

**Ablation von Metallen mittels  
hochintensiver, few-cycle Laserpulse**

INAUGURAL-DISSERTATION

ZUR ERLANGUNG DES DOKTORGRADES  
DER MATHEMATISCH-NATURWISSENSCHAFTLICHEN FAKULTÄT  
DER HEINRICH-HEINE-UNIVERSITÄT DÜSSELDORF

VORGELEGT VON

**Julian Christian Wegner**

AUS SOLINGEN

DÜSSELDORF, NOVEMBER 2019

aus dem Institut für Laser- und Plasmaphysik  
der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

Gedruckt mit der Genehmigung der  
Mathematisch-Naturwissenschaftlichen Fakultät der  
Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf

Berichterstatter:

1. Univ. - Prof. Dr. Georg Pretzler
2. Priv. - Doz. Dr. Götz Lehmann

Tag der mündlichen Prüfung: 29. Januar 2020

„Aristotle said a bunch of stuff that was wrong. Galileo and Newton fixed things up. Then Einstein broke everything again. Now, we've basically got it all worked out, except for small stuff, big stuff, hot stuff, cold stuff, fast stuff, heavy stuff, dark stuff, turbulence, and the concept of time“

- Zach Weinersmith, *Science: Abridged Beyond the Point of Usefulness* -



# Kurzfassung

Diese Arbeit befasst sich mit der Ablation von Metallen durch ultrakurze Laserpulse im Intensitätsbereich zwischen  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> und  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. In diesem Bereich wurden die zu Grunde liegenden Prozesse bisher nicht untersucht.

Einleitende Experimente ermöglichten die Bestimmung von fünf verschiedenen Regimen, von denen vier mit bekannten Mechanismen in Verbindung gebracht werden können. Bei den höchsten Intensitäten fällt auf, dass die Ablationskrater einerseits eine halbkugelförmige Gestalt annehmen und andererseits deutlich größer als der Laserspot selbst sind, was durch die Modelle für kleinere Intensitäten nicht beschrieben wird. In diesen Experimenten wurde die Intensität durch eine Flächenänderung variiert. Dies ist für eine genauere Untersuchung sehr ungünstig. Um die Phänomene genau zu analysieren, ist es notwendig, die Intensität zu variieren, indem lediglich die Pulsenergie verändert wird. Bei hochintensiven *few-cycle*-Laserpulsen scheiden die gängigen Methoden aus, sodass im Rahmen dieser Arbeit ein neuartiger Dünnschichtabschwächer entwickelt, theoretisch nachvollzogen und experimentell charakterisiert wurde.

Dieser Abschwächer ermöglicht die intensitätsabhängige Vermessung von Ablationskratern in einem Bereich zwischen  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> und  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. Zur Erklärung der Messergebnisse wird ein Drei-Stufen-Modell entwickelt, das die Krater ab initio erklären kann: Dazu werden die Spektren von laserbeschleunigten Elektronen mit dem PIC-Code „EPOCH“ berechnet und deren Energiedeposition im Festkörper mit einem quasi-elastischen Stoßmodell ermittelt. Als dritte Stufe wird die Elektronendiffusion im Festkörper berücksichtigt.

Daraus ergibt sich eine gute Übereinstimmung mit den Messergebnissen. Dieses Drei-Stufen-Modell wird abschließend über die Zeitkonstanten der Diffusion, der Anzahl der Elektronen und der benötigten Energie im Vergleich zur Pulsenergie verifiziert.

Die Arbeit ist in ein internationales DFG-Projekt zu Wanddiagnostiken in Fusionsexperimenten eingebettet. Die hier präsentierten Ergebnisse sind ein wichtiger erster Schritt: Sie erklären einerseits die Wechselwirkung von Femtosekundenlaserpulsen mit Festkörpern. Andererseits zeigen sie, dass das Wechselwirkungsvolumen im Gegensatz zu bisherigen laserbasierten Diagnostiken präzise beschränkt ist.



# Abstract

This thesis deals with the ablation of metals by ultrashort laser pulses with intensities in the range from  $10^{13}$  W/cm<sup>2</sup> to  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup>. In this range, the underlying processes have not been studied yet.

Initializing experiments lead to the determination of five regimes of ablation. Four of them were associated with already known mechanisms of ablation. Ablation craters drilled with the highest intensities show a hemispherical shape and are significantly larger than the laser spot size. This phenomenon has not been described by models.

In those experiments, intensity was varied by a change of the laser spot size, but it became apparent that this method is not suitable for the investigation of ablation craters. The variation of the intensity only by changing the laser pulse energy is necessary for a proper investigation of those high intensity craters. Therefore, a novel attenuator has been developed, founded in theory and experimentally characterized.

This attenuator allows for measuring craters in the range of  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> and  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> with well-defined laserpulse parameters. A three-steps-model is developed for an ab initio explanation of crater formation: First, the PIC-code "EPOCH" obtains the distribution of laser accelerated electrons. Secondly, those electrons are scattered quasi-elastically in the solid. Finally, electron heat diffusion is considered.

The three-steps-model is concerted with the experimental results. It is verified by time constants, number of electrons and the required energy.

This work is embedded in an international DFG-project for the diagnostics of the first wall in fusion experiments. The presented results are an important first step, as they explain the mechanisms of laser-solid-interaction in an uninvestigated regime. Moreover, they show that the interaction volume is limited precisely which has an advantage over contemporary laser diagnostics.



# Inhaltsverzeichnis

<b>1</b>	<b>Einleitung</b>	<b>1</b>
<b>2</b>	<b>Laser-Materie-Wechselwirkung</b>	<b>5</b>
2.1	Laserpulse . . . . .	5
2.2	Wechselwirkung intensiver Laserpulse mit einem Festkörper . . . . .	11
2.2.1	Absorptionseffekte . . . . .	11
2.2.2	Ionisation . . . . .	16
2.2.3	Plasmen . . . . .	21
2.2.4	Beschleunigungsmechanismen . . . . .	23
<b>3</b>	<b>Experimenteller Aufbau</b>	<b>27</b>
3.1	Lasersystem . . . . .	27
3.2	Pulscontrastmessung . . . . .	31
3.3	Polarisation . . . . .	33
<b>4</b>	<b>Einleitende Experimente</b>	<b>35</b>
4.1	Intensitätsvariation durch Defokussierung . . . . .	35
4.2	Diagnostiken . . . . .	43
4.2.1	Konfokales Mikroskop . . . . .	44
4.2.2	Elektronenmikroskop . . . . .	45
4.3	Femtosekunden-LIBS-Spektren . . . . .	47
4.4	Fazit . . . . .	48
<b>5</b>	<b>Abschwächung ultrakurzer Laserpulse</b>	<b>51</b>
5.1	Methoden der Intensitätsvariation . . . . .	51
5.2	Reflexionen an dünnen Metallschichten . . . . .	55
5.2.1	Transfermatrizen . . . . .	55
5.2.2	Transfermatrizen bei EM-Wellen . . . . .	59
5.3	Aufbau des Dünnschichtabschwächers . . . . .	66
5.3.1	Designüberlegungen . . . . .	67
5.3.2	Pulseigenschaften . . . . .	71
5.4	Fazit . . . . .	73

<b>6</b>	<b>Experimente und Modell zur Kraterbildung</b>	<b>75</b>
6.1	Phänomenologie der Krater . . . . .	75
6.2	Von ns über ps zu fs . . . . .	83
6.3	Drei-Stufen-Modell für Kratererzeugung . . . . .	88
6.3.1	EPOCH . . . . .	88
6.3.2	Beschleunigte Elektronen im Festkörper . . . . .	92
6.3.3	Quasi-elastisches Stoßmodell . . . . .	93
6.3.4	Elektronenwärmediffusion . . . . .	98
6.3.5	Ergebnisse der Modellrechnungen . . . . .	102
6.3.6	Schlussfolgerungen aus dem Modell . . . . .	104
6.4	Absorptionsmessungen . . . . .	108
6.5	Fazit . . . . .	112
<b>7</b>	<b>Zusammenfassung</b>	<b>115</b>
7.1	Fazit . . . . .	115
7.2	Ausblick . . . . .	117
	<b>Literaturverzeichnis</b>	<b>122</b>

# 1 Einleitung

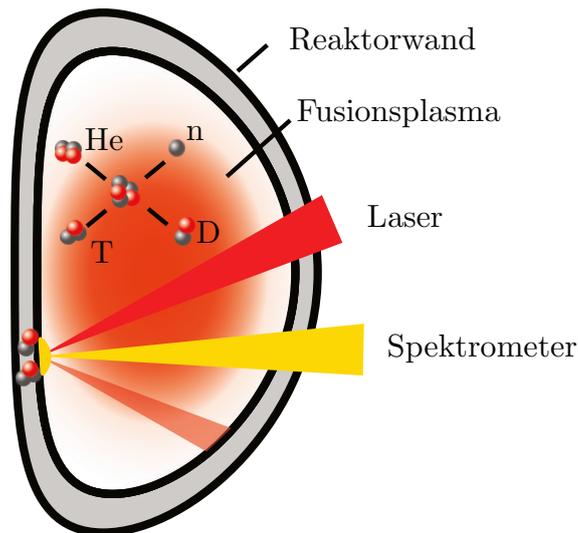
Die Versorgung mit elektrischer Energie ist ein zentrales Problem des 21. Jahrhunderts. Das gewachsene Bewusstsein für die Endlichkeit der fossilen Ressourcen treibt die Suche nach Alternativen, während der wachsende Wohlstand in Schwellen- und Entwicklungsländern den Bedarf weiter ansteigen lässt.

Sogenannte erneuerbare Energiequellen, wie Wind oder Sonnenlicht, sind ein wichtiger Baustein für die zukünftige Versorgung. Ihre eingeschränkte lokale wie temporäre Verfügbarkeit und die mangelhafte Speichermöglichkeit von elektrischer Energie schränken den Nutzen aber bisher deutlich ein.

Die Verbrennung von fossilen Energieträgern, die über die letzten Jahrhunderte den rasanten wirtschaftlichen und gesellschaftlichen Fortschritt befeuert hat, ändert die Zusammensetzung der Atmosphäre, was sich in der Erwärmung des Klimas zeigt. Weil diese Form der Energieerzeugung auf dem Auflösen elektrostatischer Bindungsenergie beruht, ist der Ertrag in der Größenordnung von Elektronenvolt pro Reaktion relativ gering. Die Auflösung von Bindungen der starken Wechselwirkung hingegen bringen Megaelektronenvolt pro Reaktion und bieten ein hohes Potential zur  $\text{CO}_2$ -freien Energiegewinnung. Die Nutzung der starken Wechselwirkung zur Energiegewinnung begann in den 1940er Jahren und wird in Kernspaltung (Fission) und Kernfusion unterteilt.

Kernspaltungskraftwerke sind vergleichsweise einfach zu errichten und liefern viel Energie zur Stromerzeugung, bergen jedoch große Risiken in der Reaktorsicherheit und der langen Halbwertszeit von tausenden Jahren der Spaltungsprodukte. Kernfusionreaktoren mit einem Deuterium-Tritium-Plasma bieten kürzere Halbwertszeiten von zwölf Jahren, sind jedoch bis heute nicht zur Energiegewinnung nutzbar. Für den Plasmaeinschluss konkurrieren seit den 50er Jahren des 20. Jahrhunderts zwei Konzepte: Tokamak und Stellarator.

Bei der Realisation von Fusionsreaktoren ist die Einschlusszeit der Edukte (Deuterium und Tritium) im Plasma die Kernaufgabe, weil eine zu geringe Dichte die Stoß- und damit Fusionswahrscheinlichkeit reduziert. Neben vielen anderen technischen Herausforderungen ist die Untersuchung der ersten Wand im Reaktor wichtig, weil sich einerseits die Wand durch die Wechselwirkung verändert und andererseits das Plasma unerwünschterweise verunreinigt wird. Darüber hinaus



**Abb. 1.1:** Die Abbildung zeigt die prinzipielle Verwendung von LIBS an ITER, wie sie von Huber et al. vorgestellt wurde[4]. Der Laser wird auf die Innenwand fokussiert und das reflektierte LIBS-Licht in einem Spektrometer gesammelt.

soll mit im Plasma erzeugten Neutronen aus Lithium Tritium „gebrütet“ werden und dennoch die Verluste durch die Wechselwirkung mit der Wand minimal sein. Um die Verunreinigungen des Plasmas und die Zusammensetzung der Wand kontrollieren zu können und die Aktivierung des Fusionsreaktor so gering wie möglich zu halten, ist es wichtig die Zusammensetzung der Wand zu kennen.

Eine solche Diagnostik muss in situ funktionieren um im laufenden Betrieb die Einlagerungen messen zu können ohne die Wandkacheln ausbauen zu müssen. Außerdem muss sie gute Raum- und Tiefenauflösung bieten. Dazu sind zwei Verfahren mit Lasern möglich: LIAS[1] und LIBS[2]

Bei LIAS (*Laser induced ablation spectroscopy*) werden mit einem Laser Atome oder Cluster aus dem Festkörper ablatiert und treten in das Fusionsplasma ein. Dort werden sie ionisiert und rekombinieren unter Emission von charakteristischer Strahlung, die detektiert werden kann. Nachteile dieser Methode sind, dass eine Untersuchung der Wand nur während der Entladung möglich und dass die Hintergrundstrahlung des Plasmas stört[3].

Im Gegensatz zu LIAS erzeugt bei LIBS (*laser induced breakdown spectroscopy*) der Laser selbst ein Plasma. Die vom Laserplasma emittierte Strahlung wird in einem Spektrometer detektiert und liefert Informationen über die Zusammensetzung der Wandmaterialien. Dazu werden Pulse mit einer Länge von Nanosekunden und

---

Pikosekunden[5] verwendet. Abbildung 1.1 zeigt einen Vorschlag für den Aufbau einer LIBS Diagnostik an ITER, ähnlich wie sie von Huber et al. vorgestellt wurde[4]. Dabei wird ein Laserpuls über einen schwenkbaren und fokussierenden Spiegel auf verschiedene Punkte an der inneren Wand gebracht. Das durch LIBS emittierte Licht wird durch eine Sammeloptik in ein Spektrometer geleitet. Auch wenn es vermeintlich einfach ist, die Daten zu generieren, ist die quantitative Bestimmung eine hochkomplexe Aufgabe und Gegenstand aktueller Forschung[6]. Problematisch bei diesen Pulsen ist der Wärmeeintrag in den Festkörper, wodurch tiefer im Wandmaterial gebundener Wasserstoff an die neue Oberfläche diffundieren kann. Somit ist nicht sicher feststellbar aus welcher Tiefe der Wasserstoff stammt. An dieser Stelle wird die Verwendung von ultrakurzen Laserpulsen interessant, weil die begründete Vermutung besteht, dass sich mit abnehmender Pulsdauer die thermischen Effekte reduzieren. Voraussetzung für die Nutzung von Pulsen mit einer Dauer von Femtosekunden ist das Verständnis der Wechselwirkung in den Festkörper hinein. Die Aufklärung dessen ist ein Hauptziel dieser Arbeit.

Laserpulse mit einer Dauer von Femtosekunden sind seit 30 Jahren ein wichtiges Werkzeug und Forschungsgebiet der Physik. Als ultrakurze Laserpulse werden Pulsdauern im Bereich von wenigen bis einigen hundert Femtosekunden bezeichnet. Die Erzeugung dieser Laserpulse mit einem Titan:Saphir-Festkörperlaser wurde erstmals von Peter Moulton im Jahr 1986 realisiert[7]. Pulse mit einer Pulslänge unterhalb von 10 fs werden wegen ihrer geringen Zahl von Zyklen des elektrischen Feldes zusätzlich auch *few-cycle*-Pulse genannt.

Die Erzeugung von Laserpulsen mit Dauern im Bereich von Femtosekunden ermöglichte den Einstieg in die Untersuchung von Prozessen auf ultrakurzer Zeitskala, wie zum Beispiel das Entstehen von chemischen Bindungen oder die Strukturanalyse von biologischen Molekülen. Für die Untersuchung von Übergangszuständen chemischer Reaktionen mittels Femtosekundenspektroskopie wurde im Jahr 1999 der erste von bisher drei Nobelpreisen im Zusammenhang mit Femtosekundenpulsen vergeben[8]. Der zweite Nobelpreis im Bereich der Femtosekundenlaser wurde im Jahr 2005 an T. Hänsch für die Entwicklung des Frequenzkamms vergeben, der als hochpräzises Messprinzip in vielen Teilbereichen der Physik eingesetzt wird[9]. Im Jahr 1985 veröffentlichten Strickland und Mourou ihre Arbeit zur Verstärkung ultrakurzer Laserpulse (im Bereich von Pikosekunden) durch die *chirped pulse amplification (CPA)*, für die sie im Jahr 2018 den Nobelpreis in Physik erhielten[10]. Mit der CPA wurde der Grundstein für hochintensive, ul-

trakurze Laserpulse gelegt und es öffneten sich weitere Felder wie die Erzeugung höherer Laserharmonischen in Gasen[11] und Festkörpern[12], die Beschleunigung von Elektronen[13] und Protonen[14] sowie die Fusion durch Lasereinschluss am NIF[15].

Auf industrieller Ebene werden ultrakurze Laserpulse beispielsweise zur Materialbearbeitung und Oberflächenstrukturierung eingesetzt, typischerweise bei Pulsdauern ab 100 fs und unter Intensitäten von  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup>. Für diese „langen ultrakurzen“ Pulse ist die Ablation theoretisch beschrieben und experimentell belegt[16][17][18][19]. Im wissenschaftlichen Bereich können mit Pulslängen von 30 fs bis 200 fs Intensitäten bis zu  $10^{22}$  W/cm<sup>2</sup> erreicht werden. *Few-cycle*-Pulse werden ob ihrer aufwändigen Erzeugung und Verstärkung (Kapitel 3.1) nicht zur industriellen Fertigung verwendet, eröffnen jedoch in der Wissenschaft neue Bereiche. Den zahlreichen Möglichkeiten der *few-cycle* Laserpulsen stehen Schwierigkeiten in der experimentellen Handhabung gegenüber. Bereits die Erzeugung der Pulse bedarf eines mehrstufigen Lasersystems (siehe Kapitel 3.1). Zusätzlich ist bei *few-cycle*-Pulsen die Kontrolle der Dispersion eine ständige Herausforderung. Somit gestaltet sich beispielsweise die Intensitätsvariation als schwierig.

Bei allen Pulsdauern hinunter bis zu wenigen Femtosekunden lässt sich die Wechselwirkung mit Gasen, im Plasma und vakuumseitig an Oberflächen gut durch PIC-Codes vorhersagen[20]. Ergebnisse aus den PIC-Codes, die die Teilcheneigenschaften ins Vakuum hinein beschreiben, wurden experimentell bestätigt, zum Beispiel durch die Elektronenbeschleunigung[21] und die Erzeugung höherer Laserharmonischer[22]. Bei der Wechselwirkung im Festkörper ist der experimentelle Nachweis ungemein schwieriger und steht noch aus.

In Hinblick auf die Ablation zeigt sich, dass Annahmen, die für Pulse im Bereich von 100 fs gelten, nicht auf *few-cycle*-Pulse übertragbar sind[23]. Für die Ablation mit *few-cycle*-Pulsen bei Intensitäten größer als  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> gibt es in der Literatur weder Modelle noch gezielte Messungen. Die Voraussetzung für die Nutzung von LIBS als Diagnose in Fusionsreaktoren ist die Beschreibung der Ablation mit hochintensiven *few-cycle*-Pulsen.

In dieser Arbeit ist in vorbereitenden Experimenten (Kapitel 4) gezeigt welche Problematik die Intensitätsvariation bei der Untersuchung von Ablation mit sich bringt. Auf eine Möglichkeit der definierten Abschwächung von *few-cycle*-Pulsen wird in Kapitel 5 eingegangen. Kapitel 6.1 beinhaltet ein Modell für die Ablation mit *few-cycle*-Laserpulsen und dessen experimentelle Überprüfung.

## 2 Laser-Materie-Wechselwirkung

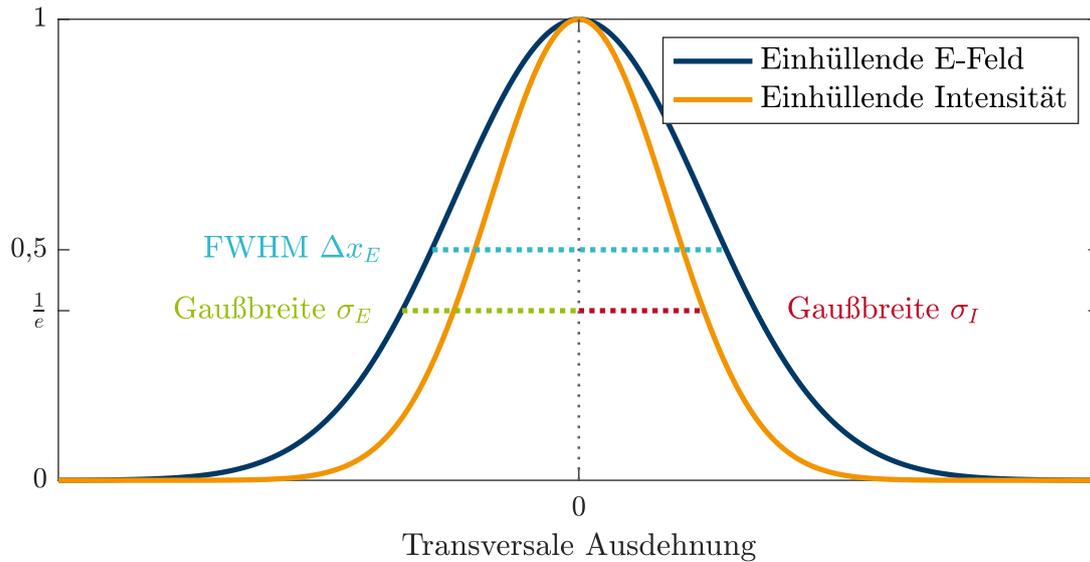
Alle in dieser Arbeit untersuchten Phänomene beruhen auf der Wechselwirkung von Licht mit Materie. Ein grundlegendes Verständnis von Lichtpulsen ist also Voraussetzung für diese Arbeit. Ultrakurze und hochintensive Lichtpulse können dazu führen, dass Materie in Plasma übergeht. Folglich umfasst dieses Kapitel die Grundlagen von ultrakurzen Laserpulsen sowie ihrer Wechselwirkung mit Materie. Besonders wird die Absorption in Plasmen und die Ionisation betrachtet.

### 2.1 Laserpulse

Für die Erzeugung ultrakurzer und hochintensiver Laserpulse wurde im Jahr 2018 der Nobelpreis in Physik verliehen, weil sie die Grundlage für große Fortschritte in mehreren Bereichen der Physik bilden. In dieser Dissertation sind für die Erstellung sogenannte „Gaußpulse“ verwendet worden. Somit sind deren Beschreibung und Eigenschaft Gegenstand dieses Kapitels. Die gaußförmige, radialsymmetrische Verteilung des elektrischen Feldes und damit auch der Intensität entsteht bei modengekoppelten Lasern in der TEM<sub>00</sub>-Mode (transversal-elektrische Grundmode). Bei „Gaußpulsen“ folgen die Einhüllenden sowohl des zeitlichen Verlaufs des elektrischen Feldes als auch des transversalen räumlichen (und radialsymmetrischen) Profils der Gaußfunktion. Im räumlichen Profil des Laserpulses ist der Verlauf des elektrischen Feldes beschrieben durch:

$$E(r) = E_0 \cdot \exp \left[ - \left( \frac{r}{\sigma_E} \right)^2 \right]. \quad (2.1)$$

Dabei ist  $E_0$  die Amplitude und  $\sigma_E$  die Gaußbreite des elektrischen Feldes, wie sie in Abbildung 2.1 in grün eingetragen ist. Darin ist die Funktion  $E(r)$  in dunkelblau eingezeichnet.



