

Kapitel 5

Laserinduzierte Ablation

5.1 Ablation von Dielektrika mit 30-fs-Laserpulsen

Für die Untersuchungen zur laserinduzierten Ablation wurde jeweils eine unberührte Probenstelle mit fixierten Laserparametern (Pulsenergie E_p , Pulsdauer τ_G , Anzahl der Laserpulse N , Repetitionsrate ν_{rep} , Strahlradius w_0) bestrahlt. Anschließend erfolgte die Inspektion und Vermessung der Probe unter dem Lichtmikroskop. Die kontrollierte Variation eines Parameters an verschiedenen Stellen ermöglichte die Bestimmung des jeweiligen Einflusses auf das Ablationsverhalten.

Abbildung 5.1 zeigt ein typisches Mikroskopbild für ein mit einer Fluenz oberhalb der Zerstörschwelle bestrahlten Bereich der untersuchten Gläser. Hierbei handelt es sich um eine Probe des transparenten Phosphatglases PK 50, das mit einem Laserpuls von $\tau_G = 30$ fs Dauer bestrahlt wurde. Die Maximalfluenz im Gauß'schen Laserprofil betrug mit $F_0 = 3.8$ J/cm² nahezu das Doppelte der Ablationsschwelle von $F_{th} = 2$ J/cm². Zur besseren Erkennbarkeit der morphologischen Änderungen an der Oberfläche wurde bei der Aufnahme des Bildes das differentielle Interferenz-Kontrast-Verfahren angewendet.

In Abbildung 5.1 zeigen sich mehrere Ringe, an denen sich die Probenmorphologie ändert. Da in der Gauß'förmigen Fluenzverteilung des Strahlprofils alle Fluenzen von Null bis F_0 enthalten sind, kann den lateralen Positionen nach Gleichung (2.7) eindeutig eine bestimmte Fluenz zugeordnet werden. Dabei nimmt die Energiedichte von der Mitte des bestrahlten Bereiches zum Rand hin ab. Aus den Radien der Ringe lassen sich somit die Schwellfluenzen für die jeweilige Materialänderung ermitteln. Die Ablationsschwelle zeichnet sich als scharfer Rand ab, außerhalb dessen sich abgetragenes Material wieder angelagert hat (Debris). Innerhalb des Ablationsringes ist die Oberfläche zunächst glatt. Bei den höchsten Fluenzen zeigt sich jedoch eine ungeordnete Strukturierung.

Eine ähnliche Ablationsmorphologie ließ sich an BaF₂ und CaF₂ bei der Bestrahlung mit ultrakurzen Laserpulsen im Bereich der Ablationsschwelle beobachten. Die ungeordneten Strukturen wurden dabei auf die Folgen einer Coulomb-Explosion zurückgeführt. Die dadurch verursachten Oberflächenwellen breiten sich in der elektrostatisch instabilen Probenoberfläche aus und werden an den stabilen Rändern reflektiert. Das so entstehende System stehender Wellen wird eingefroren, wenn sich die Oberfläche wieder stabilisiert. [Cos02]

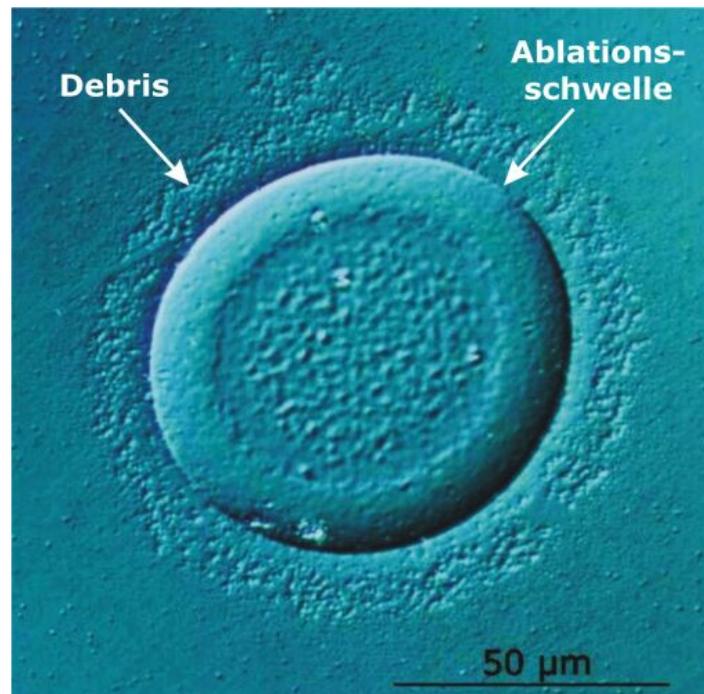


Abbildung 5.1: Lichtmikroskopische Aufnahme (Auflicht, differentieller Interferenzkontrast) einer durch laserinduzierte Ablation zerstörten Stelle auf transparentem Phosphatglas PK 50, $F_0 = 3.8 \text{ J/cm}^2$, $w_0 = 100 \text{ } \mu\text{m}$, $\tau_G = 30 \text{ fs}$, $N = 1$

5.1.1 Inkubation

Unter Inkubation versteht man bei der laserinduzierten Ablation das Phänomen, Material durch wiederholte Bestrahlung mit Intensitäten unterhalb der Einzelpuls-Zerstörschwelle abtragen zu können. Dabei ist eine bestimmte Anzahl an inkubierenden Laserpulsen nötig, um die Zerstörung herbeizuführen.

In Abschnitt 2.4 wurde bereits auf eine sinkende Ablationsschwelle bei steigender Anzahl der Laserpulse hingewiesen. Dieser Effekt zeigte sich bei der Bestrahlung mit Pulszügen für verschiedene Materialien und Laserparameter. Als physikalische Ursachen für die Inkubation werden die Bildung von mechanischen oder elektronischen Defekten sowie die Akkumulation von Wärme angesehen. Die dabei hervorgerufenen Spannungen und die Änderung der optischen Eigenschaften des bestrahlten Materials führen zur Reduktion der Zerstörschwelle.

Inkubation an ionengefärbtem Phosphatglas

Zur Untersuchung des Inkubationsverhaltens der Filterproben wurden die Ablationsschwellen entsprechend dem in Abschnitt 3.4 beschriebenen Verfahren jeweils für eine feste Pulsanzahl pro Probenstelle ermittelt. In Abbildung 5.2 sind die gemessenen Durchmesser der Ablationskrater für die Bestrahlung mit Pulszügen von je 1, 10, 100 und 1000 Laserpulsen über der Energie E_p aufgetragen. Aus der halblogarithmischen Auftragung

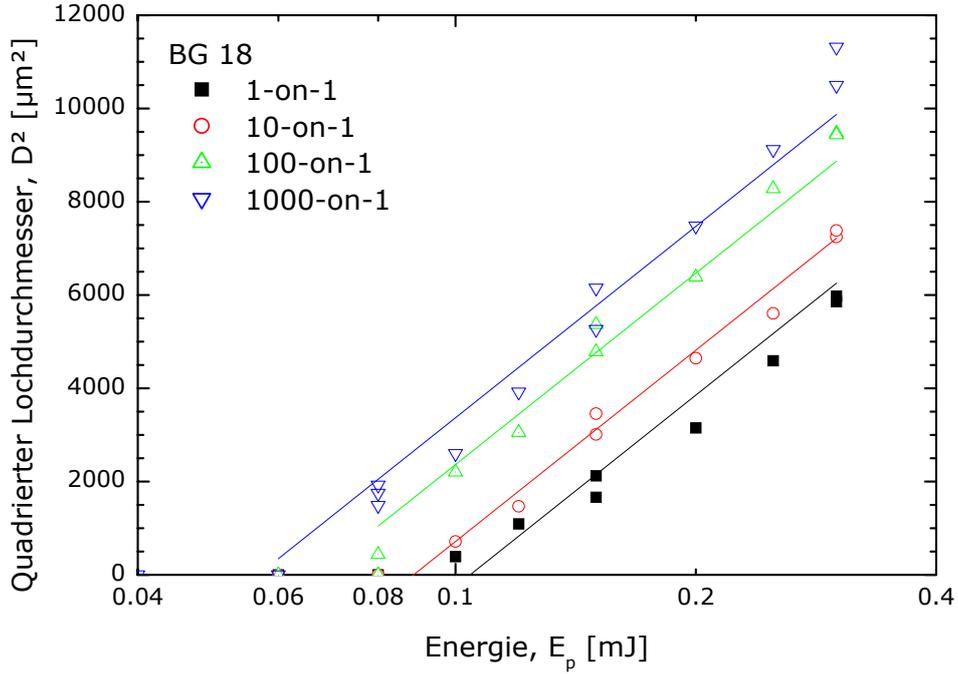


Abbildung 5.2: Auftragung der quadrierten Lochdurchmesser über der Pulsenergie für verschiedene Pulsanzahlen an BG 18, $w_0 = 55 \mu\text{m}$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$

von D^2 lassen sich der Strahlradius in der Probenebene und die Zerstörschwelle durch lineare Regression bestimmen. Die durchgezogenen Linien geben den jeweiligen Fit an die Meßdaten nach Gleichung (3.7) wieder. Diese Messungen wurden jeweils mit der gleichen Fokusgröße von $w_0 = 55 \mu\text{m}$ bei einer Pulsdauer von $\tau_G = 30 \text{ fs}$ durchgeführt. Da der Anstieg der Funktion durch w_0 bestimmt wird, sind die vier Fitkurven parallel zueinander. Die Extrapolation für $D^2 = 0$ gibt die jeweilige Schwellenergie E_{th} für die Ablation an. Aus dem Vergleich dieser Meßwerte für die in Abbildung 5.2 dargestellten Versuchsreihen geht hervor, daß E_{th} bei steigender Anzahl der Laserpulse sinkt. Da sowohl Strahlgröße als auch Pulsdauer hierbei konstant gehalten wurden, gilt diese Aussage ebenso für die Schwellfluenz F_{th} und die Intensität I_{th} .

Zur Verbesserung des räumlichen Strahlprofils wurde bei den Messungen zur Inkubation an BG 18 eine Blende in den Strahlengang gebracht. Die Beugung an den Rändern verursachte allerdings eine Verfälschung der Absolutwerte für die Laserfluenz und somit auch für die Schwellfluenz in den Abbildungen 5.2, 5.3, 5.4 und 5.8. Die Vergleichbarkeit der Werte zueinander war gewährleistet, da diese Bedingungen für die hier gezeigten Messungen jeweils gleich waren.

Die Abhängigkeit der Schwellfluenz von der Pulsanzahl für BG 18 bei einer Repetitionsrate von $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$ ist in Abbildung 5.3 dargestellt. Dabei wurden eine Pulsdauer von $\tau_G = 30 \text{ fs}$ und eine Strahlgröße von $w_0 = 60 \mu\text{m}$ gewählt. Die Änderung der Zerstörschwelle ist zu Beginn am stärksten. Innerhalb der ersten 100 Laserpulse fällt die Schwellfluenz auf $F_{th}(100) = 1.5 \text{ J/cm}^2$ ab — das sind etwa $2/3$ des Einzelpulswertes von $F_{th}(1) =$

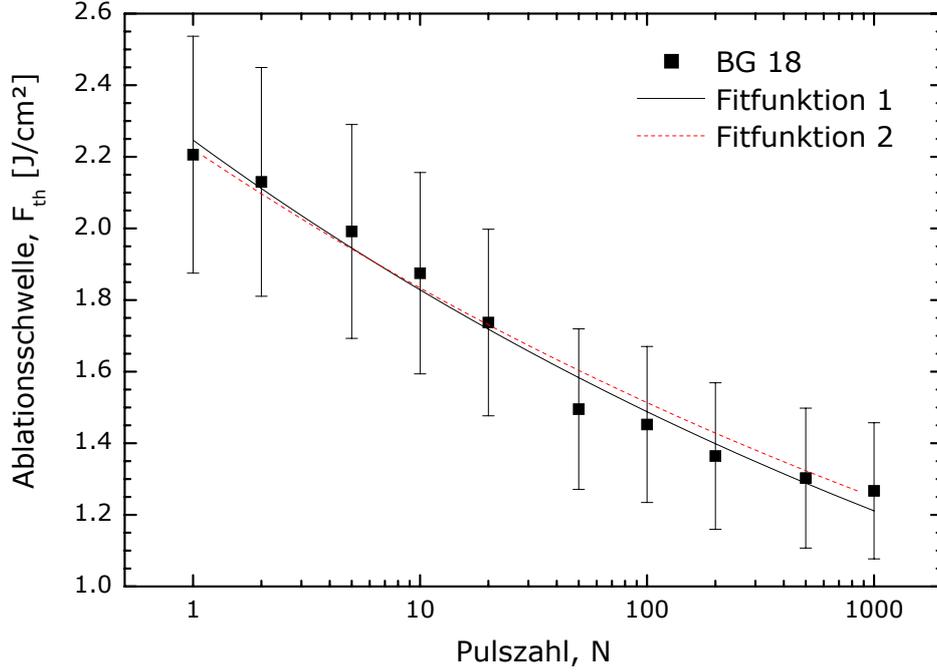


Abbildung 5.3: Abhängigkeit der Ablationsschwelle von der Pulszahl für BG 18, $w_0 = 60 \mu\text{m}$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$
 Fitfunktion 1 entspricht Gleichung (2.60), Fitfunktion 2 ist nach Gleichung (2.64) gewählt

2.2 J/cm^2 . Bei fortschreitender Erhöhung der Pulsanzahl sinkt die Zerstörschwelle weiter, allerdings ist die relative Änderung geringer als während der ersten Laserpulse. So beträgt die Schwellfluenz bei 1000 Laserpulsen noch etwa 90 % des Wertes bei 100-on-1.

In Abschnitt 2.4 wurden zwei Modelle für die Inkubation bei der laserinduzierten Ablation an Festkörpern beschrieben. Abbildung 5.3 zeigt die vergleichende Anwendung dieser Modelle auf die Meßdaten. Die Fitfunktion 1 beschreibt dabei allgemein die Akkumulation mechanischer Spannungen entsprechend Gleichung (2.60). In Fitfunktion 2 ist nach Gleichung (2.64) der Spannungsaufbau durch die Bildung von Farbzentren berücksichtigt. Für die Fitfunktion 1 wurden eine Einzelpuls-Ablationsschwelle von $F_{th}(1) = 2.25 \text{ J/cm}^2$ und ein Inkubationsparameter von $\xi = 0.91$ ermittelt.

Die beste Anpassung von Fitfunktion 2 an die Meßdaten wurde mit $C_2 = 0$, $C_4 = 14000$ und $k = 12$ erreicht. Dabei zeigte sich, daß die Spannungen infolge der Temperaturerhöhung durch Absorption der Laserstrahlung vernachlässigbar sind ($C_2 = 0$). Wie in Abschnitt 2.4.2 erläutert, sind in diesem Fall die Fitfunktionen 1 und 2 gleichbedeutend. Für das untersuchte Material ist ein Mehrphotonenprozeß der Ordnung $k = 3$ möglich, was einem Inkubationskoeffizienten von $\xi = 0.67$ entspricht. Der hier ermittelte Wert von $k = 12$ ($\xi = 0.91$) zeigt jedoch, daß die Anwendung dieses Modells nicht uneingeschränkt möglich ist. Der Spannungsaufbau durch laserinduzierte Farbzentren genügt offensichtlich nicht, um die Inkubation des Filterglases vollständig zu beschreiben. Qualitative Aussagen über die Stärke der Inkubation lassen sich durch den Koeffizienten ξ treffen.

