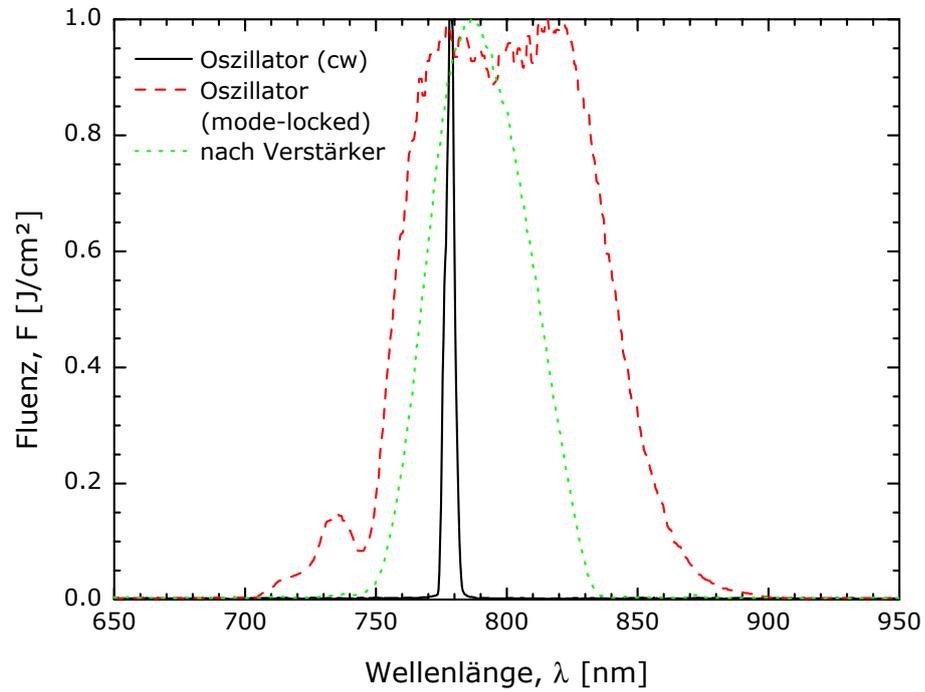


Abbildung 3.2: Spektrale Intensitätsverteilungen für die Betriebsmodi des Ti:Saphir-Lasersystems

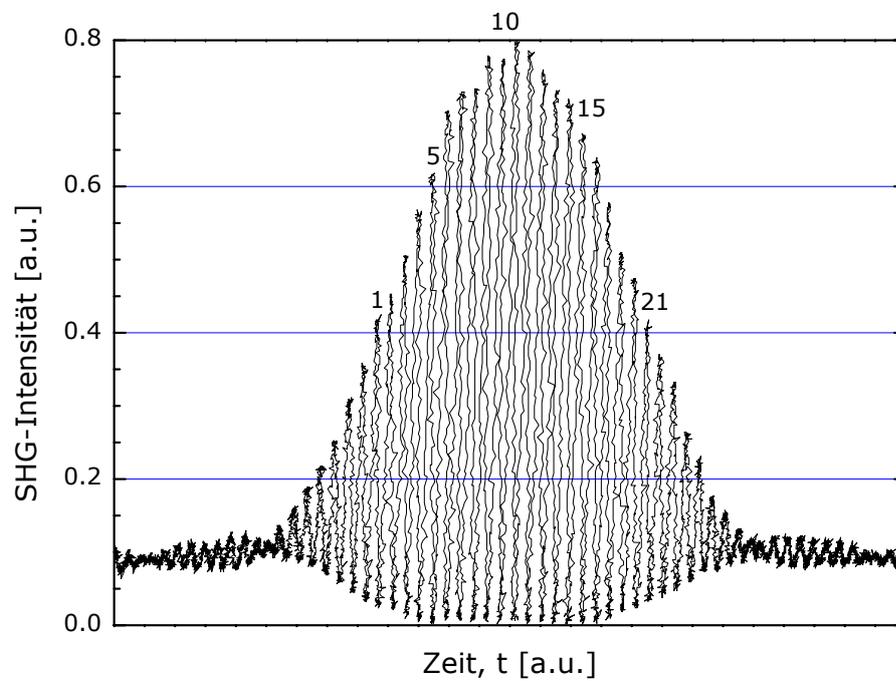


Abbildung 3.3: Signal der interferometrischen Autokorrelation für die verstärkten Laserpulse