**Abb. 2.1:** Die Abbildung zeigt einen Laserpuls in der transversalen Richtung. In Gelb ist die Einhüllende der Intensität gezeigt und in Blau die Einhüllende des elektrischen Feldes. Ebenso sind die dazugehörigen Gauß- und Halbwertsbreiten ( $\sigma$  bzw.  $\Delta x$ ) eingetragen. Die räumliche Intensitätsverteilung kann einfach gemessen werden. Für die Berechnung der mittleren Intensität wird jedoch die Gaußbreite des elektrischen Feldes benutzt, weil sich in dieser Breite 86,5% der Energie befinden.

Im zeitlichen Verlauf wird der Puls beschrieben aus dem Produkt von Einhüllender und Trägerwelle:

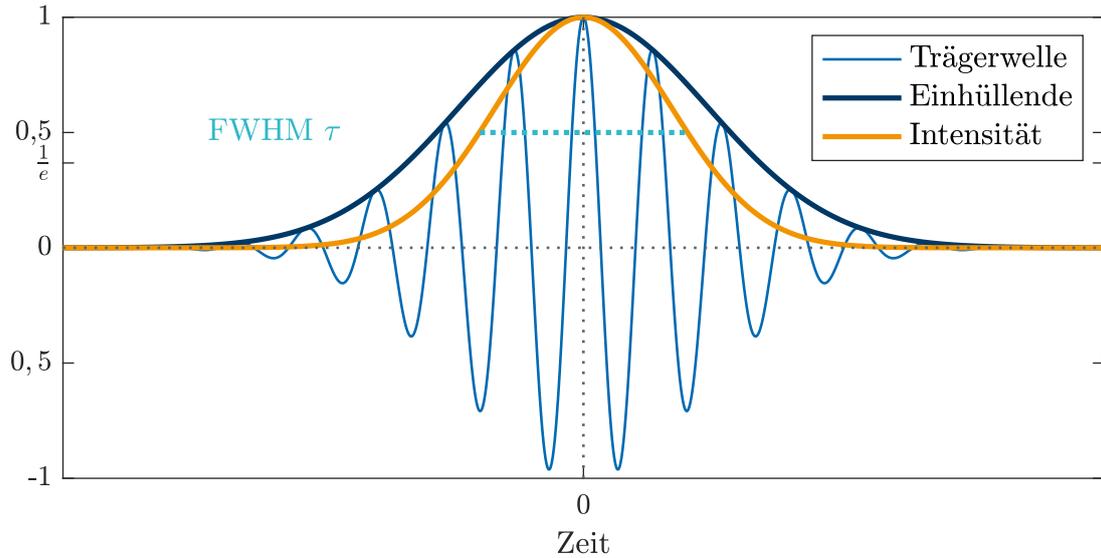
$$\vec{E}(t) = \underbrace{\vec{E}_A(t)}_{\text{Einhüllende}} \cdot \underbrace{\cos(\omega_0 t + \phi_{CE})}_{\text{Trägerwelle}}. \quad (2.2)$$

In der Trägerwelle bezeichnet  $\omega_0$  die Frequenz des elektrischen Feldes und  $\phi_{CE}$  die Phase der Einhüllenden, auch *carrier envelope phase* (CEP) genannt. In Abbildung 2.2 sind die Trägerwelle mit einer Einhüllendenphase von  $\Phi_{CE} = 0$  und der Verlauf der Einhüllenden des elektrischen Feldes gezeigt, die folgendermaßen beschrieben ist:

$$\vec{E}_A(t) = \vec{E}_0 \cdot \exp\left[-\left(\frac{t}{\sigma_t}\right)^2\right]. \quad (2.3)$$

Dabei gibt  $\sigma_t$  die 1/e-Dauer des Pulses an. Der Verlauf des elektrischen Feldes eines „Gaußpulses“ kann dargestellt werden durch:

$$\vec{E}(r, t) = \vec{E}_0 \cdot \exp\left[-\left(\frac{t}{\sigma_t}\right)^2\right] \cdot \cos(\omega_0 t + \phi_{CE}) \cdot \exp\left[-\left(\frac{r}{\sigma_E}\right)^2\right]. \quad (2.4)$$



**Abb. 2.2:** Hier ist der zeitliche Verlauf des Pulses gezeigt. Zum einen die Trägerwelle und deren Einhüllende und zum anderen die Einhüllende der Intensität. Für die Bestimmung der mittleren Intensität wird die Pulsdauer  $\tau$  benötigt, wie sie hier dargestellt ist.

Eine häufige Modifikation von Licht ist die Fokussierung, wobei die räumliche Ausdehnung des Pulses geändert wird. In diesem Fall ändert sich die „Gaußbreite“  $\sigma_E$ , die „Strahltaille“  $w$  genannt wird, in Propagationsrichtung  $z$ :

$$w(z) = w_0 \sqrt{1 + \left( \frac{\lambda z}{\pi w_0^2} \right)^2}. \quad (2.5)$$

Gleichung (2.5) gilt im beugungsbegrenzten Fall und enthält die Wellenlänge  $\lambda$  und die beugungsbegrenzte Strahltaille  $w_0$ , die die kleinste erreichbare Strahltaille darstellt. Sie ist abhängig von der Brennweite der fokussierenden Optik  $f$ , der Wellenlänge  $\lambda$  und der Strahltaille vor der Fokussierung  $\tilde{w}$ :

$$w_0 = \frac{\lambda f}{\pi \tilde{w}}. \quad (2.6)$$

An Gleichung (2.6) ist erkennbar, dass sich ein kleiner Fokus mit einer kurzen Brennweite und mit einem großen Strahl vor der Fokussierung erreichen lässt. In der Beschreibung des Pulses wird in der räumlichen Abhängigkeit ab hier  $\sigma_E = w$  gesetzt.

Weil im experimentellen Alltag das elektrische Feld direkt nicht messbar ist, wird die Intensität  $I$  als messbare Größe mit der elektrischen Feldkonstante  $\epsilon_0$  definiert:

$$I = \frac{1}{2} c \epsilon_0 E_A^2. \quad (2.7)$$

Für die Intensität eines „Gaußpulses“ gilt mit Gleichung (2.7) und (2.4):

$$I \sim \vec{E}_0^2 \cdot \exp \left[ -2 \left( \frac{t}{\sigma_t} \right)^2 \right] \cdot \cos^2(\omega_0 t + \phi_{\text{CE}}) \cdot \exp \left[ -2 \left( \frac{r}{w} \right)^2 \right]. \quad (2.8)$$

Es ist üblich für Laserpulse als Pulsdauer  $\tau$  im Gegensatz zur räumlichen Verteilung nicht die 1/e-Breite des elektrischen Feldes, sondern die doppelte Halbwertsbreite der Intensität zu verwenden, die *Full Width at Half Maximum* (FWHM) genannt wird. Die 1/e-Breite  $\sigma$  steht zur FWHM  $\Delta x$  in folgendem Verhältnis:  $\delta x = \sqrt{2 \ln 2} \cdot \sigma$  (vergl. dazu Abbildung 2.2).

Die Intensität des „Gaußpulses“ in Abhängigkeit der Parameter Strahltaile  $w$  und Pulsdauer  $\tau$  lautet dann:

$$I \sim I_0 \cdot \exp \left[ -4 \ln 2 \left( \frac{t}{\tau} \right)^2 \right] \cdot \cos^2(\omega_0 t + \phi_{\text{CE}}) \cdot \exp \left[ -2 \left( \frac{r}{w} \right)^2 \right]. \quad (2.9)$$

Aus Gleichung (2.9) ist offensichtlich, dass die Intensität zeitlich und räumlich variiert, deshalb muss für die Intensität ein gemittelter Wert definiert werden. In dieser Arbeit wird folgende Definition für die mittlere Intensität verwendet:

$$I = \frac{E_{\text{Puls}}}{\pi w^2 \tau}. \quad (2.10)$$

Dabei werden zeitlich und räumlich jedoch nur jeweils Teile der Pulsenergie  $E_{\text{Puls}}$  berücksichtigt, so dass für den Zusammenhang zwischen gemittelter Intensität und Spitzenintensität gilt:  $I_0 \approx 1,87 \cdot I$  Die Intensität besitzt eigentlich die Einheit  $\text{W}/\text{m}^2$ , die jedoch im Kontext von Laserpulsen häufig durch  $\text{W}/\text{cm}^2$  ersetzt wird. Für das weitere Verständnis von ultrakurzen Pulsen ist eine Betrachtung im Frequenzraum von Vorteil. Im Folgenden werden die Vektorpfeile im elektrischen Feld zur besseren Lesbarkeit weggelassen. Zum Übergang in den Frequenzraum wird Gleichung (2.2) Fourier transformiert in:

$$\tilde{E}(\omega) = \tilde{E}_A(\omega) \cdot \exp [i\phi(\omega)]. \quad (2.11)$$

Die Einhüllende wird überführt in:

$$\tilde{E}(\omega) \sim \exp \left[ - \left( \frac{\omega \sigma_t}{2} \right)^2 \right] = \exp \left[ - \left( \frac{\omega}{\sigma_\omega} \right)^2 \right]. \quad (2.12)$$

Durch Vergleich mit Gleichung (2.3) ergibt sich ein Zusammenhang zwischen Pulsdauer und Breite des Pulses im Frequenzraum, der Bandbreite, zu:

$$\sigma_t \cdot \sigma_\omega = 2 \quad \Rightarrow \quad \tau \cdot \Delta\omega = 4 \ln 2 \quad \Rightarrow \quad \tau \cdot \Delta\nu = \frac{4 \ln 2}{2\pi} \approx 0,441. \quad (2.13)$$

Handhabbarer und gebräuchlicher ist die Umrechnung der Bandbreite in die Wellenlänge mit der Beziehung  $\frac{\Delta\nu}{\nu} = \frac{\Delta\lambda}{\lambda}$ , woraus sich das sogenannte Pulsdauer-Bandbreiten-Produkt ergibt:

$$\tau_{FL} \cdot \Delta\lambda = \frac{4 \ln 2}{2\pi c} \cdot \lambda^2. \quad (2.14)$$

Aus Gleichung (2.14) ist die Voraussetzung für kurze Pulse ersichtlich: große spektrale Breite. Folglich werden ultrakurze Laserpulse mit ihrer zentralen Wellenlänge  $\lambda$  und der Bandbreite  $\Delta\lambda$  darum beschrieben. Aus der hohen spektralen Breite ultrakurzer Laserpulse entsteht wegen des hohen Umfangs von Wellenlängen im Puls ein Problem mit der Dispersion, die im Allgemeinen wellenlängenabhängig ist, wie es im letzten Abschnitt dieses Kapitels beschrieben wird.

Umgekehrt ergibt sich aus der Bandbreite die unterste Grenze der erreichbaren Pulsdauer. Das sogenannte Fourier-Limit der Pulsdauer  $\sigma_{FL}$  ist nur dann möglich, wenn die spektrale Phase  $\phi(\omega) = 0$  ist (vergl. Gleichung 2.11).

Die spektrale Phase des Pulses ändert sich mit der Propagation durch Medien, die wiederum durch den Brechungsindex  $n$  bestimmt sind. Der Brechungsindex ist im Allgemeinen von der Wellenlänge  $\lambda$  bzw. der Frequenz  $\omega$  abhängig, so dass für eine Propagationslänge  $x$  durch das Medium  $x$  gilt:

$$\phi(x, \omega) = \frac{x}{c} \cdot \omega n(\omega). \quad (2.15)$$

Die Abhängigkeit des Brechungsindex  $n$  von der Frequenz  $\omega$  ist eine Materialeigenschaft und in der Regel nicht analytisch beschreibbar. Daher wird zur Bestimmung der spektralen Phase  $\Phi(\omega, x)$  eine Reihenentwicklung nach Taylor um eine Zentralwellenlänge  $\omega_0$  vorgenommen:

$$\phi(\omega) = \sum_{m=0}^{\infty} \frac{(\omega - \omega_0)^m}{m!} \cdot \underbrace{\left( \frac{\partial^m}{\partial \omega^m} \phi(\omega) \right)_{\omega=\omega_0}}_{D_m}. \quad (2.16)$$

Die Faktoren  $D_m$  werden Dispersion der  $m$ -Ordnung genannt und beeinflussen die Eigenschaften des Pulses auf verschiedene Weise, die im Folgenden für die gängigen Ordnungen erklärt werden.

**Ordnung 0** Als die Dispersion der Ordnung  $m = 0$  wird die Phasengeschwindigkeit  $v_P$  bezeichnet, mit der sich die Wellenfronten ausbreiten.

**Ordnung 1** Die Dispersion der erster Ordnung ist ein Maß für die inverse Gruppengeschwindigkeit und besitzt die Einheit [fs]. Die Gruppengeschwindigkeit gibt an, wie schnell sich die Einhüllende eines Gaußpulses fortbewegt. Im Gegensatz zur Phasengeschwindigkeit kann die Gruppengeschwindigkeit die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum nicht überschreiten.

**Ordnung 2** Bei der Dispersion zweiter Ordnung, auch *chirp* genannt, handelt es sich um die quadratische Komponente der Frequenzabhängigkeit im Taylorpolynom, die sich im Zeitraum als lineare Verlängerung des Pulses darstellt. Im Fall eines Mediums mit  $n(\omega) \geq 1$  läuft niederfrequentes Licht (im sichtbaren Spektrum als *rot* bezeichnet) langsamer als hochfrequentes (*blaues*) Licht.

Bei einem ultrakurzen Lichtpuls mit einem breiten Spektrum laufen also die spektralen Anteile unterschiedlich schnell durch Medien, wodurch der Puls positives  $D_2$  erhält und sich die Dauer verlängert. Mit geeigneten Spiegeln oder Gitteranordnungen kann diese Verlängerung durch negative Dispersion zweiter Ordnung kompensiert werden. Die Werte für  $D_2$  haben die Einheit [fs<sup>2</sup>]. Für die Verlängerung des Pulses durch Dispersion zweiter Ordnung gilt folgender Zusammenhang:

$$\tau(D_2) = \tau_{FL} \cdot \sqrt{1 + \left(4 \ln 2 \cdot \frac{D_2}{\tau_{FL}^2}\right)^2}. \quad (2.17)$$

Gleichung (2.17) ist zu entnehmen, dass die Pulserverlängerung durch Dispersion zweiter Ordnung dann relevant ist, wenn das Quadrat der Pulsdauer im Fourierlimit  $\tau_{FL}$  in der Größenordnung der materialspezifischen Werte für die Dispersion zweiter Ordnung ist und somit der Radikant deutlich größer als eins wird. Dieser Fall liegt bei ultrakurzen Laserpulsen mit  $\tau_{FL} \approx 10$  fs vor, weil beispielsweise für 1 mm-Quarzglas bei einer Wellenlänge  $\lambda = 800$  nm die Dispersion zweiter Ordnung  $D_2 = 36,1$  fs<sup>2</sup> beträgt. Die Pulsdauer  $\tau$  verlängert sich in diesem Fall um den Faktor  $\sqrt{2}$  gegenüber dem Fourierlimit.

**höhere Ordnungen** Auch die Dispersionen höherer Ordnungen zeigen Pulsveränderungen an. So beschreibt die Dispersion dritter Ordnung Vor- und Nachpulse und die vierte Ordnung ein Plateau. Besonders die Kenntnis von Vorpulsen ist bei der Beschreibung der Wechselwirkung von Licht mit Materie wichtig, weil Vorpulse zum Beispiel ein Plasma vor dem Eintreffen des Hauptpulses zünden

können.

Ähnliches kann auch passieren, wenn der Puls ein zu hohes Plateau besitzt.

Dieser Abschnitt zeigt, dass die Dispersionskontrolle bei ultrakurzen Laserpulsen eine wichtige Aufgabe ist, um ihre Wechselwirkung mit Materie beschreiben zu können. Die Bestimmung der Pulsform (siehe dazu auch Kapitel 3.2) und die Erhaltung der Pulsform bei Änderung anderer Pulsparameter wie Strahltaille oder Pulsenergie (vergleiche Kapitel 5) ist die Herausforderung im Umgang mit ultrakurzen Pulsen.

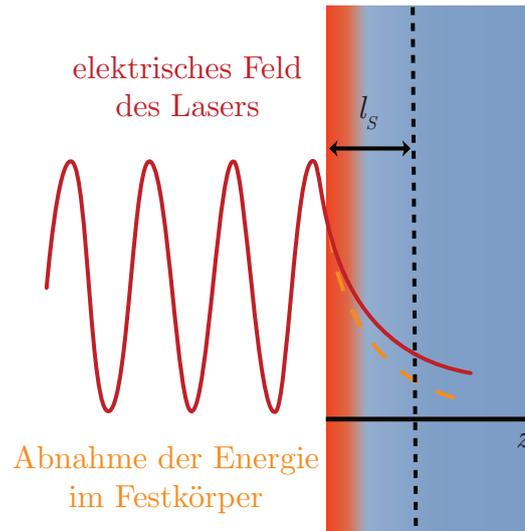
## 2.2 Wechselwirkung intensiver Laserpulse mit einem Festkörper

Dieses Kapitel behandelt die Wechselwirkungen eines ultrakurzen Laserpulses mit dem Festkörper. Bedingt durch die zeitliche und räumliche Abhängigkeit der Intensität (vergl. Gleichung (2.9)) in einem „Gaußpuls“ finden die beschriebenen Wechselwirkungsmechanismen parallel statt. Dadurch kann keine chronologische oder räumliche Reihenfolge angegeben werden. Die auftretenden Mechanismen lassen sich in drei Bereiche einteilen: Absorption, Ionisation und Beschleunigung.

### 2.2.1 Absorptionseffekte

In diesem Kapitel sollen Effekte diskutiert werden, die zur Energieabsorption aus Laserpulsen im Festkörper führen. Eine Herausforderung bei der Beschreibung der Absorptionseffekte liegt in der schwierigen Unterscheidbarkeit der Prozesse und der Tatsache, dass die Prozesse zeitgleich stattfinden, weil die Intensität räumlich wie zeitlich variiert. Bei den Absorptionsprozessen lassen sich zwei Kategorien bestimmen, auf denen die Absorption beruht: stoßdominiert und stoßfrei. Abhängig von Intensität oder Ort der Wechselwirkung tragen die Prozesse unterschiedliche Bezeichnungen.

Die hier verwendeten Intensitäten von bis zu ca.  $I = 10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> liegen deutlich über der Intensität, bei der Plasma entsteht, sodass auch die Absorption von Licht in Plasma berücksichtigt wird.



**Abb. 2.3:** Beim Auftreffen eines Laserpulses auf einen Festkörper nimmt die Amplitude des elektrischen Feldes exponentiell ab. Die Abfalllänge wird Skintiefe genannt. In Orange ist der Verlauf der Energie im Festkörper dargestellt, deren Abfalllänge nur den halben Wert der Skintiefe beträgt. Abbildung in Anlehnung an [24]

Das Hauptaugenmerk in diesem Kapitel liegt auf metallischen Festkörpern. Die Anregung durch das Laserfeld ändert die Anzahl der Leitungsbandelektronen, die Elektronen- und Gittertemperatur sowie die Elektronenstoßfrequenz, wodurch sich auch die optischen Eigenschaften des Metalls ändern.

### Stoßdominierte Absorption

Elektronen oszillieren im Laserfeld zunächst ohne Energiegewinn. Gerät ein Elektron nach einem Stoß mit einem (Gitter-)atom außer Phase mit dem Laserfeld, so kann es netto Energie aufnehmen. Die Absorption von Energie aus Photonen ist aus Gründen der Impulserhaltung immer ein Dreikörperproblem. Alle nun folgenden Absorptionseffekten basieren auf diesem Grundprozess.

**normaler Skin Effekt** Während das elektrische Feld im Vakuum gemäß Gleichung (2.2) oszilliert, klingt die Amplitude im Festkörper exponentiell ab. Dieser Verlauf ist in Abbildung 2.3 gezeigt. Die Tiefe, in der die Amplitude des elektri-

schen Feldes auf  $1/e$  abgefallen ist, wird als Skintiefe  $l_S$  bezeichnet [19]:

$$l_S = \frac{c_0}{\omega k} \quad (2.18)$$

Hierbei ist  $c_0$  die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum,  $\omega$  die Laserfrequenz und  $k$  der imaginäre Teil des komplexen Brechungsindex. Die Skintiefe ist also ein Maß dafür, bis zu welcher Tiefe eine Interaktion zwischen Laserfeld und Festkörper stattfindet. Gewöhnlich liegt die Skintiefe bei wenigen zehn nm.

Für steile Plasmagradients (vergl. Kapitel 2.2.3) und geringe Laserintensitäten wird der Absorptionsmechanismus „normaler Skin Effekt“ genannt. Der Skin-Effekt tritt auf, wenn die Oberfläche noch nicht in den Plasmazustand übergegangen ist. Unter der Annahme, dass die Leitungsbandelektronen in Metallen erfolgreich mit dem Plasmaformalismus beschrieben werden können, ergibt sich daraus ein Plasmagradiant als Stufenfunktion.

**Inverse Bremsstrahlung** Aus den Maxwell-Gleichungen folgt, dass eine beschleunigte Ladung normal zur Beschleunigung ein Photon emittiert. Dieser Effekt wird als Bremsstrahlung bezeichnet. Umgekehrt kann ein Elektron durch die Kollision mit einem Photon in Anwesenheit eines Atoms Energie erhalten und dadurch beschleunigt werden. Dieser Vorgang wird inverse Bremsstrahlung genannt. Im Gegensatz zum normalen Skin Effekt ist ein langer Plasmagradiant und eine geringe Intensität charakteristisch für die inverse Bremsstrahlung. Typischerweise tritt inverse Bremsstrahlung auf, wenn früh in der ansteigenden Flanke eines ultrakurzen Laserpulses ein Plasma entsteht, das bedingt durch die geringe Intensität wenig dicht ist.

Die Elektronen-Ionen-Stoßfrequenz  $\nu_{ei}$  im Plasma ist wie folgt definiert[25]

$$\nu_{ei} = \frac{4\sqrt{2\pi} n_e Z e^4}{3 m^2 v_{te}^3} \ln \Lambda . \quad (2.19)$$

wobei die Plasmadichte  $n_e$ , die Ordnungszahl  $Z$ , die thermische Elektronengeschwindigkeit  $v_{te} \sim T^{3/2}$  und der Coulomblogarithmus  $\ln \Lambda$  ist. Zu höheren Elektronengeschwindigkeiten hin, also bei höherer Temperatur der Elektronen, nimmt die Stoßfrequenz ab, so dass bei höheren Intensitäten die Energieabsorption eher stoßfrei erfolgen muss. Aufbauend auf den oben beschriebenen Mechanismen sind in der Literatur noch folgende Effekte beschrieben:[26]

**Anomaler Skin Effekt** Wie auch beim normalen Skin Effekt erhalten die im Laserfeld oszillierenden Elektronen ihre Energie über Stöße mit Ionen. Ist nun durch höhere Intensität und deswegen durch hohe Elektronentemperaturen die mittlere freie Weglänge der Elektronen größer als die Skintiefe, können die Elektronen ihre Energie weiter als die Skintiefe ins Plasma hineinbringen und sorgen damit für eine nicht-lokale Beziehung zwischen den Feldern innerhalb und außerhalb des Plasmas. Dieser Effekt wird Anomaler Skin Effekt (ASE) genannt und tritt bei hohen Gradienten sowie hohen Intensitäten auf.