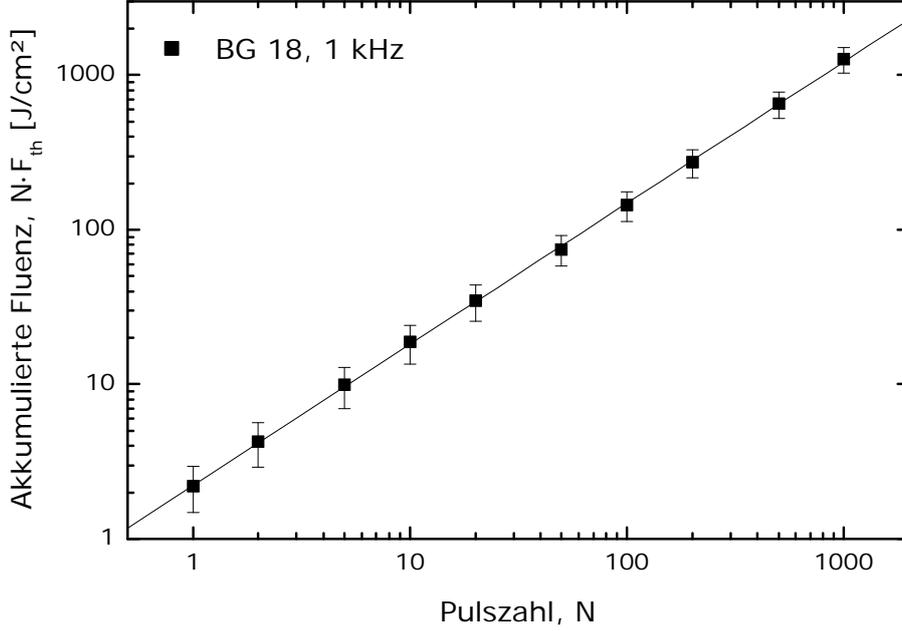


Abbildung 5.4: Schwelle der akkumulierten Ablation für BG 18 in Abhängigkeit von der Pulszahl, gefittet entsprechend Gleichung (5.1), $w_0 = 60 \mu\text{m}$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$, $\xi_{BG18} = 0.91$

Im Folgenden basiert die Beschreibung des Inkubationsverhaltens der Proben jeweils auf den mit Fitfunktion 1 erhaltenen Parametern. Dabei wird eine doppelt-logarithmische Auftragung der akkumulierten Schwellfluenz $N \cdot F_{th}$ über der Pulsanzahl N genutzt. Man erhält eine lineare Funktion aus deren Anstieg direkt der Inkubationsparameter ξ abgelesen werden kann:

$$\lg(N \cdot F_{th}(N)) = \lg(F_{th}(1)) + \xi \lg(N). \quad (5.1)$$

Abbildung 5.4 zeigt eine solche Auftragung der akkumulierten Fluenz $N \cdot F_{th}$ über der Pulszahl N für die Meßdaten aus Abbildung 5.3. Aus dem Anstieg der linearen Regression nach Gleichung (5.1) wurde ein Inkubationskoeffizient von $\xi_{BG18} = 0.91$ bestimmt.

Aus der Literatur bekannte Messungen bei $\tau_G = 130 \text{ fs}$ zeigen im Vergleich dazu geringere Koeffizienten und damit stärkere Inkubation für die Ablationsschwelle von Halbleitern wie InP ($\xi_{InP} = 0.78$ [Bon01b]), Keramiken ($\xi_{TiN} = 0.87$ [Bon00]) und Polymeren ($\xi_{PI} = 0.87$, $\xi_{PC} = \xi_{PMMA} = 0.7$ [Bau99]).

Der Inkubationskoeffizient des Filters BG 18 ist etwa gleich dem von Kupfer für 10-ns-Laserpulse ($\xi_{Cu} = 0.92$ bei $\lambda_0 = 1064 \text{ nm}$ [Jee88]). Auch für Goldschichten wurde bei $\tau_G = 200 \text{ fs}$ und $\lambda_0 = 400 \text{ nm}$ ein ähnlicher Wert gemessen ($\xi_{Au} = 0.92$), während für Nickel unter diesen Bedingungen eine deutlich schwächere Inkubation ermittelt wurde ($\xi_{Ni} = 0.97$) [Güd98].

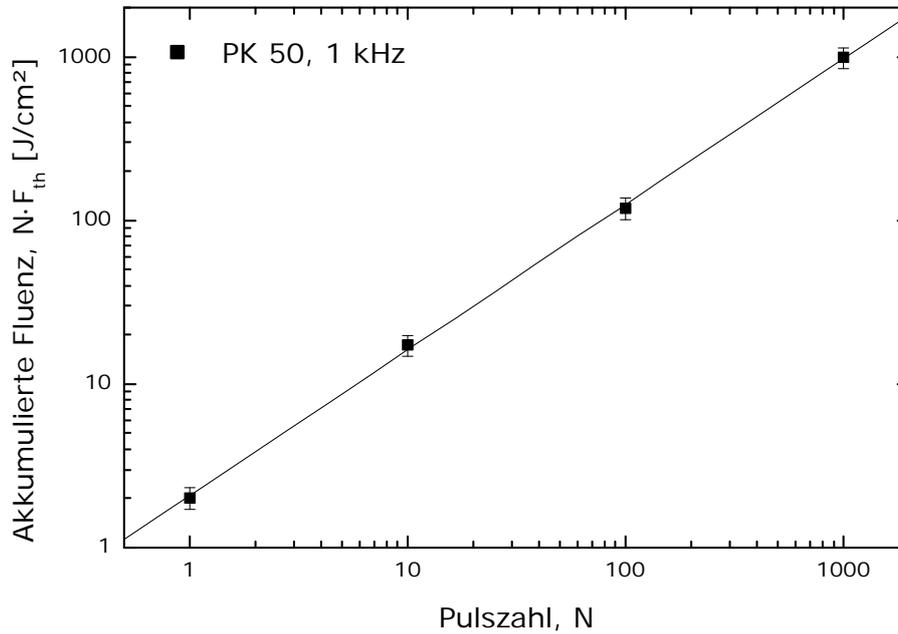


Abbildung 5.5: Schwelle der akkumulierten Ablation für PK 50 in Abhängigkeit von der Pulszahl, gefittet entsprechend Gleichung (5.1), $w_0 = 85 \mu\text{m}$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$, $\xi_{PK50} = 0.89$

Inkubation an transparenten Gläsern

Bei den transparenten Gläsern ist die grundlegende Glaszusammensetzung von PK 50 der von BG 18 am ähnlichsten (siehe Tabelle 4.1). Hauptunterschied ist der hohe Anteil von Kupfer im Filtermaterial, der ihm eine grünliche Färbung verleiht und für die hohe lineare Absorption um 800 nm Wellenlänge sorgt (siehe Abbildung 4.1). Die Massendichte und die Schmelztemperatur sind nahezu identisch.

Auch für dieses Material wurden die Ablationsschwellen bei verschiedenen Pulszahlen (1-, 10-, 100- und 1000-on-1) gemessen und entsprechend Gleichung (5.1) doppelt-logarithmisch aufgetragen (siehe Abbildung 5.5). Der für das transparente Phosphatglas ermittelte Inkubationskoeffizient beträgt $\xi_{PK50} = 0.89$ und ist damit etwas niedriger als bei BG 18. Dementsprechend ist die Inkubation bei PK 50 etwas stärker ausgeprägt als bei dem ionendotierten Filter, der im vorherigen Abschnitt behandelt wurde.

Der gleichen Meßprozedur wie die beiden Phosphatgläser wurde das transparente Borosilikatglas von Corning (Produktnummer: 7059) unterzogen. Die doppelt-logarithmische Auftragung der akkumulierten Schwellfluenz über der Pulsanzahl ist in Abbildung 5.6 dargestellt. Für dieses Material wurde ein Inkubationskoeffizient von $\xi_{BBS} = 0.90$ gemessen.

Aus dem Vergleich der so ermittelten Inkubationsparameter von $\xi_{BG18} = 0.91$, $\xi_{PK50} = 0.89$ und $\xi_{BBS} = 0.90$ zeigt sich für die untersuchten Gläser kein signifikanter Unterschied bei der Ausprägung der Inkubation. Weder die erhöhte lineare Absorption des

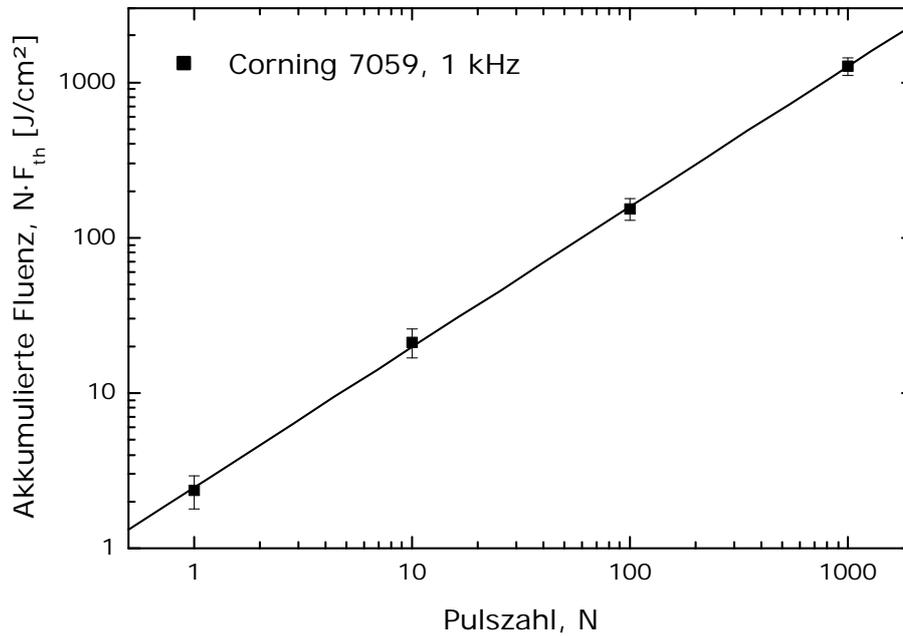


Abbildung 5.6: Schwelle der akkumulierten Ablation für Corning 7059 in Abhängigkeit von der Pulszahl, gefittet entsprechend Gleichung (5.1), $w_0 = 69 \mu\text{m}$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$, $\xi_{BBS} = 0.90$

Filters BG 18 noch die unterschiedlichen chemischen Zusammensetzungen und die deutlichen Unterschiede in der Schmelztemperatur zwischen dem Phosphatglas PK 50 und dem Silikatglas 7059 beeinflussen das Inkubationsverhalten bei der Bestrahlung mit 30 fs-NIR-Laserpulsen nachhaltig.

Es ist anzunehmen, daß die Inkubation in den untersuchten Gläsern durch die gleichen Mechanismen bestimmt wird. Bei der Anwendung der in Abschnitt 2.4 beschriebenen Modelle auf die Meßdaten in Abbildung 5.3 zeigt sich, daß die Inkubation der Akkumulation mechanischer Spannungen ähnelt. Als Ursache für den Spannungsaufbau kommt dabei die Bildung von Defekt- und Farb-Zentren in Frage, deren Lebensdauer zumindest die Zeitspanne zwischen zwei Laserpulsen überschreiten muß. In den Abschnitten 4.2 und 4.3 wurde bereits die Bildung langzeitstabiler Farbzentren in den transparenten Gläsern dargestellt.

5.1.2 Ablationsschwellen von dünnen Schichten

Neben den Materialien in Festkörperform (bulk) wurden auch die Ablationsschwellen von amorphen dielektrischen Einzelschichten bestimmt. Die dabei ausgewählten oxidischen Beschichtungsmaterialien SiO_2 , Al_2O_3 , HfO_2 , Ta_2O_5 und TiO_2 werden häufig für die Herstellung hochreflektierender Schichtsysteme verwendet.

Bei Untersuchungen zur laserinduzierten Zerstörung in dünnen Schichten müssen die Feldverteilung und Interferenzphänomene beachtet werden. Für eine bessere Vergleichbar-

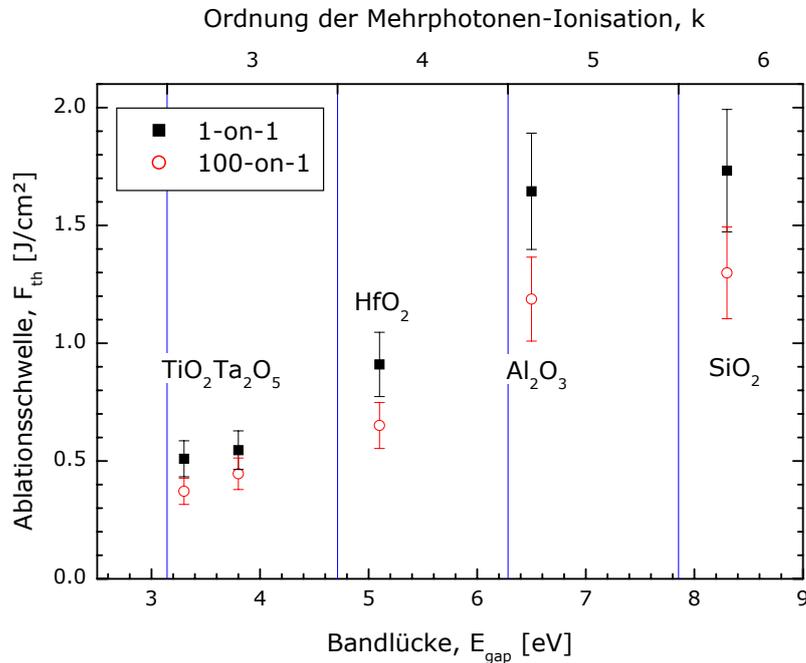


Abbildung 5.7: Ablationsschwellen der dielektrischen Einzelschichten in Abhängigkeit von der Bandlücke und der kleinsten möglichen Ordnung für die Mehrphotonen-Ionisation bei $\lambda_0 = 790$ nm, $\nu_{rep} = 1$ kHz, $w_0 = 110$ μ m

keit bei der Auswertung der Daten betrug die optische Dicke der Einzelschichten jeweils $z_{opt} = 6\frac{\lambda}{4}$ bezüglich der Mittenwellenlänge des Lasers von $\lambda_0 = 790$ nm. Damit wird sichergestellt, daß die Verteilung des elektrischen Feldes in allen Proben gleich ist. Die Herstellung der Proben erfolgte am Laserzentrum Hannover e.V. durch Ionenstrahlspintern (IBS¹) auf jeweils sechs Millimeter dicken Quarzglas-Substraten.

In Abbildung 5.7 sind die Ablationsschwellen der Beschichtungen in Abhängigkeit von der Bandlücken-Energie aufgetragen (siehe Tabelle 4.2). Zusätzlich sind die entsprechenden Bereiche gekennzeichnet, in denen für die Laserwellenlänge von $\lambda_0 = 790$ nm jeweils die gleiche Ordnung der Mehrphotonen-Ionisation erfolgt. Dabei zeigt sich, daß die Schwellfluenz bei wachsendem E_{gap} ansteigt. Diese Abhängigkeit tritt gleichermaßen unter Einzel- wie unter Mehrpuls-Bestrahlung auf.

Die Ablationsschwellen der TiO₂- und Ta₂O₅-Schichten unterscheiden sich im Rahmen der Meßgenauigkeit nur wenig voneinander, obwohl die Bandlücken verschieden sind. Allerdings ist für die direkte Ionisation von Valenzband-Elektronen in beiden Materialien ein 3-Photonen-Prozeß notwendig. Für HfO₂ gilt $k = 4$ und für Al₂O₃ gilt $k = 5$, was sich jeweils in einer höheren Ablationsschwelle widerspiegelt. Offensichtlich hat die Ordnung k der MPI einen größeren Einfluß auf F_{th} als die Bandlücke selbst.