kalibrieren. Für die Bestimmung der Halbwertsbreite der Pulsdauer τ muß noch die Anzahl der Oszillationen N_f bestimmt werden, deren Intensität die 50 %-Marke (hier 0.4) übersteigen. Die Pulsdauer berechnet sich dann nach

$$\tau = \frac{N_f \cdot \lambda_0}{C_{shape} \cdot c}. \quad (3.1)$$

Hierbei ist N_f die entsprechende Anzahl an Oszillationen (fringes), λ_0 die Zentralwellenlänge der Laserstrahlung und c die Lichtgeschwindigkeit. Der dimensionslose Entfaltungsfaktor C_{shape} ist abhängig von der zeitlichen Form der Laserpulse. Er beträgt für zeitlich Gauß'förmige Pulse $C_{shape} = 1.7$. Im vorliegenden Beispiel bei $N_f = 21$ Oszillationen mit mehr als 50 % SHG-Intensität (Abbildung 3.3) und $\lambda_0 = 790$ nm (Abbildung 3.2) wurde eine Pulsdauer von $\tau = 32.5$ fs berechnet.

Bei der interferometrischen (kollinearen) Autokorrelation erhält man durch die Auflösung der Feldoszillationen ein Verhältnis von Signal zu Hintergrund von 8:1. Die Auswertung für nicht Bandbreite-begrenzte (verlängerte) Laserpulse erweist sich bei diesem Meßverfahren als kompliziert. Für die Bestimmung der Pulsdauer bei Experimenten mit solchen Pulsen wurde deshalb die hintergrundfreie (nicht-kollineare) Intensitäts-Autokorrelation genutzt. Dabei wurden die zeitlich verschobenen Teilstrahlen des Autokorrelators parallel zueinander versetzt und im SHG-Kristall eine Kreuzkorrelation durchgeführt [Mai66, Web67]. Diese Methode erlaubte es, eingeschränkt durch die Länge der Verzögerungsstrecke, Laserpulsdauern von bis zu 500 fs zu messen.

3.3 Fokussierung

Zur Fokussierung der Laserstrahlung wurden mehrere Möglichkeiten untersucht. Dabei ist die Verwendung von Parabolspiegeln aus optischer Sicht ideal, da sie ein paralleles Lichtbündel in genau einem Brennpunkt abbilden. Darüber hinaus ist hierbei die bis zum Fokus durchlaufene optische Weglänge sowohl vom Abstand zur optischen Achse als auch von der Laserwellenlänge unabhängig. Damit wird die Pulsdauer auch für ausgedehnte Strahlquerschnitte und große spektrale Bandbreiten nicht durch die Fokussierung beeinflusst.

Parabolspiegel werden üblicherweise durch eines der beiden nachgenannten Verfahren hergestellt. Bei der am meisten verbreiteten Methode wird der Spiegelrohling in einer Drehbank von einem Diamant-besetzten Meißel bearbeitet, dessen Vorschub eine Parabel beschreibt. Die so hergestellten Spiegel zeigen eine hohe Genauigkeit hinsichtlich der Parabelform. Allerdings bleibt eine liniengitterartige Struktur auf der Oberfläche, die das Strahlprofil des Lasers verformt (siehe Abbildung 3.4). In einem anderen Verfahren wird ein paraboloider Rohling genutzt, um eine dünne Metallplatte in einem elektrolytischen Verfahren zu formen. Bei diesen Spiegeln ist die Oberflächenqualität sehr gut, aber die Parabelform ist nicht genau genug vom Rohling übertragen, so daß im Brennpunkt kein definiertes Strahlprofil vorliegt.