**Schicht inverse Bremsstrahlung** Die Bezeichnung *sheath inverse bremsstrahlung* (SIB) geht auf Catto und More zurück[27]. Sie bezeichnen damit einen Absorptionsmechanismus, der der inversen Bremsstrahlung, also der Aufnahme von Energie aus dem elektrischen Feld für ein Elektron, das außer Phase schwingt, ähnelt. In überkritischen Plasmen dringt das Laserfeld nur teilweise in das Plasma ein und kann auf einer kurzen Distanz Elektronen wieder in das Plasma hinein beschleunigen, die sonst das Target verlassen hätten. Die Mechanismen SIB und ASE sind zwei Grenzfälle eines Absorptionsmechanismus wie in [28] gezeigt. Für die SIB muss folgende Bedingung erfüllt sein:

$$\frac{\omega_L l_S}{v_{te}} = \frac{\omega_L c}{\omega_P v_{te}} \gg 1. \quad (2.20)$$

Hier ist  $\omega_0$  die Laserfrequenz und  $\omega_P$  die Plasmafrequenz (siehe Kapitel 2.2.3)

## Stoßfreie Absorptionsmechanismen

Die folgenden Absorptionsmechanismen beruhen nicht auf Dreierstößen und werden daher getrennt behandelt.

**Resonanzabsorption** Bei der Resonanzabsorption koppelt das elektrische Feld resonant an die Elektronen-Plasma-Welle, indem es bei langen Plasmagradierten in das unterkritische Plasma propagiert. Am Punkt der kritischen Dichte  $n_{krit}$  (vergleiche dazu Kapitel 2.2.3) kann parallel zum Plasmagradierten polarisiertes Licht eine Plasmawelle resonant treiben. Unter einer Plasmawelle versteht man eine longitudinale Elektronendichtefluktuation innerhalb des Plasmas. Die Voraussetzung

des p-polarisierten elektrischen Laserfeldes hat zur Folge, dass Resonanzabsorption unter senkrechtem Einfall nicht möglich ist. Bei einem Einfallswinkel  $\phi$  wird das Licht nicht an der kritischen Dichte  $n_{krit}$ , sondern bei  $(n_{krit} \cos^2 \phi)$  reflektiert. Die Welle kann jedoch teilweise bis zu  $n_{krit}$  tunneln[29].

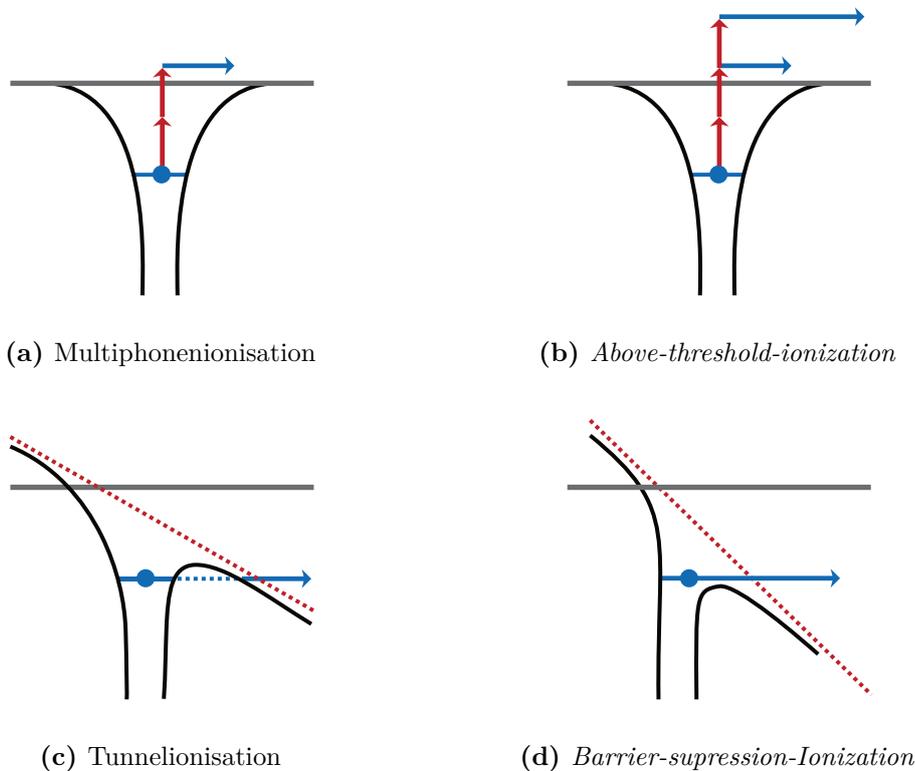
Die Energieabsorption findet durch Stöße zwischen Elektronen und Ionen statt, so dass sich das Plasma aufheizt und die Plasmawelle gedämpft wird. Darüber hinaus entziehen Teilchen, die langsamer als die Plasmawelle sind, der Welle Energie, während schnellere Teilchen sie weiter verstärken. Hier tritt die Landau-Dämpfung auf, die aus der Maxwellschen Geschwindigkeitsverteilung resultiert, weil es immer mehr langsame als schnelle Teilchen gibt.

Bei sehr hohen Intensitäten kann die Welle brechen, wenn die Amplitude der Elektronenoszillation größer als die Wellenlänge der Plasmawelle ist, so dass Teilchen schnell ins Plasma beschleunigt werden. Laut Kleeschulte [21] kann die Resonanzabsorption hier ausgeschlossen werden, weil insbesondere ein benötigter Vorpuls für den weichen Plasmagradien nicht nachgewiesen werden konnte (siehe dazu auch Kapitel 3.2).

**Brunelmechanismus** Dem Brunelmechanismus liegt die Idee zu Grunde, dass Elektronen, die in einem Zyklus des elektrischen Feldes beschleunigt werden, im darauf folgenden, entgegengesetzten Zyklus nicht um den gleichen Wert abgebremst werden können. Bei ultrakurzen Laserpulsen, die nur wenige Zyklen des elektrischen Feldes beinhalten, haben die Zyklen nie die gleiche Amplitude (siehe dazu auch Abbildung 2.2) und können somit die Elektronen nicht um denselben Wert beschleunigen bzw. abbremsen[30].

Besonders stark findet dieser Effekt an der Oberfläche von Plasmen oder Festkörpern statt, weil dort im Interferenzfeld von ein- und auslaufendem Licht ein höheres elektrisches Feld auftritt. Im darauffolgenden entgegengesetzten Halbzyklus des Feldes kann das Elektron nicht abgebremst werden, weil das Feld im Plasma/Festkörper exponentiell gedämpft wird. Das Elektron erfährt also einen Nettoenergiegewinn. Für Beschleunigung nach Brunel ist ein steiler Plasmagradien erforderlich, das heißt die Abfalllänge des Plasmas an der Festkörperoberfläche ist viel kleiner als die Wellenlänge des Lasers. Wie Kleeschulte et al. erläutern, ist der Brunelmechanismus für die Energieabsorption und damit die Beschleunigung von Elektronen im hier verwendeten Intensitätsbereich von Relevanz[21].

## 2.2.2 Ionisation



**Abb. 2.4:** Hier sind die Ionisationsmodell für einzelne Modelle gezeigt, wie sie im Kapitel 2.2.2 beschrieben sind.

Das Merkmal eines Plasmas ist wie bereits beschrieben die Existenz von getrennten Ladungsträgern, also Ionen und Elektronen, woraus folgt: Die Ionisation ist die Voraussetzung für die Entstehung von Plasmen. Bei Laserplasmen gibt es, abhängig von der Laserintensität, verschiedene Ionisationsmechanismen, die in diesem Kapitel beschrieben und eingeordnet werden.

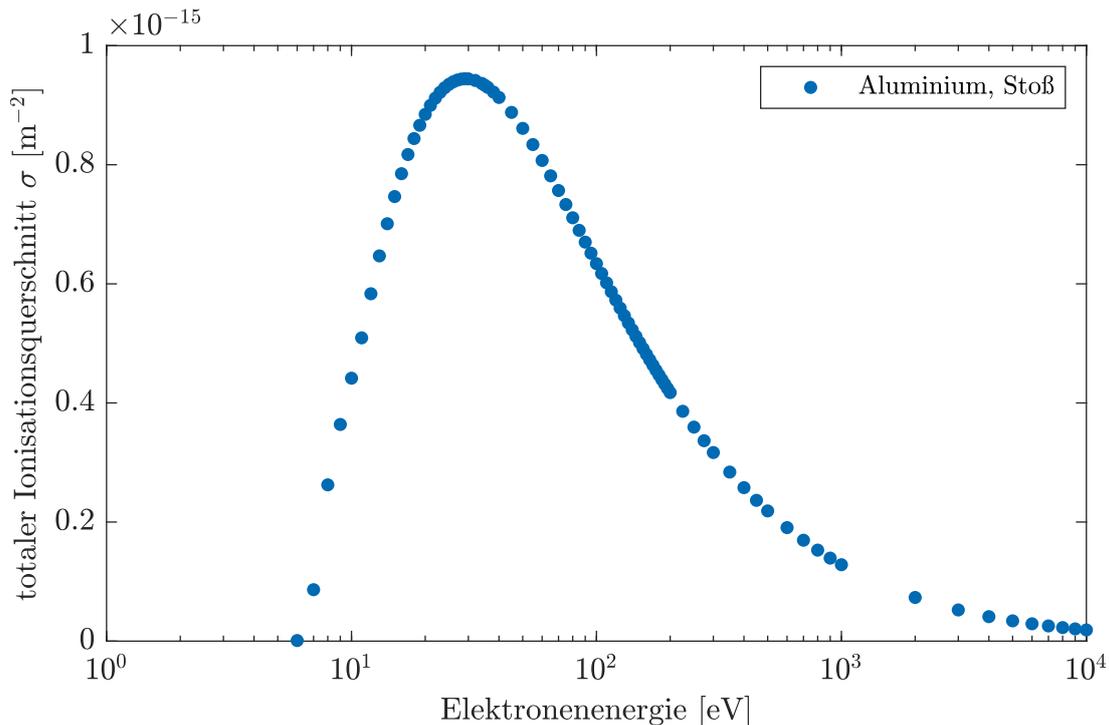
In dieser Arbeit wird die Wechselwirkung zwischen ultrakurzen Laserpulsen und Festkörpern (Metallen) untersucht, wobei die Arten der Ionisation für isolierte Atome beschrieben werden. Weil diese Arbeit sich mit der Wechselwirkung zwischen ultrakurzen Laserpulsen und Metallen auseinandersetzt, wird hier zunächst beschrieben, wie sich die Ionisation von Metall von der von isolierten Atomen unterscheidet.

**Metalle** Wie bereits erwähnt, sind die folgenden Ionisationsmechanismen für einzelne Atome beschrieben, wie sie zum Beispiel im Gas vorliegen.

Im nicht-metallischen Festkörper werden die Atome durch die kovalente Bindung zu einem Festkörper gehalten, bei der ein Elektronenpaar zwischen den Atomen ausgebildet wird. In Metallen sind die äußeren Elektronen so weit delokalisiert, dass sie nicht mehr einem Atomrumpf zugeordnet werden können, sondern sich in einem Elektronengas durch den Festkörper bewegen. Grund für diesen Unterschied zwischen Metallen und Nichtmetallen ist, dass die Fermi Energie, also das höchste besetzte Energieniveau am Nullpunkt, im Leitungsband liegt, was der Grund für die leitenden Eigenschaften von Metallen ist.

Durch die Delokalisation kann bei Metallen nicht von Ionisation aus diskreten Energieniveaus gesprochen werden, weil die Elektronen als quasi-frei beschrieben werden[31]. Bei Aluminium liegen zum Beispiel drei der dreizehn Elektronen im Leitungsband vor und sind daher mit vergleichsweise geringer Energie auszulösen. Die Austrittsarbeit ist deutlich unterhalb der Ionisationsenergien von Einzelatomen, für Aluminium zum Beispiel beträgt sie  $W_A = 4,1$  eV. Verglichen mit der Photonenenergie  $h\nu = 1,55$  eV bei einer zentralen Wellenlänge  $\lambda = 800$  nm werden also drei Photonen für ein Elektron benötigt (vergl. [32]). Tiefer liegende Elektronen, die sog. quasi-gebundenen Elektronen, die sich im Valenzband befinden und somit an den Rumpf gebunden sind, besitzen deutlich höhere Ionisationsenergien. Die Ionisationsenergie für Innerschalenelektronen bei Aluminium beträgt ca. 2 keV. Tiefer gebundene Elektronen können durch Stöße ionisiert werden.

Bei deutlich höheren kinetischen Energien der Primärelektronen können entweder sie durch weitere Stöße mehrere Sekundärelektronen erzeugen oder die Sekundärelektronen durch Stöße an anderen Elektronen für freie Elektronen sorgen. Wichtig zu wissen ist, dass der hochintensive und ultrakurze Laserpuls schon sehr früh ein Plasma erzeugt, mit dem der Rest des Pulses wechselwirkt wie in Kapitel 2.2.1 beschrieben ist. Der Laser greift dazu an den freien Elektronen an und löst die Elektronen aus dem Festkörper aus. Bedingt durch den Überschuss an positiven Ladungen lösen sich die metallischen Bindungen auf. Später greifen dann die Prozesse, die in den folgenden Abschnitten beschrieben werden.



**Abb. 2.5:** Hier ist der totale Ionisationsquerschnitt für Stoßionisation von Aluminium in Abhängigkeit von der Elektronenenergie aufgetragen. Für hohe Elektronenenergien nimmt der Wirkungsquerschnitt ab, so dass die Stoßionisation für hohe Elektronenenergien gegenüber der Feldionisation an Bedeutung verliert[33].

### Stoßionisation

Bei der Stoßionisation stößt ein beschleunigtes Elektron mit einem gebundenen Elektron und überträgt ihm so viel kinetische Energie, dass es das Coulombpotential verlassen kann. Abbildung 2.5 zeigt den totalen Wirkungsquerschnitt für Stoßionisation in Aluminium in blau in Abhängigkeit von der Elektronenenergie[33]. Es ist zu erkennen, dass der Ionisationsquerschnitt mit steigender Elektronenenergie abnimmt. Also ist die Stoßionisation durch schnelle Elektronen mit Energien größer als 1 keV, die in den Festkörper beschleunigt werden, nicht mehr relevant. Bei langsamen Elektronenenergien zwischen zehn und hundert Elektronenvolt ist die Stoßionisation der wichtigste Ionisationsprozess. Im folgenden wird es um stoßfreie Ionisationsmechanismen gehen.

### Multiphotonenionisation

Die Multiphotonenionisation (MPI) ist ein nicht-linearer Ionisationsprozess, bei dem auf Grund der hohen Photonendichte ein gebundenes Elektron mehrere Photonen absorbiert. Damit kommt es zur Ionisation, obwohl die Energie eines Photons nicht für eine Ionisation ausreicht. [34] Nehmen Elektronen über die Ionisationsenergie weitere Photonen auf, so wird der Prozess *above threshold ionization* (ATI) genannt. Als freie Elektronen werden diese dann durch die Photonen beschleunigt und es gilt für die kinetische Energie der sog. genannten ATI-Elektronen:

$$E_{\text{ATI}} = (n_{\text{MPI}} + n_{\text{ATI}}) \cdot h\nu - E_{\text{Ion}}. \quad (2.21)$$

Dabei sind  $n_{\text{MPI}}$  die Anzahl der Photonen bis gilt:  $n_{\text{MPI}} \cdot h\nu > E_{\text{Ion}}$  und die Anzahl der Photonen, die über die Ionisationsenergie  $E_{\text{Ion}}$  hinaus aufgenommen werden  $n_{\text{ATI}}$ . Daraus ergibt sich, dass das Spektrum von ATI-Elektronen diskrete Maxima im Abstand der Photonenenergie hat[35]. Zu hohen Intensitäten im Bereich von  $10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  verschmieren diese Peaks, weil ein anderer Ionisationsmechanismus, die Feldionisation, dominant wird.

### Feldionisation

Unter dem Begriff der Feldionisation werden alle Prozesse zusammen gefasst, die auf der Deformation des Atompotentials durch das Laserfeld beruhen.

**Tunnelionisation** Während bisher das Elektron als Teilchen betrachtet wurde, muss im Fall der Tunnelionisation das Wellenbild bemüht werden, so dass es eine endliche Wahrscheinlichkeit für das Elektron gibt durch Tunneln das Kernpotential zu verlassen. Die Tunnelwahrscheinlichkeit durch die Coulombwall hängt von der Breite des Walls ab und kann demzufolge erhöht werden, wenn das Kernpotential durch ein starkes externes elektrisches Feld verändert wird. Dieses Feld kann durch einen ultrakurzen Laserpuls zur Verfügung gestellt werden. Im quasistatischen Bild ist das elektrische Feld des Laserpulses so gerichtet, dass es das Atompotential lange genug verformt, so dass ein Elektron heraus tunneln kann. Die Tunnelwahrscheinlichkeit kann mit dem ADK-Modell (nach Ammosov, Delone und Krainov) bestimmt werden[36].

**Barrier Supression Ionisation** Die *Barrier Supression Ionisation* (BSI) ist ein Grenzfall der Tunnelionisation, bei dem das Atompotential so weit verformt wird, dass es unterhalb der Energieniveaus der äußeren, gebunden Elektronen liegt. Somit kann ein Elektron das Atompotential verlassen, weil die Aufenthaltswahrscheinlichkeit innerhalb des Potentials geringer als außerhalb ist. Für die BSI kann ein Schwellwert bestimmt werden, indem eine Superposition von Atom- und Laserpotential betrachtet wird. Das Atom hat die Ordnungszahl  $Z$ .

$$\Psi_{\text{ges}}(r) = \Psi_{\text{Atom}}(r) + \Psi_{\text{Laser}}(r) = \frac{Ze}{4\pi\epsilon_0 r} + E_A r. \quad (2.22)$$

Wie in Abbildung 2.4d zu erkennen ist, besitzt das Gesamtpotential  $\Psi(r)$  ein Maximum. An dieser Stelle kann eine Aussage zum Potentialmaximum und somit zur minimalen Feldstärke des Lasers  $E_0$  getroffen werden, die benötigt wird um BSI zu ermöglichen:

$$\frac{\partial \Psi_{\text{ges}}(r = r_0)}{\partial r} = -\frac{Ze}{4\pi\epsilon_0 r_0^2} + E_A \Rightarrow \Psi_{\text{ges}}(r_0) = 2 \cdot \sqrt{\frac{Ze}{4\pi\epsilon_0} E_A}. \quad (2.23)$$

Die Ionisationsenergie muss kleiner sein als die Energie eines Elektrons, das dieses Potentialmaximum spürt:  $E_{\text{ion}} < -e \cdot \Psi_{\text{ges}}(r_0)$ , damit BSI stattfinden kann. Der Schwellwert für das elektrische Feld des Lasers beträgt also

$$E_A > \frac{E_{\text{ion}}^2 \pi \epsilon_0}{Z e^3}. \quad (2.24)$$

Die Laserintensität  $I$  ist anschaulicher als die Amplitude des elektrischen Feldes, so dass mit Gleichung (2.7) die Schwellintensität für BSI  $I_{BSI}$  bestimmt ist zu:

$$I_{BSI} = \frac{\pi^2 c \epsilon_0^3 E_{\text{ion}}^4}{2 Z^2 e^6} \quad (2.25)$$

Der Schwellwert ist als Stufenfunktion zu sehen, unterhalb ist die Wahrscheinlichkeit 0 und darüber 1.

## Keldyshparameter

Zur Abschätzung des dominanten Ionisationsprozesses wird häufig der Keldyshparameter angegeben. Dazu wird die Ionisationsenergie  $E_{\text{ion}}$  mit dem ponderomotorischen Potential  $U_P$  des Lasers verglichen. Obwohl hier von einem Potential gesprochen wird, hat das ponderomotorische Potential die Dimension einer Energie, wie in Kapitel 2.2.4 gezeigt ist. Bei der Multiphotonenionisation wird das

Atompotential als ungestört angenommen. Erst wenn die Intensität stark genug ist um das Coulombpotential so zu verändern, dass das Elektron diese Veränderung spürt, geschieht der Übergang von MPI zu Tunnelionisation. Auf Grundlage dieses Übergangs definierten Keldysh[37] und Perelomov [38] den Keldyshparameter  $\gamma$  zu:

$$\gamma = \sqrt{\frac{E_{\text{Ion}}}{2U_P}}. \quad (2.26)$$

Es gibt folgende Regime:

$\gamma > 1$	Feldionisation und Multiphotonenionisation
$\gamma < 1$	Tunnelionisation
$\gamma \ll 1$	<i>barrier suppression ionization</i>

Für die in dieser Arbeit gültigen Parameter mit einem ponderomotorischen Potential im Bereich von einigen keV und einer typischen Ionisationsenergie von einigen 10 eV ergibt sich ein Keldyshparameter deutlich unter 1, so dass als dominanter Ionisationsmechanismus BSI angenommen werden kann.

### 2.2.3 Plasmen

**Allgemein** Im Gegensatz zu anderen Zuständen von Materie, bei denen Ladungsneutralität herrscht, weil die Elektronen an die Atomrümpfe gebunden sind, liegen im Plasma Elektronen und Ionen getrennt vor, so dass hier nur von einer Quasineutralität gesprochen werden kann. Voraussetzung für Plasmen ist also die Ionisation von neutralen Atomen, die zum Beispiel durch Stöße mit beschleunigten Elektronen oder durch intensive Laser stattfinden kann. Ein Plasma muss konstant geheizt werden um den Zustand der getrennten Ladungsträger aufrecht zu erhalten, weil ohne externe Energiequelle das Plasma unter Emission von Strahlung rekombiniert.

Plasmen sind allgegenwärtig: Das berühmteste Beispiel ist die Sonne, in deren Kern Protonen und Elektronen getrennt vorliegen. Aber auch die Leuchtstoffröhren arbeiten mit der Rekombinationsstrahlung von kalten Plasmen, die in diesem Fall Glimmentladungen genannt werden.

In dieser Arbeit werden die Plasmen durch einen ultrakurzen und hoch intensiven Laserpuls erzeugt, so dass hier insbesondere auf die dafür wichtigen Parameter

eingegangen wird.

Die Ionisationsmechanismen bei Laser-Plasmen sind in Kapitel 2.2.2 beschrieben. Plasmen können in verschiedenen Ionisationszuständen vorliegen. Während bei vollständig ionisierten Plasmen alle Elektronen aus dem Coulombpotential des Kerns entfernt worden sind, binden bei teilionisierten Plasmen noch verbliebene Elektronen am Rumpf.

**Plasmafrequenz** In den freien Elektronen im Plasma können Dichtefluktuationen angeregt werden und als Elektronen-Plasma-Welle beschrieben werden. Die Frequenz, mit der die Elektronen im Plasma oszillieren können, wird Plasmafrequenz  $\omega_P$  genannt und ist von der Elektronendichte  $n_e$  abhängig. Es gilt dabei

$$\omega_P = \sqrt{\frac{n_e e^2}{m_e \epsilon_0}}. \quad (2.27)$$

mit der Elementarladung  $e$ , der Elektronenmasse  $m_e$  und der elektrischen Feldkonstante  $\epsilon_0$ . Externe elektrische Felder können nur dann ins Plasma propagieren, wenn die Frequenz der Störung größer als die Plasmafrequenz ist. Eine solche externe Störung kann Licht sein, das mit seinem elektrischen Feld die Plasmadichte moduliert. Also kann zum Beispiel ein Laser mit einer Frequenz  $\omega_L$  nur dann in das Plasma eindringen, wenn gilt:  $\omega_L > \omega_P$

Das Plasma kann also die Störung von außen nicht ausgleichen, sodass die Störung propagieren kann.