Für SiO₂ ($k = 6$) setzt sich dieser Trend nicht fort. Die Schwellfluenz dieser Schicht

¹Ion Beam Sputtering

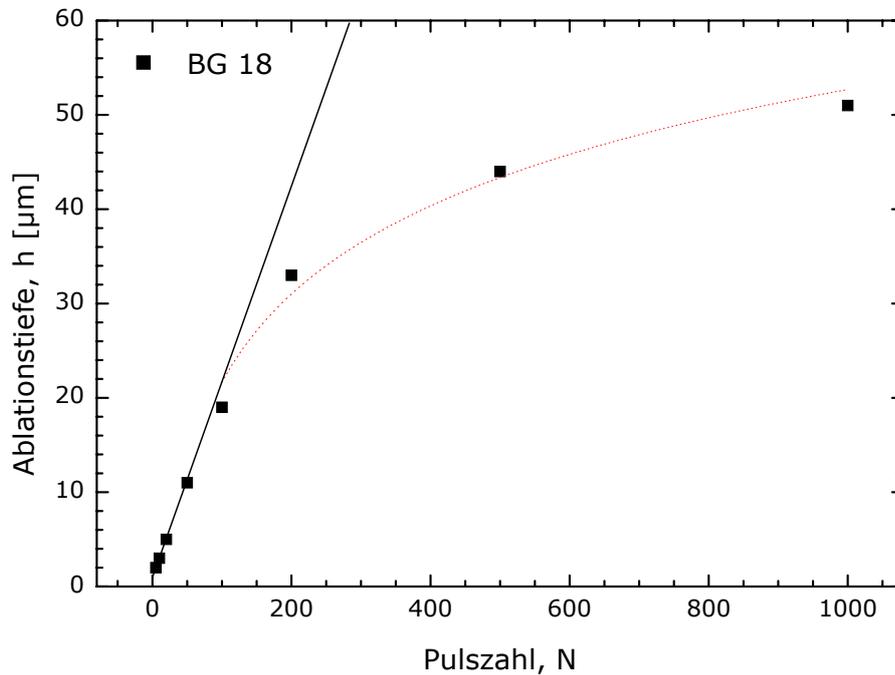


Abbildung 5.8: Abhängigkeit der Ablationstiefe von der Pulsanzahl für BG 18, $F_0 = 2.58 \text{ J/cm}^2$, $w_0 = 55 \text{ µm}$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$

ist nicht signifikant höher als jene bestehend aus Al_2O_3 . Die hier gemessenen Mehrpuls-Ablationsschwellen entsprechen denen des entsprechenden Materials in Festkörperform nach [Len98]. Die Einzelpuls-Schwelle von amorphem Quarzglas wurde in [Tie99] zu $F_{th} = 3 \text{ J/cm}^2$ gemessen und ist damit deutlich höher als bei der Beschichtung in Abbildung 5.7.

5.1.3 Abhängigkeit der Ablationstiefe von der Pulsanzahl

Bei abtragenden Verfahren der Laser-Material-Bearbeitung werden stets Fluenzen oberhalb der Ablationsschwelle genutzt. Dabei ist es von Vorteil, Laserparameter zu wählen, bei denen das zu bearbeitende Material eine möglichst geringe Schwelle aufweist. Je größer das Verhältnis der zur Verfügung stehenden Laserfluenz zur Bearbeitungsschwelle des Materials ist, um so flexibler läßt sich die Lasertechnik einsetzen. Zum einen kann der Energieüberschuß genutzt werden, um größere Flächen gleichzeitig zu bearbeiten. Andererseits kann mit höheren Fluenzen eine größere Abtragtiefe pro Puls erreicht werden.

Eine weitere Möglichkeit ist, die zu bearbeitende Stelle mit mehreren Laserpulsen zu bestrahlen. In Abbildung 5.8 ist die erreichte Ablationstiefe h für eine konstante Laserfluenz von $F_0 = 2.58 \text{ J/cm}^2$ in Abhängigkeit von der Anzahl der verwendeten Laserpulse dargestellt. Die Repetitionsrate betrug hierbei $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$, die Strahlgröße $w_0 = 55 \text{ µm}$ und die Pulsdauer $\tau_G = 30 \text{ fs}$. Während der ersten beiden Laserpulse ist die Ablationstiefe zu gering, um sie mit einem Lichtmikroskop messen zu können. Für Pulszahlen von $N = 5 \dots 100$ besteht ein linearer Zusammenhang zwischen h und N . Dementsprechend kann für diese Meßpunkte eine lineare Regression durchgeführt werden (durchgezogene

Linie in Abbildung 5.8). Jeder Laserpuls trägt dabei etwa die gleiche Menge Material ab und aus dem Anstieg kann eine Ablationsrate von $\Delta h_p = 0.2 \mu\text{m}/\text{Puls}$ für $5 \leq N < 100$ bestimmt werden. Ein analoges Verhalten wurde bereits an Quarzglas und an BBS-Glas beobachtet [Len98].

Ab etwa 100 Laserpulsen steigt die Ablationstiefe schwächer mit N an, als es der lineare Fit erwarten ließe. Das heißt, daß mit jedem weiteren Puls die Ablationsrate abnimmt. Die gestrichelte Linie in Abbildung 5.8 verdeutlicht dieses Verhalten anhand einer Funktion mit $h \sim \ln(N)$. Die Reduktion der Ablationsrate bei hohen Pulszahlen kann erklärt werden durch das Zusammenwirken mehrerer Prozesse [Bäu00]:

- Energieverlust durch Wärmeleitung bei steigender Lochtiefe. Dieser Effekt wird erwartungsgemäß signifikant, wenn die Ablationstiefe h die Größenordnung des Strahlradius w_0 erreicht.
- Ablagerung ablatierten Materials innerhalb des Kraters. Die Tiefe, bei der dieser Effekt auftritt, skaliert ebenfalls mit w_0 .

Bei den Messungen in Abbildung 5.8 wurde eine Strahlgröße von $w_0 = 55 \mu\text{m}$ verwendet. Bereits bei einer Ablationstiefe von etwa $20 \mu\text{m}$ und $N = 100$ beginnt das Abweichen der Meßdaten von der linearen Abhängigkeit der ersten Laserpulse. Dies ist etwas weniger als die Hälfte des Strahlradius.

5.1.4 Abhängigkeit der Ablationsrate von der Fluenz

In Abbildung 5.9 sind die gemessenen Ablationsraten bei $N = 100$ in BG 18 über der Laserfluenz aufgetragen. Entsprechend dem Modell nach Gleichung (2.69) zeigt sich eine Abhängigkeit von $\Delta h_p \sim \ln(F_0)$. Für die eingezeichnete Fitfunktion wurde die zuvor per D²-Methode ermittelte Schwellfluenz von $F_{th} = 1.45 \text{ J}/\text{cm}^2$ eingesetzt und die effektive Eindringtiefe zu $H = 0.34 \mu\text{m}$ ermittelt.

Der aus dem Reintransmissionsgrad des Filters (siehe Abschnitt A.3) für die Laserwellenlänge von $\lambda_0 = 790 \text{ nm}$ bestimmte lineare Absorptionskoeffizient beträgt $\alpha_1 = 92 \text{ cm}^{-1}$. Bei Einzelpuls-Bestrahlung entspricht dies einer Eindringtiefe von $109 \mu\text{m}$, also etwa dem 300fachen des für den Mehrpulsfall ermittelten Wertes.

Die Meßdaten in Abbildung 5.9 wurden ebenso mit Gleichung (2.49) gefittet, um den Einfluß der Mehrphotonen-Absorption auf die Ablationsrate zu untersuchen. Für die Schwellfluenz von $F_{th} = 1.45 \text{ J}/\text{cm}^2$ und die Pulsdauer von $\tau_G = 30 \text{ fs}$ resultieren für die freien Parameter $k = 0.94$ und $\alpha_k = 3.7 \mu\text{m}^{-1}(\text{cm}^2/\text{TW})^{k-1}$ bei bester Anpassung des Modells an die Meßdaten. Dies entspricht dem Ansatz für lineare Absorption ($k \approx 1$) nach Gleichung (2.69). Die stark reduzierte effektive Eindringtiefe H im Vergleich zum für die Einzelpuls-Bestrahlung zu erwartenden Wert von $\frac{1}{\alpha_1}$ ist folglich nicht auf die Mehrphotonen-Absorption sondern auf Inkubation und Redeposition zurückzuführen.

5.1.5 Einfluß der Repetitionsrate auf die laserinduzierte Ablation

Bei konstanter Pulszahl wurde die Wiederholrate ν_{rep} der Laserpulse im Bereich von $1 - 1000 \text{ Hz}$ variiert und deren Einfluß auf die laserinduzierte Zerstörung überprüft. Die

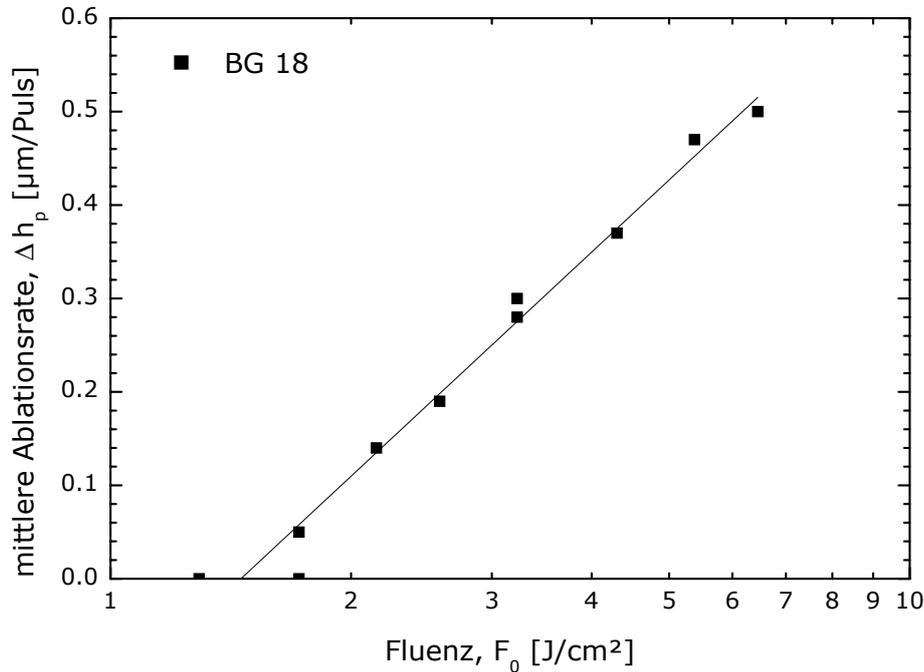


Abbildung 5.9: Abhängigkeit der Ablationsrate von der Fluenz für BG 18, $N = 100$, $\nu_{rep} = 1$ kHz, $w_0 = 55 \mu\text{m}$

Zeitabstände zweier aufeinander folgender Laserpulse lagen dementsprechend zwischen einer Millisekunde und einer Sekunde. Bei diesen Messungen betrugen die Strahlgröße jeweils $w_0 = 85 \mu\text{m}$ und die Pulsdauer wiederum $\tau_G = 30$ fs.

Abhängigkeit der Mehrpuls-Ablationsschwelle von der Repetitionsrate

In Abschnitt 5.1.1 wird die Inkubation dielektrischer Gläser auf die Bildung von langlebigen Defekten zurückgeführt. Es ist davon auszugehen, daß für deren Aktivierung eine bestimmte Aufbauzeit benötigt wird. Folgt innerhalb dieser Zeit bereits ein weiterer Laserpuls, so trifft dieser noch das nicht inkubierte Material. Bei Reduzierung der Repetitionsrate, sodaß der Pulsabstand größer als die Aufbauzeit des Defektes wird, ist eine Zunahme der Inkubation und folglich eine sinkende Mehrpuls-Ablationsschwelle zu erwarten.

Eine steigende Schwellfluenz bei sinkender Folgefrequenz hingegen würde auf transiente Inkubationseffekte hinweisen, die sich innerhalb einiger Millisekunden abschwächen. Ein solches Verhalten ist für die Bildung kurzlebiger Defekte oder die Akkumulation von Wärme zu erwarten. Je länger die Zeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Laserpulsen ist, umso mehr Wärmeenergie wird durch die thermische Diffusion aus dem bestrahlten Gebiet abtransportiert [Kim00].

Aus Abbildung 5.10 ist ersichtlich, daß im untersuchten Bereich von 1 – 1000 Hz keine signifikante Änderung der Schwellfluenz auftritt. Dies bedeutet, daß sich die für die Inkubation verantwortlichen Materialveränderungen innerhalb von einer Millisekunde vollständig ausbilden und länger als eine Sekunde stabil bleiben.

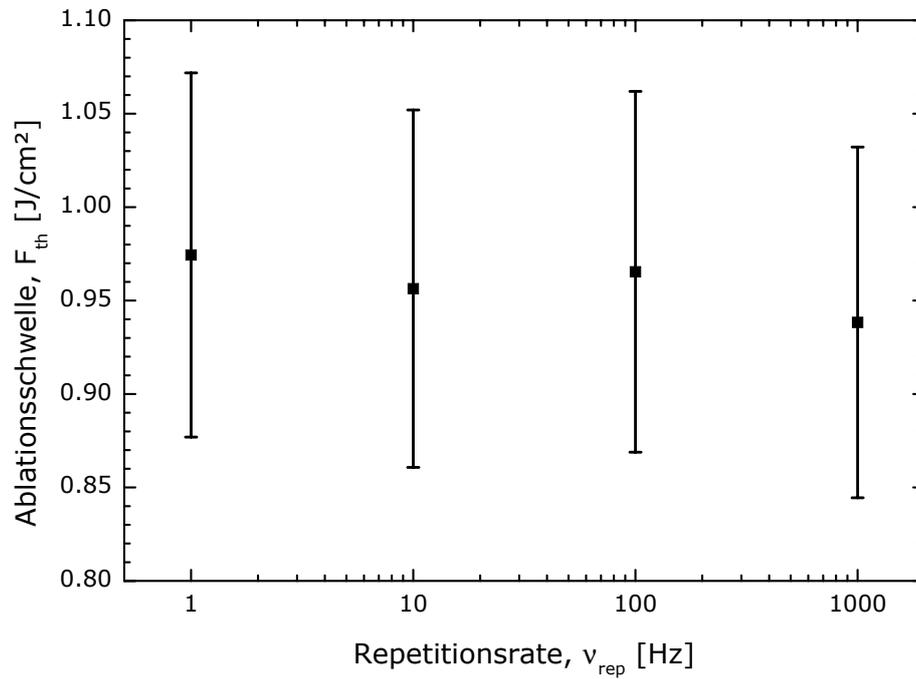


Abbildung 5.10: Abhängigkeit der Mehrpuls-Ablationsschwelle von der Repetitionsrate für BG 18, $N = 100$, $w_0 = 85 \mu\text{m}$