Für exakte Zerstörschwellenmessungen ist ein homogenes, gut charakterisierbares Laserprofil erforderlich. Leider waren Parabolspiegel mit dafür ausreichender Oberflächenqualität und Formgenauigkeit bisher nicht erhältlich.

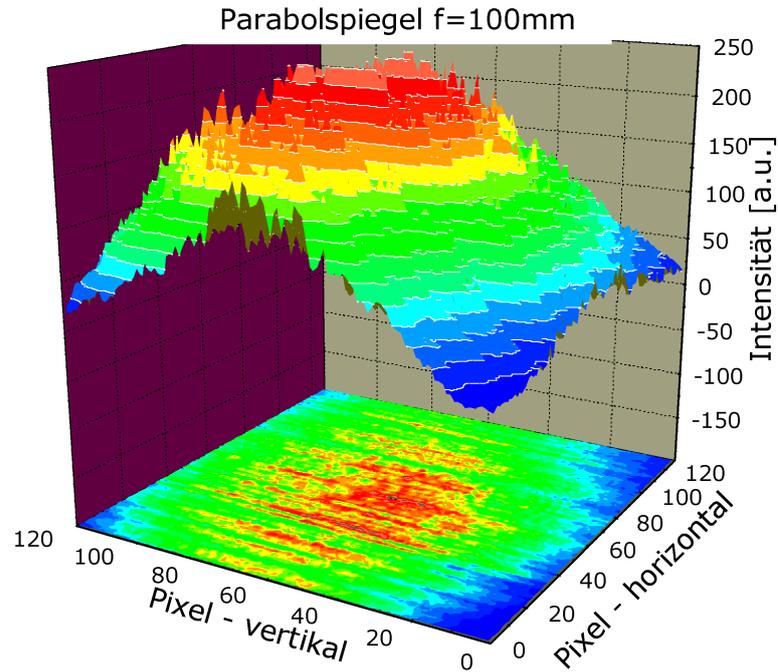


Abbildung 3.4: Deformation eines räumlich Gauß'förmigen Strahlprofiles durch einen kommerziellen Parabolspiegel

Einfache Konvexlinsen bieten eine ausreichend gute Abbildungsqualität. Die Gruppengeschwindigkeitsdispersion (GVD⁵) des Linsenmaterials bewirkt jedoch eine Pulsverlängerung in Abhängigkeit vom zurückgelegten Weg L nach [Bor88, Die96]

$$\Delta\tau_{GVD}(L) = \frac{\lambda_0}{c} \Delta\lambda L \frac{d^2n}{d\lambda^2}. \quad (3.2)$$

Hier beschreiben λ_0 die Zentralwellenlänge und $\Delta\lambda$ die spektrale Bandbreite der Laserstrahlung. Die Vakuumlichtgeschwindigkeit ist mit c bezeichnet. Die Dispersion des Materials mit der Brechzahl $n(\lambda)$ wird durch $\frac{d^2n}{d\lambda^2}$ bei $\lambda = \lambda_0$ berücksichtigt.

Durch entsprechende Justage der Kompressorprismen des Lasersystems kann eine konstante GVD vorkompensiert werden. Die in einer plan-konvexen Linse mit dem Krümmungsradius R durchlaufene Wegstrecke L variiert jedoch über den Strahlquerschnitt nach

$$L(r) = \sqrt{R^2 - r^2} - \sqrt{R^2 - r_l^2}. \quad (3.3)$$

Dabei sind r der Abstand von der optischen Achse und r_l der Linsenradius. Dementsprechend läßt sich die GVD mit den Prismen des Kompressors jeweils nur in einem Teil des Laserstrahles kompensieren.

Zusätzlich verursachen die sphärische und die chromatische Aberration von Linsen eine zeitliche Verzögerung der achsenfernen zu den achsennahen Bereichen der Laserstrahlung.