**Plasmadichte** Mit dem Begriff der Plasmadichte ist die Elektronendichte im Plasma  $n_e$  gemeint und bildet eine wichtige Größe für die Beschreibung des Plasmas, weil sie dessen Eigenschaften beeinflusst. Nahezu alle Größen der Plasmaphysik sind von ihr abhängig und sie wird zur Kategorisierung von Plasmen herangezogen.

Eine wichtige Elektronendichte ist die kritische Dichte  $n_{krit}$ , bei der die Plasmafrequenz der Laserfrequenz entspricht:

$$n_{krit} = \frac{\omega_L^2 m_e \epsilon_0}{e^2}. \quad (2.28)$$

Bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 800$  nm beträgt die kritische Dichte:  $n_{krit} = 1,75 \cdot 10^{27} \text{ m}^{-3}$ . Bei Aluminium mit 3 Leitungsbandelektronen beträgt die Dichte beispielsweise  $n_e \approx 100 \cdot n_{krit}$ .

**Plasmatemperatur** Zusammen mit der Plasmadichte ist die Plasmatemperatur die zweite wichtige Größe in der Beschreibung von Plasmen. Auch hiermit ist die Temperatur der Elektronen  $T_e$  gemeint und lässt sich als mittlere kinetische Energie der Elektronen im Plasma verstehen. Sie wird in der Regel in der Einheit Elektronenvolt angegeben.

Es gilt folgender Zusammenhang, wobei die Elektronenmasse  $m_e$  und die Boltzmannkonstante  $k_B$  sind.

$$\frac{1}{2}m_e\bar{v}^2 = \frac{3}{2}k_B T_e. \quad (2.29)$$

Die mittlere Elektronengeschwindigkeit  $\bar{v}$  ist vor allem in Kapitel 6.1 wichtig.

**Plasmagradiant** Wird durch einen hochintensiven Laserpuls ein Plasma an einer Oberfläche erzeugt, so expandiert das Plasma durch den Plasmadruck und die beschleunigten Teilchen von der Oberfläche weg. Der Verlauf der Dichte kann wegen der adiabatischen Expansion als exponentiell angesehen werden. Typische Abfalllängen für Laserplasmen im hier betrachteten Parameterbereich liegen zwischen  $\lambda/10$  und  $\lambda/30$  mit einer zentralen Wellenlänge  $\lambda = 800 \text{ nm}$ [22].

## 2.2.4 Beschleunigungsmechanismen

**Ponderomotorische Beschleunigung** Ein isoliertes Elektron im Vakuum würde keine Energie durch eine ebene elektromagnetische Welle aufnehmen und nach dem Passieren der Welle sich wieder an seinem Ursprungsort befinden. Der Laser ist fokussiert und die laterale Ausdehnung des Fokus ( $w_0 = 2 \mu\text{m}$ ) ist bei einem Titan:Saphire Laser etwa in der Größenordnung der Wellenlänge, sodass es einen starken Feldgradienten gibt.

Elektronen folgen dem oszillierenden Laserfeld und erreichen dort eine mittlere kinetische Energie, das sogenannte ponderomotorische Potential  $U_P$ :

$$U_P = \frac{e^2 I \lambda^2}{8\pi\epsilon_0 m_e c^3}. \quad (2.30)$$

Dabei ist  $e$  die Elementarladung,  $I$  die Laserintensität,  $m_e$  die Elektronenmasse. Die ponderomotorische Kraft ist allgemein proportional zum Gradienten der Intensität. Freie Elektronen werden durch den Gradienten des elektrischen Feldes im Laserpuls beschleunigt und können pro Feldzyklus maximal die Energie in Höhe des ponderomotorischen Potentials aufnehmen. In dem vom Laser beleuchteten

Festkörper liegen Elektronen nicht isoliert vor (siehe dazu auch Kapitel 2.2.1). Durch die Gitterionen kann Energie vom Photon auf das Elektron übertragen werden.

Trifft der Laserpuls in einem von  $0^\circ$  verschiedenen Winkel auf, wie es in dieser Arbeit der Fall ist, erzeugen einlaufender und auslaufender Laserpuls ein Interferenzfeld an der Oberfläche. Die Felder werden dann vektoriell addiert und unter der Annahme, dass die Oberfläche eine Reflektivität von 1 hat, ergibt sich für das Interferenzfeld zu:

$$E_{int} = \sqrt{E_{einl}^2 + E_{ausl}^2}. \quad (2.31)$$

Für die Intensität folgt daraus:  $I_{int} = 2I$ . So können Elektronen eine maximale Energie von

$$E_{max} \leq 2 \cdot U_P \quad (2.32)$$

erreichen. In der Mittelung der Gradienten zur Berechnung des ponderomotorischen Potentials liegen bei ultrakurzen Laserpulsen Probleme. Weil die Gradienten insbesondere zeitlich sehr steil sind, gibt das ponderomotorische Potential nur einen ungefähren Wert an.

**Mehrfachbeschleunigung** Elektronen erreichen durch die direkte Mehrfachbeschleunigung höhere Energien als in Gleichung (2.32) angegeben. Es wurde gezeigt, dass Elektronen bei einer Intensität entsprechend zu  $U_P = 4,7$  keV kinetische Energien  $> 150$  keV besitzen[39].

Bei der direkten Mehrfachbeschleunigung werden die im Target befindlichen Elektronen zunächst ponderomotorisch beschleunigt. Die Elektronen, die wegen ihres Injektionszeitpunktes ins Target beschleunigt werden, streuen dort elastisch und können das Target wieder verlassen. Dort werden sie vom Laserfeld wieder erfasst und ins Target oder Vakuum beschleunigt. Dieser Vorgang ist während des Laserpulses mehrfach wiederholbar, aber bei hohen Energien sinkt der Stoßquerschnitt zwischen Elektronen, so dass die Elektronen nicht mehr zurück ins Laserfeld beschleunigt werden.

**Quasistatische elektrische Feldbeschleunigung** Kleeschulte et al. haben deutlich schnellere Elektronen messen können als durch die beiden vorhergegangenen Mechanismen zu erklären sind[21][29]. Es können Geschwindigkeiten bis

zum zehnfachen des ponderomotorischen Potentials gemessen werden. Nach dem Ende des Laserpulses klingt das elektrische Feld an der Oberfläche nicht aus oder oszilliert, sondern behält eine quasistatische Komponente bei.

Die entstehenden Feldstärken können Elektronen auf kinetische Energien von ca. 100 keV beschleunigen. Der Ursprung dieses quasistatischen Feldes liegt in der Ladungsträgerverteilung an der Oberfläche. Innerhalb der Skintiefe befindet sich eine schmale Population positiver Ladungsträger, in der die Elektronen fehlen, die zuvor vom Laser ins Vakuum beschleunigt wurden. In dieser Zeit bewegen sich die Ionen noch nicht, aber die Elektronen spüren ihr Feld und werden von ihnen angezogen. Zudem stoßen sich die Elektronen untereinander ab, so dass diese Raumladung die außenliegenden Elektronen beschleunigt und sie das Potential der Ionen verlassen können. Kleeschulte et al. bezeichnen diesen Beschleunigungsmechanismus auch als anisotrope Coulomb Explosion (ACE)[21]. Die Abstoßung untereinander beschleunigt die Elektronen auf enorme Energien. Voraussetzung für diese Art der Beschleunigung ist eine große Dichte der Elektronen, weswegen ein starker Plasmagradiant notwendig ist.



## 3 Experimenteller Aufbau

Dieses Kapitel erläutert den experimentellen Aufbau in dieser Arbeit. Zunächst wird die Erzeugung von *few-cycle* Laserpulsen und deren Verstärkung beschrieben. Im Anschluss geht es um die Charakterisierung dieser ultrakurzen Laserpulse insbesondere die Messung der Pulslänge. Weitere wichtige Eigenschaften wie Pulscontrast und Polarisation des Lasers werden erläutert.

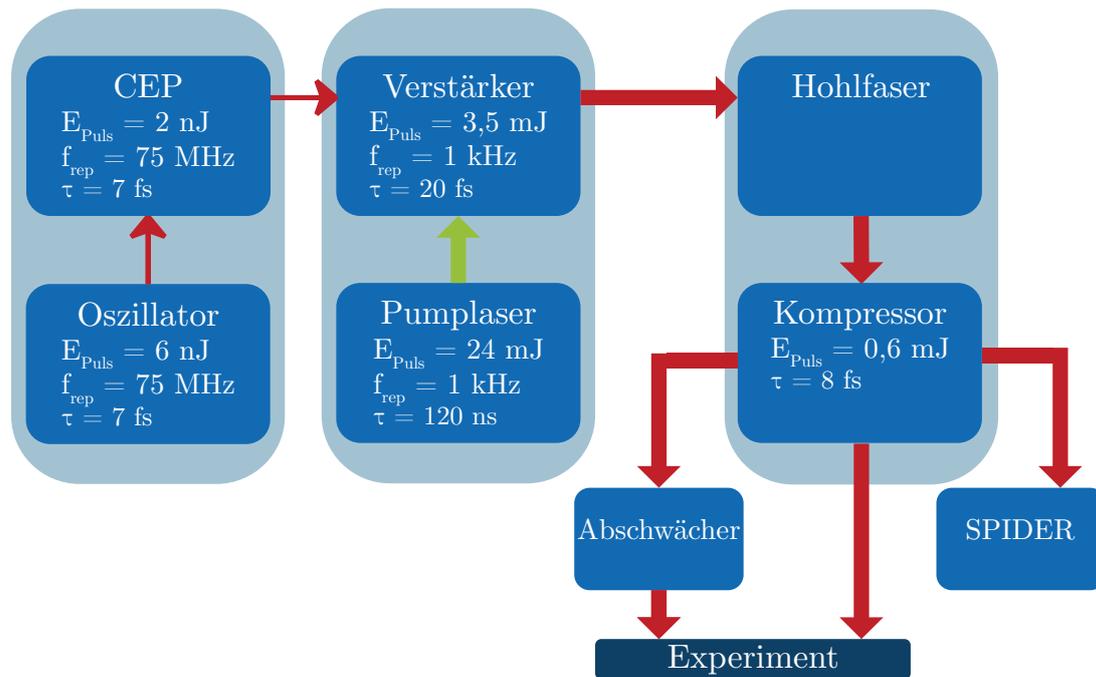
### 3.1 Lasersystem

Die Experimente für diese Dissertation wurden am PHASER (Phase-Stabilized Heine Laser) der Arbeitsgruppe von Prof. Georg Pretzler im Institut für Laser- und Plasmaphysik an der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf durchgeführt. Zur Erzeugung von ultrakurzen Laserpulsen mit hoher Pulsenergie ist ein mehrstufiges, komplexes Lasersystem notwendig, dessen Verständnis grundlegend für diese Arbeit ist. Im Folgenden werden die wichtigen Parameter und die Funktionsweise der einzelnen Stufen in der Reihenfolge, in der das Licht durch das System läuft, erläutert. An Stellen, an denen es für das Verständnis der vorliegenden Arbeit notwendig ist, werden auch einzelne Parameter und die Auswirkungen ihrer Änderung beschrieben. Der schematische Aufbau des Lasers ist in Abbildung 3.1 gezeigt.

**Oszillator** Die Erzeugung der Laserpulse geschieht in einem Oszillator<sup>1</sup>, in dem aus einem Dauerstrichlaser ein gepulster Laser wird. Kernelement des Oszillators ist der Titan-Saphir (kurz Ti:Sa) Kristall, der mit einem grünen Dauerstrichlaser gepumpt wird und Laserlicht bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 800$  nm emittiert. Voraussetzung für Erzeugung ultrakurzer Laserpulse ist die Modenkopplung, die hier durch eine passive Modenkopplung mit dem Kerrlinsen-Effekt realisiert wird. Den Oszillator verlassen Pulse mit einer Energie von ca. 6 nJ und einer Länge

---

<sup>1</sup>Typ: *Rainbow<sup>TM</sup>* vom Hersteller *FemtoLasers GmbH* jetzt *Spectra-Physics*, Wien



**Abb. 3.1:** Das Lasersystem besteht aus drei Stufen. Zunächst wird im Oszillator ein Femtosekundenlaserpuls erzeugt, der in der Verstärkerstufe zunächst verlängert und dann verstärkt wird. Der Verstärker arbeitet nach dem CPA Prinzip. Im Anschluss daran wird der Puls in einer mit Gas gefüllten Hohl-faser durch Selbstphasenmodulation spektral verbreitet um im Anschluss daran über Spiegel komprimiert zu werden. Vor den Experimenten kann der Puls abgeschwächt und diagnostiziert werden.

von ca. 7 fs bei einer Repititionsrate von 75 MHz. Im Anschluss daran wird die Einhüllendenphase (CEP) stabilisiert auf  $\varphi = 0$ , wodurch sich die Pulsenergie zu ca. 2 nJ reduziert.

**Verstärkerstufe** Der genutzte Multi-Pass Verstärker<sup>2</sup> erhöht die Pulsenergie auf bis zu 3,5 mJ. Bei diesem Verstärkertyp macht der Oszillatordpuls bis zehn Durchgänge erneut durch einen Ti:Sa Kristall, der wiederum von einem grünen Festkörperlaser mit Pulsdauern von  $\tau = 120 \text{ ns}$  gepumpt wird. Weil es sich bei dem Kristall um das gleiche Material wie das Lasermedium handelt, können die Wellenlängen des Oszillatordpulses effektiv verstärkt werden. Die Pulsverstärkung wurde lange durch die Schädigungsschwelle des Kristalls und anderer Bauteile

<sup>2</sup>Typ: *FEMTOPOWER<sup>TM</sup> HE CEP* vom Hersteller: *FemotoLasers GmbH* jetzt *Spektra-Physics*, Wien

begrenzt. Umgangen wird dieses Limit durch das Verfahren der *chirped pulse amplification* (CPA), für dessen Entwicklung im Jahr 2018 der Nobelpreis in Physik an G. Mourou und D. Strickland vergeben wurde[10].

Die zu Grunde liegende Idee der CPA ist die Verstärkung eines kurzen Pulses durch die vorherige die Propagation durch Quarzglas und damit Verlängerung des Pulses um drei Größenordnungen auf 10 – 20 ps, wodurch die Intensität unter die Zerstörungsschwelle reduziert wird. Nach 4 Durchgängen der Kleinsignalverstärkung wird mit Hilfe einer Pockelszelle die Repitionsrate von 75 MHz auf die des Pumplasers von 1 kHz angepasst und synchronisiert. Weil für den zentralen Wellenlängenbereich um 800 nm die Verstärkung deutlich effizienter als für die äußeren Bereiche des Spektrums ist, erfährt der Puls eine Reduktion seiner Bandbreite und damit eine Verlängerung seiner Pulsdauer, wie es durch das Pulsdauer-Bandbreiten-Produkt vorgegeben ist.

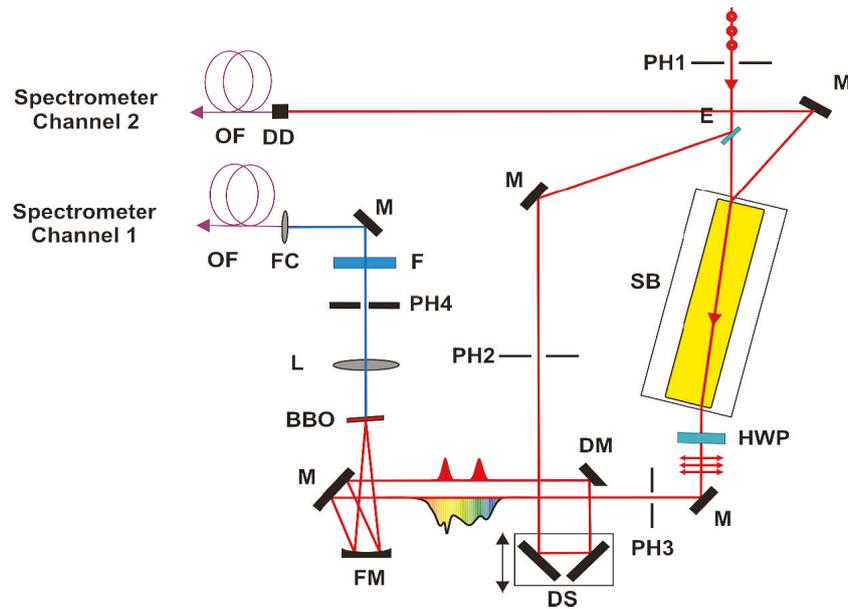
Dieser Effekt wird *gain-narrowing* genannt und kann durch den Einsatz eines Akusto-Optischen-Modulators (AOM)<sup>3</sup> zum Teil entgegengewirkt werden, in dem die Intensität im Zentrum des Spektrums reduziert wird. Im Anschluss an die Verstärkung wird der Puls in einem Teleskop aufgeweitet, in einem Gitterkompressor komprimiert und erreicht nach dem Verstärker eine Länge von 27 fs und eine Pulsenergie von 3,5 mJ bei einer Repitionsrate von 1 kHz.

**Hohlfaser** Die vom Verstärker ausgegebenen Pulse sind komprimiert, aber keine *few-cycle* Pulse, also Pulse mit wenigen Zyklen des elektrischen Feldes. Um also die Pulsdauer zu reduzieren muss gemäß Pulsdauer-Bandbreiten-Produkt die Bandbreite vergrößert werden.

Zur spektralen Verbreiterung ist der Einsatz einer mit einem Edelgas gefüllten Hohlfaser ein bekanntes Verfahren, bei dem die Selbstphasenmodulation den Puls spektral verbreitert[40]. Dazu wird der Ausgangsstrahl des Verstärkers in eine Kapillare fokussiert, die in einem mit Neon gefüllten Gehäuse gelagert ist. Der Durchmesser der Kapillare ist an die Fokusgröße angepasst, so dass die Bedingung  $w_0 = (2/3)r_{\text{Faser}}$  erfüllt ist[41]. Die Länge der Faser und der Druck im Gehäuse sind so angepasst, dass die spektrale Verbreiterung zu einem Fourier-Limit von  $< 7$  fs führt. Der aus der Hohlfaser austretende Strahl wird durch ein Fenster unter dem Brewster Winkel zur Reduktion der Reflexionsverluste ausgekoppelt und durch einen sphärischen Spiegel kollimiert um über einen Spiegelkompressor<sup>4</sup>

<sup>3</sup>Typ *Dazzler* vom Hersteller *Fastlite*, Antibes

<sup>4</sup>Typ *Mosaic* vom Hersteller: *FemtoLasers GmbH* jetzt *Spektra-Physics*, Wien



**Abb. 3.2:** Die Abbildung zeigt die Funktionsweise des SPIDER zur Rekonstruktion des zeitlichen Pulsverlaufs. Wegen der Komplexität des Aufbaus wird hier auf die Erläuterung im Text verwiesen. Die Grafik ist entnommen aus [42]

in die Kammern geführt zu werden.

Für möglichst hohe Intensitäten ist eine kleine Strahltaile notwendig, die gemäß Gleichung (2.6) durch einen großen Strahldurchmesser vor der Fokussierung erreicht wird, sodass der Strahl über ein Teleskop um einen Faktor drei aufgeweitet wird. Der Strahl erreicht damit einen Strahldurchmesser von  $4w = 55$  mm;

Die Experimentierkammern erreichen Pulse mit einer Energie von 600 mJ und einer Länge von 10 fs. Durch eine Kombination von einer rotierenden Blende, die mit dem Lasertrigger synchronisiert ist, und einem mechanischen Verschluss lassen sich verschiedene Betriebsmodi vom 1 kHz- über den 8 Hz-Betrieb bis hin zum Einzelpulsbetrieb realisieren. Darüber hinaus kann noch eine frei gewählte Anzahl an Pulsen im Burstbetrieb mit 1 kHz oder 10 Hz Rate gewählt werden. In den Experimentierkammern können durch unterschiedlich starke Fokussierungen des Laserstrahls Intensitäten bis zu  $8 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> erreicht werden.

**Pulsdiagnostik** Während die räumliche Intensitätsverteilung mit einer Kamera<sup>5</sup> einfach zu bestimmen ist, ist die Messung des zeitlichen Profils des Lasers aufwändiger. Zur Messung kommt ein kommerzielles Gerät vom Typ SPIDER<sup>6</sup> zum Einsatz. Das Akronym SPIDER steht für *spectral phase interferometry for direct electric field reconstruction* und das Verfahren gehen auf Iaconis und Walmsley zurück[43]. Es ermöglicht die Rekonstruktion der Einhüllenden des elektrischen Felds über die Messung der spektralen Phase. Die Funktionsweise des Messgerätes wird anhand von Abbildung 3.2 erläutert.

Durch die Eintrittsblende (PH1) tritt ein senkrecht zur Tischebene polarisierter Puls ein und wird am Ethalon (E) in drei Pulse aufgeteilt. Zwei Pulse werden an der Vorder- und Rückseite des Etalon reflektiert, wodurch sie einen zeitlichen Versatz haben, und durchlaufen den linken Arm über eine verstellbare Verzögerungsstrecke (DS). Der dritte Puls durchläuft einen Strecker (SB), der ihn durch Dispersion zeitlich verbreitert, bevor eine  $\lambda/2$  Platte die Polarisation des dritten Pulses dreht. Die drei Pulse werden über einen Fokussierspiegel (FM) in einen BBO-Kristall (BBO) nicht-kollinear fokussiert. Um bei diesem Aufbau SFG (*Sum Frequency Generation*) zu erhalten, müssen die beiden einlaufenden Strahlanteile senkrecht zu einander polarisiert sein. Es handelt sich hierbei um die sog. TypII SFG.

Die zwei SFG Pulse erzeugen im Spektrometer ein Interferenzmuster, das wiederum zusammen mit dem Spektrum des einlaufenden Pulses zur Berechnung der spektralen Phase genutzt wird. Der Algorithmus zur Berechnung der spektralen Phase ist in [44] beschrieben. Aus der spektralen Phase kann mit Hilfe von Gleichung (2.12) die Form der Einhüllende berechnet werden, die nach Rücktransformation den zeitlichen Verlauf des elektrischen Feldes ergibt.

Mit dieser Methode wird also die Pulsform gemessen. Sie kann durch Variation der Parameter wie zum Beispiel spektrale Verbreiterung und Justage in der Hohlfasern oder Strecke, die der Puls durch Quarzglas läuft, optimiert werden.