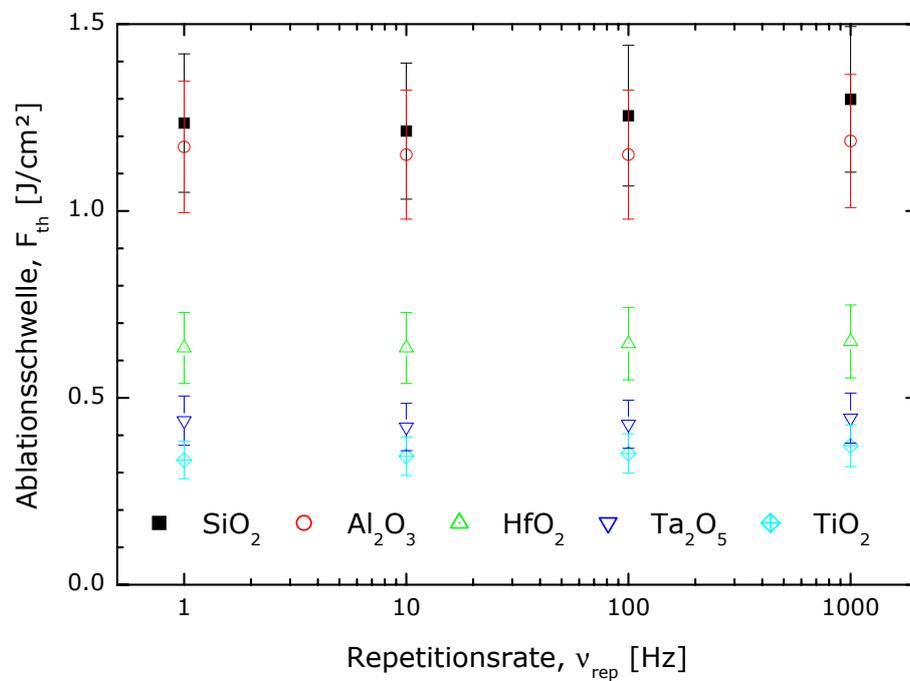


Abbildung 5.11: Abhängigkeit der Ablationsschwelle von der Repetitionsrate für dielektrische Einzelschichten, $N = 100$, $w_0 = 110 \mu\text{m}$

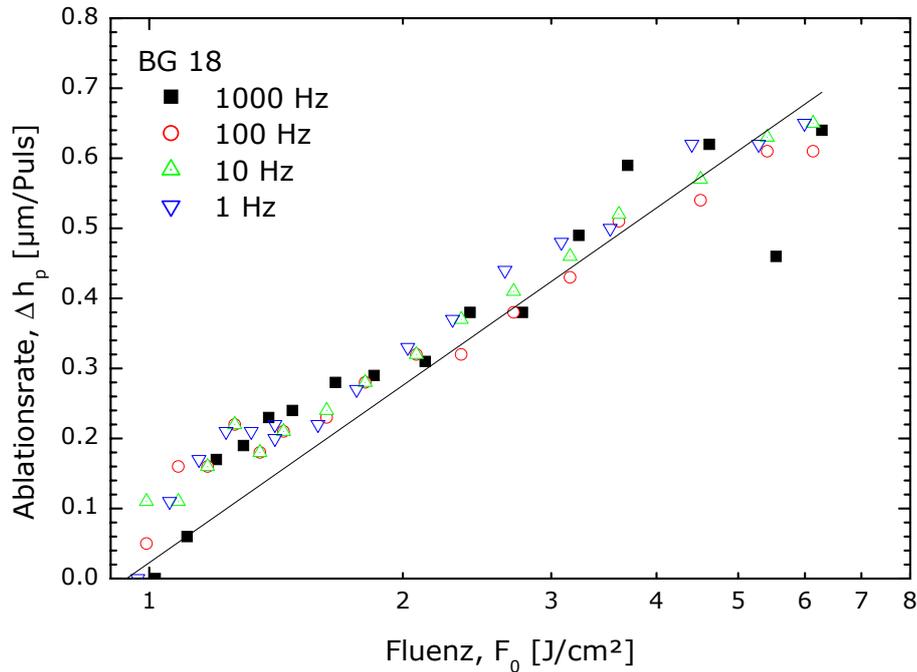


Abbildung 5.12: Abhängigkeit der Ablationsrate von der Fluenz für verschiedene Repetitionsraten an BG 18, $N = 100$, $w_0 = 85 \mu\text{m}$

In Abschnitt 5.1.2 wurden die Ablationsschwellen für verschiedene dielektrische Beschichtungen gezeigt. Dabei ist der Wert für 100-on-1-Bestrahlung stets geringer als die Einzelpulsschwelle, was auf Inkubationseffekte innerhalb der Schicht hinweist. Die Mehrpuls-Schwellfluenszen dieser Proben sind in Abbildung 5.11 über der Repetitionsrate aufgetragen. Auch hier ist — wie bei den vorher beschriebenen Gläsern — F_{th} konstant für $1 \text{ Hz} \leq \nu_{rep} \leq 1000 \text{ Hz}$. Die Materialveränderungen, die zur Inkubation führen, erfolgen demnach auch bei den Einzelschichten innerhalb einer Millisekunde und sind länger als eine Sekunde stabil.

Einfluß der Repetitionsrate auf die Ablationsrate

In Abbildung 5.12 sind die Ablationsraten für verschiedene Repetitionsraten über der Laserfluenz aufgetragen. Alle Messungen wurden entsprechend Gleichung (2.69) gefittet. Die dabei ermittelten Koeffizienten sind in der folgenden Tabelle zusammengefaßt:

ν_{rep} [Hz]	H [μm]	F_{th} [J/cm^2]
1	0.40	0.97
10	0.38	0.95
100	0.37	0.96
1000	0.37	0.94

Die in Abbildung 5.12 eingezeichnete Linie entspricht dem Fit an die Meßdaten für $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$ mit Gleichung (2.69). Es zeigt sich, daß die Ablationsrate über den untersuchten

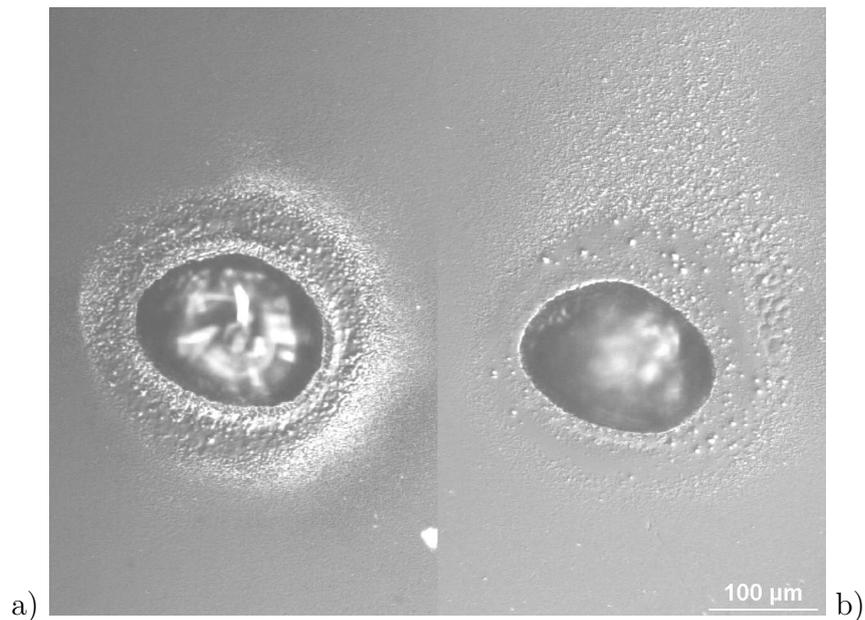


Abbildung 5.13: Mikroskopische Aufnahmen einer bestrahlten BG 18-Oberfläche ohne (links) und mit N_2 -Spülung (rechts) der Probenoberfläche, $F_0 = 5.4 \text{ J/cm}^2$, $N = 100$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$, $w_0 = 85 \text{ μm}$

Bereich bis $F_0 = 6 \text{ J/cm}^2$ nicht von der Pulsfrequenz abhängig.

Einfluß der Spülung der Oberfläche

Bei der Bestrahlung mit Fluenzen deutlich über der Zerstörschwelle wird ein Großteil des ablatierten Materials rund um die bestrahlte Fläche wieder abgelagert (siehe Abbildung 5.13a). Diese Ablagerungen werden als Debris bezeichnet.

Im Folgenden werden Experimente vorgestellt, bei denen Stickstoff mit 2 bar Überdruck aus einer Düse mit etwa 1 mm Durchmesser senkrecht zur Strahlrichtung über die Probenoberfläche geleitet wurde. Durch diese Spülung der Probenoberfläche konnte der Debris deutlich reduziert werden (siehe Abbildung 5.13b). Der N_2 -Strom war im Bild von unten nach oben gerichtet. Direkt um den Ablationskrater herum finden sich fast keine Ablagerungen mehr. Der Schweif über dem Ablationskrater in Bild 5.13b signalisiert jedoch, daß ablatiertes Material weiterhin auf der Probe abgelagert wird, wenn auch in einiger Entfernung von der bestrahlten Stelle. Für die vollständige Vermeidung von Debris bei der Materialbearbeitung reicht die Spülung der Oberfläche offensichtlich nicht aus. Eine probennahe Absaugung ist dazu unbedingt erforderlich, was jedoch den Bearbeitungsaufwand zusätzlich erhöht.

In Abbildung 5.14 sind die Ablationsraten an BG 18 mit und ohne N_2 -Spülung über der Fluenz aufgetragen. Bei hohen Fluenzen ($F_0 > 2 \text{ J/cm}^2$) zeigt sich, daß unter dem Einfluß der Spülung etwas größere Tiefen erreicht werden können. Diese Tendenz nimmt mit steigender Fluenz zu. Darüber hinaus sind die Meßwerte geringeren Schwankungen

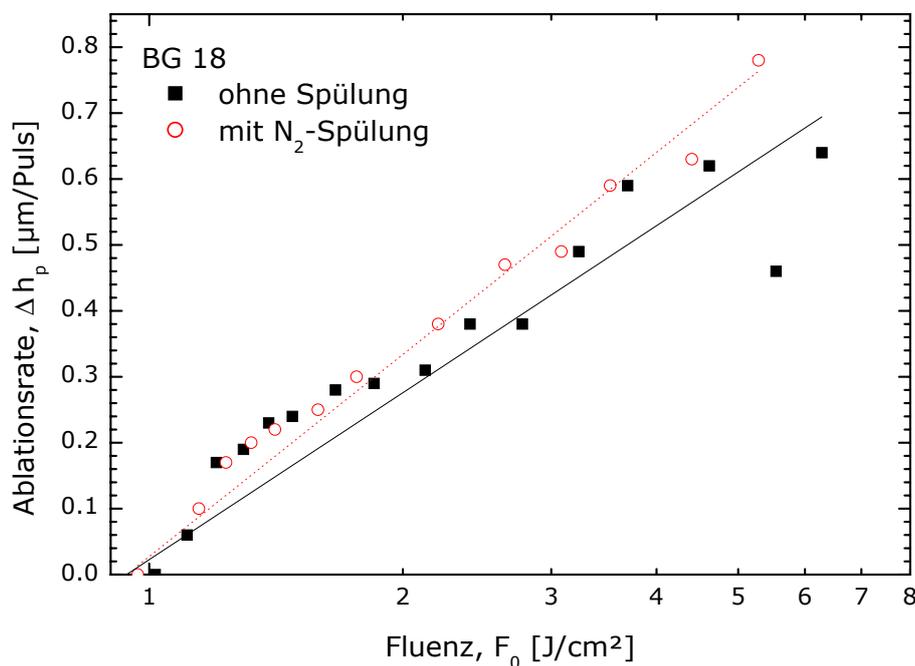


Abbildung 5.14: Abhängigkeit der Ablationsrate von der Fluenz an BG 18 — Einfluß der Spülung mit Stickstoff, $N = 100$, $\nu_{rep} = 1$ kHz, $w_0 = 85 \mu\text{m}$

unterworfen. Die ermittelten Ablationsparameter betragen $H = 0.44 \mu\text{m}$ (mit Spülung) und $H = 0.37 \mu\text{m}$ (ohne Spülung). Als Ursache für die höheren Ablationsraten kommt die Verringerung der Redeposition von Material innerhalb des Abtragskraters in Frage. Die Reduktion der Ablagerungen am Rand durch den N_2 -Strom wurde bereits in Abbildung 5.13 gezeigt.

Auf die Schwelle für den Abtrag hat die Spülung der Probenoberfläche mit Stickstoff jedoch keinen Einfluß.

5.2 Abhängigkeit der Ablation von der Strahlgröße

Ein bisher bei der Ablation mit ultrakurzen Laserpulsen vernachlässigter Prozeßparameter ist die Größe der bestrahlten Fläche (Spotgröße). Dabei wurde bereits 1973 im Pikosekundenbereich eine sinkende Zerstörschwelle dielektrischer Schichten bei steigender Spotgröße gemessen und in Verbindung mit Defekten an der Oberfläche gebracht [Bli73]. Solch ein Verhalten zeigte sich ebenso bei der Bestrahlung von menschlichem Dentin mit 130-fs-Pulsen. Zusätzlich trat eine Abhängigkeit von der Repetitionsrate auf und führte zur Erklärung durch ein Modell, das auf der Akkumulation von Wärme basiert [Kim00]. Für Nanosekunden-Laserpulse verursacht die bei der Abtragung entstehende Plasmawolke eine Abschattung der Probe. Dies führt zur Reduktion der Ablationsrate in Abhängigkeit von der Fokusgröße [Eye87]. Bei Pikosekunden-Bestrahlung tritt dieser Effekt nicht auf,

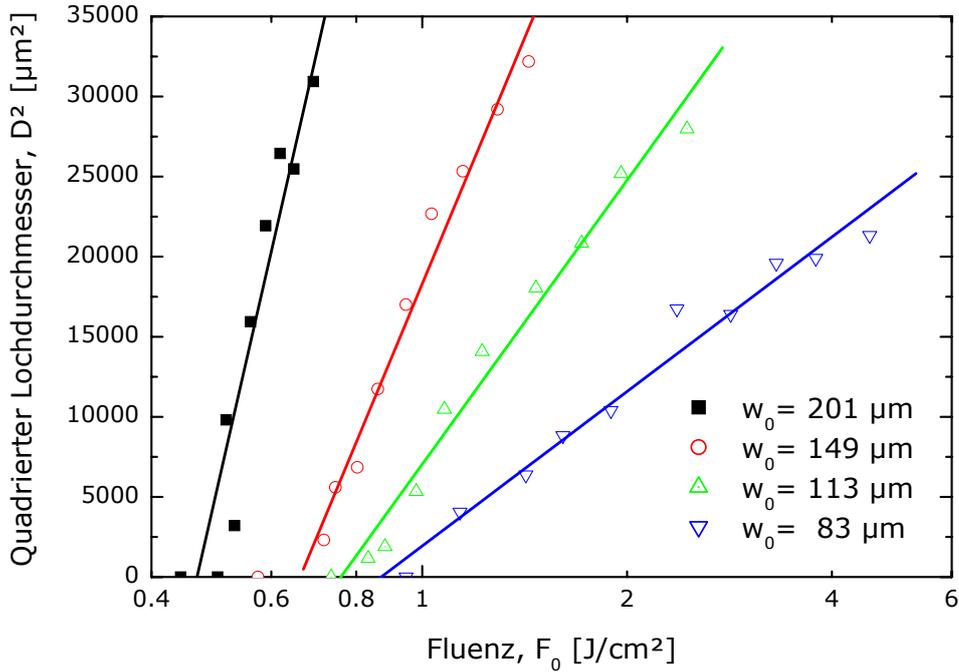


Abbildung 5.15: Auftragung der quadrierten Lochdurchmesser über der Fluenz bei verschiedenen Fokusgrößen für dotiertes Phosphatglas (Schott BG 18), $N = 1000$, $\nu_{rep} = 1$ kHz

da die Ablation von Probenmaterial in diesem Fall erst nach dem Laserpuls einsetzt [Beu90, Ret04].