⁵Group Velocity Dispersion

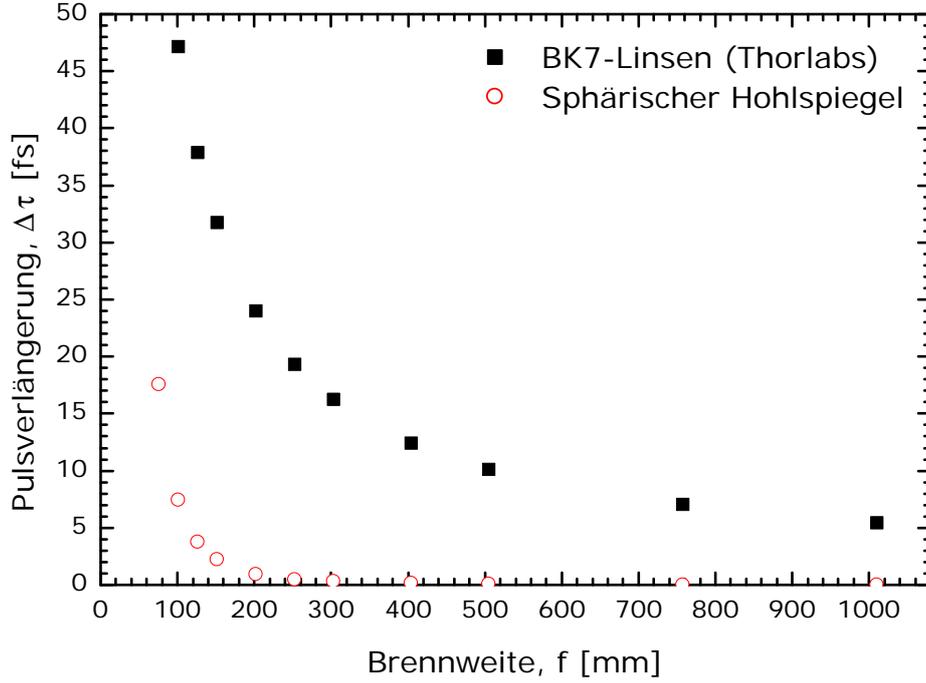


Abbildung 3.5: Durch Dispersion und Lichtwegunterschiede verursachte Pulsverlängerung im Fokus berechnet für einen bandbreitebegrenzten Laserpuls mit $\Delta\lambda = 50$ nm ($\tau = 18$ fs) bei $\lambda_0 = 790$ nm Zentralwellenlänge ($r = 10$ mm)

Dies führt in der Brennebene zu einer Pulsverlängerung von [Kem93]

$$\Delta\tau_A = \frac{r^2\lambda_0}{2f(n-1)c} \frac{dn}{d\lambda}(\lambda_0) \left(1 - \frac{9f(n-1)\lambda_0}{2c\tau r^2 \frac{dn}{d\lambda}(\lambda_0)} - \frac{3\lambda_0}{2c\tau} \right). \quad (3.4)$$

Die Brennweite der jeweiligen Linse ist dabei mit f bezeichnet und die ursprüngliche Laserpulsdauer mit τ .

In Abbildung 3.5 ist die Summe der zu erwartenden Pulsverlängerungen in der Fokusebene ($|\tau_A| + |\tau_{GVD}|$) für einen Satz Plankonvexlinsen der Firma Thorlabs aus BK 7 dargestellt. Der unfokussierte Laserstrahl hatte einen Radius von etwa $r = 10$ mm und eine Bandbreite von $\Delta\lambda = 50$ nm. Die Dispersion für BK 7 wurde aus dem entsprechenden Datenblatt auf der Internetseite der Firma Layertec [Lay] ermittelt (siehe auch Abschnitt A.3). Bei $\lambda_0 = 790$ nm konnte $\frac{d^2n}{d\lambda^2} = 0.418$ nm⁻² bestimmt werden. Es zeigt sich, daß die Pulsverlängerung durch Nutzung dünner langbrennweitiger Linsen (\Rightarrow geringe Krümmungsradien) reduziert werden kann. Jedoch wird der betrachtete 18 fs-Laserpuls selbst bei Brennweiten von etwa einem Meter noch um mehr als fünf Femtosekunden verlängert.

