



Kapitel 1

Einleitung

Das Einsatzspektrum von Lasern wurde im Lauf ihrer 50-jährigen Entwicklung immer weiter ausgedehnt. 1960 wurde der Laser lediglich von einigen visionären Wissenschaftlern als etwas anderes gesehen als ein reines Laborgerät, das noch auf der Suche nach seiner Anwendung ist. Heute haben Laserstrahlquellen neben den immer noch die Entwicklung dominierenden Laboranwendungen den Weg bis in die Werkhallen und selbst bis in die Haushalte gefunden. Diese rasante Verbreitung und die scheinbar unbegrenzten Einsatzmöglichkeiten von Laserlicht veranlassen einige bedeutende Wissenschaftler unserer Zeit, das 21ste Jahrhundert als das "Jahrhundert des Lichtes" zu prognostizieren [1].

Trotz oder gerade wegen der rasanten Entwicklung der Technologie sind einige Herausforderungen ständiger Begleiter der Weiterentwicklung. So ist die Verbreitung von Lasern mit einer fortschreitenden Leistungsskalierung der Strahlquellen verbunden. Zurzeit wird an der Realisierung von Petawattlasern [2–4] gearbeitet und die erste Generation von Megajoulelasern befindet sich bereits im Forschungsbetrieb [5–7]. Diese Spitzenleistungen und -energien werden an Großforschungseinrichtungen erreicht und für Grundlagenexperimente im Bereich der Kernforschung verwendet. Aber auch im kommerziellen Bereich steigt die Leistung der Laserstrahlquellen, wobei hier die Leistungssteigerung mit einer zunehmenden Kompaktifizierung und Vereinfachung des internen Aufbaus der Laser einhergeht. Eine solche Entwicklung erfordert meist eine zunehmende Strahlungsleistungsstabilität der optischen Komponenten, deren Komplexität ebenfalls weiter zunimmt. Somit stellt die Entwicklung von leistungsstabilen Optiken eine Grundlage für eine weitere Leistungsskalierung dar. Die Herstellung derartiger Komponenten ist zurzeit wohl der maßgebliche limitierende Faktor für die Weiterentwicklung von Hochleistungslasern in vielen Bereichen. Dabei ist die Problematik seit den 1960er Jahren bekannt, und es wird intensiv auf dem Gebiet geforscht [8]. Allein die Komplexität des laserinduzierten Zerstörprozesses ist so groß, dass zurzeit eine geschlossene Theorie nicht verfügbar ist. Das Problem der laserinduzierten Zerstörung hat einen im hohen Maße heterogenen Charakter. Anders ausgedrückt, die

laserinduzierte Zerstörung ist nicht ein einzelner Prozess mit unterschiedlichen Ausprägungen. Vielmehr handelt es sich um unterschiedliche Prozesse, die zur Zerstörung führen. In der Praxis bedingen die unterschiedlichen Mechanismen einander, und es ist schwer, teilweise unmöglich, die Mechanismen von einander zu trennen. In der Regel wird der Mechanismus die Zerstörung hervorrufen, der den geringsten Energieaufwand erfordert. Die Beachtung dieser einfachen Regel erleichtert in der Praxis die Suche nach der Ursache der Zerstörung, die wiederum essentiell für das Verständnis der Zerstörmechanismen ist. Diese Vorstellung bildet dann wiederum die Grundlage für die Optimierung der Optiken.

Eine theoretische Beschreibung, die alle denkbaren Zerstörprozesse beinhaltet, erscheint derzeit unrealistisch. Deshalb werden die einzelnen Vorgänge, die zur Zerstörung führen können, in der Regel isoliert voneinander betrachtet und klassifiziert. Das Hauptunterscheidungsmerkmal bei laserinduzierten Zerstörungen ist das Zerstörkriterium, bei dessen Erreichen, die irreversible Modifikation des Festkörpers erfolgt. Allgemein wird zwischen elektronischer und thermischer Zerstörung unterschieden. Außerdem sind noch photochemische Zerstörprozesse bekannt, bei denen eine strahlungsdosisabhängige Modifikation zu beobachten ist. Beim elektronischen Prozess wird die Zerstörung mit dem Erreichen einer kritischen Elektronendichte im Leitungsband in Verbindung gebracht. Bei der thermischen Zerstörung ist der Prozess temperaturinduziert, und es kann eine kritische Temperatur definiert werden. Ein wesentliches Unterscheidungsmerkmal zwischen den thermischen und den elektronischen Prozessen ist die Wechselwirkungszeit. Die Zeitskala der elektronischen Anregung liegt im Femtosekundenbereich, während die phononische Wechselwirkung einige 10 ps erfordert. Daraus folgt, dass die Anwendung von ultrakurzen Laserpulsen die Untersuchung von rein elektronischen Prozessen ermöglicht. Dies beschränkt sich nicht auf die Untersuchung von laserinduzierten Zerstörungen. In der Laseranwendung wird diese Eigenschaft ultrakurzer Laserpulse ausgenutzt, um nichtthermische Materialmodifikationen hervorzurufen. Für die Untersuchung der laserinduzierten Zerstörung bietet die kurze Wechselwirkungszeit die Möglichkeit, die elektronische Zerstörung weitgehend isoliert von thermischen Prozessen zu untersuchen. Nicht zuletzt aus diesem Grunde kann in der vorliegenden Arbeit auf eine weitgehend anerkannte Theorie zurückgegriffen werden. Diese Theorie wurde in den vergangenen Jahren genutzt, um die Zerstörschwelle und andere nichtlineare Effekte, wie Filamentation oder Selbstfokussierung, zu modulieren. In der Regel wurden die Berechnungen für einzelne Materialien, wie Quarz oder Wasser, bei Wellenlängen um 800 nm durchgeführt. Die dabei erzielten Ergebnisse zeigten, dass auf Grundlage der Berechnungen eine Vielzahl von Effekten sowohl qualitativ als auch quantitativ vorhergesagt bzw. bestätigt werden können. Im theoretischen Teil der vorliegenden Arbeit wird zwei unterschiedlichen Aspekten nachgegangen. Im Mittelpunkt dieser Untersuchung steht die Frage nach den Abhängigkeiten des