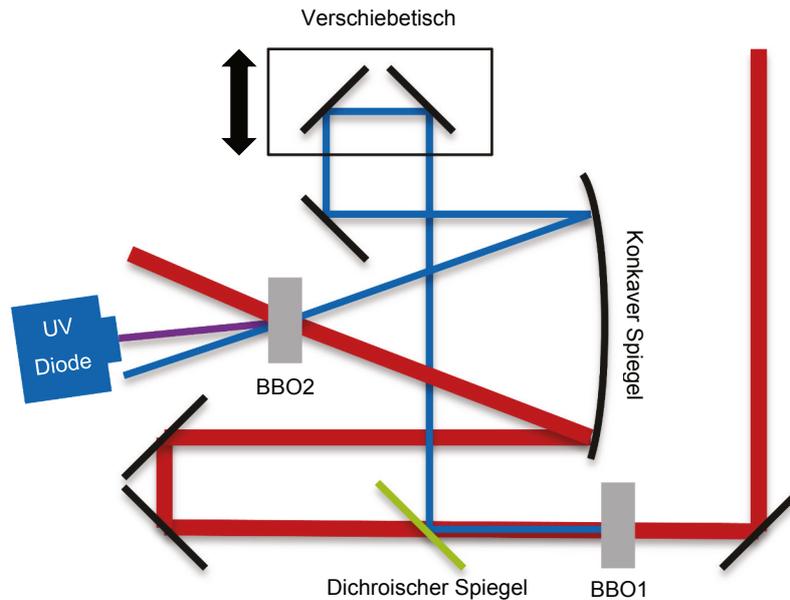
## 3.2 Pulskontrastmessung

Bei der Multi-Pass-Pulsverstärkung durch die CPA-Methode kann es zu Vorpulsen vor dem Hauptpuls kommen. Sie können so viel Energie beinhalten, dass sie be-

---

<sup>5</sup>Typ *WinCam D* vom Hersteller *Dataray Inc*, Redding

<sup>6</sup>Typ *VENTEON PULSE FOUR SPIDER* der Firma *Venteon*, jetzt *LaserQuantum*, Konstanz



**Abb. 3.3:** Diese Abbildung zeigt das Aufbauschema des verwendeten Autokorrelators 3. Ordnung. Das rote Licht wird zunächst frequenzverdoppelt. Das blaue Licht kann über einen Verschiebetisch gegenüber den roten verzögert werden. Beide Strahlanteile werden in einen BBO-Kristall fokussiert um die dritte Laserharmonische zu erzeugen. Grafik entnommen aus [45]

reits ein Plasma zünden, sodass der Hauptpuls mit einem expandierenden Plasma wechselwirkt, das hinsichtlich Plasmagradients und Dichte andere Eigenschaften als angenommen hat. Um ausschließen zu können, dass ein Vorpuls existiert, wurde ein Autokorrelator 3. Ordnung konzeptioniert und aufgebaut (siehe dazu MSc-Arbeit von Tim Vogel). Autokorrelatoren sind Instrumente, bei denen im Grundprinzip der Laserpuls durch einen Strahlteiler geteilt wird.

Ein Teilpuls läuft über eine verstellbare Verzögerungsstrecke, die die beiden Pulse gegeneinander verschieben kann. Bei einem Autokorrelator zweiter Ordnung, wie er zur Vermessung von Pulsdauern eingesetzt wird, werden die beiden übereinander gelegten Pulse durch einen frequenzverdoppelnden Kristall geleitet. Da die Frequenzverdoppelung ein zwei-Photonenprozess ist, ist die Intensität der zweiten Laserharmonischen nicht-linear von der Intensität abhängig.

Wegen der quadratischen Abhängigkeit von der Pulsintensität, ist die rekonstruierte Pulsform immer symmetrisch, was zur Folge hat, dass Vor- und Nachpulse nicht unterschieden werden können. Dazu wurde in der Bachelorarbeit von T. Vogel

ein Autokorrelator dritter Ordnung (AK3) aufgebaut. Dabei ist das gemessene Signal die dritte Laserharmonische und besitzt somit eine ungerade, nichtlineare Abhängigkeit von der Laserintensität. Dadurch lassen sich im zeitlichen Verlauf Vor- und Nachpulse unterscheiden. Dazu wird im Gegensatz zum Autokorrelator zweiter Ordnung ein frequenzverdoppelter Puls mit einem Laserpuls überlagert, so dass in einem nicht-linearen Kristall die dritte Laserharmonische bei ca. 260 nm erzeugt werden wird.

Durch die Variation des Abstandes der Teilpulse mit einem Präzisionsverfahrtisch, kann eine Autokorrelationsspur aufgenommen werden, aus der der Kontrast des Vorpulses direkt abgelesen werden kann. Mit dem Autokorrelator 3. Ordnung konnte ein Pulskontrast von größer als  $10^5$  in einem Bereich von 200 ps vor dem Puls bestimmt werden[21].

### 3.3 Polarisation

Für die Nutzung des in Kapitel 5 vorgestellten neuartigen Dünnschichtabschwächers muss bekannt sein welcher Anteil des Lasers parallel bzw. senkrecht polarisiert ist. Bei der Beschreibung von Polarisation mit den Bezeichnungen senkrecht und parallel ist immer eine Bezugsebene anzugeben. In dieser Arbeit ist diese Ebene die Tischplatte des Lasertisches.

Die gängige Bestimmung der Polarisation durch einen Polarisator und einen Analysator kann bei ultrakurzen Pulsen nicht eingesetzt werden.

Zum einen ist der Einsatz von gängigen Polarisatoren durch Filter nicht möglich, weil dessen Polymerketten die unerwünschten Strahlanteile absorbieren. Diese Absorption führt zu einer Zerstörung der Absorber und die Filter „bleichen“ aus. Zum anderen stellt die hohe spektrale Breite des Laserpulses eine Hürde für die gleichmäßige Absorption der unerwünschten Polarisationsanteile dar.

Außerdem besitzen Dünnpolpolarisatoren ein begrenztes Kontrastverhältnis im nahen infraroten Bereich, so dass der unerwünschte Polarisationsanteil nicht ausreichend unterdrückt werden kann und so die Messung verfälscht.

Es wurde sich für eine Messung der Polarisation des Laserstrahls auf der Basis von Reflexion entschieden. Dabei wird ein Spiegel aus Quarzglas unter  $45^\circ$  Einfallswinkel in den Strahl gestellt, wofür die Reflektivitäten bekannt sind (vergl. Kapitel 5.3.1). Es werden die Intensitäten gemessen, die senkrecht und parallel

zur Tischebene reflektiert werden.

Über ein lineares Gleichungssystem wurde der Anteil an senkrecht polarisiertem Licht zu unter 1% bestimmt, vergleiche [46].

## 4 Einleitende Experimente

In diesem Kapitel werden einleitende Experimente zur intensitätsabhängigen Kratererzeugung mit *few-cycle*-Laserpulsen beschrieben.

Dabei wird die Variation der Intensität durch eine Veränderung der beleuchteten Fläche realisiert. Diese Methode ist einfach durchzuführen und bringt erste Erkenntnisse über die Gestalt der Krater. Darüber hinaus beinhaltet dieses Kapitel auch einen Überblick über die diagnostischen Methoden.

Abschließend werden die Spektren eines ersten Versuches von LIBS mit *few-cycle*-Pulsen auf Wolfram als fusionsrelevantem Material gezeigt.

### 4.1 Intensitätsvariation durch Defokussierung

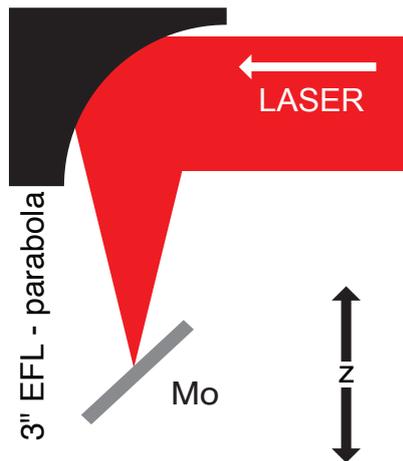
Die Variation der Intensität ist durch eine Veränderung der Position im konvergenten Strahl einfach realisierbar. Zhao et al. [47] variiert die Intensität auf diese Weise um vier Größenordnungen und vermisst die Krater hinsichtlich ihrer Tiefe um für die oben erwähnten Diagnostiken den Zusammenhang zwischen Ablationstiefe und Intensität bzw. Fluenz zu finden.<sup>1</sup>

Weil Molybdän als Wandmaterial in Fusionsexperimenten im Einsatz ist, wurde es zur Untersuchung ausgewählt. Der Laserstrahl wird über eine goldbeschichtete 90°-*off-axis* Parabel auf das Molybdän Target unter 45° fokussiert. Kleinere Auftreffwinkel als 45° sind auf Grund der Gefahr von Rückreflexen in den Laser nicht möglich. Das Target kann in Strahlrichtung  $z$  mit einem Motor in Genauigkeiten von  $\mu\text{m}$  verschoben werden. Der experimentelle Aufbau in der Vakuumkammer ist in Abbildung 4.1 gezeigt.

Vor Beginn des Experiments wird die Fokussierung astigmatismusfrei einjustiert und vermessen, so dass der kleinste Strahlradius  $w_0$  bekannt ist. Unter der Annahme eines idealen Gaußstrahls lässt sich die Größe des Laserspots und daraus die Intensität bestimmen. Da der Punkt der höchsten Intensität optisch durch

---

<sup>1</sup>Laserfluenz ist Pulsenergie pro Fläche und wird in diesem Zusammenhang verwendet um Messungen mit verschiedenen Pulsdauern vergleichen zu können.

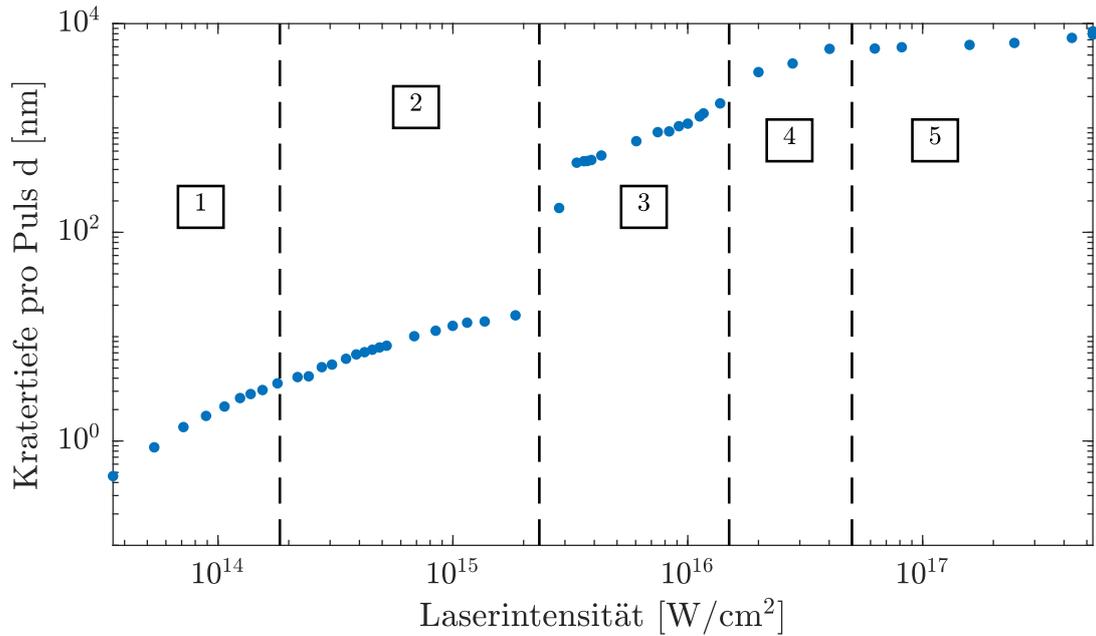


**Abb. 4.1:** Hier ist der Aufbau des Experiments schematisch gezeigt. Das eintreffende Laserlicht wird mit einer 3"90°-*off axis* Parabel auf die Molybdän Probe fokussiert. Die Probe ist in Strahlrichtung  $z$  verfahrbar. Nicht eingezeichnet ist die Vakuumkammer, in der das Experiment stattfindet, sowie sämtliche Motoren und die Fokusdiagnostik.

die zweite Laserharmonische (Licht der doppelten Laserwellenlänge) bestimmt werden kann, ist der Abstand zum Fokus gut bekannt. Das Molybdän kann so verfahren werden, dass es möglich ist, neue Stellen auf dem Material zu beleuchten, ohne dabei die Position  $z$  im konvergenten Strahl zu verändern. Die Motoren für Target und Parabel sowie die Fokusdiagnostik in der Vakuumkammer sind nicht dargestellt. Die Kammer kann bis zu einem Druck von ca.  $10^{-5}$  mbar evakuiert werden.

Die Laserintensität wurde von  $4 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  bis  $5 \cdot 10^{17} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  variiert. Die mit den fs-Pulsen erzeugten Krater wurden post mortem mit einem Konfokalen Mikroskop (CM) sowie einige exemplarisch mit dem Elektronenmikroskop (SEM) untersucht, siehe auch Kapitel 4.2.2. Abbildung 4.2 zeigt die Abhängigkeit der Kratertiefe pro Laserpuls in Abhängigkeit von der eingestrahltten Intensität. Über den gesamten Bereich nimmt die Kratertiefe mit der Intensität zu, zeigt jedoch unterschiedliche Verläufe. Besonders auffällig ist der Sprung der Kratertiefe bei  $10^{15} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ . Exemplarisch zeigt Abbildung 4.3 SEM Bilder der Krater aus jedem Regime, die von oben und von der Seite aufgenommen wurden.

Zum Vergleich wird die unbeleuchtete Fläche in Abbildung 4.3a dargestellt. Der Materialabtrag für den Schnitt erfolgte mit Hilfe eines *focused ion beam* (FIB, siehe dazu auch Kapitel 4.2.2). Bei geringen Intensitäten (Abbildung 4.3b und 4.3c) wurden 100 Pulse aufgebracht um ein messbares Ergebnis zu erhalten und



**Abb. 4.2:** Diese Abbildung zeigt die Kratertiefe pro Laserpuls in Abhängigkeit von der Intensität. Die Intensität wurde über vier Größenordnungen variiert. In den Bereichen 1 und 2 ist die Tiefe als Durchschnitt aus 100 Laserpulsen aufgetragen, weil Einzelpulskrater nicht messbar sind. In den Bereichen 3 bis 5 sind die Krater aus Einzelpulsen aufgetragen. Die Kratertiefe nimmt mit der Intensität zu. Erwähnenswert ist der sprunghafte Anstieg der Kratertiefe bei ca.  $10^{15} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ . Bei höheren Intensitäten ändert sich die Kratertiefe nur noch vergleichsweise gering.

aus der Gesamttiefe die durchschnittliche Tiefe eines Kraters mit Einzelschuss berechnet. Jeder Laserpuls besitzt eine Pulsenergie von  $E_{pulse} = 0,4 \text{ mJ}$ . Ab Abbildung 4.3d erzeugt ein Laserpuls die dargestellten Krater und ab Abbildung 4.3e wird die Fläche des Laserspots mit einem Radius von  $w$  unter einem Winkel von  $45^\circ$  in rot veranschaulicht, um zu zeigen wie das Verhältnis von Kratergröße zu Laserspotgröße ist.

Weil in Abbildung 4.3d der Laserspot noch größer als der Bildausschnitt ist, ist die gezeigte Oberflächenmodifikation ein Resultat der Wechselwirkung mit dem heißen Zentrum. In Abbildung 4.3e sind Krater und Laserspot etwa gleich groß und bei den höchsten Intensitäten ist der Krater deutlich größer als der Laserspot. Es lassen sich also fünf Regime erkennen, die im folgenden Abschnitt erläutert werden.

Im Regime 1 lässt sich der aus Nolte et al. bekannte Zusammenhang zwischen Ab-

lationstiefe pro Puls  $d$  und Fluenz  $F$  bzw. Intensität  $I$  finden:  $d \cong \alpha^{-1} \ln F/F_{th}^\alpha$ [16]. Dabei ist  $\alpha^{-1}$  die optische Eindringtiefe und  $F_{th}^\alpha$  die Schwellfluenz für die Ablation bei 100 Pulsen. Der logarithmische Fit an die experimentellen Daten ergibt  $F_{th}^\alpha = 0,15 \text{ J/cm}^2$  und  $\alpha^{-1} = 16,5 \text{ nm}$ , was gut mit den bekannten Daten für die optische Eindringtiefe in Molybdän für den vorliegenden Spektralbereich  $\alpha^{-1} = 15 \text{ nm}$  übereinstimmt[48].

Bei einer Wellenlänge  $\lambda = 700 \text{ nm}$  ist  $\alpha^{-1} = 15,6 \text{ nm}$  und bei  $\lambda = 900 \text{ nm}$  ist  $\alpha^{-1} = 21,1 \text{ nm}$ . Der Wert aus dem Fit ist also bei einer zentralen Wellenlänge von  $\lambda = 800 \text{ nm}$  im zu erwartenden Bereich. Ein typischer Krater nach 100 Laserpulsen mit einer Intensität von  $I = 9 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$  ist in Abbildung 4.3b gezeigt.

In Nolte et al. kann ein zweites logarithmisches Regime gefunden werden, das in Abbildung 4.2 als Regime 2 bezeichnet ist und *effective heat penetration* Regime genannt wird.

Die Ablationstiefe pro Puls  $d$  zeigt ebenso einen logarithmischen Zusammenhang:  $d \cong l^{-1} \ln F/F_{th}^l$  mit der Wärmeeindringtiefe für Elektronen  $l^{-1}$  und der Ablationsschwelle  $F_{th}^l$  in diesem Regime. Nach einem logarithmischen Fit an die Daten ergeben sich folgende Werte:  $l^{-1} = 59,1 \text{ nm}$  und  $F_{th}^l = 0,76 \text{ J/cm}^2$ .

Im Bild 4.3c, das den Krater nach 100 Laserpulsen bei einer Intensität von  $I = 8,5 \cdot 10^{14} \text{ W/cm}^2$  zeigt, ist eine Eindringtiefe im Bereich von 600 nm zu sehen, was auf Multipulseffekte zurückgeführt werden kann, weil die Einzelpulstiefe deutlich darunter liegt. Ebenso ist der Schwellwert für die Ablation höher als im ersten Regime. Das ist sinnvoll, weil die heißen Elektronen erst bei höheren Feldern dominieren.

Die Ablation in den beiden Regimen basiert auf der Absorption durch inverse Bremsstrahlung (vergl. Kapitel 2.2.1) und beruht auf der Elektron-Phononen-Kopplung. Die logarithmische Abhängigkeit der Ablationstiefe ergibt sich aus einem zwei Temperaturmodell (TTM)[16]. Regime 1 und 2 unterscheiden sich in der Annahme, dass die optische Eindringtiefe viel größer bzw. kleiner als die Wärmeeindringtiefe ist.

Das dritte Regime ist nach einem deutlichen Sprung durch ein lineares Verhalten gekennzeichnet und wird in Anlehnung an Amuroso et al. als *effective heat penetration regime* bezeichnet[49]. Ein typischer Krater dieses Regimes bei einer Intensität von  $I = 6 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  ist in Abbildung 4.3d zu sehen. Bei diesen Intensitäten ist für die Ablation mit Femtosekundenpulsen kein Modell bekannt. In der Ablation mit Nanosekundenpulsen ist eine lineare Abhängigkeit von der Fluenz bzw. Intensität bekannt[49]. Dabei erzeugt der Laserpuls ein Plasma, das weiter

geheizt wird, so dass langsame Elektronen kontinuierlich mit den Gitteratomen stoßen können. Im Fall von Pulsdauern von Femtosekunden ist dieser Effekt des kontinuierlichen Heizens nicht gegeben, aber in Anlehnung daran ist zu vermuten, dass Elektronen aus dem Plasma die Oberfläche zum Schmelzen bringen.

Für das Regime 4, in dem der Laserspot etwa so groß wie der Krater ist (vergl. Abbildung 4.3e) wird in der Literatur in Anlehnung an die Ablation mit Nanosekundenpulsen ein *phase explosion-like* Regime benannt. Bei der Phasenexplosion mit Nanosekunden wird der Festkörper schnell aufgeheizt, im geschmolzenen Bereich sogar überkritisch. Dies hat zur Folge, dass Dichtefluktuationen geschmolzener Materie entstehen, in denen verdampfte Materie vorliegt[50]. Diese Blasen können spontan expandieren und so Materie von der Oberfläche entfernen[51].

Für das Regime 5 mit den höchsten Intensitäten (Krater sind in Abbildung 4.3f und 4.3g) gesehen, sind die Krater deutlich größer als der Laserspot. Während die bisher dargestellten Phänomene sich in einzelnen Atomlagen abspielen und als eindimensionales Problem beschrieben werden, ist diese Beschreibung nicht mehr zulässig, sondern muss dreidimensional behandelt werden. Mit zunehmender Intensität und größeren Kratertiefen wird ein Mechanismus relevant, der eine Wechselwirkung über die Skintiefe hinaus zulässt.

Als Energieträger, der tief in das Material hinein wirkt, sind Elektronen denkbar. Dazu wird eine Abschätzung über die *continuous slowing down approximation* vorgenommen. Eine ausführlichere Beschreibung der Wechselwirkung in diesem Regime wird in Kapitel 6.3 beschrieben. Die Eindringtiefe  $x$  von Elektronen mit einer Energie  $E_e$  kann beschrieben werden als:

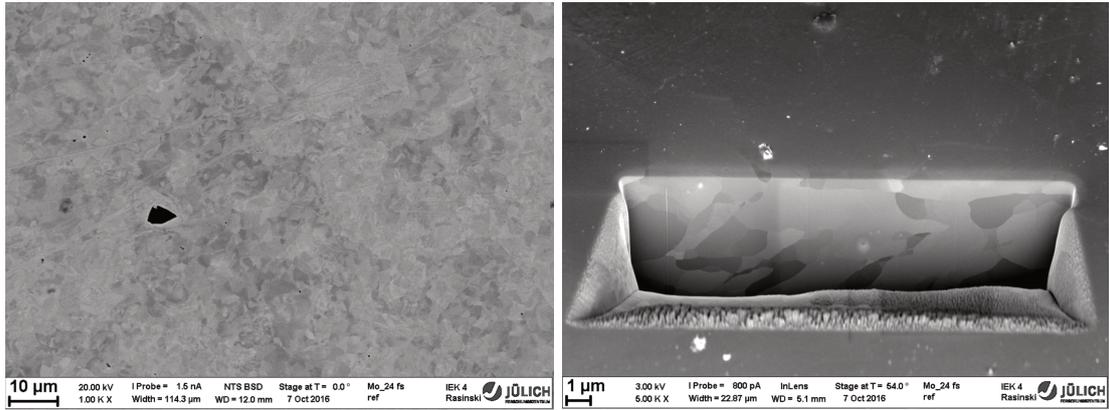
$$x = \int_0^{E_e} \frac{1}{S(E)\rho} dx \quad (4.1)$$

Dabei bezeichnet  $S(E)$  die *total stopping power* von Elektronen mit einer Energie  $E$ [52]. Es können Änderungen im Material bis zu einer Tiefe von ca.  $10 \mu\text{m}$  beobachtet werden, für die Elektronen mit Energien von 60 keV benötigt werden (vergl. Abbildung 4.3g). Bei Intensitäten von  $I = 5,3 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$  erreichen die Elektronen eine mittlere kinetische Energie von 30 keV, so dass schnelle Elektronen eine wahrscheinliche Ursache für die großen Krater bei hohen Intensitäten sind. Problematisch bei der Interpretation der Daten ist, dass sie nicht zur Verifikation eines Modells zur Kratergröße in Abhängigkeit von der Intensität taugen, weil es nicht sicher bestimmbar ist, ob die Kratergröße nicht auch durch die Größe der beleuchteten Fläche verändert wird. Für die angesprochenen *in-situ* Diagnostiken in Fusionsexperimenten ist es jedoch wichtig zu wissen, mit welcher Intensität wie

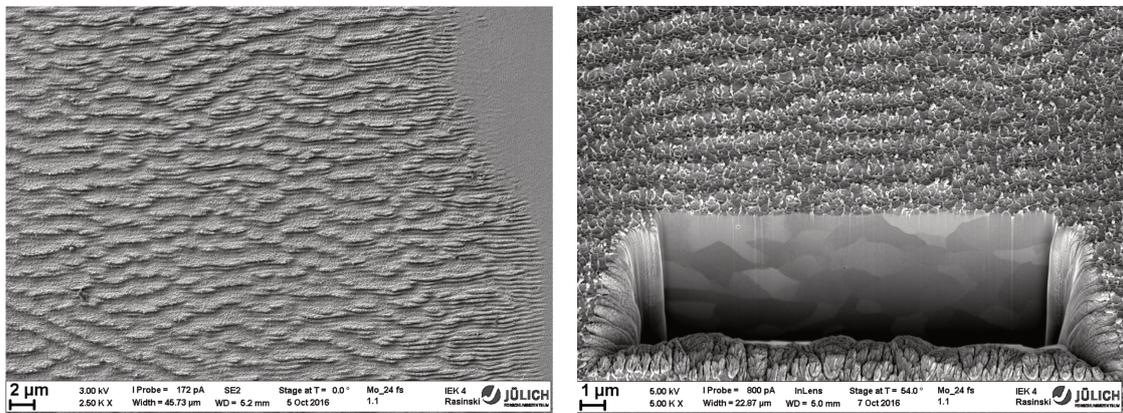
viel Material und aus welcher Tiefe ablatiert wird.