Die dispersive Pulsverlängerung läßt sich durch Nutzung von sphärischen Hohlspiegeln vermeiden. Diese sind in sehr guter Oberflächenqualität und mit der entsprechenden Formgenauigkeit erhältlich. Aber auch bei diesen Spiegeln ist der Lichtweg vom Abstand zur optischen Achse abhängig. Die Zeitdifferenz achsenferner Strahlen läßt sich hier näher

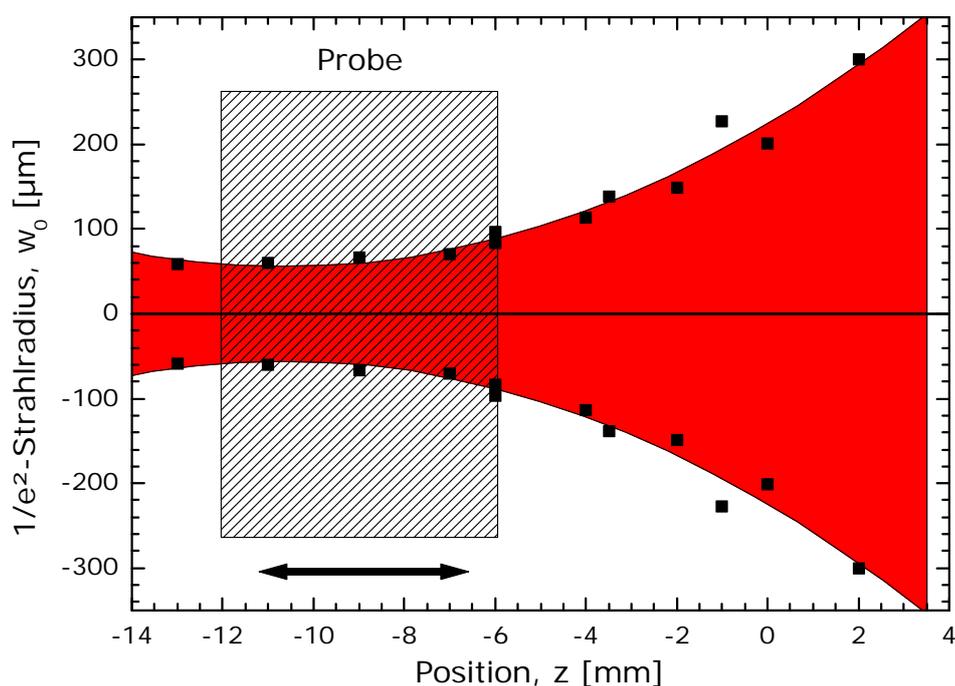


Abbildung 3.6: Strahldurchmesser in verschiedenen Probenebenen, ermittelt an BG 18 (schraffiert, Probendicke: 6 mm)

rungsweise durch

$$\Delta\tau = \frac{3R}{4c} \left(\frac{r}{R}\right)^4 \quad (3.5)$$

beschreiben [Die96]. Dabei bezeichnet R den Krümmungsradius des Spiegels. Die Verlängerung der Laserpulse durch Laufzeitunterschiede der achsenfernen Komponenten ist jedoch bereits bei Brennweiten über 200 mm stets kleiner als 1 fs (siehe Abbildung 3.5). Um eine Probe in den Strahlengang einbringen zu können, muß der fokussierte zum einfallenden Strahl leicht geneigt sein. Dies hat einen Astigmatismus zur Folge, wobei die sagittalen und meridionalen Brennebenen umso weiter von einander entfernt sind, je größer der Winkel zwischen den beiden Strahlen ist.

Ein annähernd radialsymmetrisches Gauß'förmiges Strahlprofil findet sich vor oder hinter den beiden Brennpunkten. In den Brennebenen zeigen sich schlitzzartige, im Bereich dazwischen karoförmige Intensitäts-Querschnitte. Sowohl Neigungswinkel als auch Pulsverlängerung nach Gleichung (3.5) können durch die Verwendung langer Brennweiten minimiert werden.