Zerstörverhaltens von Materialeigenschaften und Laserparametern. Für die binären Oxide wurden bereits einige Skalierungen, wie die Pulsdauerabhängigkeit und die Materialabhängigkeit, in vorangegangenen Arbeiten thematisiert [9–11]. Die theoretischen Abschätzungen der vorliegenden Arbeit konzentrieren sich auf die Wellenlängenabhängigkeit und die Materialabhängigkeit von ternären Mischoxiden. Ein besonderes Augenmerk liegt hierbei auf dem Quantencharakter des Anregungsprozesses. Aber auch die elektronischen Eigenschaften der Mischungen werden detailliert untersucht. Der zweite Aspekt betrifft die Modellierung selbst. Hier wird am Beispiel der Wellenlängenabhängigkeit des Zerstörprozesses untersucht, welchen Einfluss die Wahl eines konkreten Anregungsmodells auf das berechnete Verhalten hat.

Der experimentelle Teil der Arbeit beschäftigt sich zum einem mit dem Beschichtungsprozess und den Messmethoden. Da die ternären Oxide im Bereich der Optik erst seit wenigen Jahren in der nötigen Qualität verfügbar sind, sind auch die meisten Materialeigenschaften bislang wenig untersucht. Somit ist ein wesentlicher Aspekt die experimentelle Ermittlung der nötigen Materialkonstanten.

Zum anderen werden Untersuchungen zur Wechselwirkung von ultrakurzen Laserpulsen mit der Materie dargestellt. Schwerpunkt dieser Untersuchungen ist wiederum die laserinduzierte Zerstörschwelle (LIDT - **L**aser **I**nduced **D**amage **T**hreshold). Die Komplexität der untersuchten Proben wird im Verlauf der Arbeit immer weiter erhöht. Zu Beginn wird Quarz als Bulkmaterial analysiert. Hierbei stehen neben der sehr gut bekannten Zerstörschwelle vor allem Selbstfokussierungseffekte im Zentrum des Interesses. Unter anderem soll der Substrateinfluss auf transparente oder teiltransparente Optiken, wie z.B. Einzelschichten, abgeschätzt werden. Einzelschichten eignen sich besonders zur Untersuchung von grundlegenden Materialeigenschaften. Somit werden diese für die experimentelle Überprüfung der im Theoriekapitel gewonnenen Abhängigkeiten herangezogen. Zur Untersuchung der LIDT-Wellenlängenabhängigkeit wurden Messungen unter Verwendung eines optisch parametrischen Verstärkers durchgeführt. Die Materialabhängigkeit von ternären Mischungen wird an Probensätzen von $\text{Ti}_x\text{Si}_{1-x}\text{O}_2$ -Einzelschichten diskutiert. Zudem werden aus den Messungen die materialintrinsischen Zerstörschwellen der Mischungen gewonnen, die auf komplexe Systeme übertragen werden.

Bei den dielektrischen Interferenzschichtsystemen stehen die einfacheren Zweischichtantireflexbeschichtungen am Beginn der Ausführungen. Für die reflektierenden Komponenten werden zunächst einige empirische Ansätze verfolgt. Dann werden die Messergebnisse mit den Abschätzungen aus dem LIDT-Kreis verglichen, der im Rahmen der Arbeit entwickelt wurde. Abschließend werden optimierte Designs diskutiert und deren experimentelle Umsetzung mit den theoretischen Abschätzungen verglichen.

Kapitel 2

Eigenschaften von binären oxidischen Materialien

Im Mittelpunkt der Betrachtungen dieses Kapitels steht zunächst das Zerstörverhalten von binären Oxiden unter Einwirkung von UKP-Laserstrahlung. Die Ultrakurzpulszerstörmechanismen von binären oxidischen Beschichtungen sind seit etwa 15 Jahren Gegenstand intensiver Forschung. Im Vergleich dazu sind die Zerstörungen, die im Wesentlichen durch thermische Prozesse hervorgerufen werden, schon wenige Jahre nach der Erfindung des Lasers zum Gegenstand der Forschung avanciert und bilden bis heute den Schwerpunkt der Beiträge bei Fachtagungen [8]. Deshalb ist es sinnvoll, stellenweise Vergleiche zum Zerstörverhalten im Bereich längerer Pulse heranzuziehen. Derzeit wird für Pulsdauern über einigen zehn ps von einem zunehmenden thermischen Einfluss auf den Zerstörprozess ausgegangen, sodass in diesem Pulsdauerbereich auch die Grenze zwischen dem UKP-Bereich und dem Kurzpulsbereich gezogen wird.

Im Folgenden werden die Skalierungsgesetze der UKP-Zerstörung für binäre Oxide kurz ausgeführt. Insbesondere die Abhängigkeit vom Material, der Pulsdauer und der Feldstärke bilden die Schwerpunkte der Betrachtung.

Im Bereich der Kurzpulsanwendungen wurden entsprechende Skalierungen und Einstufungen in der Regel auf der Basis von rein empirischen Daten durchgeführt [12]. Die Klassifizierung der Materialien hängt hier in starkem Maße vom Beschichtungsprozess und den verwendeten Beschichtungsparametern sowie von der Probenpräparation ab [13–15]. Die Materialabhängigkeit kann somit lediglich als ein Richtwert gesehen werden und kann keinerlei Anspruch auf Allgemeingültigkeit erheben. Trotzdem zeigt sich bei diesen grundlegenden Untersuchungen, dass Materialien, die einen geringeren Brechwert und damit in der Regel eine größere Materialabsorptionskante aufweisen, höhere Zerstörschwellen¹ ermöglichen können als Hoch-

¹Definition der Zerstörschwelle im Abschnitt 4.2.1

brechwertmaterialien. Ähnlich umstritten wie die Materialabhängigkeit ist auch der Einfluss der Pulsdauer τ_{Puls} auf die LIDT. Im Allgemeinen wird eine $\tau_{\text{Puls}}^{\kappa}$ -Abhängigkeit prognostiziert, mit $0,25 \leq \kappa \leq 1$ [16–19]. Lediglich für amorphe Quarzsubstrate ist eine $\sqrt{\tau_{\text{Puls}}}$ -Abhängigkeit nahezu unumstritten.