Voraussetzung für die Intensitätsvariation mittels Flächenänderung ist eine hohe Strahlqualität, so dass über die Gaußsche Optik der Strahlquerschnitt berechnet werden kann (vergl. Gleichung (2.6)). Realen Laserstrahlen werden durch die Vielzahl von Optiken Fehler aufgeprägt, so dass einerseits die Querschnittsfläche nicht mit der vorhergesagten übereinstimmt und andererseits in den Flächen entfernt vom Fokus eine inhomogene Intensitätsverteilung zu finden ist.

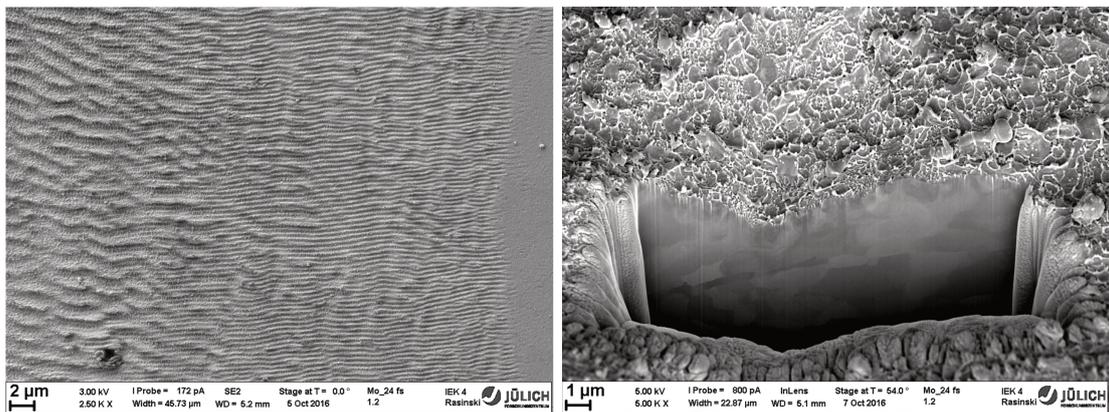
Die Untersuchung des zu Grunde liegenden Mechanismus wird Kernstück der vorliegenden Arbeit sein. Voraussetzung für die systematische Untersuchung der Wechselwirkung ist also die Möglichkeit der Intensitätsvariation über die Pulsenergie und nicht über Vergrößerung von Pulslänge oder Fläche. In Kapitel 5 wird ein neuartiger Abschwächer für ultrakurze Laserpulse vorgestellt, mit dem die kleinschrittige Variation der Pulsenergie unter Beibehaltung der Pulseigenschaften möglich ist. Mit diesem Messgerät werden die Krater unter wohl definierten Bedingungen erzeugt. Aufbauend darauf wird in Kapitel 6.3 ein Modell für die Entstehung von Kratern mittels hochintensiver, ultrakurzer Laserpulse entwickelt.



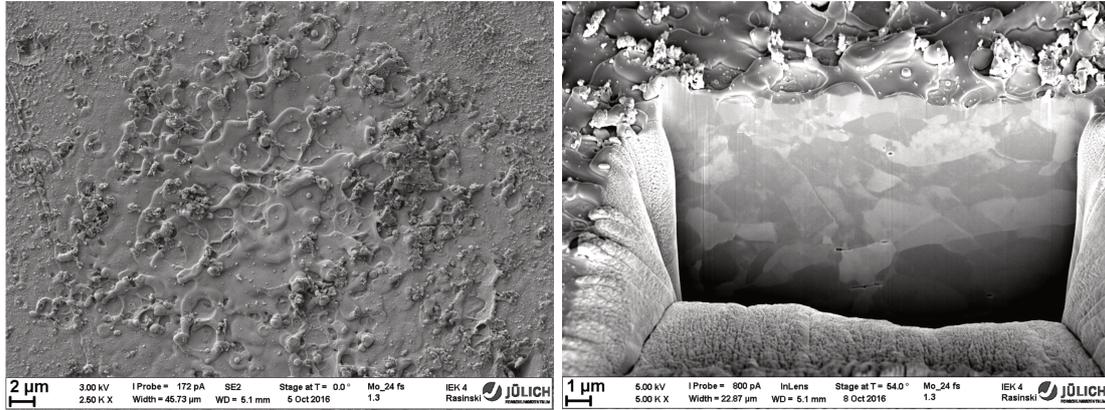
(a) unbeleuchtete Oberfläche



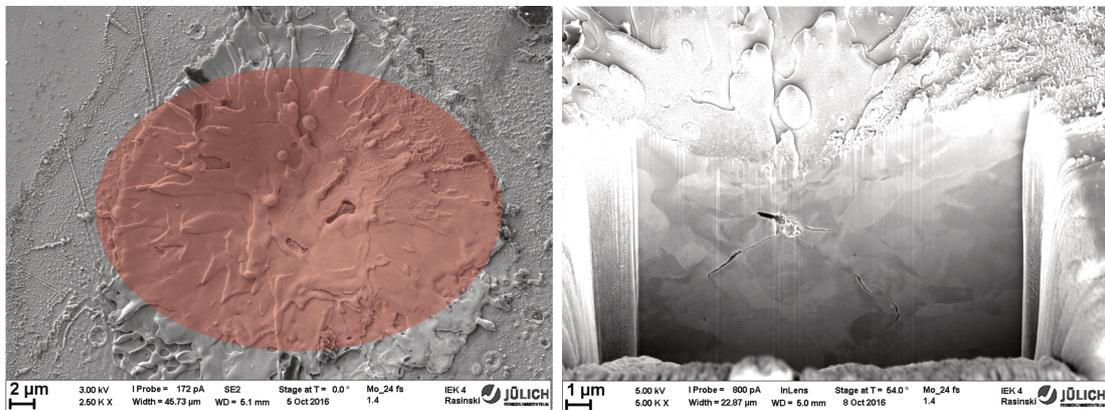
(b) Verwendete Intensität  $I = 9 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ , Strahlradius  $w = 150 \mu\text{m}$ , 100 Pulse



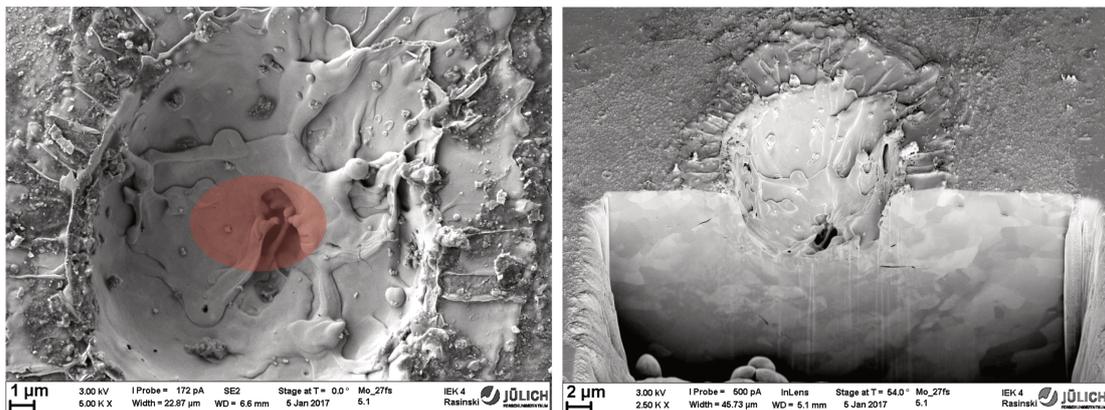
(c) Verwendete Intensität  $I = 8,5 \cdot 10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ , Strahlradius  $w = 50 \mu\text{m}$ , 100 Pulse



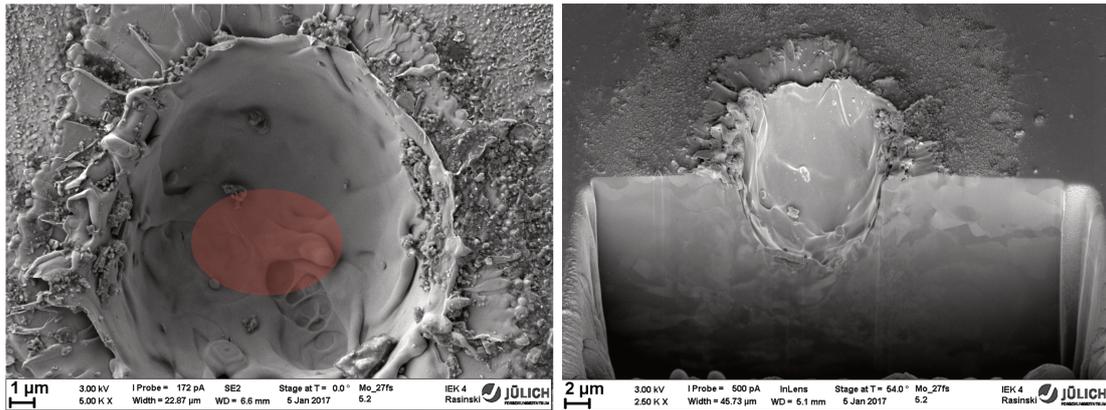
(d) Verwendete Intensität  $I = 6 \cdot 10^{15} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ , Strahlradius  $w = 19 \mu\text{m}$ , 1 Puls



(e) Verwendete Intensität  $I = 1,83 \cdot 10^{16} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ , Strahlradius  $w = 11 \mu\text{m}$ , 1 Puls



(f) Verwendete Intensität  $I = 1,5 \cdot 10^{17} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ , Strahlradius  $w = 3,6 \mu\text{m}$ , 1 Puls



(g) Verwendete Intensität  $I = 5,3 \cdot 10^{17} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ , Strahlradius  $w = 2 \mu\text{m}$ , 1 Puls

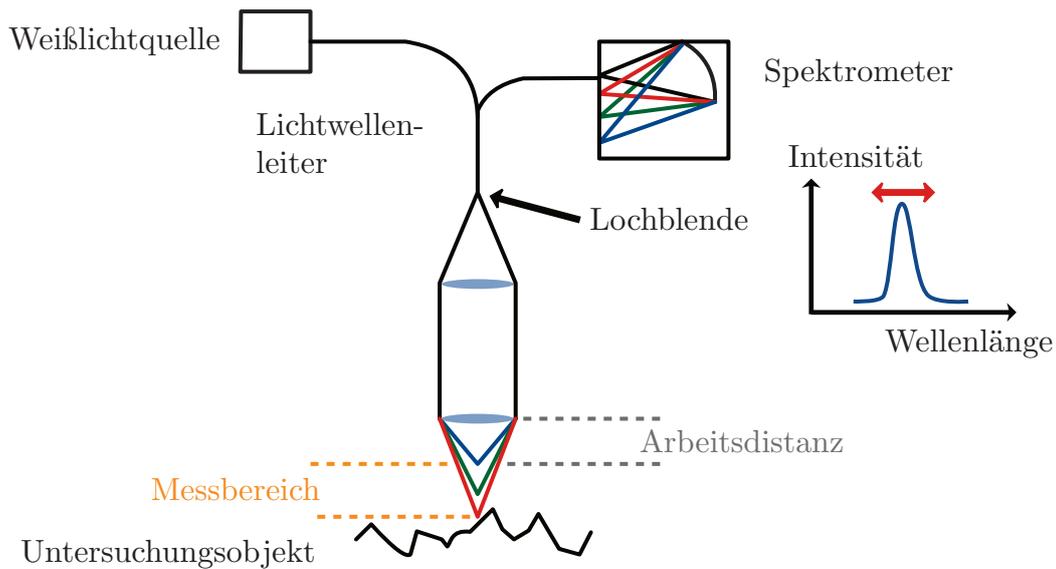
**Abb. 4.3:** Diese Abbildung zeigt Krater in Molybdän bei verschiedenen Intensitäten, die über die Variation der beleuchteten Fläche erreicht wurden. Jeder Krater ist von oben und unter  $54^\circ$  mit einem SEM untersucht worden. Die Tiefenansicht ist mit einem FIB realisiert worden. Zu jedem Krater sind die Intensität und die Laserspotgröße angegeben. Die Größe der beleuchteten Fläche ist zum Vergleich als rote Scheibe eingezeichnet.

## 4.2 Diagnostiken

Für die Untersuchungen der Krater werden zwei Diagnostiken verwendet:

Zum einen können die Tiefen der Krater mit einem konfokalen Mikroskop (CM) vermessen werden. Diese Methode liefert an Luft schnell Ergebnisse über Kratertiefen im Bereich von über  $1 \mu\text{m}$ , kann aber insbesondere bei tiefen Kratern die Form nicht hinreichend gut messen.

Zum anderen wird zur Messung das Elektronenmikroskop (SEM) eingesetzt, das hochauflösende Bilder der Oberflächen liefert, dafür müssen jedoch die Proben ins Vakuum gebracht werden. Seine Stärke ist die Möglichkeit, neben der Auflösung, über einen fokussierten Ionen Strahl (FIB) Material von der Oberfläche präzise abzutragen, um so eine Seitenansicht der Krater zu erhalten. In diesem Kapitel sollen die Grundlagen der beiden Diagnostiken vorgestellt werden.



**Abb. 4.4:** Hier ist die prinzipielle Funktionsweise eines konfokalen Mikroskop mit Weißlicht zur tiefenaufgelösten Messung gezeigt. Eine Weißlichtquelle wird durch eine Lochblende chromatisch fokussiert, so dass die Brennweiten deutlich von der Wellenlänge abhängig sind. Das reflektierte Licht wird auf dem gleichen Weg fokussiert und in einem Spektrometer detektiert. Die Wellenlänge, deren Fokus auf der Oberfläche liegt, ist im Spektrum stärker als andere Farben und so kann eine Tiefeninformation ermittelt werden.

### 4.2.1 Konfokales Mikroskop

Bei einem konfokalen Mikroskop (CM) wird im Gegensatz zur konventionellen Mikroskopie zu jedem Zeitpunkt nur der Teil der Probe vermessen, der der Größe des Brennpunktes entspricht. Bei dem Verfahren muss die Probe also abgerastert werden. Konfokale Mikroskope haben verschiedene Anwendungsmöglichkeiten, zum Beispiel bei der Fluoreszenzmikroskopie.

Zur Tiefenmessung wird die konfokale Mikroskopie mit einer Weißlichtquelle verwendet. Der prinzipielle Aufbau ist in Abbildung 4.4 gezeigt. Dabei wird das weiße Licht über einen Lichtwellenleiter auf eine Lochblende gebracht. Die Lochblende wiederum wird über ein Linsensystem auf die Probe abgebildet.

Während in den meisten Anwendungen die chromatische Aberration unerwünscht ist, wird sie hier bewusst eingesetzt, um die monochromatischen Abbildungen des Spaltes mit einer Tiefencodierung zu versehen. Die Fokusebene mit der kürzes-

ten Wellenlänge ist nah an der Arbeitsdistanz des Objektivs. Mit zunehmender Wellenlänge wandert die Fokusebene davon weg. Abhängig vom Abstand wird nun eine Wellenlänge wieder zurück auf das Pinhole abgebildet. Das reflektierte Licht wird mit einem Spektrometer aufgespalten und aus der Wellenlänge mit der höchsten Intensität ergibt sich die Tiefe des Kraters.

Das hier verwendete konfokale Mikroskop<sup>2</sup> besitzt eine Tiefenauflösung von kleiner einem Mikrometer und kann bis zu einem Millimeter Tiefe messen. Es benutzt eine externe Software<sup>3</sup> zur Berechnung der Höhenprofile aus den Rohdaten. Vorteile dieser Messmethode sind einerseits, dass an Luft gearbeitet werden kann und die Probe nicht zerstört wird. Außerdem ist die fehlende Abrasterung in der Tiefe ein Geschwindigkeitsvorteil. Nachteile dieser Methode ist, dass besonders tiefe Kratern mit steilen Flanken hiermit nur unzureichend dargestellt werden, so dass die Form nicht sicher bestimmt werden kann. Zudem ist die Auflösung im Vergleich zum Elektronenmikroskop (siehe Kapitel 4.2.2) gering.

### 4.2.2 Elektronenmikroskop

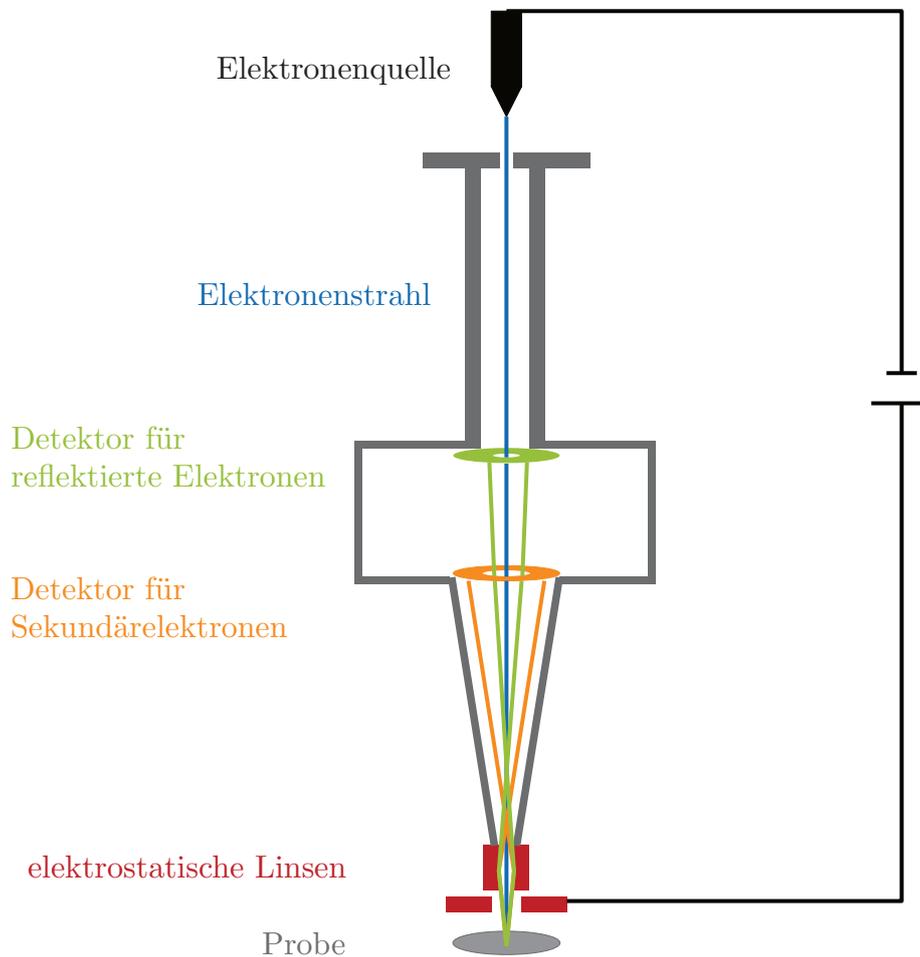
Im Elektronenmikroskop (engl. *scanning electron microscope* SEM) basiert die Bildentstehung auf Elektronen im Gegensatz zu Licht bei klassischen Mikroskopen. Zunächst werden in einer Kathode durch thermische oder Feldemission Elektronen erzeugt, die im nächsten Schritt beschleunigt werden. Der Elektronenstrahl wird analog zum Lichtmikroskop durch Feldlinsen auf die Probe fokussiert. Auf der Probe werden Elektronen in Abhängigkeit von Form, Dichte und Abstand gestreut. Exakt in Richtung der einlaufenden Elektronen werden die zurück gestreuten Elektronen durch Linsen auf einen Detektor (zum Beispiel: Halbleiterdetektor) zur Bilderzeugung fokussiert.

Es entsteht ein Helligkeitsdotiertes Bild. Materialien mit einer hohen Dichte reflektieren besser als solche mit geringer Dichte. Ein Parameter für die Einstellung des Kontrastes ist die Beschleunigungsspannung. Je geringer die Elektronengeschwindigkeit, desto mehr Elektronen werden an der Oberfläche reflektiert und das Bild ist zu hell. Bei zu schnellen Elektronen dringen sie zu tief in die Probe ein und wenige werden zurück gestreut. Bei hohen Elektronenenergien treten harte Sekundärstrahlung und Sekundärelektronen auf, die aber auf Grund ihrer

---

<sup>2</sup>Modell *MicroMeasure 2* vom Hersteller *STIL Marmoss*, Aix-en-Provence

<sup>3</sup>*SPIP<sup>TM</sup>* vom Hersteller *Image Metrology*, Lyngby



**Abb. 4.5:** Diese Abbildung zeigt den schematischen Aufbau eines Elektronenmikroskops (SEM). Zu sehen ist die Quelle-Detektor-Einheit, die die Elektronen erzeugt, beschleunigt und fokussiert. In der Mitte der Einheit ist der Detektor zu sehen, der aus den zurück gestreuten und wieder fokussierten Elektronen ein Bild erzeugt.

isotropen Abstrahlung bei der Bildgebung keine Probleme machen.

Nach außen hin ist das Elektronenmikroskop durch die Wände der Vakuumkammer abgeschirmt. Daraus ergibt sich der Nachteil eines SEM: Die Untersuchung der Proben muss im Vakuum statt finden, wodurch die Art der Proben eingeschränkt ist und sich die Bearbeitungszeit erhöht. Der Winkel zwischen Probe und Quelle-Detektor-Einheit kann verändert werden, so dass eine seitliche Ansicht der Probe möglich ist.

Das verwendete SEM<sup>4</sup> besitzt zusätzlich die Möglichkeit in tiefer liegende Schichten der Probe zu schauen. Dazu wird ein Ionenstrahl (zum Beispiel Gallium) erzeugt und auf die Probe fokussiert (engl. *focussed ion beam* FIB). Durch Stöße kann Material ablatiert und so ein definierter Schnitt in die Probe erzeugt werden. Dieser Schnitt zeichnet sich durch eine wohldefinierte, scharfe Kante aus.

Die Vorteile eines SEM sind vor allem die sehr hohe Auflösung und die Dichteabhängigkeit des Bildes, wodurch beispielsweise Körnungsgrenzen in Festkörpern sichtbar gemacht werden können.

## 4.3 Femtosekunden-LIBS-Spektren

Neben der Möglichkeit, die Wechselwirkung von *few-cycle*-Laserpulsen post mortem durch die oben beschriebenen Diagnostiken zu untersuchen, ist LIBS eine gängige in situ Methode, die jedoch genaue Kenntnisse über die grundlegenden Prozesse voraussetzt, die in dieser Arbeit gewonnen werden.