Für den in Abbildung 3.1 dargestellten Meßplatz wurde ein sphärischer Fokussierspiegel mit einer Brennweite von $f = 500$ mm gewählt. Die davon hervorgerufene Pulsverlängerung ist vernachlässigbar (siehe Abbildung 3.5).

Durch Verschieben der Probe in Ausbreitungsrichtung des Lasers konnten verschiedene Strahlgrößen in der Probenebene eingestellt werden (siehe Abbildung 3.6). Dabei war die Probe stets vor dem Brennpunkt des Spiegels positioniert. Dadurch wurde vermieden, daß die Laserstrahlung vor der Probe einen Luftdurchbruch verursacht, der die Meßergebnisse

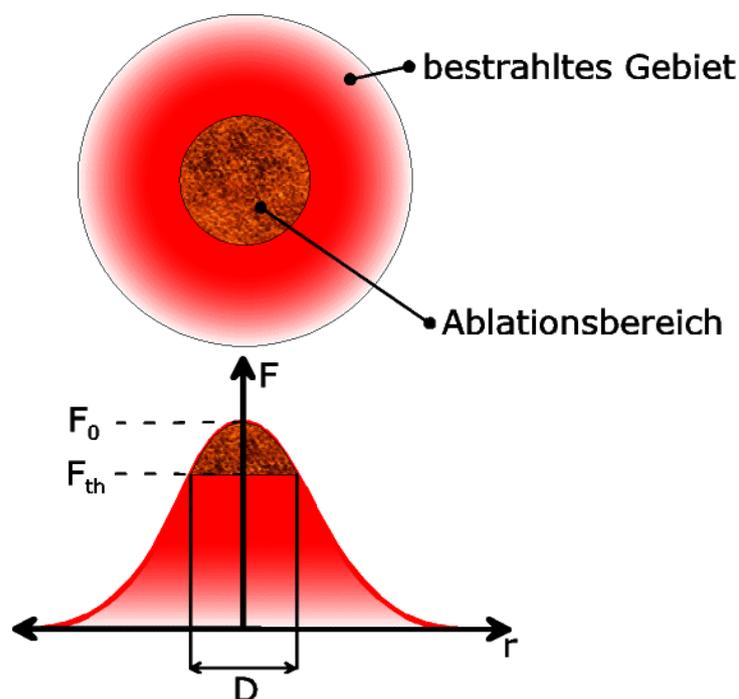


Abbildung 3.7: Prinzipielle Darstellung des Abtrags mit räumlich Gaußförmigen Laserpulsen

verfälscht.

3.4 Messung der Strahlradien und Schwellfluenzen

Fluenzen sind nicht direkt meßbar. Deshalb ermittelt man in der Regel das Strahlprofil in der Probenebene, mißt an anderer Stelle die Pulsenergie und berechnet daraus die Fluenzverteilung.

Die Energiemessung erfolgte bei den hier vorgestellten Messungen während der Probenbestrahlung mittels einer kalibrierten Fotodiode.

Der Strahlradius wird meist durch die sogenannte Schneidenmethode ermittelt [Arn71, DIN99]. Dabei wird die Energie hinter einer dünnen Klinge (Schneide) gemessen, die die Probenebene durchfährt. Die Differentiation des aufgezeichneten Signals in Abhängigkeit vom durchfahrenen Weg gibt die Fluenzverteilung entlang der Bewegungsrichtung wieder. Dieses Verfahren setzt jedoch ein radialsymmetrisches Strahlprofil voraus.