Fast vollständig ungeklärt erscheint die Frage der Pulszahlabhängigkeit. In den meisten Fällen kommt es mit steigender Pulszahl zu einem Absinken der Zerstörschwelle, aber es sind auch Fälle bekannt, bei denen die Laserstrahlung eine Konditionierung der Proben bewirkt und zu einer Erhöhung der Schwelle geführt hat [20]. So werden beispielsweise Substrate, die für Optiken in Megajoule-Lasern eingesetzt werden, oftmals zunächst mit einer definierten Fluenz konditioniert, bevor diese beschichtet werden [21]. Einzig die Abhängigkeit der LIDT von der Feldstärkeverteilung im Schichtsystem wurde in der Vergangenheit immer wieder genutzt, um feldstärkeoptimierte, laserstrahlungsresistentere Designs und Komponenten herzustellen. Hierbei wurden Designs gewählt, die die Feldstärke in den Bereichen des Schichtwechsels minimieren, da in diesen Abschnitten herstellungsbedingt von einer erhöhten Konzentration von absorbierenden Partikeln auszugehen ist [22–26]. Allgemein ist festzuhalten, dass Skalierungen der LIDT in Bezug auf die Material- und Pulsdauerabhängigkeit, sowie auf das Mehrpulsverhalten sehr problematisch sind und allenfalls eine Abschätzung für die zu erwartende LIDT geben können. Für die Anwendung folgt daraus, dass die Messung der Laserstrahlungsresistenz an gleichen Proben und unter gleichen Bedingungen erfolgen muss, wie die Optik, die in der Praxis eingesetzt wird. Eine solche Forderung ist praktisch nicht umzusetzen, da einerseits keine hundertprozentig gleichen Optiken existieren und andererseits der Aufwand für die Qualifizierung zu hoch wäre. Für die Messung der LIDT bleibt somit eine nicht zu vernachlässigende Unsicherheit, die oftmals größer einzuschätzen ist als der eigentliche Messfehler. In der standardisierten Messvorschrift (ISO11254 [27–29]) wurden die umfassenden Erfahrungen aus den Kurzpulszerstörungsmessungen berücksichtigt und somit durch eine optimierte Wahl der Messparameter eine Minimierung der statistischen Unsicherheit erreicht.

Im Folgenden werden die dargestellten Abhängigkeiten für UKP-Optiken thematisiert. Dabei werden sehr deutliche Unterschiede zu den Aussagen, die für längere Pulse gelten, aufgezeigt. Die Gesetzmäßigkeiten der Zerstörung für Materialien unter Einwirkung von UKP-Strahlung werden in den nachfolgenden Kapiteln genutzt, um weitere Abhängigkeiten zu diskutieren. Die Anwendung der Messvorschrift ISO11254 stellt für Ergebnisse im UKP-Bereich jedoch keine Einschränkung dar [30]. Vielmehr zeigen die Experimente, dass die Messung nach ISO11254 im UKP-Bereich einen signifikant kleinen Fehler aufweist.

2.1 Abhängigkeit der Zerstörschwellen von der Materialabsorptionskante

Eine der am häufigsten diskutierten Fragestellungen in Bezug auf die LIDT ist die Abhängigkeit vom Material. Für den Bereich der ultrakurzen Pulse zeigten insbesondere Arbeiten von der University of New Mexico (UNM) [10, 11, 31–33], dass eine streng deterministische Abhängigkeit zwischen Materialbandkante und LIDT besteht. Diese Gesetzmäßigkeit wurde aus Messungen der Einzelpulszerstörschwelle abgeleitet. Zudem konnte eine Pulsdauerabhängigkeit mit $\tau_{\text{Puls}}^{0,3}$ für die verschiedenen binären Oxide gezeigt werden. In Abbildung 2.1 sind die Messergebnisse in Abhängigkeit von der Pulsdauer dargestellt.

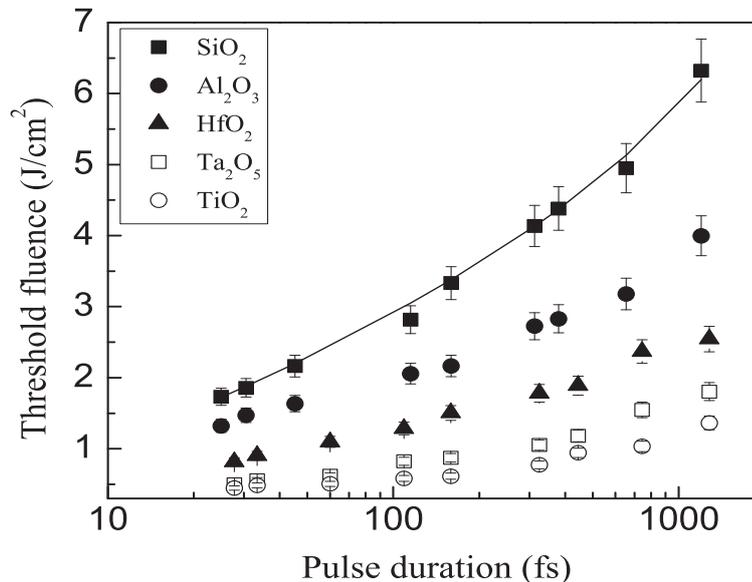


Abbildung 2.1: Einzelpulszerstörschwelle von TiO₂, Ta₂O₅, HfO₂, Al₂O₃ und SiO₂ als Funktion der Pulsdauer [31, 32]

Starke [30] führte Zerstörschwellenexperimente an hochreflektierenden Beschichtungen durch, in denen gezeigt wurde, dass die Aussagen für Einzelschussmessungen weitestgehend auf die Mehrpulszerstörschwellenmessung übertragbar sind. Im Rahmen dieser Arbeit wird zudem gezeigt, dass die gleichen Materialien aus unterschiedlichen Beschichtungsprozessen unterschiedliche Zerstörschwellen aufweisen können, was keinen Widerspruch zu den zuvor getroffenen Aussagen darstellt².