5.2.1 Ablationsschwelle in ionendotiertem Phosphatglas

Abbildung 5.15 zeigt die Meßdaten der optischen Probeninspektion an BG 18 für Meßreihen mit verschiedenen Strahlgrößen. Diese Unterschiede spiegeln sich im Anstieg der jeweiligen Fitkurven wider. Durch die verschiedenen w_0 sind die Schwellenergien im Gegensatz zur Auftragung in Abbildung 5.2 nicht direkt vergleichbar. Deshalb wurde hier die Abszissenachse bereits auf die Fluenz umgerechnet. Dabei zeigt sich in Abbildung 5.15, daß auch die Schwellfluenz F_{th} (Extrapolation für $D^2 = 0$) mit der Strahlgröße variiert. In Abbildung 5.16 ist die Abhängigkeit der Zerstörschwelle von der Fokusgröße für BG 18 bei Mehrschußbestrahlung (1000-on-1, 1 kHz) mit 30-fs-Pulsen dargestellt. Für $w_0 \leq 100 \mu\text{m}$ ist die Schwellfluenz nahezu konstant. Wird dieser Wert überschritten, sinkt die Ablationsschwelle deutlich. Bei einem Strahlradius von $w_0 = 300 \mu\text{m}$ ist F_{th} bereits auf ein Drittel des Wertes bei $w_0 = 100 \mu\text{m}$ abgesunken.

Die durchgezogene Linie stellt einen Fit der Meßdaten entsprechend dem Defektmodell nach Gleichung (2.59) dar. Dabei wurden eine intrinsische Schwellfluenz von $F_i = 0.89 \text{ J/cm}^2$, eine Defektschwelle von $F_d = 0.12 \text{ J/cm}^2$ und ein mittlerer Defektabstand von $d_0 = 450 \mu\text{m}$ ermittelt.

Aus der Zusammensetzung des Glases (siehe Tab. 4.1), aus dessen Massendichte sowie aus

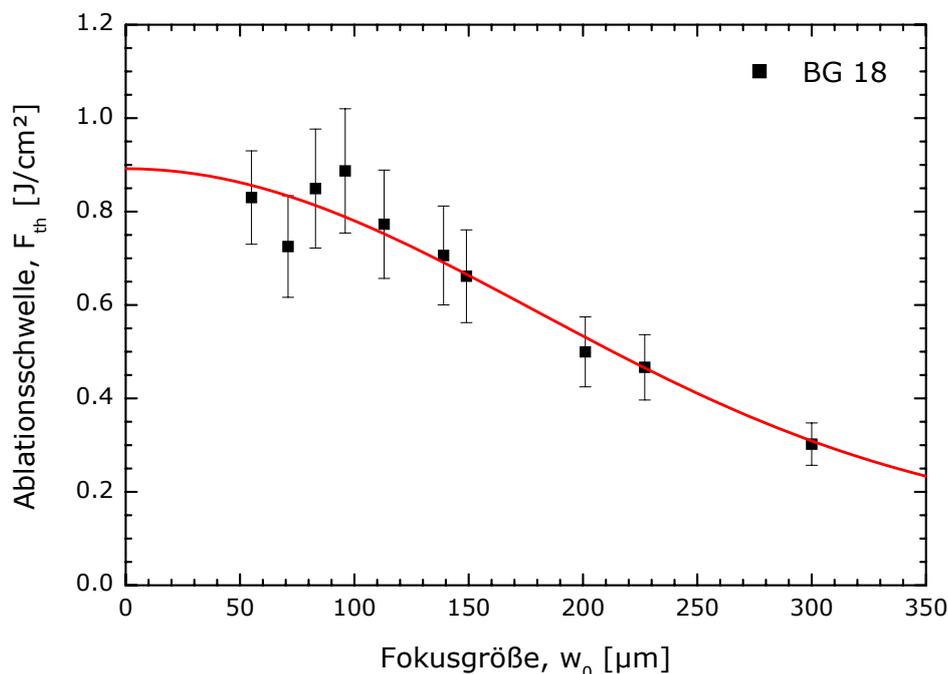


Abbildung 5.16: Abhängigkeit der Mehrpuls-Ablationsschwelle von der Fokusgröße für dotiertes Phosphatglas (Schott BG 18), $N = 1000$, $\nu_{rep} = 1$ kHz

der molaren Masse von CuO läßt sich eine Dichte an Cu^{2+} -Ionen im Bereich von $10^{20} - 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ abschätzen. In einem Zylinder mit dem Radius von $d_0 = 450 \mu\text{m}$ befinden sich somit durchschnittlich zwischen 10^{11} und 10^{12} Kupferionen pro Nanometer Länge. Diese Abschätzung verdeutlicht, daß die Fokusgrößenabhängigkeit der Ablationsschwelle nicht durch die Dotierung des Glases erklärt werden kann, sondern von zusätzlichen Defekten verursacht wird, die in viel geringerer Konzentration vorhanden sind.

5.2.2 Ablationsschwelle transparenter Gläser

Aus Abbildung 5.17 geht hervor, daß auch beim undotierten Phosphatglas PK 50 die Schwellfluenz von w_0 abhängt. Hier bleibt die Ablationsschwelle bis zu einer Fokusgröße von etwa $w_0 = 150 \mu\text{m}$ konstant. Der Fit der Meßdaten nach Gleichung (2.59) ergab $F_i = 1.0 \text{ J}/\text{cm}^2$, $F_d = 0.12 \text{ J}/\text{cm}^2$ und $d_0 = 530 \mu\text{m}$. Damit ist die intrinsische Zerstörschwelle etwas höher als bei BG 18. Darüber hinaus ist der Defektabstand etwa $80 \mu\text{m}$ größer als bei dem dotierten Glas.

Auch das BBS-Glas zeigt eine Verringerung der Ablationsschwelle bei größeren Foki (Abbildung 5.18). Bei diesem Material fällt die Zerstörfluenz um den Faktor 5, wenn der Fokusradius von $100 \mu\text{m}$ auf $400 \mu\text{m}$ vergrößert wird. Analog zu den beiden Phosphatgläsern ist bei dem Silikatglas Corning 7059 F_{th} konstant, wenn $w_0 \leq 100 \mu\text{m}$. Für den Fit mit dem Defektmodell entsprechend Gleichung (2.59) wurden $F_i = 1.0 \text{ J}/\text{cm}^2$, $F_d = 0.12 \text{ J}/\text{cm}^2$ und $d_0 = 480 \mu\text{m}$ bestimmt.

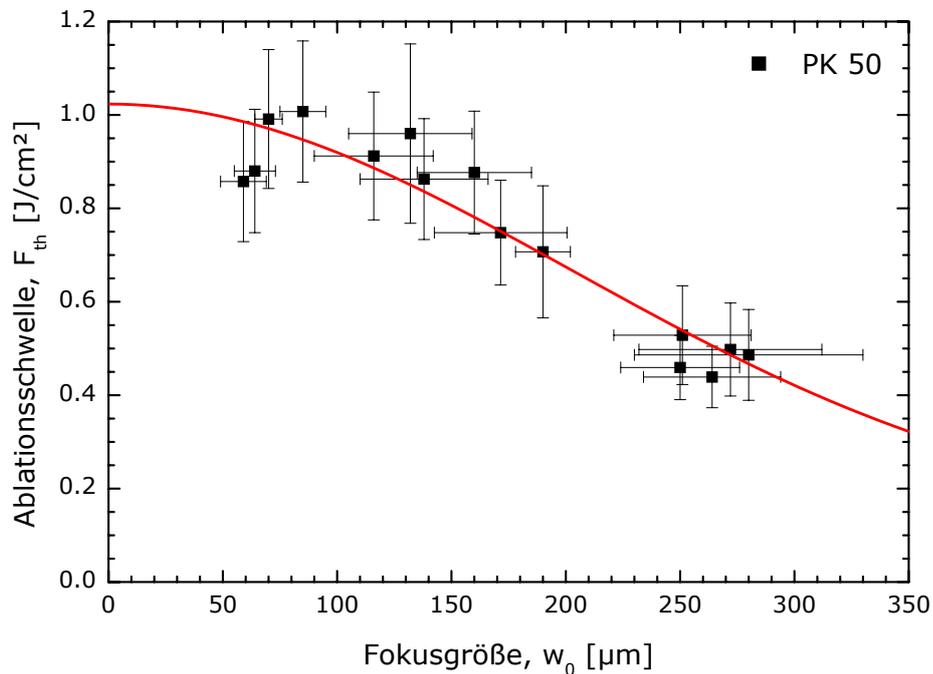


Abbildung 5.17: Abhängigkeit der Mehrpuls-Ablationsschwelle von der Fokusgröße für undotiertes Phosphatglas (Schott PK 50), $N = 1000$, $\nu_{rep} = 1$ kHz

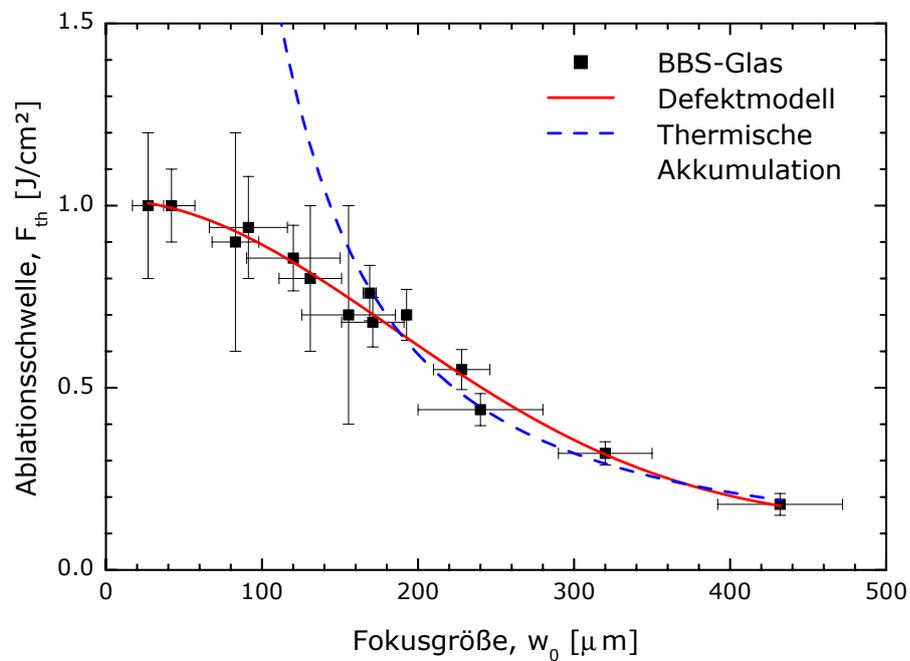


Abbildung 5.18: Abhängigkeit der Mehrpuls-Ablationsschwelle von der Fokusgröße für BBS-Glas (Corning 7059), $N = 1000$, $\nu_{rep} = 1$ kHz

Die gestrichelte Linie in Abbildung 5.18 gibt einen Fit der Meßdaten entsprechend dem thermischen Akkumulationsmodell nach Gleichung (2.68) wieder. Die Materialkonstanten spezifische Wärmekapazität $c_p = 0.837$ J/g/K, Dichte $\rho = 2.76$ g/cm³ und thermische Diffusivität $K = 4.7 \cdot 10^{-3}$ cm²/s entsprechen den Angaben des Glasherstellers. Als freier Parameter zum Anfitzen an die gemessenen Schwellfluenzen bleibt das Verhältnis aus kritischer Temperaturerhöhung T_c und Absorptionsgrad a übrig. Für den Fall, daß die gesamte Laserenergie von der Probe absorbiert wird ($a = 1$) entspricht die Fitfunktion in Abbildung 5.18 einem Temperaturanstieg von $T_c = 263$ K. Zum Erreichen der Schmelztemperatur von $T_m = 1160$ K wäre aber ein T_c von 867 K nötig.

Für Foki von $w_0 \geq 200$ μm können die Meßdaten innerhalb der Meßunsicherheit mit der thermischen Akkumulation beschrieben werden, bei kleinen Radien weichen sie aber stark von der Fitfunktion ab. Die Zerstörschwelle ist nach diesem Modell für kleine Foki nicht begrenzt, sondern strebt gegen unendlich für einen infinitesimal kleinen Strahlradius. Dies steht im Widerspruch zu den gemessenen Schwellfluenzen. Bei der Beeinflussung der Ablationsschwelle durch thermische Akkumulation ist eine obere Grenze für F_{th} zu erwarten. Diese wird genau dann erreicht, wenn die thermische Diffusion die Ausmaße der bestrahlten Fläche übersteigt.

Aus diesen Gründen kann das thermische Akkumulationsmodell nach Gleichung (2.68) nicht zur Erklärung der reduzierten Schwellfluenzen bei großen Strahlradien dienen. In den Abbildungen 5.16, 5.17 und 5.18 lassen sich die gemessenen Fokusabhängigkeiten der Gläser sehr gut mit Hilfe des Defektmodelles beschreiben. Diese phänomenologische Betrachtungsweise gibt jedoch keinen Aufschluß über die physikalische Natur dieser Defekte. So könnte die gemessene Abhängigkeit auch durch entsprechend verteilte Strukturen im Glas verursacht werden, in denen sich unter Bestrahlung lokalisierte Zustände bilden, die eine Absorptionserhöhung in räumlich begrenzten Bereichen hervorrufen (siehe Abschnitt 4.2). Solche sogenannten „Precursor“-Strukturen lassen sich vor der Laserbearbeitung nicht feststellen.

Die Defektschwellen F_d sind bei allen drei Proben gleich. Auch die mittleren Defektabstände variieren nur wenig. Weder die Dotierung des Filters BG 18 (im Vergleich zu PK 50) noch die unterschiedliche Glaszusammensetzung und andere Struktur des Silikatglases Corning 7059 (verglichen mit den Phosphatgläsern) führten zu signifikanten Unterschieden bei der Defektverteilung. Daher ist zu vermuten, daß es sich jeweils um die gleichen Defekte handelt, die in den Gläsern die Strahlgrößenabhängigkeit der Mehrpuls-Ablationsschwelle verursachen.

In Abbildung 5.19 ist die Abhängigkeit des Inkubationskoeffizienten ξ vom Strahlradius in der Fokusebene dargestellt. Bei großen Foki ist die Bestimmung von ξ mit recht großen Fehlern behaftet, da die Maximalenergie der Laserpulse beschränkt ist und bei großen Strahlradien nicht mehr ausreicht, um die Einzelpuls-Zerstörschwelle zu überschreiten. Für $w_0 > 250$ μm war selbst die Schwellfluenz für $N = 10$ nicht mehr erreichbar. In diesem Bereich basiert der Inkubationskoeffizient nur auf den Meßwerten bei $N = 100$ und $N = 1000$.