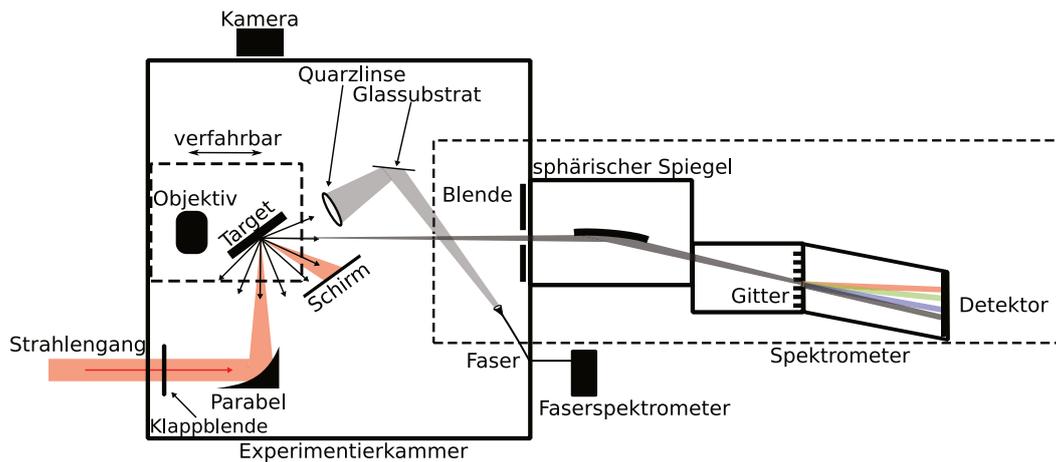
Im Vorhinein wurde in einem *proof-of-principle*-Experiment in der Masterarbeit von Maria Kersten im Jahr 2017 gezeigt, dass LIBS Spektren mit ultrakurzen Laserpulsen erzeugbar sind. Dabei wurde Wolfram als Material gewählt, weil es als Wandmaterial in Fusionsexperimenten auf Grund seiner Hitzebeständigkeit Verwendung findet und finden wird[53].

Der Aufbau des Experimentes ist in Abbildung 4.6 gezeigt. Darin wird der Laserstrahl wieder über eine Parabel auf das Target fokussiert. Der Auftreffwinkel wird kleiner als  $45^\circ$  gewählt um die Spektrometer vor dem spekulär reflektierten Licht zu schützen. Wegen der isotropen Abstrahlung der Linienstrahlung kann das Licht für das Spektrometer<sup>5</sup> auch an einer Stelle außerhalb des reflektierten Strahles abgegriffen werden. Das Spektrum in Abbildung 4.7 wurde mit Pulsen mit einer

---

<sup>4</sup>Modell *Crossbeam 540* vom Hersteller *Carl Zeiss AG*, Oberkochen

<sup>5</sup>Modell *USB-2000* vom Hersteller *Avantes BV*, Apeldoorn



**Abb. 4.6:** Diese Abbildung zeigt den Aufbau für LIBS mit Hilfe von Femtosekundenpulsen, wie er in der Masterarbeit von Maria Kersten aufgebaut wurde. Das XUV Spektrometer wurde für einen anderen Teil der Arbeit verwendet. In diesem Abschnitt geht es nur um die Spektren im sichtbaren Bereich, die mit einer Linse in die Faser des Spektrometers fokussiert wurden. Die Reflexion am Glassubstrat zur Abschwächung ist optional. Falls zu wenig Licht vorhanden ist, kann es durch einen Spiegel ersetzt werden[53].

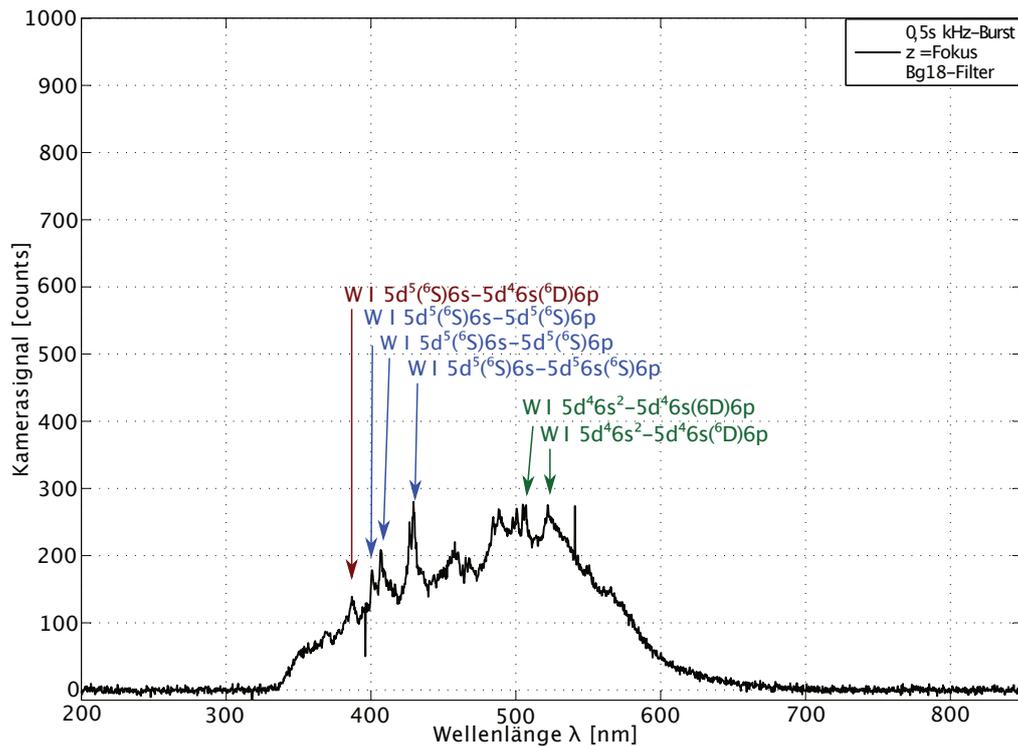
Energie von  $E = 620$  mJ und einer Pulsdauer  $\tau = 6$  fs also einer Intensität von  $I = 3,14 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> aufgenommen. In dem Spektrum, das mit einem Filter<sup>6</sup> um das Laserlicht reduziert wurde, sind deutlich die Linien von atomaren Wolfram zu sehen. Damit ist gezeigt, dass es möglich ist, mit ultrakurzen Laserpulsen LIBS-Spektren zu detektieren.

Für aussagekräftige Spektroskopie sind jedoch weitere Kenntnisse über die Wechselwirkung des Lasers mit dem Festkörper nötig. In dieser Arbeit wird erklärt, wie bei hohen Intensitäten mit ultrakurzen Laserpulsen Krater in Festkörpern entstehen und gezeigt, dass der Wärmeeintrag bei ultrakurzen Pulsdauern nicht über den Krater hinaus geht wie es bei Nanosekundenpulsen der Fall ist.

## 4.4 Fazit

Dieses Kapitel zeigt Chancen und Herausforderungen von LIBS mit Laserpulsen im Bereich von Femtosekunden auf. Es ist qualitativ gezeigt, dass LIBS-Spektren

<sup>6</sup>Typ *BG-18* vom Hersteller *Schott AG*, Mainz



**Abb. 4.7:** Hier ist das Spektrum von LIBS mit Femtosekundenpulsen an einer Wolframoberfläche zu sehen. Die sichtbaren Linien wurden bestimmt und das Laserspektrum mit Hilfe eines Farbfilters (BG-18) entfernt, weil das Laserlicht die Linienstrahlung sonst dominieren würde. Es sind Linien von atomarem Wolfram deutlich sichtbar, so dass gezeigt ist, dass LIBS bei hohen Intensitäten  $I = 3,14 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$  möglich ist[53].

mit ultrakurzen und hochintensiven Laserpulsen von Wolfram als einem für Fusionsreaktoren relevantem Wandmaterial detektiert werden können. Gleichzeitig stellt die quantitative Messung von LIBS-Spektren mit dem Ziel Erkenntnisse über die Menge der in der Wand eingelagerten Fusionsprodukte zu erlangen andere Anforderungen.

Für quantitative Messungen mit LIBS ist es unerlässlich, den Entstehungsprozess des Ablationskraters zu kennen. Neben den Ablationstiefen in Abhängigkeit von der Intensität ist es wichtig zu wissen, wie die Pulsenergie in den Festkörper eingebracht wird.

Femtosekunden können nur dann einen Vorteil gegenüber Nanosekunden bieten, wenn der Wärmeeintrag definierter aufhört als bei Nanosekundenpulsen, bei denen der Wärmeeintrag tiefer als der sichtbare Krater ins Material reicht. Somit ist nicht definiert, aus welcher Tiefe des Wandmaterials eines Fusionsreaktors die

Wasserstoffisotope stammen.

Für das Verständnis des Wechselwirkungsprozesses ist es notwendig, die Abhängigkeit von der Laserintensität zu kennen. Eine Variation der Laserintensität über die Veränderung der Pulsdauer ist nicht zielführend, weil die ultrakurzen Pulse den Wärmeeintrag in den Festkörper reduzieren. Die Intensitätsvariation über die Fläche, wie in diesem Kapitel gezeigt, bringt zusätzlich zur veränderlichen Kratergröße eine weitere Variable, so dass die Kratergröße nicht isoliert betrachtet werden kann. Es ist also zwingend notwendig eine Methode zur Abschwächung von ultrakurzen Laserpulsen zu entwickeln, bei der Fläche und Pulsdauer konstant bleiben. Der neuartige Dünnschichtabschwächer wird in Kapitel 5 vorgestellt, der die experimentelle Voraussetzung für die Entwicklung eines Modells für die Energiedeposition von ultrakurzen Laserpulsen in Festkörpern bietet (siehe Kapitel 6.1). Die primäre Wechselwirkung eines ultrakurzen Laserpulses mit dem Festkörper bzw. dem erzeugten Plasma ist durch PIC Codes (siehe dazu Kapitel 6.3.1) gut darstellbar. Darauf aufbauend wird ein Modell gezeigt, mit dem die Kratergrößen erklärbar sind.

Für eine quantitative Spektroskopie ist es notwendig, den Zusammenhang zwischen emittierter Intensität der charakteristischen Linienstrahlung und Anzahl der Atome im Festkörper zu kennen. Dies ist aber nicht mehr Umfang dieser Arbeit.

# 5 Abschwächung ultrakurzer Laserpulse

Wie im vorherigen Kapitel 4 gezeigt, ist die Variation der Intensität über eine Flächenänderung bei der Untersuchung von Ablationsprozessen und Kratererzeugung mit dem Problem verbunden, dass die Kratergröße nicht unabhängig von der Flächenänderung untersucht werden kann.

In diesem Kapitel werden zunächst die gängigen Methoden der Intensitätsvariation vorgestellt und erläutert, warum diese bei dem verwendeten Lasersystem und mit *few-cycle*-Pulsen nicht umsetzbar sind (Kapitel 5.1).

Im Anschluss (Kapitel 5.2) daran wird die Transfermatrixmethode vorgestellt, die die Reflektivität von dünnen Schichten auf Oberflächen berechnen kann. Aufbauend auf diesen Erkenntnissen folgt die Entwicklung eines Abschwächers für *few-cycle*-Pulsen für den täglichen Laborbetrieb.

## 5.1 Methoden der Intensitätsvariation

Viele Phänomene in der Laser-Plasma-Physik sind von der Intensität abhängig. Die Variation der Intensität lässt sich durch die Veränderung der Fläche, Pulsdauer und Pulsenergie erreichen.

Eine Änderung der Pulsdauer zur Variation der Intensität kommt bei *few-cycle* Pulsen nicht in Frage, weil gerade diese ultrakurzen Pulse die Untersuchung von Prozessen auf ultrakurzen Zeitskalen ermöglichen. Darüber hinaus verbietet sich die nachträgliche Verlängerung der Pulsdauer nach der Verkürzung der Pulse, die mit erheblichem Verlusten einhergeht (vergl. Kapitel 3.1).

Die Intensitätsvariation über eine Änderung der Fläche ist eine bewährte Vorgehensweise und einfach zu realisieren, indem das Target an verschiedenen Positionen im konvergenten Strahl positioniert wird. Problematisch an dieser Methode ist zum Einen die Vergrößerung der Fläche der Wechselwirkung an sich, so dass bei der Erzeugung von Kratern die Größe des Kraters nicht nur auf die veränderte Intensität, sondern auch auf die veränderte Fläche bezogen werden muss. Dadurch ist es nicht möglich den Effekt der größeren Fläche von der Intensität zu trennen.

Zum Anderen ist die Intensität außerhalb des Fokus nicht genau bestimmbar, weil der Strahl bedingt durch Oberflächenfehler von Spiegeln vom idealen Gaußstrahl abweicht, was sich vor allem außerhalb vom Fokus zum Beispiel durch ein inhomogenes Strahlprofil äußert. Die Inhomogenitäten können zu abweichenden Kraterformen führen.

Folglich stellt die Intensitätsvariation durch Änderung der Pulsenergie die einzige Alternative dar, ist jedoch mit einigen Herausforderungen verbunden, die in den Besonderheiten von hochintensiven *few-cycle* Pulsen begründet liegen:

**Neutraldichtefilter** In vielen Laseranwendungen stellt die Abschwächung mit Neutraldichtefilter<sup>1</sup> eine gängige Methode dar. Diese Filter bestehen zu über 60 % aus Quarzglas.<sup>2</sup> In Kapitel 2.1 und in Gleichung (2.17) ist gezeigt, dass jede Propagation durch Material den Puls verändert. Bei einem typischen Neutraldichtefilter<sup>3</sup> mit einer Transmission von 0,1 (bei einer Wellenlänge von 800 nm) beträgt die Dicke ca. 2 mm und bestünde sie angenommen nur aus Quarzglas, so ergäbe sich gemäß Gleichung (2.17) mit einer bandbreitenbegrenzten Pulslänge von 10 fs eine neue Pulslänge von 22 fs. Daraus resultiert, dass ein Puls dieser Länge kein *few-cycle* Puls mehr ist.

Außerdem unterliegt die Transmission von Neutraldichtefilter im Bereich der Wellenlänge des verwendeten Lasers deutlichen Schwankungen, so dass durch die Transmission nicht nur die spektrale Phase, sondern das gesamte Spektrum des Pulses verändert wird. Zudem beeinflussen thermische Veränderungen der Filter die Strahlqualität durch Energieeintrag bei der Abschwächung. Offensichtlich ist Abschwächung durch Transmission keine Option für die Intensitätsvariation bei hochenergetischen *few-cycle* Pulsen.

**Pumpleistung** Eine weitere bekannte Möglichkeit von anderen Lasersystemen ist die Reduktion der Pumpleistung. Aus drei Gründen ist dies nicht möglich: Zunächst ist der Umfang der Abschwächung begrenzt durch die Strahlgestabilisierung, die den Durchgang durch den Gitterkompressor stabilisiert, weil eine Änderung an dieser Stelle zu unerwünschtem Rücklauf der 1. oder -1. Ordnung im Multi-Pass-Verstärker und dadurch zu Schäden führen kann. Die dafür verantwort-

---

<sup>1</sup>zum Beispiel Filtergläser NG9 vom Hersteller: Schott AG, Mainz

<sup>2</sup>Datenblatt für NG9 mit Stand vom 1.12.2014

<sup>3</sup>Artikel NE530B vom Hersteller Thorlabs GmbH, Dachau

liche Vier-Quadranten-Diode benötigt eine Mindestintensität zur Regelung, die die Abschwächung auf ca. eine Größenordnung reduziert. Des Weiteren verändert sich mit der geringeren Intensität das Strahlprofil des Verstärkers. Dies hat eine schlechtere Einkoppelung in die Hohlaser zur Folge.

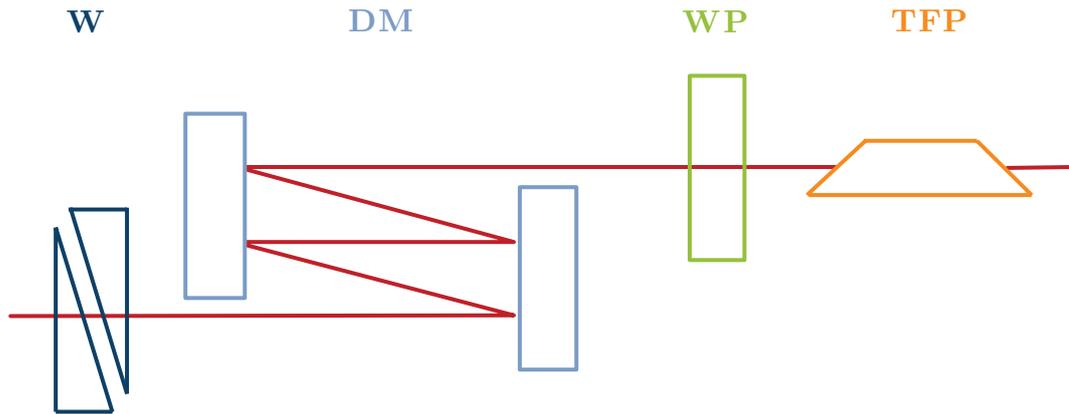
Das stärkste Argument gegen die Abschwächung im Multi-Pass-Verstärker ist die spektrale Verbreiterung in der Hohlaser und dessen Einkopplung. Die Lage des Fokus im Gehäuse der Hohlaser ist bestimmt durch die Selbstfokussierung von hochintensiven Laserstrahlen in Medien, die nichtlinear von der Intensität abhängt, so dass ein Strahl aus schwächeren Laserpulsen eine längere Brennweite hat als ein intensiverer Strahl[54].

In Folge dessen bedürfe es bei jeder Variation der Pulsenergie einer zeitaufwändigen Neujustage der Hohlaser. Grundlage für die spektrale Verbreiterung in der Hohlaser ist die Selbstphasenmodulation, die nicht-linear von der Intensität abhängt[55]. Eine Reduzierung der Pulsenergie vor dem Eintritt in die Hohlaser hat jedoch eine reduzierte Selbstphasenmodulation und damit eine geringe spektrale Breite zur Folge. Dieses Argument schließt die Variation der Pulsenergie im Verstärker vollständig aus, weil damit eine Variation der Intensität durch die Änderung der Pulsenergie auch eine Änderung der Pulslänge zur Folge hätte und somit einen weiteren Parameter verändern würde. Im Falle einer geringeren in die Faser eingekoppelten Intensität reduziert sich die spektrale Breite und somit das Fourierlimit (vergl. Gleichung (2.14))

Zusätzlich tritt der Effekt auf, dass sich durch den veränderten Wärmeeintrag in den Verstärkerkristall die thermische Linse ändert, die zu einer veränderten Divergenz und damit anderen Einkopplung in die Hohlaser führt, so dass weder Pulsenergie noch Spektrum gleich bleiben.

**Akusto-Optischer-Modulator** Der akusto-optische Modulator (vergl. Kapitel 3.1) bietet eine Reduktion der Pulsenergie über die Amplitude, die in den AOM-Kristall eingekoppelt wird. Diese Möglichkeit verhindert zwar die Veränderung der thermischen Linse im Verstärkerkristall, schließt sich dennoch wegen der oben genannten Probleme aus.

**Polarisator** Vielfach wird bei Lasern die Abschwächung durch Polarisierung vorgenommen, die wegen der hohen Bandbreite von *few-cycle*-Pulsen in diesem Fall schwierig zu realisieren ist. Allerdings ist ein solcher Abschwächer kommerziell



**Abb. 5.1:** Kernelement dieses Abschwächers ist ein Dünnschichtpolarisator (TFP), der senkrecht polarisiertes Licht reflektiert. Der Anteil von senkrecht polarisiertem Licht wird durch eine rotierbare  $\lambda/2$ -Platte (WP) eingestellt, so dass eine stufenlose Abschwächung um 1,5 Größenordnungen theoretisch möglich ist. Die Glaskeile (W) und die dispersiven Spiegel (DM) sind nur zur Einstellung der Dispersion notwendig.

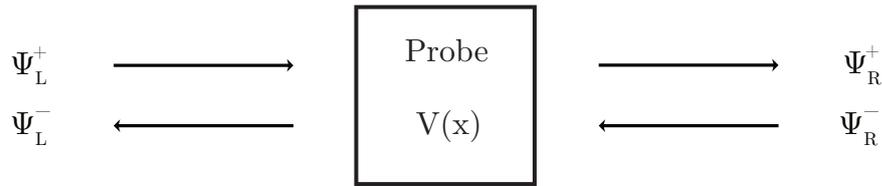
erhältlich.<sup>4</sup> Der schematische Aufbau ist in Abbildung 5.1 gezeigt. Dabei läuft der Puls zunächst über vier Spiegel (DM), die eine negative Dispersion haben um die Dispersion der darauf folgenden Komponenten zu kompensieren. Im Strahlengang befinden sich zuvor zwei Glaskeile, die durch gegeneinander Verschieben die Menge an Glas im Strahlengang verändern, so dass eine negative Dispersion der Spiegel vollständig und feinschrittig kompensiert werden kann.

Nach einer  $\lambda/2$ -Platte (WP) propagiert der Puls durch zwei Dünnschichtpolarisatoren (TFP), die im Brewster-Winkel angeordnet sind. An deren Oberflächen wird senkrecht polarisiertes Licht reflektiert und der Strahl mit paralleler Polarisation transmittiert. Der Puls kann nun abgeschwächt werden, indem die Polarisation durch die rotierbare  $\lambda/2$ -Platte gedreht wird und so Anteile der Pulsenergie in Abhängigkeit von dem Verhältnis der Polarisationen reflektiert werden.

Bei diesem Abschwächer traten zwei Probleme auf, die einen Einsatz verhinderten: Das räumliche Strahlprofil zeigte keinen gaußförmigen Verlauf mehr und das Spektrum des Pulses wurde so verändert, dass der Puls nicht mehr komprimierbar war.

Abschließend ist festzuhalten, dass keine der oben beschriebenen Methoden für die aktuelle experimentelle Lage geeignet ist. Auf Grundlage dieser vielfältigen

<sup>4</sup>Typ OA331 vom Hersteller *FemtoLasers GmbH*, Wien



**Abb. 5.2:** Bei einem typischen Streuexperiment werden die einlaufenden Wellen von links  $\Psi_L^+$  und rechts  $\Psi_R^-$  betrachtet. Sie streuen an einer Probe mit dem Potential  $V(x) > 0$ . Die gestreuten Wellen sind  $\Psi_L^-$  und rechts  $\Psi_R^+$

Anforderungen wurde ein neuartiger Abschwächer auf der Grundlage der Reflexion an dünnen Schichten entwickelt. Im folgenden Abschnitt dieses Kapitels werden zunächst die Grundlagen der veränderlichen Reflexion an dünnen Schichten erläutert und danach die Realisierung eines praktischen Laborgerätes beschrieben.

## 5.2 Reflexionen an dünnen Metallschichten

Metallschichten im Bereich von Nanometer unterscheiden sich insbesondere in der Transmission von dickeren Schichten. Während Metallschichten ab ca. 50 nm eine Reflektivität oberhalb von 90 % zeigen, kann über die Schichtdicke bei geringeren Dicken die Reflektivität angepasst werden. Wie sich nun die Reflektivität von dünnen Metallschichten auf einem Glasspiegel als Mehrschichtsystem verhält, soll in diesem Kapitel mit Hilfe von Transfermatrizen erklärt werden. Das Konzept der Transfermatrizen basiert auf [56].