² Die Korrelation zur Absorptionskante der untersuchten Materialien wird hier nicht hergestellt.

Mero formulierte den Zusammenhang zwischen Zerstörschwelle H , E_{gap} -Materialabsorptionskante und der Pulsdauer τ_{Puls} zu einer allgemeingültigen Gesetzmäßigkeit [34]

$$H \approx (a + b * E_{\text{gap}}) \tau_{\text{Puls}}^{\kappa} \quad (2.1)$$

mit $a = -0,016\text{J}/(\text{cm}^2\text{fs}^{\kappa})$; $b = 0,074\text{J}/(\text{cm}^2\text{eVfs}^{\kappa})$; $\kappa = 0,3$. Dieses Skalierungsgesetz beschreibt in einfacher Weise das Zerstörverhalten von dielektrischen, dünnen Schichten. Sie ermöglicht eine zuverlässige Skalierung der LIDT in Bezug auf die Pulsdauer sowie das Material und ist damit der elementare Ausdruck des Zerstörverhaltens im UKP-Bereich.

2.2 Mehrpulsverhalten von Oxiden

Für Laserkomponenten ist die Lebensdauer ein entscheidender Parameter für die Einsatzfähigkeit der Optik. Aus messtechnischer Sicht kommt damit der Lebensdauerbestimmung eine zentrale Bedeutung zu. Da die Messzeit begrenzt ist, besteht die Herausforderung darin, ein geeignetes Extrapolationsverfahren zu entwickeln. ISO11254 empfiehlt, das Multipulszerstörverhalten aus der Auftragung der LIDT über der Pulszahl N mit einer empirisch entwickelten Extrapolationsformel anzupassen [28]. Aus dieser Formel können die Einzelpulszerstörschwelle $H_{\text{th},1\text{on}1}$, sowie die Zerstörschwelle für unendlich viele Pulse $H_{\text{th},\infty}$ ermittelt werden. Δ_D ist hier ein charakteristischer Parameter, der durch den Schnittpunkt der Tangente in Punkt $(1, H_{\text{th},1})$ mit dem konstanten Niveau für $H_{\text{th},\infty}$ gegeben ist.

$$H_{\text{th}}(N) = H_{\text{th},\infty} + \frac{H_{\text{th},1\text{on}1} - H_{\text{th},\infty}}{1 - \frac{1}{\Delta_D} \log_{10}(N)} \quad (2.2)$$

Die hier vorgestellten experimentellen Ergebnisse orientieren sich in starkem Maße an praxisrelevanten Erfordernissen. Zur Beschreibung des Mehrpulsverhaltens der LIDT wird hauptsächlich das in ISO11254 vorgeschlagene Extrapolationsverfahren verwendet. Der wesentliche Nachteil dieses Verfahrens ist, dass es keine Aussagen zur Natur des Zerstörprozesses gestattet. Hier bieten vor allem die Überlegungen, die an der University of New Mexiko in der Arbeitsgruppe von W. Rudolph angestellt wurden, eine detailliertere Modellvorstellung an.

Das Verständnis des Mehrpulsverhaltens der LIDT, welches sich in der charakteristischen Zerstörkurve widerspiegelt, beruht nach Mero [34] auf der Annahme, dass in Folge der intensiven Laserstrahlung Zwischenzustände im verbotenen Bereich zwischen den erlaubten Zuständen existieren bzw. durch die Bestrahlung gebildet werden. Diese könnten zum Teil exzitonischen Charakter haben und werden, wenn sie durch die Strahlung gebildet werden, als "Self Trapped Excitons" bezeichnet [35]. Da die Zustände in der elektronischen Struktur exakt lokalisiert sind, ist die Wahrscheinlichkeit für eine direkte Anregung aus den gebundenen Zuständen verschwindend

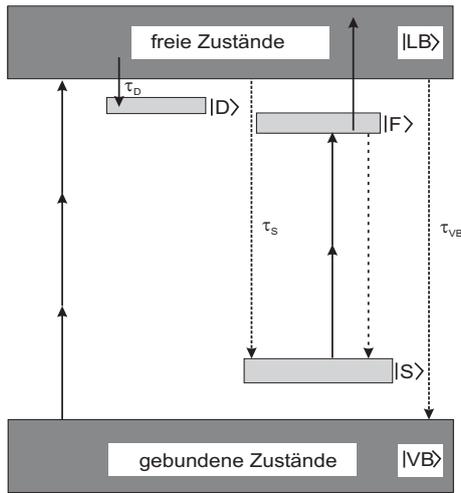


Abbildung 2.2: Energieniveau- und Elektronenübergangsschema nach Mero [34].

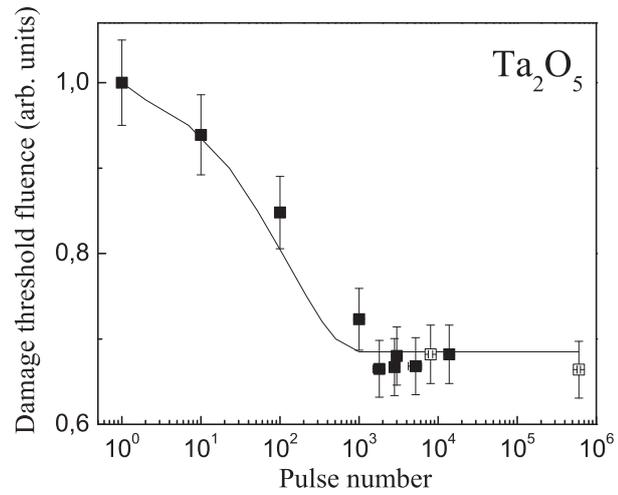


Abbildung 2.3: Mehrpulsverhalten der LIDT am Beispiel von Tantaloxid [34].

klein [36]. Vielmehr werden diese Zwischenzustände durch Relaxationsprozesse aus den freien Zuständen aufgefüllt. Diese Zwischenzustände wirken als Elektronenspeicher. Die Elektronenlebensdauern in den relevanten Zwischenzuständen sind sehr groß im Vergleich zur Zeit zwischen den Laserpulsen, die aus der Pulsfolgefrequenz resultiert. Die Elektronen aus diesen Zuständen können nun leichter wieder in die freien Zustände angeregt werden, da die zu überwindende effektive Potentialbarriere kleiner ist als die, die nötig ist, um ein Elektron direkt aus den gebundenen Zuständen zu ionisieren.