Es zeigt sich bei wachsendem w_0 ein tendenziell steigendes ξ , was einer Abnahme der Inkubation entspricht. Dabei ist für $w_0 < 150$ μm der Inkubationskoeffizient nahezu konstant. Diese Analogie zum Verhalten der Schwellfluenz von PK 50 in diesem Bereich (siehe Abbildung 5.17) legt nahe, die Änderung der Inkubation in Abhängigkeit von der Strahlgröße

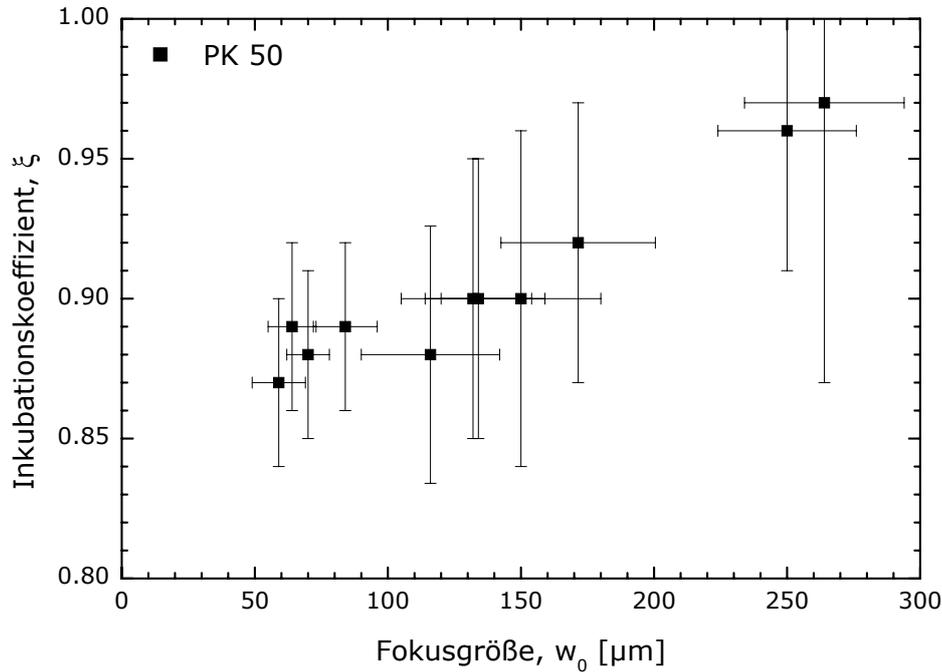


Abbildung 5.19: Abhängigkeit des Inkubationskoeffizienten von der Strahlgröße für undotiertes Phosphatglas (PK 50), $\nu_{rep} = 1$ kHz

ebenfalls durch die Wirkung von Oberflächendefekten zu erklären. Dabei ist die Mehrpulsablation für kleine Foki durch die Inkubation bei der Bildung von laserinduzierten Defekten bestimmt. Deren Einfluß nimmt ab und ξ steigt, wenn bei größeren Strahldien die Wahrscheinlichkeit für die Ablation an bereits existierenden Defekten zunimmt. Gleichzeitig werden die Absolutwerte der Schwellfluenzen kleiner.

5.3 Pulsdauerabhängigkeit der Ablationsschwelle

In transparenten dielektrischen Materialien ist die lineare (Einphotonen-) Absorption vernachlässigbar. Die an der Wechselwirkung mit der Laserstrahlung beteiligten Mechanismen sind in unterschiedlichem Maße von der Fluenz (Avalanche-Ionisation) oder von der Intensität (Mehrphotonen-Ionisation) abhängig. Dadurch lassen sich aus der Pulsdauerabhängigkeit der Schwellfluenz Aussagen über die jeweils dominierenden Ablationsmechanismen treffen (siehe Abschnitt 2.3.4). Ein fluenzabhängiger Prozeß wird durch eine Änderung von τ_G nicht beeinflusst, da die eingetragene Energiemenge in diesem Fall konstant bleibt. Andererseits erhöht sich die Intensität der Laserstrahlung bei Verkürzung der Pulsdauer nach Gleichung (2.10), was sich auf einen intensitätsabhängigen Mechanismus auswirkt.

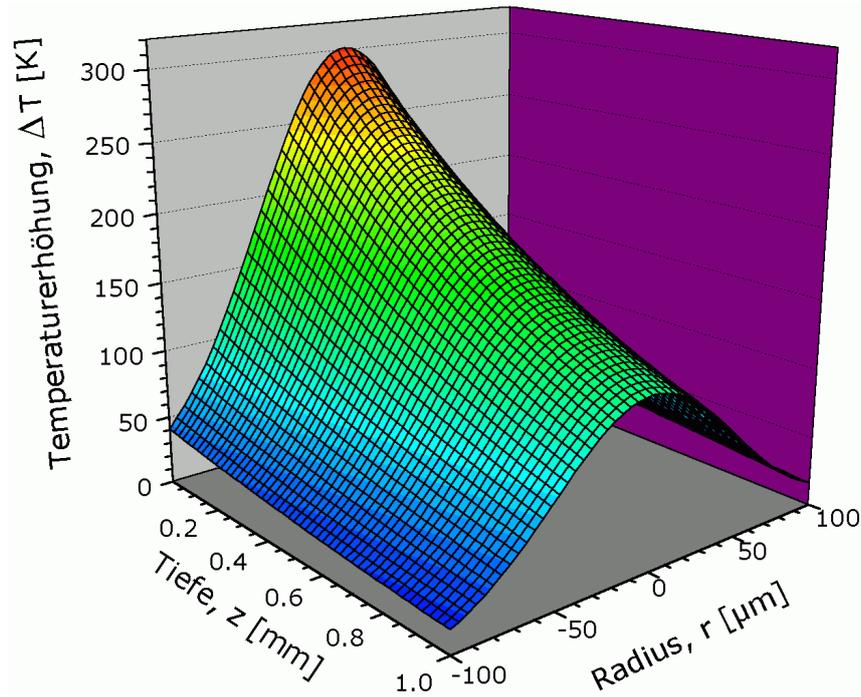


Abbildung 5.20: Temperaturanstieg durch lineare Absorption in BG 18,
 $F_0 = 10 \text{ J/cm}^2$

5.3.1 Ionendotiertes Phosphatglas

Das ionendotierte Phosphatglas BG 18 hat bei der Zentralwellenlänge des Lasers von $\lambda_0 = 790 \text{ nm}$ einen Reintransmissionsgrad von 10^{-4} für eine 1 mm dicke Probe (siehe Abschnitt A.3). Dies entspricht einem linearen Absorptionskoeffizienten von $\alpha_1 = 92 \text{ cm}^{-1}$. Bei den Bestrahlungstests wurde eine Fluenz von $F_0 = 10 \text{ J/cm}^2$ nicht überschritten. In Abbildung 5.20 ist die in BG 18 durch lineare Absorption eines Laserpulses mit dieser Energiedichte verursachte Temperaturerhöhung nach Gleichung (2.29) dreidimensional dargestellt. Deren Maximum beträgt etwa 300 K und wird im Strahlmittelpunkt an der Probenoberfläche erreicht. Für eine Überschreitung der Schmelztemperatur in BG 18 ist jedoch ein Temperaturanstieg von $\Delta T_m = 439 \text{ K}$ nötig, was nach Gleichung (2.39) erst bei einer Fluenz von $F_{th} = 14.6 \text{ J/cm}^2$ erfolgt. Das bedeutet, daß ein Schmelzen durch lineare Absorption von Laserenergie auch für den Absorber BG 18 unter den hier verwendeten Bedingungen ausgeschlossen werden kann.

Folgt man der elektronendynamischen Betrachtungsweise zeigt sich nach Gleichung (2.43), daß durch lineare Absorption mit $\alpha_1 = 92 \text{ cm}^{-1}$ bereits bei einer Fluenz von $F_0 = 2.7 \text{ J/cm}^2$ die kritische Elektronendichte im Leitungsband von $n_{cr} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ erreicht wird. Die in Abschnitt 5.1 gemessenen Schwellfluenzen waren stets kleiner als dieser Wert, sodaß für die Ablation mit 30-fs-Laserpulsen nur ein geringer Einfluß durch die Dotierung zu erwarten ist. Stattdessen ist das Zusammenwirken von Mehrphotonen- und Avalanche-Ionisation für die Zerstörung ausschlaggebend. Bei längeren Laserpulsen nimmt der Einfluß der MPI durch ihre Abhängigkeit von der Intensität jedoch ab, sodaß bei dann stei-

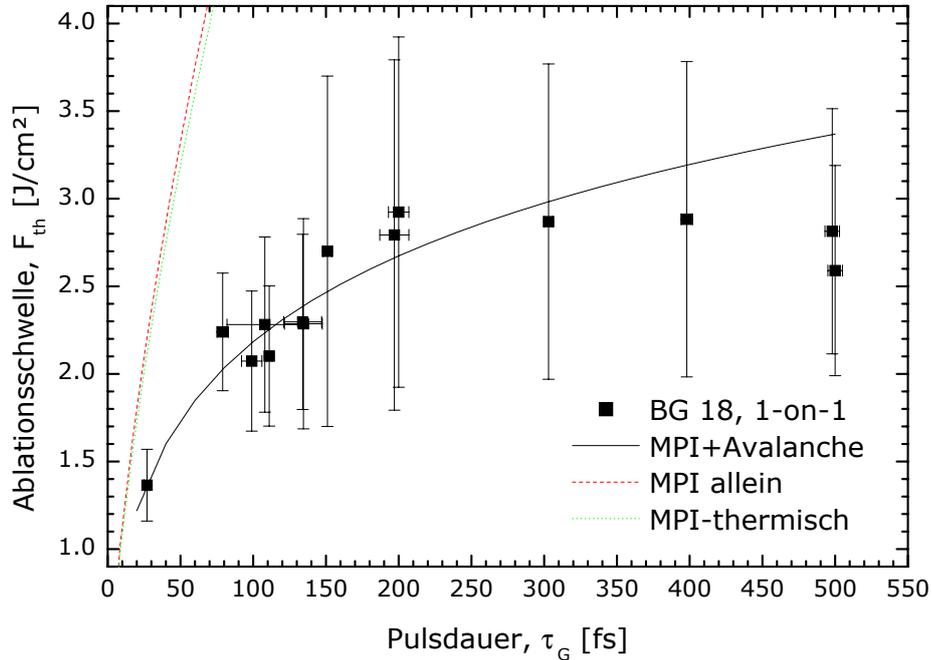


Abbildung 5.21: Abhängigkeit der Einzelpuls-Ablationsschwelle von der Pulsdauer für Filter BG 18, $w_0 = 100 \mu\text{m}$
 „MPI+Avalanche“ entspricht einem Fit nach Gleichung (2.38),
 „MPI allein“ nach Gleichung (2.43), „MPI-thermisch“ nach Gleichung (2.40)

gendem F_{th} auch die lineare Absorption von Bedeutung sein kann.

In Abbildung 5.21 sind die Einzelpuls-Ablationsschwellen für BG 18 im Pulsdauerbereich von $30 \text{ fs} \leq \tau_G \leq 500 \text{ fs}$ aufgetragen. Die für diese Messungen verwendete Strahlgröße betrug jeweils etwa $w_0 = 100 \mu\text{m}$.

Bei den kürzesten Laserpulsen von $\tau_G = 30 \text{ fs}$ Dauer beträgt die Schwellfluenz $F_{th} = 1.36 \text{ J/cm}^2$ — das ist etwa die Hälfte der durch die alleinige Wirkung der linearen Absorption zu erwartenden Zerstörschwelle (siehe oben). Bis zu einer Pulsdauer von 200 fs steigt die Schwellfluenz auf das Doppelte dieses Wertes an und bleibt im Bereich von 200 – 500 fs nahezu konstant. Demzufolge ist die laserinduzierte Ablation in dotiertem Phosphatglas für $30 \text{ fs} \leq \tau_G \leq 200 \text{ fs}$ intensitätsabhängig, während bei $\tau_G \geq 200 \text{ fs}$ ausschließlich fluenzabhängige Mechanismen wirken.

Für die mit „MPI+Avalanche“ bezeichnete Fitfunktion in Abbildung 5.21 wurde das Modell nach Gleichung (2.38) mit der kritischen Elektronendichte von $n_{cr} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ auf die Meßdaten angewendet. Die Ordnung für die Mehrphotonen-Ionisation betrug dabei $k = 3$. Ein Fit nach der Methode der kleinsten Quadrate erbrachte einen Absorptionskoeffizienten von $\alpha_3 = 0.12 \text{ cm}^{-1}(\text{cm}^2/\text{TW})^2$ und einen Avalanche-Koeffizienten von $a = 3.8 \text{ cm}^2/\text{J}$. Im untersuchten Pulsdauerbereich zeigt sich, daß die Ablationsschwellen des dotierten Phosphatglases im Rahmen der Meßunsicherheit mit diesem Modell beschrieben werden können.

Durch „MPI allein“ und „MPI-thermisch“ wird die unter Vernachlässigung der Avalanche-Ionisation zu erwartende Abhängigkeit der Schwellfluenz von der Pulsdauer dargestellt. Dabei wird jeweils nur die intensitätsabhängige Mehrphotonen-Ionisation berücksichtigt. Die zugrunde gelegten Gleichungen (2.43) und (2.40) nutzen unterschiedliche Kriterien für das Einsetzen der Ablation. Dabei zeigt „MPI allein“ die Schwelle für das Erreichen der kritischen Elektronendichte im Leitungsband n_{cr} , während „MPI-thermisch“ nur die absorbierte Energie berücksichtigt und die Dynamik der Elektronen außer Acht läßt. Beide Berechnungen basieren jeweils auf dem oben berechneten MPI-Koeffizienten von $\alpha_3 = 0.12 \text{ cm}^{-1}(\text{cm}^2/\text{TW})^2$. Dem Datenblatt des Herstellers konnten für die thermische Fitfunktion die Schmelztemperatur von $T_m = 732 \text{ K}$ und die Massendichte von $\rho = 2.68 \text{ g/cm}^3$ entnommen werden. Für die Temperaturerhöhung von Raumtemperatur auf T_m wurde eine mittlere Wärmekapazität von $\bar{c}_p = 1.14 \text{ J/g/K}$ ermittelt. Beim Vergleich dieser beiden Fitfunktionen zeigt sich, daß die Schmelzschwellen („MPI-thermisch“) nahezu identisch mit den Schwellfluenzen auf Basis der kritischen Elektronendichte („MPI allein“) sind. Die rein energetische und die elektronendynamische Betrachtungsweise können in diesem Fall gleichwertig verwendet werden.

Allerdings können die gemessenen Ablationsschwellen nicht ohne die Berücksichtigung des Elektronen-Avalanche erklärt werden. Selbst bei den kürzesten Laserpulsen von 30 fs Dauer ist für das Erreichen der kritischen Elektronendichte n_{cr} durch die alleinige Wirkung der 3-Photonen-Absorption nach Gleichung (2.43) eine Fluenz von $F_0 = 2.2 \text{ J/cm}^2$ nötig. Dies bedeutet, daß an der gemessenen Schwelle in Höhe von $F_{th} = 1.36 \text{ J/cm}^2$ die durch MPI erzeugte Elektronendichte im Leitungsband kleiner als $n_{cr} = 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ist. Die Ablation erfolgt demzufolge erst durch das Zusammenwirken mit der Avalanche-Ionisation. Die Mehrphotonen-Ionisation stellt die dafür notwendigen Start-Elektronen bereit, wodurch der Gesamtprozeß intensitätsabhängig ist und F_{th} für längere Pulsdauern ansteigt.

Für $\tau_G > 200 \text{ fs}$ ist die gemessene Schwellfluenz nahezu konstant und korreliert mit dem Erreichen der kritischen LB-Elektronendichte n_{cr} durch lineare Absorption ($k=1$) nach Gleichung (2.43) (siehe oben). Die nach dem Modell des Zusammenwirkens von MPI und lawinenartiger Stoßionisation berechnete Fitfunktion steigt hingegen wegen der Abhängigkeit von der Intensität weiter an. Diese Abweichung bleibt innerhalb der Fehlerabschätzung der Schwellenbestimmung, weist jedoch darauf hin, daß in diesem Pulsdauerbereich die Generation der zur Zerstörung notwendigen Elektronen durch intensitätsunabhängige Prozesse dominiert wird.