Bei der Verwendung von ultrakurzen Laserpulsen und einem räumlich Gaußförmigen Strahl kann auf eine separate Fokusgrößenbestimmung verzichtet werden. In Abbildung 3.7 ist eine solche Fluenzverteilung $F(r)$ nach Gleichung (2.7) dargestellt. Sobald die Maximalfluenz F_0 die Ablationsschwelle (Schwellfluenz F_{th}) überschreitet, wird ein Gebiet mit dem Durchmesser D auf der Probe abgetragen. Es gilt [Liu82]

$$D^2 = 2w_0^2 \cdot \ln \left(\frac{F_0}{F_{th}} \right), \quad (3.6)$$

wobei w_0 dem Radius bei $F_0 \cdot e^{-2}$ entspricht. Trägt man die Meßwerte der abgetragenen Durchmesser quadratisch über dem Logarithmus der Pulsenergie $\lg(E_p)$ auf, kann man aus der linearen Regression mit

$$D^2 = A + B \cdot \lg(E_p) \quad (3.7)$$

durch Koeffizientenvergleich sowohl w_0 als auch F_{th} bestimmen. Dabei gelten

$$w_0 = \sqrt{\frac{B}{2 \ln(10)}}, \quad (3.8)$$

$$F_{th} = \frac{4 \ln(10)}{\pi \cdot B} 10^{-\frac{A}{B}}. \quad (3.9)$$

Dies gilt in gleichem Maße für alle Materialveränderungen (z.B. Verfärbung, Schmelzen, Entfernung von Staub etc.), denen eine Schwellfluenz zugeordnet werden kann. Da die Fluenz in einem Gauß'förmigen Strahlprofil zwischen 0 und dem Maximum F_0 variiert, ist das Auftreten mehrerer Modifikationen mit unterschiedlichen Schwellen an einer Probe möglich. Dies zeigt sich durch mehrere Ringe, in denen die jeweilige Veränderung vorherrscht. Jede einzelne dieser Schwellfluenzen kann dabei unabhängig voneinander bestimmt werden [Jee88, Bon02].

Bei diesem Verfahren ist darauf zu achten, daß die Wärmeeinflußzone im Vergleich zur Strahlgröße vernachlässigbar sein muß. Anderenfalls ist die Größe der Schädigungszone nicht allein durch das Strahlprofil bestimmt, wodurch das Ergebnis verfälscht wird. Für die Anwendung ultrakurzer Pulse auf Dielektrika ist davon auszugehen, daß diese Bedingung erfüllt ist [Bäu00]. Eine vergleichende Studie mit normgerechten Messungen nach ISO 11254-2 [DIN01] zeigte übereinstimmende Resultate [Bon01a].

Dieses Verfahren ist ebenso für elliptische Intensitätsprofile anwendbar. In diesem Fall ist statt D^2 das Produkt der beiden Ellipsenachsen über $\lg(E_p)$ aufzutragen. Die Lage der Achsen im Raum ist dabei nicht von Interesse. Man erhält die Schwellfluenz für einen mittleren Strahlradius von $\bar{w}_0 = \sqrt{x_0 \cdot y_0}$, wobei x_0 und y_0 die Halbachsen der Ellipse darstellen.

3.5 Zusammenfassung der experimentellen Verfahren

In diesem Kapitel wurden die Meßapparatur und die genutzten Meßverfahren vorgestellt. Die Bestrahlung der Proben erfolgte mit einem Lasersystem, dessen Zentralwellenlänge $\lambda_0 = 790$ nm bei einer spektralen Bandbreite von $\Delta\lambda = 50$ nm betrug. Über die Dispersionskompensation war die Dauer der Laserpulse zwischen 30 und 500 fs veränderbar. Auf die Proben konnten sowohl Einzelpulse als auch Pulszüge bestimmter Länge abgegeben werden. Zusätzlich war die Pulsfrequenz variierbar. Die Pulsenergie ließ sich stufenlos zwischen 6 und 600 μJ einstellen. Die Laserstrahlung wurde durch einen sphärischen Spiegel nahezu dispersionsfrei auf die Probe fokussiert. Durch Verschieben der Probe entlang der optischen Achse konnten unterschiedliche Spotgrößen auf der Oberfläche eingestellt werden.

Zur Bestimmung der Strahlradien und Schwellfluenzen wurden die Durchmesser aller Ablationskrater mittels eines Lichtmikroskops vermessen und quadratisch über der Pulsenergie aufgetragen. Dabei konnten gleichzeitig die Zerstörschwelle und die jeweilige Strahlgröße an der Probenoberfläche bestimmt werden.