Konkret basiert das Modell, das für Tantaloxid entwickelt wurde, auf dem Schema in Abbildung 2.2.

Für die Abhängigkeit der LIDT von der Pulsanzahl gibt Mero eine Näherungsformel an. Der aus dieser Näherungsformel resultierende Kurvenverlauf wird wesentlich durch das Verhältnis der Zeiten in $\frac{\tau_{LB}}{\tau_S}$ für die Relaxation aus den freien Zuständen und den tiefen Niveaus sowie durch die entsprechenden Zustandsdichten in den zugeordneten Niveaus (N_{LB} , N_S) bestimmt.

$$H_{th}^i(N) = H_{th,\infty}^i + H_{th,1on1}^i - H_{th,\infty}^i \left(1 - \frac{\tau_{LB} N_{LB}}{\tau_S N_S} \right)^{N-1} \quad (2.3)$$

Aus dieser Betrachtung folgt eine Beziehung, die ebenfalls einfach handhabbar ist³.

Abbildung 2.3 zeigt am Beispiel von Tantaloxid, dass das Modell das Mehrpulsverhalten von binären Oxiden hervorragend beschreibt⁴. Besonders bemerkenswert ist hier der Umstand, dass die

³ Zur Vereinfachung wurden in dem Ausdruck die Bezeichnungen aus der ISO11254 verwendet.

⁴ Diese Messung wurde von der Universität von New Mexiko zur Verfügung gestellt.

Zerstörschwelle bei binären Oxiden auf 67,5 % der Einzelschusszerstörschwelle absinkt. Ließe sich ein solches festes Verhältnis von $\frac{\infty}{10n1}$ als allgemeine Gesetzmäßigkeit auf alle oxidischen Materialien übertragen, so könnten alle Aussagen, die für die Einzelpulszerstörschwelle erarbeitet wurden, auf die Mehrpulszerstörschwelle angewendet werden. Ob diese Gesetzmäßigkeit auf alle Oxide, insbesondere auf die Mischungen, anwendbar ist, wurde ebenfalls überprüft und wird im Abschnitt 6.4 dargestellt. Die anschließende Diskussion der Feldstärkeabhängigkeit der LIDT wird anhand der Mehrpulszerstörschwelle geführt. Die Wahl der Mehrpulszerstörschwelle folgt praktischen Erwägungen, da die Mehrpulszerstörschwelle die Messgröße ist, die für die Optimierung von Schichtsystemen Anwendung findet (siehe Kapitel 7).

2.3 Beziehung zwischen Zerstörschwelle und Feldstärke

Die Abhängigkeit der Zerstörschwelle von der Feldstärke hat für dielektrische Wechselschichten eine ähnliche Bedeutung wie die stofflichen Abhängigkeiten. Für die Betrachtung von komplexen Beschichtungen ist die Bewertung der internen Feldstärke von entscheidender Bedeutung. Die hier vorgestellten Analysen werden an den Ergebnissen der LIDT-Untersuchungen von Starke durchgeführt. Der von Starke verwendete Probensatz bildete die Basis der Untersuchung zur Feldstärkeabhängigkeit [30].

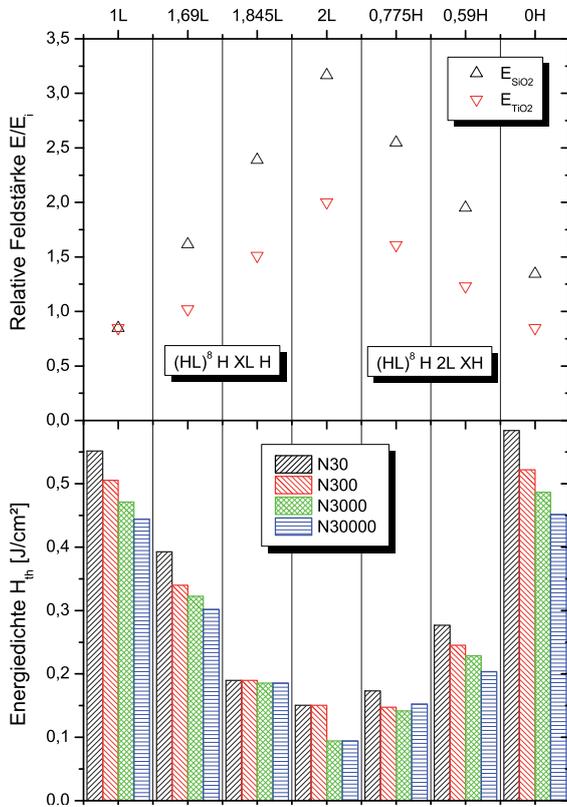
Der Probensatz basiert auf Wechselschichtsystemen aus Titanoxid (H) und Siliziumoxid (L), der mittels der IBS-Technologie hergestellt wurde. In dem Probensatz wird die interne Feldstärke durch die Variation der Dicke der beiden oberflächennächsten Schichten erreicht. Tabelle 2.1 zeigt die Schichtstruktur des Probensatzes auf.

Allen Beschichtungen ist gemein, dass die maximale Feldstärke in der zweiten Schicht, also in einer Siliziumoxidschicht, erreicht wird⁵. Diese Wahl des Designs entspringt anwendungsbezogenen Kriterien, da aufgrund der größeren Materialzerstörschwelle des Siliziumoxids eine höhere Zerstörschwelle erreicht werden sollte als bei einer Lokalisierung der Feldstärkeüberhöhung in der Titanoxidschicht. Für die Untersuchung der Feldstärkeabhängigkeit folgt aus dieser Anordnung die Schwierigkeit, den schwächsten Teil der Beschichtung zu bestimmen. Da die Materialzerstörschwelle des Titanoxids jedoch um fast eine Größenordnung geringer ist als die des Siliziumoxides, ist zu erwarten, dass trotz der höheren Feldstärke im Siliziumoxid die Zerstörung im Titanoxid erfolgt.