Auch bei Mehrpuls-Bestrahlung zeigt sich, daß die Ablationsschwelle mit wachsender Pulsdauer ansteigt, was in Abbildung 5.22 für $N = 1000$ exemplarisch dargestellt ist. Die Ablationsmechanismen des inkubierten Materials sind offensichtlich intensitätsabhängig und es ist zu vermuten, daß die laserinduzierte Zerstörung durch das Zusammenwirken von Mehrphotonen- und Avalanche-Ionisation verursacht wird. Im Gegensatz zu Abbildung 5.21 setzt sich der Anstieg der Schwellfluenz über den gesamten Pulsdauerbereich bis 500 fs fort. Dabei bleibt F_{th} stets kleiner als die Fluenz von $F_0 = 2.7 \text{ J/cm}^2$, bei der in BG 18 allein durch lineare Absorption die kritische Elektronendichte erreicht wird.

Die Modellierung der Schwellfluenzen läßt sich im Rahmen der Meßunsicherheit mit Gleichung (2.38) durchführen. Da sich die Materialeigenschaften während der Bestrahlung durch Inkubation verändern, wurden von der Einzelpuls-Bestrahlung abweichende Koeff-

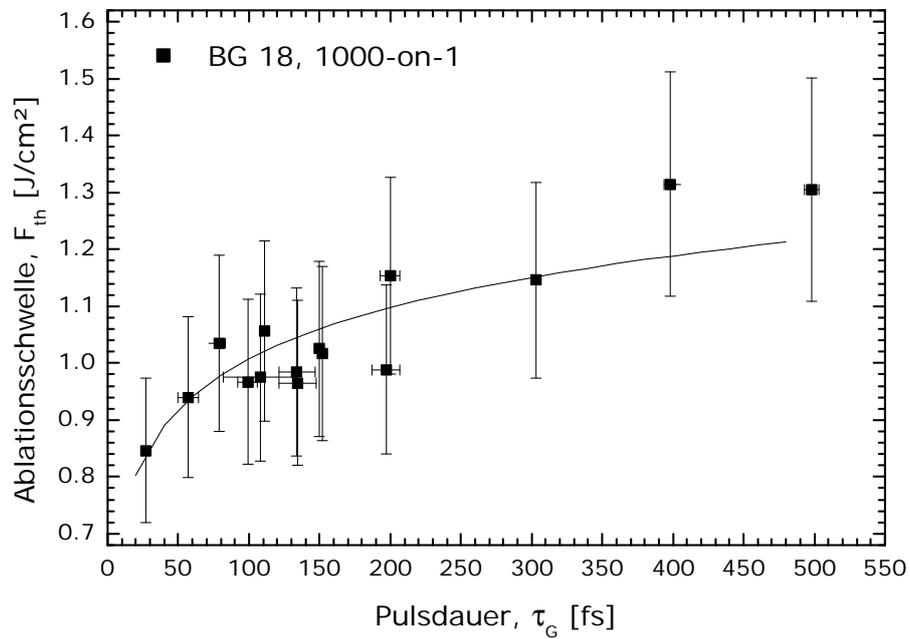


Abbildung 5.22: Abhängigkeit der Mehrpuls-Ablationsschwelle von der Pulsdauer für Filter BG 18, $w_0 = 100 \mu m$, $\nu_{rep} = 1$ kHz

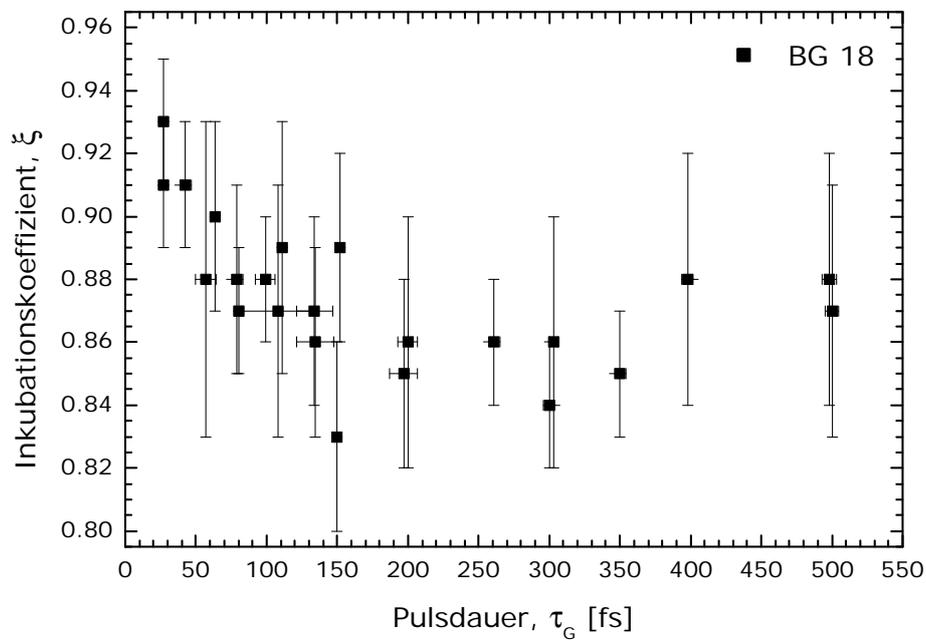


Abbildung 5.23: Abhängigkeit des Inkubationskoeffizienten von der Pulsdauer für BG 18, $w_0 = 100 \mu m$, $\nu_{rep} = 1$ kHz

fizienten in Höhe von $\alpha_3 = 3 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1}(\text{cm}^2/\text{TW})^2$ und $a = 27 \text{ cm}^2/\text{J}$ berechnet. Diese sind als Mittelung über alle Laserpulse zu verstehen.

Inkubationsprozesse wurden bereits in Abschnitt 5.1.1 für 30-fs-Laserpulse untersucht und auf die Akkumulation mechanischer Spannungen sowie auf die Bildung von Absorptionszentren zurückgeführt. Die dabei durchgeführten Messungen der Zerstörschwelle in Abhängigkeit von der Pulsanzahl wurden für eine Reihe verschiedener Pulsdauern wiederholt und die jeweiligen Inkubationskoeffizienten bestimmt. In Abbildung 5.23 ist die Pulsdauerabhängigkeit von ξ für das dotierte Phosphatglas BG 18 dargestellt. Dabei zeigt sich für $\tau_G < 200$ fs bei steigender Pulsdauer ein sinkender Koeffizient, was eine Zunahme der Inkubation bedeutet. Für $\tau_G > 200$ fs ist ξ konstant.

Aus den Ablationsschwellen in den Abbildungen 5.21 und 5.22 wurde geschlossen, daß im Pulsdauerbereich von $30 \text{ fs} \leq \tau_G \leq 200 \text{ fs}$ sowohl die Einzelpuls- als auch die Mehrpulsablation durch Mehrphotonen- und Avalanche-Ionisation bestimmt werden. Dabei zeichnet sich die Zerstörung mit einzelnen Laserpulsen durch einen deutlich höheren MPI-Koeffizienten aus, während bei der Bestrahlung mit Pulszügen der Avalanche-Koeffizient größer ist. Die Zunahme des Einflusses der intensitätsabhängigen Mehrphotonenprozesse auf die Zerstörschwelle bei Verkürzung der Pulsdauer wirkt sich somit stärker auf die Einzel- als auf die Mehrpulsbestrahlung aus. Dies führt dazu, daß die Schwellfluenz des unveränderten Materials (Einzelpuls) sich der des inkubierten (Mehrpuls) annähert und der Einfluß der Inkubation auf die laserinduzierte Ablation schwächer wird.

Die MPI nimmt bei steigender Pulsdauer ab, da bei gleicher Fluenz die Intensität geringer wird. Gleichzeitig verstärkt sich der Einfluß der Inkubation und bleibt ab etwa $\tau_G = 200$ fs nahezu unverändert. Dies deutet darauf hin, daß die entsprechenden Prozesse des Spannungsaufbaus fluenzabhängig sind.

5.3.2 Vergleich mit transparentem Phosphatglas

In den Abbildungen 5.24 und 5.25 sind die Zerstörschwellen von BG 18 und PK 50 im direkten Vergleich dargestellt. Diese Proben sind sowohl hinsichtlich ihrer stofflichen Zusammensetzung als auch in den physikalischen Eigenschaften (Massendichte, Wärmekapazität, Schmelztemperatur, Bandlückenenergie) sehr ähnlich und erlauben Rückschlüsse über den Einfluß der Dotierung auf das Damage-Verhalten dieser Gläser. Es zeigt sich, daß die Ablationsschwellen von dotiertem und undotiertem Glas im gesamten untersuchten Pulsdauerbereich nahezu identisch sind. Dies gilt sowohl für die Bestrahlung mit einzelnen Laserpulsen (siehe Abbildung 5.24) als auch im Mehrpulsregime, das exemplarisch für 1000-on-1 in Abbildung 5.25 dargestellt wird.

Daraus läßt sich schließen, daß die Dotierung des Glases und die lineare Absorption für Laserpulse mit $\tau_G < 500$ fs keinen Einfluß auf die Zerstörschwelle haben. Dies widerspricht jedoch der Feststellung anhand der Einzelpulsablation in BG 18, daß ab einer Pulsdauer von etwa $\tau_G = 200$ fs die Schwellfluenzen von der linearen Absorption bestimmt werden. Diese ist in PK 50 um mehrere Größenordnungen geringer, wonach für das transparente Phosphatglas in diesem Pulsdauerbereich eine größere Einzelpulsablationsschwelle als beim Absorber zu erwarten wäre. Diese Diskrepanz kann durch die Bildung absorbierender Defekte mit Aufbauzeiten von einigen Hundert Femtosekunden erklärt werden [Ash97, Krü03]. In Abschnitt 4.2.1 wurde bereits gezeigt, daß sich in PK 50

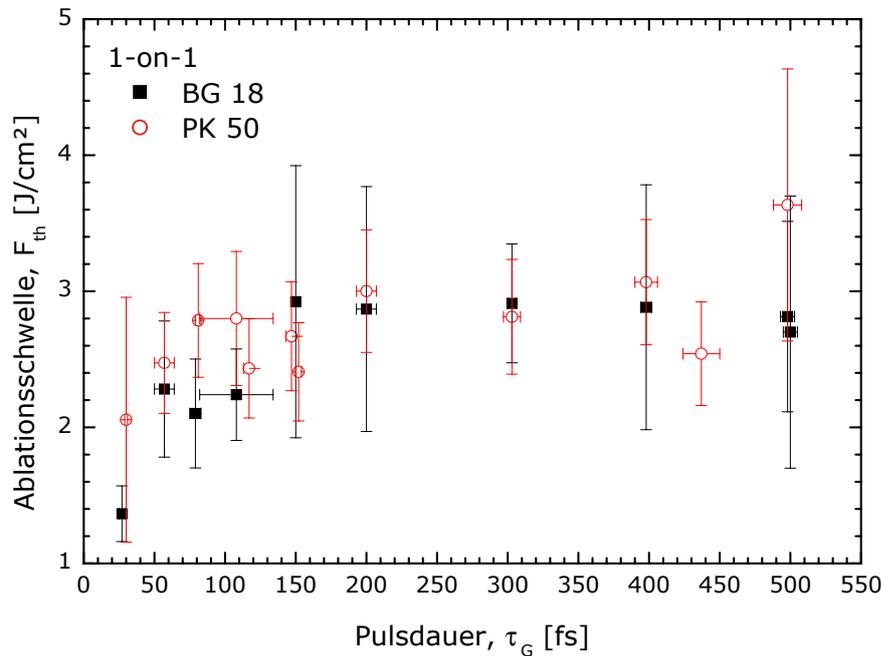


Abbildung 5.24: Abhängigkeit der Einzelimpuls-Abblationsschwelle von der Pulsdauer für Filter BG 18 im Vergleich zu undotiertem Phosphatglas (Schott PK 50), $w_0 = 100 \mu m$

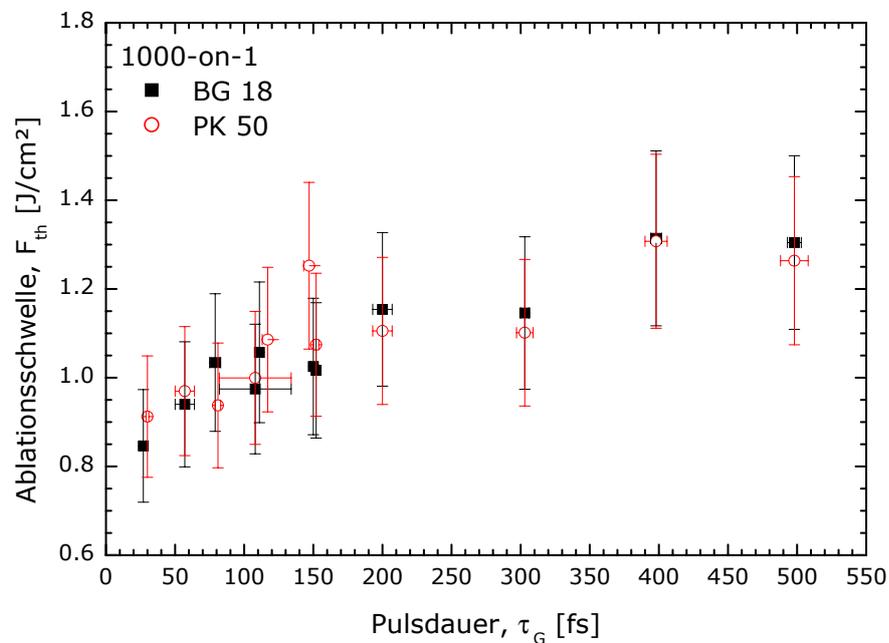


Abbildung 5.25: Abhängigkeit der Mehrimpuls-Abblationsschwelle von der Pulsdauer für Filter BG 18 im Vergleich zu undotiertem Phosphatglas (Schott PK 50), $w_0 = 100 \mu m$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$

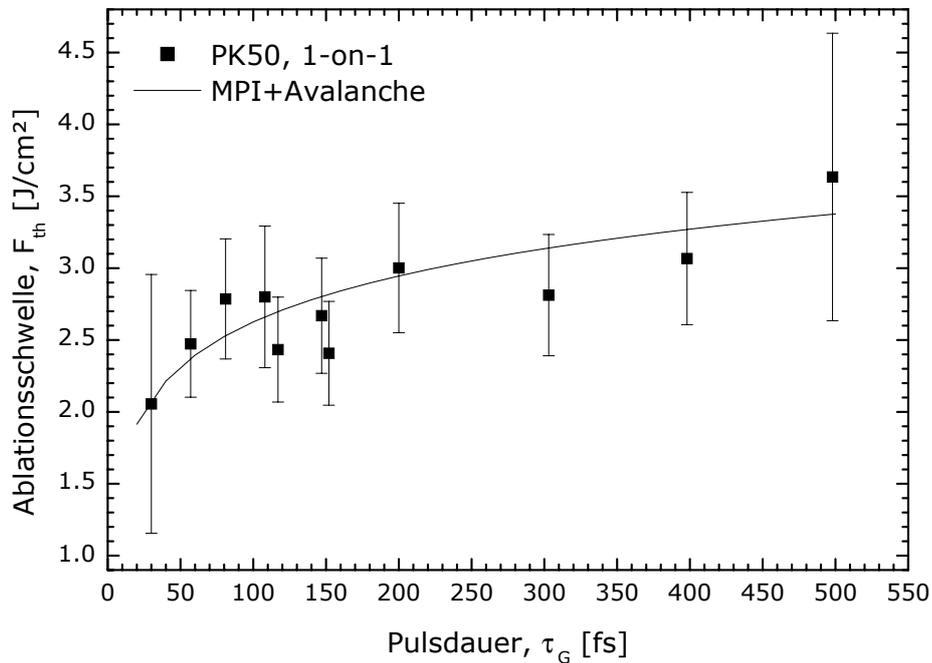


Abbildung 5.26: Abhängigkeit der Einzelpuls-Ablationsschwelle von der Pulsdauer für PK 50, $w_0 = 100 \mu\text{m}$

bei der Bestrahlung mit 30-fs-Laserpulsen unterhalb der Zerstörschwelle Farbzentren bilden. Aus der Literatur ist dabei bereits bekannt, daß lokalisierte Zustände innerhalb weniger Hundert Femtosekunden entstehen können. Dies wurde anhand der Bildung von STEs in transparenten oxidischen Dielektrika unter Ultrakurzpuls-Laserbestrahlung gezeigt [Gui96, Pet97]. Übertrifft die Pulsdauer die Aufbauzeiten dieser Defekte, wird die Absorption bereits während eines Laserpulses erhöht und die für die Zerstörung nötige Laserfluenz wird geringer als durch die Wirkung von Mehrphotonen- und Avalanche-Ionisation erwartet. Dadurch läßt sich erklären, daß die Schwellfluenz beim transparenten Phosphatglas im Pulsdauerbereich von 100 – 450 fs konstant bleibt.