Einen Hinweis auf ein solches Verhalten kann aus der Morphologie der Zerstörung abgeleitet werden. Zu diesem Zweck wurden an den Proben unterschiedliche hochauflösende Mikroskop-

⁵ Bei Probe 7 entfällt die letzte hochbrechende Schicht. Diese wird als Nullschichtdicke betrachtet.

Parameter der Proben der Testreihe zur Untersuchung der LIDT- Feldstärkeabhängigkeit in Schichtsystemen



Nr.	Schichtfolge (HL) ⁸ H plus	Max. Feldstärke im TiO ₂ [%]	50% - LIDT 30.000on1 [$\frac{J}{cm^2}$]	Norm. LIDT [$\frac{J}{cm^2}$]
1	1L H	42,45	0,444	0,444
2	1.69L H	61,26	0,302	0,435
3	1.845L H	134,08	0,186	0,587
4	2L H	235,40	0,094	0,524
5	2L 0.775H	141,25	0,152	0,547
6	2L 0.59H	89,24	0,204	0,428
7	2L 0H	42,40	0,452	0,451

Abbildung 2.4: Feldstärke (oben), 50%-LIDT (unten)

Tabelle 2.1: Schichtsystem und interne Feldstärke und LIDT

untersuchungen durchgeführt. Für die Untersuchungen wurde neben dem Nomarskimikroskop ein Laser-Scan-Mikroskop eingesetzt^{6,7}. Dieses konfokale Mikroskop weist bei einer Testwellenlänge von 488nm neben einer lateralen Auflösung im Bereich von 200 nm eine Tiefenauflösung von 300 nm auf. Damit ist es möglich, dreidimensionale Abbildungen der Struktur der Zerstörung zu erstellen.

Abbildung 2.5 zeigt zunächst die Zerstörung an einem konventionellen QWoT-Schichtsystem. Das gaußförmige Strahlprofil führt zu einer streng deterministischen Abtragung der Schichten entsprechend der Faltung des räumlichen Strahlprofils und der Feldstärkeverteilung im Stack. Die Morphologie zeigt somit einen Krater. Der Radius der Zerstörung nimmt von der Oberfläche bis

⁶ Die Untersuchungen zur Morphologie wurden in Kooperation mit der Hochschule für Angewandte Wissenschaft und Kunst Hildesheim, Holzminden, Göttingen, Germany (HAWK) durchgeführt.

⁷ Zudem wurden auch Rasterelektronen- und Atomkraftmikroskopbilder aufgenommen. Es zeigte sich aber, dass das Laser-Scan-Mikroskop aufgrund seiner dreidimensionalen Bilderstellung diese speziellen Morphologien am besten darstellt. Deshalb wird hier auf die REM- und AFM-Aufnahmen nicht explizit eingegangen.

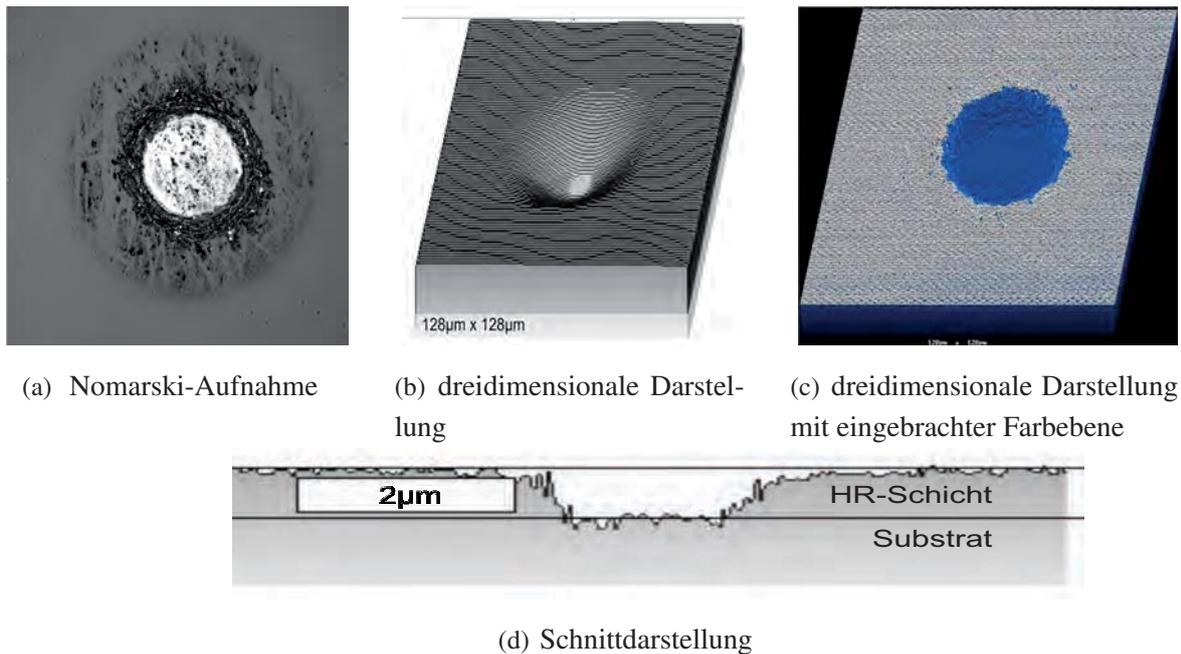


Abbildung 2.5: LSM-Bild einer typischen Morphologie bei einer UKP-Zerstörung in einem QWoT-Stack: Design (HL)⁸HLH Messbereich $125 \mu\text{m} \times 125 \mu\text{m}$

zum Substrat kontinuierlich ab. Am Substrat selbst hat offenbar nur eine geringfügige Ablation stattgefunden. Die hier beobachtete Morphologie entspricht also den Erwartungen.