Abbildung 5.26 zeigt die Einzelpuls-Ablationsschwelle von PK 50 in Abhängigkeit von der Pulsdauer mit dem Fit der Meßdaten nach Gleichung (2.38). Für $k = 3$ wurden ein Absorptionskoeffizient von $\alpha_3 = 7.5 \cdot 10^{-4} \text{ cm}^{-1} (\text{cm}^2/\text{TW})^2$ und ein Avalanche-Koeffizient von $a = 7.2 \text{ cm}^2/\text{J}$ ermittelt. Damit ist α_3 etwa drei Größenordnungen kleiner als bei BG 18, während die Koeffizienten für den Avalanche-Prozeß bei den beiden Phosphatgläsern größenordnungsmäßig gleich sind.

Die für die 1000-on-1-Bestrahlung ermittelten Koeffizienten betragen $a = 31 \text{ cm}^2/\text{J}$ und $\alpha_3 = 3 \cdot 10^{-5} \text{ cm}^{-1} (\text{cm}^2/\text{TW})^2$. Wie beim Filterglas zeichnet sich auch die Mehrpuls-Ablation von PK 50 durch einen niedrigeren MPI- und einen höheren Avalanche-Koeffizienten im Vergleich zu $N = 1$ aus.

In Abbildung 5.27 ist der Inkubationskoeffizient für PK 50 in Abhängigkeit von der Pulsdauer dargestellt. Bei diesem für die Laserwellenlänge von $\lambda = 790 \text{ nm}$ transparenten Material ist im Gegensatz zum Absorber BG 18 (Abbildung 5.23) im Bereich von 30 – 500 fs

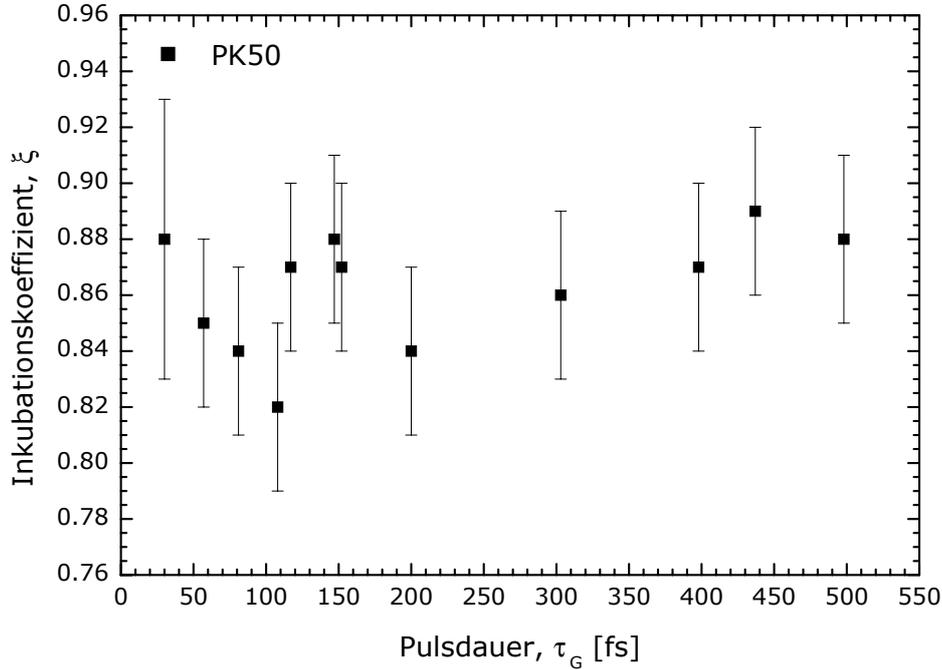


Abbildung 5.27: Abhängigkeit des Inkubationskoeffizienten von der Pulsdauer für PK 50, $w_0 = 100 \mu\text{m}$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$

keine systematische Veränderung der Inkubation erkennbar. Eine Änderung des Inkubationsmechanismus' erfolgt hier offenbar nicht.

5.3.3 Abhängigkeit der Ablationsrate von der Pulsdauer

Bei Messungen an BBS-Glas (Corning 7059) wurde bereits festgestellt, daß die mittlere Ablationstiefe pro Puls von τ_G abhängig sein kann. Dabei wurde unterschieden, ob die Zerstörung durch Avalanche- oder Mehrphotonen-Ionisation ausgelöst wird. Der Übergang zwischen den beiden Prozessen ist von der Ordnung des möglichen Mehrphotonen-Prozesses abhängig und korreliert somit sehr stark mit der Bandlücke des betreffenden Materials. Im oben genannten BBS-Glas ist zur Überwindung von E_{gap} für Laserwellenlängen um $\lambda = 790 \text{ nm}$ eine 3-Photonenabsorption nötig. Der Übergang von MPI-gestarteter Avalanche-Ionisation zu rein MPI gesteuerter Zerstörung erfolgt hier bei etwa 100 fs [Len98].

Die Änderung der Ablationsrate Δh_p in Abhängigkeit von der Fluenz wurde an BG 18 bei verschiedenen Pulsdauern gemessen und jeweils der Ablationsparameter H bestimmt. In Abbildung 5.28 sind die daraus resultierenden Ergebnisse dargestellt. Im Bereich von 30 – 200 fs wird deutlich, daß H bei wachsender Pulsdauer ansteigt. Das bedeutet, daß mit einem 200 fs Laserpuls bei gleichem Verhältnis für $\frac{F_0}{F_{th}}$ mehr Material abgetragen werden kann als mit einem 30 fs Puls. Ab etwa $\tau_G = 200 \text{ fs}$ bleibt der Ablationsparameter konstant.

Dieser Verlauf ist ähnlich dem des Inkubationskoeffizienten ξ in Abbildung 5.23. Dort

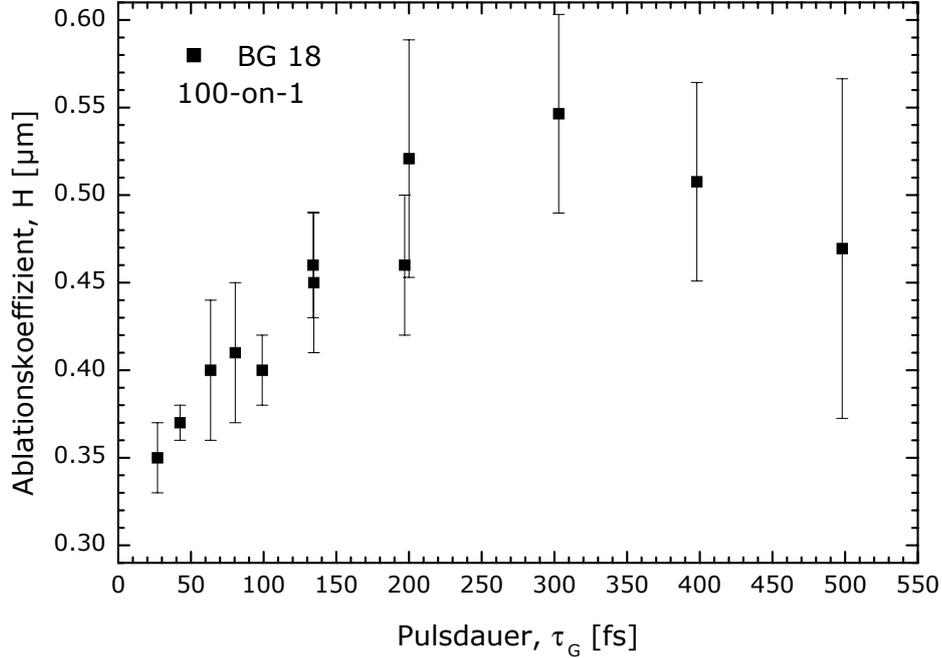


Abbildung 5.28: Änderung des Ablationskoeffizienten mit der Pulsdauer für Schott BG 18, $w_0 = 100 \mu\text{m}$, $\nu_{rep} = 1 \text{ kHz}$

wurde eine Zunahme des Einflusses von Mehrphotonenprozessen postuliert. Da bei nicht-linearer Absorption die Eindringtiefe der Laserstrahlung in das Material stark abnimmt, bestätigt die hier gemessene Reduzierung der Ablationsrate bei Verkürzung der Pulsdauer diese Argumentation. Für den Pulsdauerbereich von $\tau_G > 200 \text{ fs}$ wird die für die Zerstörung notwendige Dichte an Leitungsband-Elektronen erst durch den Avalanche-Prozess erzeugt. Die MPI stellt nur noch die Seed-Elektronen für das Starten der lawinenhaften Stoßionisation bereit. Durch den Elektronen-Avalanche wird der Ablationsbereich über die Eindringtiefe der Laserstrahlung hinaus ausdehnt.

Zum Erreichen einer hohen Ablationsrate wäre im untersuchten Bereich eine Pulsdauer von $\tau_G \approx 300 \text{ fs}$ optimal. Zu den Vorteilen der Ablation mit ultrakurzen Laserpulsen gehört jedoch die Möglichkeit, das Material präzise und mit minimaler Schädigung der Umgebung abtragen zu können. Besonders in Dielektrika nimmt die Präzision durch den steigenden Einfluß der Mehrphotonen-Ionisation bei Verkürzung der Pulsdauer bis $\tau_G = 5 \text{ fs}$ weiter zu [Len99b].

5.4 Zusammenfassung der Ablationsuntersuchungen

Dieses Kapitel befaßte sich mit der Ablation von dielektrischen Materialien durch die Bestrahlung mit Femtosekunden-Laserpulsen. Dabei wurden die Einflüsse von Inkubation, Strahlgröße und Pulsdauer auf die Ablationsschwellen und Abtragsraten von drei verschiedenen Gläsern mit jeweils gleicher Bandlücken-Energie untersucht. Zusätzlich kann-

ten aus der Bestrahlung dielektrischer Einzelschichten Rückschlüsse auf die Bedeutung der Bandlücke gezogen werden.

Bei der Bestrahlung mit 30-fs-Laserpulsen zeigte sich in allen dielektrischen Materialien eine Reduzierung der Ablationsschwelle bei steigender Pulszahl. Dieses als Inkubation bekannte Phänomen konnte durch die Akkumulation mechanischer Spannungen beschrieben werden. Dabei wurde die regionale Volumenänderung bei der Bildung von Farbzentren berücksichtigt. Die spektroskopischen Untersuchungen im vorherigen Kapitel zeigten, daß sich diese Absorptionszentren bei Fluenzen unterhalb der Einzelpuls-Ablationsschwelle bilden. Die Inkubationskoeffizienten der drei Gläser sind im Rahmen der Meßgenauigkeit gleich. Durch Variation der Repetitionsrate konnte festgestellt werden, daß sich die für die Inkubation zuständigen Materialveränderungen innerhalb von weniger als einer Millisekunde vollständig ausbilden und länger als eine Sekunde stabil bleiben.

Die Tiefen der erzeugten Ablationskrater erwiesen sich als proportional zur Anzahl der Laserpulse, solange sie deutlich geringer als der Strahlradius waren. Dabei stieg die Ablationstiefe pro Puls mit dem Logarithmus der Fluenz an, und die laserinduzierte Ablation ließ sich durch die mittlere Eindringtiefe der Laserstrahlung in das Material beschreiben. Erreichte die Lochtiefe die Größe des Strahlradius' reduzierte sich die Ablationsrate infolge steigender Energieverluste an den Rändern der Ablationskrater sowie durch höhere Redeposition. Es konnte gezeigt werden, daß für die Laser-Material-Bearbeitung eine Verbesserung des Bearbeitungsergebnisses durch Spülung der Oberfläche mit einem konstanten Stickstoffstrom erreicht werden kann. Eine Variation der Repetitionsrate im Bereich von 1 Hz bis 1 kHz erbrachte dabei keine Veränderungen.

Anhand der gemessenen Schwellfluenzen der Dünnschichtproben wurde festgestellt, daß die Ablationsschwelle mit steigender Bandlücken-Energie zunimmt. Besonders markant zeigte sich diese Abhängigkeit, wenn sich die Ordnung des kleinsten möglichen Mehrphotonen-Prozesses ändert.

Die Ablationsschwelle erwies sich bei allen Glasproben als strahlgrößenabhängig. Dabei war die Schwellfluenz jeweils bis zu einem Strahlradius von etwa $150 \mu\text{m}$ konstant. Bei Überschreiten dieses Wertes sank die Zerstörschwelle stark ab. Gleichzeitig wurde eine Abnahme der Inkubation gemessen. Dieses Verhalten konnte durch ein statistisches Modell für zufällig an der Oberfläche verteilte Defekte mit im Vergleich zur Umgebung geringerer Schwellfluenz beschrieben werden. Der Effekt trat gleichermaßen im Absorber wie in den transparenten Gläsern auf und ließ sich nicht auf die Dotierung mit Kupferionen im Filterglas zurückführen. Es muß sich somit um Einschlüsse oder Defektstellen in der Glasmatrix handeln. Für die drei untersuchten Proben konnte jeweils ein mittlerer Defektabstand von etwa $500 \mu\text{m}$ ermittelt werden.

Anhand der Pulsdauerabhängigkeit der Zerstörschwelle konnte für Laserpulse bis etwa 150 fs bei allen drei Gläsern das Zusammenwirken von Mehrphotonen- und Avalanche-Ionisation als Ablationsmechanismus identifiziert werden. Für längere Pulsdauern wurde in den Phosphatgläsern eine konstante Schwellfluenz gemessen, was auf das alleinige Wirken fluenzabhängiger Mechanismen hindeutet. Für den Absorberfilter korreliert dies mit dem Erreichen der kritischen Elektronendichte durch lineare Absorption. Beim transparenten Glas konnte dieser Verlauf dadurch erklärt werden, daß die Bildung absorbierender Farbzentren innerhalb der Pulsdauer abgeschlossen wird und dadurch bereits bei der Einzelpuls-Bestrahlung wirksam werden. Die Änderung der Ablationsmechanismen

machte sich auch bei der Inkubation bemerkbar. Diese war umso schwächer, je größer der Einfluß der Mehrphotonen-Absorption war. Die Zunahme der MPI bewirkte zudem eine Verringerung der Ablationsrate infolge der sinkenden Eindringtiefen.