Der deutlichste Unterschied zum QWoT-Stack ist beim Design 4 zu erwarten, bei dem die maximale Feldstärke der Vergleichsproben auftritt. Deren Morphologie ist in Abbildung 2.6 dargestellt. Hier zeigen die Mikroskopbilder der Morphologie, dass in den substratnahen Schichten eine vergleichbare Struktur entsteht wie beim QWoT-Stack. Die oberflächennahen Schichten wurden jedoch deutlich großflächiger ablatiert, allerdings ist die Auflösung der Aufnahmen nicht hoch genug, um die entsprechende Schicht zweifelsfrei zu bestimmen. Die ersten drei Schichten, in denen die Feldstärke ihr Maximum erreicht, haben eine Gesamtdicke von 426 nm. Damit scheint das Plateau der Zerstörung über der vierten Schicht (SiO_2) aufzutreten. Die Ursache für die veränderte Morphologie ist wiederum in der Faltung des gaußförmigen Strahlprofils mit der internen Feldstärkeverteilung und damit in der internen Zerstörschwelle zu sehen. Bei einer Fluenz, die deutlich über der Zerstörschwelle der Probe liegt, ergibt sich aus dieser Faltung in den Schichten, in denen die Feldstärkeüberhöhung auftritt, eine deutlich größere Fläche, in der die interne Zerstörschwelle überschritten wird, als in den darunter befindlichen Schichten. Damit sollte die Morphologie beim feldstärkeüberhöhten Design zu einer deutlich größeren Ablationsfläche führen.

Die Morphologie der Zerstörung legt also die Vermutung nahe, dass die schwächsten Bereiche in den TiO_2 -Schichten lokalisiert sind. Eine finale Klärung dieser Frage kann durch die Abschätzung

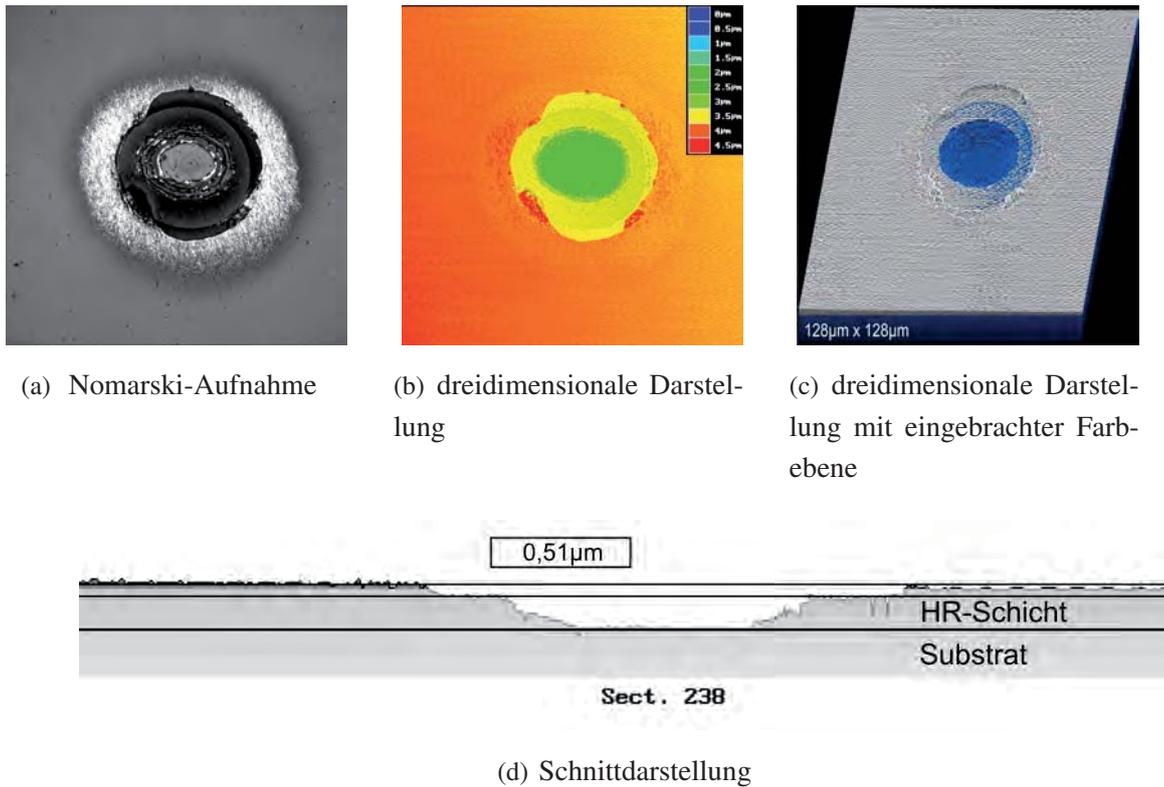


Abbildung 2.6: Morphologie von Zerstörungen einer Design-4-Probe aufgenommen mit dem LSM Messbereich $125\mu\text{m} \times 125\mu\text{m}$

mit Hilfe des LIDT-Kreises erfolgen, der im Abschnitt 7.1 vorgestellt werden wird. Diese Abschätzungen zeigen deutlich, dass jeweils mindestens eine Titanoxidschicht in allen vorgestellten Designs die geringsten internen Zerstörschwellen aufweist und damit zur Zerstörung führt. Die vollständige Analyse wird im Anhang A dargestellt⁸. Die Analyse zeigt für die gesamte Messreihe, dass die Zerstörschwelle, welche in der empfindlichsten Titanoxidschicht erreicht wird, stets mehr als einen Faktor 3 unter der der Siliziumoxidschichten mit der geringsten Zerstörschwelle liegt. Damit ist die Eindeutigkeit der Ergebnisse sichergestellt.

⁸ Es ist zu beachten, dass die interne LIDT für den Probensatz aus den Materialparametern der Mischungen berechnet wurde, was der Grund für die Abweichungen in der absoluten LIDT ist. Bei dieser Betrachtung können die Materialzerstörschwellen von denen der Mischungen abweichen, da die Beschichtungsanlage im Zeitraum zwischen den Beschichtungen für den Feldstärkeinfluss und den Einzelschichten vom klassischen Beschichtungsprozess mit zwei getrennten Targets auf das Cosputterverfahren umgebaut wurde.

Die Wahl des Materialsystems hat hier einen entscheidenden Einfluss auf die Aussagekraft des Experiments. Bei der Wahl eines anderen Materialsystems, bei dem die Materialzerstörsschwellen des hoch- und niedrigbrechenden Materials dichter aneinander gelegen hätten, könnte es je nach Design sein, dass entweder das Siliziumoxid oder das hochbrechende Material im Schichtsystem die empfindlichste Komponente darstellt und damit die Zerstörung verursacht. Diese Situation hätte die Interpretation erschwert⁹.

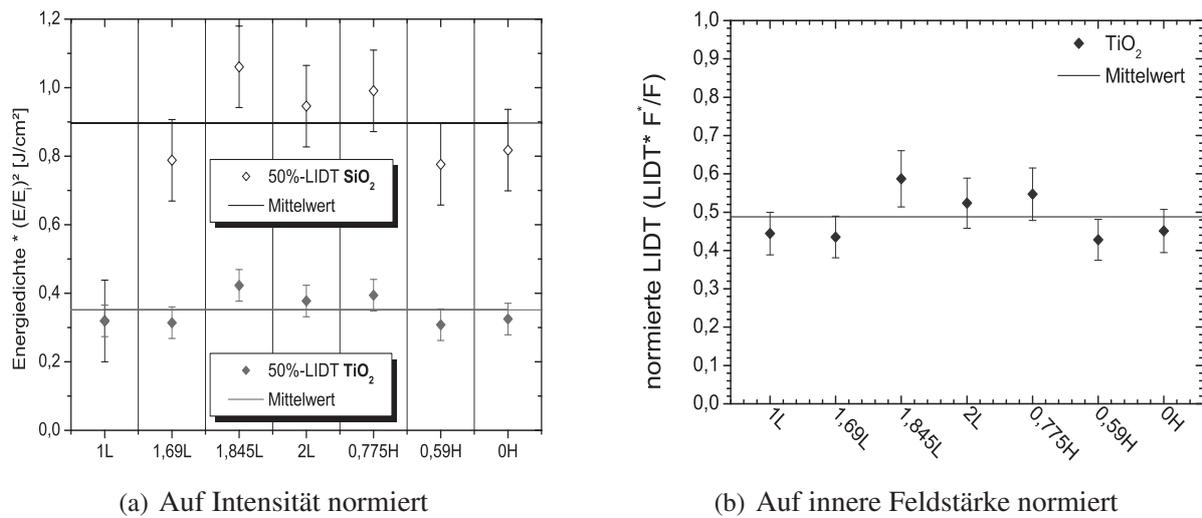


Abbildung 2.7: Auftragung der normierten LIDT

Betrachtet man nun die Feldstärke in den Titanoxidschichten, so wird deutlich, dass diese vom Design 1 zum Design 4 um einen Faktor 5,5 steigt. Die Ergebnisse der zugehörigen LIDT-Messung sind in Abbildung 2.4 über der Feldstärke in den Schichtsystemen dargestellt¹⁰. In der Grafik zeigt sich das bereits dargestellte gegenläufige Verhalten von Feldstärke und Zerstörsschwellen. Die aus den Messungen postulierte reziproke Abhängigkeit zur Intensität führte allerdings bei komplexen Beschichtungen zu Diskrepanzen zwischen theoretischer und gemessener LIDT. Hier erwies sich die Auftragung über der internen Feldstärke als zutreffend. Die Auftragung der Daten aus Abbildung 2.4 in der entsprechenden angepassten Normierung und die ursprüngliche Darstellung sind in Abbildung 2.7 aufgetragen. Der Vergleich der intensitätsnormierten LIDT (Abbildung 2.7(a)) mit der Normierung der LIDT auf die interne Feldstärke (Abbildung 2.7(b)) zeigt, dass beide Normierungen nahezu identische Ergebnisse liefern, sodass auf Grundlage dieser Experimente keine eindeutige Schlussfolgerung abgeleitet werden kann. Die normierten Zerstörsschwellen schwanken in beiden Auftragungen nur im Rahmen der Messungsgenauigkeit

⁹ Sollte das Experiment mit einem anderen Materialpaar wiederholt werden, so ist zu empfehlen, das Design so zu wählen, dass die maximale Feldstärke in einer Schicht des hochbrechenden Materials lokalisiert ist.

¹⁰ Grafik aus [30]

um den Mittelwert. Die Fehlerbalken werden in beiden Fällen mit 10% beziffert. Dabei sind eventuelle Fehler im Design nicht berücksichtigt, sodass die Abschätzung eher optimistisch ist. In der Abbildung 2.7(a) ist zudem die normierte Schwelle des Siliziumoxids aufgetragen. Aus der Abschätzung, die im Anhang A dargestellt wird, wird ersichtlich, dass die Siliziumoxidschichten keinen Beitrag zur Zerstörung liefern. Auch die Abschätzung von Starke deutet bereits auf dieses Verhalten hin, da die normierte Zerstörschwelle der Siliziumoxidschichten deutlich größer sind als die der Titanoxidschichten. Somit spiegelt der Verlauf der normierten Feldstärke der Siliziumschichten die Feldstärkeverhältnisse im Schichtsystem wider. Das Skalierungsgesetz (Gleichung (2.1)) kann somit in der folgenden Form dargestellt werden:

$$F \approx \frac{(a + b * E_{gap})}{A/A^*} \tau_{Puls}^{\kappa} \quad (2.4)$$

Mit A dem maximalen Energiefluss im Schichtsystem und A^* der Referenzfeldstärke in der Einzelschicht^{11, 12}.

¹¹ Die Referenzfeldstärke ist die maximale Feldstärke in der Einzelschicht, die für die Skalierung gemessen wurde. Die vorgeschlagene Normierung beruht auf empirischen Daten von Schichtsystemen.

¹² Die Feldstärke und der Energiefluss werden für die Berechnungen auf den Wert von 200% vor einem idealen Spiegel normiert [37]. Deshalb sind die Größen A und A^* einheitenlos.