### 5.2.1 Transfermatrizen

Zunächst wird das Grundprinzip von Transfermatrizen erklärt. Dazu betrachten wir zunächst ein allgemeines Streuexperiment, bei dem wie in Abbildung 5.2 eine Welle  $\Psi$  an einer Probe gestreut wird. Die von links  $\Psi_L^+$  und rechts  $\Psi_R^-$  einlaufenden Wellen werden an der Probe mit einem Potential  $V(x) > 0$  im Bereich  $0 < x < l$  gestreut und reflektiert bzw. transmittiert. Im folgenden Abschnitt werden mit + nach rechts laufende Wellen und mit – nach links laufende Wellen

bezeichnet:

$$\begin{aligned}\Psi_L^+(x) &= Ae^{iqx} & \Psi_L^-(x) &= Be^{-iqx} \\ \Psi_R^+(x) &= Ce^{iqx} & \Psi_R^-(x) &= De^{-iqx}.\end{aligned}\tag{5.1}$$

Die Gesamtwellen errechnen sich aus  $\Psi_{L/R} = \Psi_{L/R}^+ + \Psi_{L/R}^-$ . Sollen  $\Psi_R(x)$  und  $\Psi_L(x)$  komplett bekannt sein, muss die Schrödinger Gleichung gelöst werden:

$$-\frac{\hbar^2}{2m} \frac{\partial^2 \Psi(x)}{\partial x^2} + [V(x) - E] \Psi(x) = 0.\tag{5.2}$$

Eine allgemeine Lösung von  $\Psi(x)$  ist nur möglich, wenn  $V(x)$  bekannt ist. In der Regel ist aber nur die Wellenfunktion außerhalb des Materials von Interesse, so dass folgender Zusammenhang für die einlaufenden und auslaufenden Wellen über die Streumatrix  $\overleftarrow{S}$  aufgestellt werden kann:

$$\begin{pmatrix} \Psi_L^-(x=0) \\ \Psi_R^+(x=l) \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} S_{11} & S_{12} \\ S_{21} & S_{22} \end{pmatrix} \cdot \begin{pmatrix} \Psi_L^+(x=0) \\ \Psi_R^-(x=l) \end{pmatrix}.\tag{5.3}$$

Darüber hinaus sollen vor allem die an der Frontseite reflektierte und an der Rückseite transmittierte Welle direkt zu berechnen sein, also  $\Psi_L^-(x=0)$  und  $\Psi_R^+(x=l)$ . Die Streumatrix  $\overleftarrow{S}$  wird zur Transfermatrix  $\overrightarrow{M}$  umgeformt, so dass gilt:

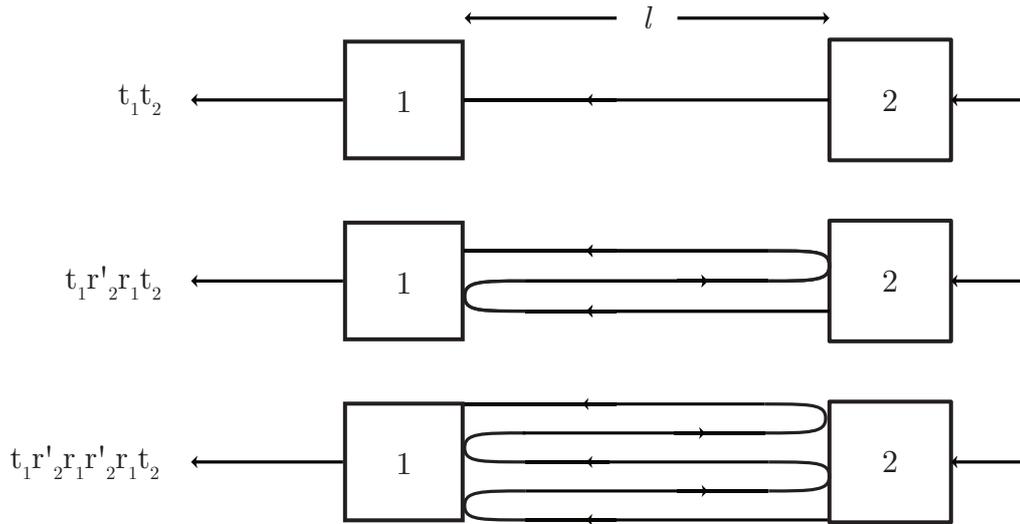
$$\begin{aligned}\begin{pmatrix} \Psi_R^+(x=l) \\ \Psi_R^-(x=l) \end{pmatrix} &= \overrightarrow{M} \begin{pmatrix} \Psi_L^+(x=0) \\ \Psi_L^-(x=0) \end{pmatrix} \\ \text{mit } \overrightarrow{M} &= \begin{pmatrix} M_{11} & M_{12} \\ M_{21} & M_{22} \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} -\frac{S_{11}}{S_{12}} S_{21} & S_{21} + \frac{S_{21}}{S_{12}} \\ -\frac{S_{11}}{S_{12}} & \frac{1}{S_{12}} \end{pmatrix}.\end{aligned}\tag{5.4}$$

Die Matrix  $M$  drückt nun die Eigenschaften der auslaufenden Welle als Eigenschaften der einlaufenden Welle aus. Die Streumatrix  $S$  hingegen ist im Allgemeinen wie folgt definiert, wobei  $t$  die transmittierte und  $r$  die reflektierte Amplitude bezeichnet. Dabei ist die von links einlaufende Welle mit  $'$  gekennzeichnet:

$$S = \begin{pmatrix} r' & t \\ t' & r \end{pmatrix}.\tag{5.5}$$

Womit sich die Transfermatrix  $M$  darstellen lässt als:

$$\overrightarrow{M} = \begin{pmatrix} t' - rt^{-1}r' & rt^{-1} \\ -t^{-1}r' & t^{-1} \end{pmatrix}.\tag{5.6}$$



**Abb. 5.3:** Hier ist schematisch die Berechnung der Transmission durch zwei Potentiale gezeigt. Die Potentiale 1 und 2 sind durch  $l$  zur besseren Verdeutlichung getrennt, aber im Text wird  $l = 0$  verwendet.

Eine andere, übliche Schreibweise für die Transfermatrix  $T$ , die auf den Koeffizienten in den Wellenfunktionen (Gleichung (5.1)) basiert, ist:

$$\begin{pmatrix} C \\ D \end{pmatrix} = T \begin{pmatrix} A \\ B \end{pmatrix}. \quad (5.7)$$

Nach Einsetzen der Wellenfunktionen kann Transfermatrix  $M$  wie folgt definiert werden:

$$M = \begin{pmatrix} e^{iql} & 0 \\ 0 & e^{-iql} \end{pmatrix} T. \quad (5.8)$$

Wenn für das streuende Potential gilt  $V = 0$ , ist die Matrix  $T$  die Einheitsmatrix, während die Matrix  $M$  die Phasenverschiebung beinhaltet, die die Welle erfährt, wenn sie durch ein Material propagiert. Da die Phaseninformation bei dünnen Schichten jedoch relevant ist, wird im Folgenden mit der Matrix  $M$  weiter gearbeitet. Darüber hinaus kann die Welle auch durch zwei Potentiale (bzw. Grenzflächen) propagieren, wie es in Abbildung 5.3 mit einer Laufrichtung von rechts nach links gezeigt ist. Die zwei Potentiale sind wie folgt bestimmt:  $V_1(x)$  im Bereich  $(a < x \leq b)$  und  $V_2(x)$  auf  $(b \leq x < c)$ . Der Abstand zwischen den beiden Potentiale ist also null. Es ist die Frage, ob die Durchgänge durch

die Potentiale isoliert betrachtet werden müssen oder ob ein Potential  $V_{12}(x)$  definiert werden kann, das die einzelnen Potentiale vereinigt. Zunächst werden die Wellenfunktionen in den drei Regionen wie folgt definiert:

$$\begin{aligned}\Psi_L(x) &= \Psi_L^+(x) + \Psi_L^-(x) & \text{für } x \leq a \\ \Psi(x) &= \Psi^+(x) + \Psi^-(x) & \text{für } x \equiv b \\ \Psi_R(x) &= \Psi_R^+(x) + \Psi_R^-(x) & \text{für } x \geq c\end{aligned}\tag{5.9}$$

Nach der Definition können folgende Transfermatrizen aufgestellt werden:

$$\begin{pmatrix} \Psi^+(b) \\ \Psi^-(b) \end{pmatrix} = M_1 \begin{pmatrix} \Psi_L^+(a) \\ \Psi_L^-(a) \end{pmatrix} \quad \text{und} \quad \begin{pmatrix} \Psi_R^+(c) \\ \Psi_R^-(c) \end{pmatrix} = M_2 \begin{pmatrix} \Psi^+(b) \\ \Psi^-(b) \end{pmatrix}.\tag{5.10}$$

Werden die beiden Zusammenhänge aus Gleichung (5.10) kombiniert, so ergibt sich:

$$\begin{pmatrix} \Psi_R^+(c) \\ \Psi_R^-(c) \end{pmatrix} = M_2 M_1 \begin{pmatrix} \Psi_L^+(a) \\ \Psi_L^-(a) \end{pmatrix} = M_{12} \begin{pmatrix} \Psi_L^+(a) \\ \Psi_L^-(a) \end{pmatrix}.\tag{5.11}$$

Die Transfermatrixmethode ist vor allem vorteilhaft, wenn mehrere Übergänge betrachtet werden müssen. Transfermatrizen können also wie folgt kombiniert werden:

$$M_{12} = M_2 M_1\tag{5.12}$$

Für eine von rechts durch das System laufende Welle kann die Transfermatrix mit Hilfe der Transmissions-  $t$  und Reflexionskoeffizienten  $r$  geschrieben werden als (vgl. Gleichung (5.6)):

$$\begin{aligned}M_{12} &= \begin{pmatrix} t'_2 - r_2 t_2^{-1} r'_2 & r_2 t_2^{-1} \\ -t_2^{-1} r'_2 & t_2^{-1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} t'_1 - r_1 t_1^{-1} r'_1 & r_1 t_1^{-1} \\ -t_1^{-1} r'_1 & t_1^{-1} \end{pmatrix} \\ &= \begin{pmatrix} t'_{12} - r_{12} t_{12}^{-1} r'_{12} & r_{12} t_{12}^{-1} \\ -t_{12}^{-1} r'_{12} & t_{12}^{-1} \end{pmatrix}.\end{aligned}\tag{5.13}$$

Die Amplitude der Transmission durch beide Materialien  $t_{12}$  kann zum Beispiel der Matrixmultiplikation entnommen werden als:

$$t_{12}^{-1} = (t_2 t_1)^{-1} - (t_2 t_1)^{-1} r'_2 r_1.\tag{5.14}$$

was wiederum geschrieben werden kann als

$$t_{12} = t_1 t_2 \left[ 1 - r'_2 r_1 \right]^{-1}.\tag{5.15}$$

Eine Reihenentwicklung der rechten Seite verdeutlicht die physikalische Bedeutung:

$$t_{12} = t_1 \left[ 1 + r'_2 r_1 + r'_2 r_1 r'_2 r_1 \cdots \right] t_2. \quad (5.16)$$

Die Transmissionsamplitude durch beide Materialien  $t_{12}$  ist durch die Summe aller möglichen Wege durch die zwei Potentiale gegeben, wie es in Abbildung 5.3 dargestellt ist. Jeder Summand der Gleichung (5.16) repräsentiert einen Durchgang.

Der erste Summand  $t_1 t_2$  gibt die Transmission durch beide Potentiale an. Der zweite Term  $t_1 t_2 r'_2 r_1$  bildet die Transmission durch  $V_2$  mit  $t_2$ , darauf die Reflexion am ersten Potential  $V_1$  mit  $r_1$ , die Reflexion am zweiten Potential  $V_2$  mit  $r'_2$  und die Transmission durch Potential  $V_1$  mit  $t_1$  ab. Die höheren Ordnungen stellen dann die entsprechend häufigeren Reflexionen an den Potentialen vor Transmission durch das Potential  $V_1$  dar. Ein interessanter Sonderfall stellt  $V_2(x) = 0$  dar, wodurch sich die Transfermatrix reduziert zu:

$$M_{12} = \begin{pmatrix} e^{iq_l} & 0 \\ 0 & e^{-iq_l} \end{pmatrix} M_1 \quad \text{mit} \quad l = c - b. \quad (5.17)$$

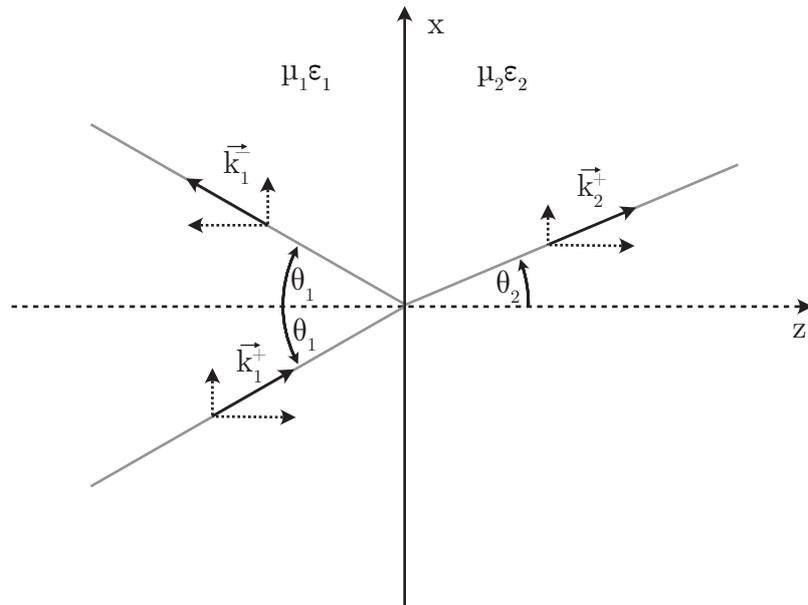
### 5.2.2 Transfermatrizen bei EM-Wellen

Mit Hilfe der Transfermatrizen können Reflexion und Transmission von elektromagnetischen Wellen an Grenzflächen beschrieben werden. Weil es dem im Kapitel 5.3 genutzten Szenario entspricht, wird nach einer kurzen, allgemeinen Einführung hier das Szenario für die Grenzfläche zwischen Dielektrikum und Metall unter p-Polarisation beschrieben.

Betrachten wir zunächst eine ebene Welle, die an einer Grenzfläche auftritt, wie in Abbildung 5.4 gezeigt, so gelten für das elektrische  $\vec{E}$  und das magnetische Feld  $\vec{H}$  die folgenden Gleichungen:

$$\vec{E}(\vec{r}, t) = \vec{E}_0 e^{j[\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t]} \quad \text{und} \quad \vec{H}(\vec{r}, t) = \vec{H}_0 e^{j[\vec{k} \cdot \vec{r} - \omega t]}. \quad (5.18)$$

Die beiden Medien sind durch ihre Permeabilitäten  $\epsilon_{1,2}$  und ihre Permittivitäten  $\mu_{1,2}$  gekennzeichnet. Zur Orientierung wird ein Koordinatensystem gewählt, das die  $z$ -Richtung in Propagationsrichtung und  $x$  senkrecht dazu wählt, wie in Abbildung



**Abb. 5.4:** Elektromagnetische Welle mit Propagationsrichtung  $z$  an einer Grenzfläche bei  $x = 0$  zwischen zwei Medien mit  $\epsilon_1\mu_1$  und  $\epsilon_2\mu_2$

5.4 gezeigt, wodurch sich der Wellenvektor  $\vec{k}$  reduziert zu:

$$\vec{k} = \begin{pmatrix} k_x \\ 0 \\ k_z \end{pmatrix}. \quad (5.19)$$

Auch in Abbildung 5.4 ist die von links nach rechts laufende Welle mit  $+$  und die entgegengesetzte Welle mit  $-$  gekennzeichnet. Weil die Reflexion von elektromagnetischen Wellen ein zwei-dimensionales Problem ist, werden Randbedingungen an der Grenzfläche benötigt, die aus den Maxwell-Gleichungen folgen. Die Tangentialkomponenten des elektrischen und des magnetischen Feldes müssen gleich sein:

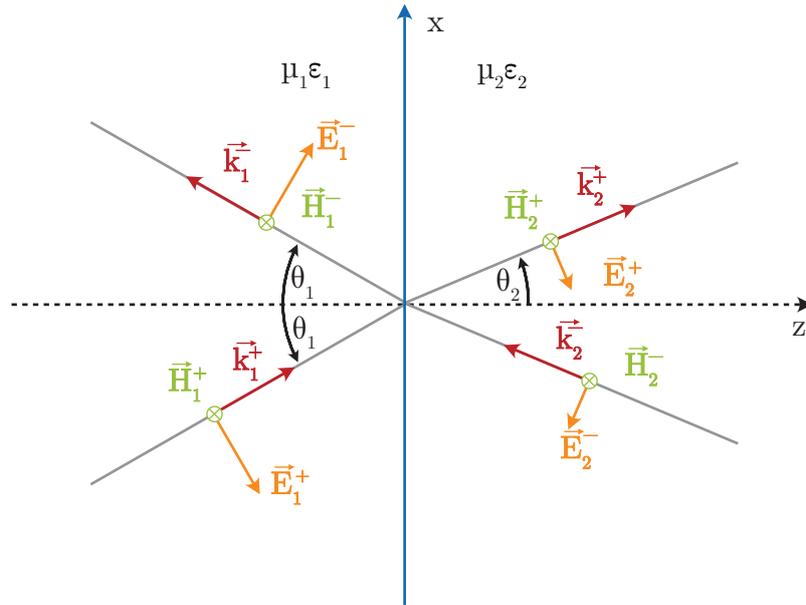
$$\vec{E}_{1t} = \vec{E}_{2t} \quad \text{und} \quad \vec{H}_{1t} = \vec{H}_{2t}. \quad (5.20)$$

Für die Tangentialkomponente des Wellenvektors gilt:

$$k_{1x} = k_{2x} = k_x. \quad (5.21)$$

Die Dispersion elektromagnetischer Wellen lautet, wobei gilt  $k = |\vec{k}|$ :

$$\frac{n^2\omega^2}{c^2} = k^2 \quad \text{mit} \quad n = \sqrt{\epsilon\mu}. \quad (5.22)$$



**Abb. 5.5:** Streuung einer parallel polarisierten Welle an einer Grenzfläche bei  $z = 0$ .

Für die einlaufende und auslaufende Welle gilt also:

$$\begin{aligned} \frac{n_1^2 \omega^2}{c^2} &= k_1^2 = k_x^2 + k_{1z}^2 \quad \text{mit} \quad n_1 = \sqrt{\epsilon_1 \mu_1} \\ \frac{n_2^2 \omega^2}{c^2} &= k_2^2 = k_x^2 + k_{2z}^2 \quad \text{mit} \quad n_2 = \sqrt{\epsilon_2 \mu_2}. \end{aligned} \quad (5.23)$$

Aus geometrischen Überlegungen ergibt sich außerdem:

$$k_x = k_1 \sin \theta_1 = k_2 \sin \theta_2. \quad (5.24)$$

Nach Einsetzen von Gleichung (5.23) erhalten wir:

$$k_x = n_1 \frac{\omega}{c} \sin \theta_1 = n_2 \frac{\omega}{c} \sin \theta_2. \quad (5.25)$$

Aus Gleichung (5.25) lässt sich das Reflexionsgesetz nach Snell ableiten. Im weiteren Verlauf werden nun die Transmissions- und Reflexionskoeffizienten für p-polarisiertes Licht hergeleitet, weil der Laser parallel polarisiertes Licht bereitstellt. Die Transfermatrixmethode ist für einfache Übergänge an Grenzflächen nicht notwendig, zeigt jedoch bei mehreren Übergängen und bei dünnen Schichten ihre Stärken.

In Abbildung 5.5 werden die Reflexion und Transmission von Wellen an einer Grenzfläche gezeigt, die analog zu Abbildung 5.4 bezeichnet sind. Die einlaufenden Wellen  $E_1^+$  und  $E_2^-$  werden an der Grenzfläche reflektiert und transmittiert.

Natürlich gibt es bei einem klassischen Spiegel die Welle  $E_2^-$  nicht, weil der Spiegel nur von einer Seite beleuchtet wird. Aus Symmetriegründen und um bei mehreren Schichten die Reflexionen an den unteren Schichten zu berücksichtigen wird die Komponente  $E_2^-$  mit aufgeführt. Für p-polarisiertes Licht gilt für das elektrische und das magnetische Feld:

$$\vec{H} = \begin{pmatrix} 0 \\ H \\ 0 \end{pmatrix} \quad \vec{E} = \begin{pmatrix} E_x \\ 0 \\ E_z \end{pmatrix}. \quad (5.26)$$

Aus den Randbedingungen für die Reflexion an Oberflächen ergeben sich folgende Zusammenhänge:

$$H_1^+ + H_1^- = H_2^+ + H_2^- \quad (5.27)$$

$$E_{1x}^+ + E_{1x}^- = E_2^+ + E_2^-. \quad (5.28)$$

Elektrisches und magnetisches Feld sind über die Maxwellgleichungen verbunden, so dass folgende Zusammenhänge entstehen:

$$\frac{\epsilon_1 \omega}{c} E_{1x}^+ = k_{1z} H_1^+ \quad (5.29)$$

$$\frac{\epsilon_1 \omega}{c} E_{1x}^- = k_{1z} H_1^-. \quad (5.30)$$

Für die Welle 2 werden diese Gleichungen analog aufgestellt und können in folgender Matrixform dargestellt werden:

$$\begin{pmatrix} 1 & 1 \\ \frac{k_{1z}}{\epsilon_1} & -\frac{k_{1z}}{\epsilon_1} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H_1^+ \\ H_1^- \end{pmatrix} = \begin{pmatrix} 1 & 1 \\ -\frac{k_{2z}}{\epsilon_2} & +\frac{k_{2z}}{\epsilon_2} \end{pmatrix} \begin{pmatrix} H_2^+ \\ H_2^- \end{pmatrix}. \quad (5.31)$$

Das Gleichungssystem (5.31) wird auf nachstehende Form gebracht:

$$\begin{pmatrix} H_2^+ \\ H_2^- \end{pmatrix} = M^p \begin{pmatrix} H_1^+ \\ H_1^- \end{pmatrix}. \quad (5.32)$$

Mit der Transfermatrix  $M$ , die wie unten ersichtlich aufgebaut ist:

$$M^p = \frac{1}{2} \begin{pmatrix} 1 + \frac{\epsilon_2 k_{1z}}{\epsilon_1 k_{2z}} & 1 - \frac{\epsilon_2 k_{1z}}{\epsilon_1 k_{2z}} \\ 1 - \frac{\epsilon_2 k_{1z}}{\epsilon_1 k_{2z}} & 1 + \frac{\epsilon_2 k_{1z}}{\epsilon_1 k_{2z}} \end{pmatrix}. \quad (5.33)$$

Aus der Transfermatrix  $M$  (Gleichung (5.33)) können die reflektierten  $r$  und transmittierten  $t$  Amplituden des magnetischen Feldes bestimmt werden zu:

$$t = \frac{\det M^p}{M_{22}^p} = \frac{2\epsilon_2 k_{1z}}{\epsilon_2 k_{1z} + \epsilon_1 k_{2z}} \quad (5.34)$$

$$r = -\frac{M_{21}^p}{M_{22}^p} = \frac{\epsilon_2 k_{1z} - \epsilon_1 k_{2z}}{\epsilon_2 k_{1z} + \epsilon_1 k_{2z}}. \quad (5.35)$$

Die Reflexions-  $R$  und Transmissionskoeffizienten  $T$  ergeben sich aus

$$T = \frac{\epsilon_1 \operatorname{Re} k_{2z}}{\epsilon_2 \operatorname{Re} k_{1z}} |t|^2 \quad (5.36)$$

$$R = |r|^2. \quad (5.37)$$

Der Einfallswinkel kann über die Beziehung  $k_z = k \cos \theta$  berücksichtigt werden. Ebenso ist erwähnenswert, dass die Fresnellschen Formeln direkt aus den Gleichungen (5.34) und (5.35) hergeleitet werden können. Mehrere Übergänge berechnen sich nach dem Kompositionsprinzip (Gleichung (5.12)). Im Folgenden wird das Kennzeichen  $p$  für p-Polarisation weggelassen und Transfermatrizen zwischen zwei Medien mit  $\epsilon_1$  und  $\epsilon_2$  werden ab jetzt mit  $M^{12}$  bezeichnet. Dabei läuft die Welle von Medium 1 nach Medium 2.

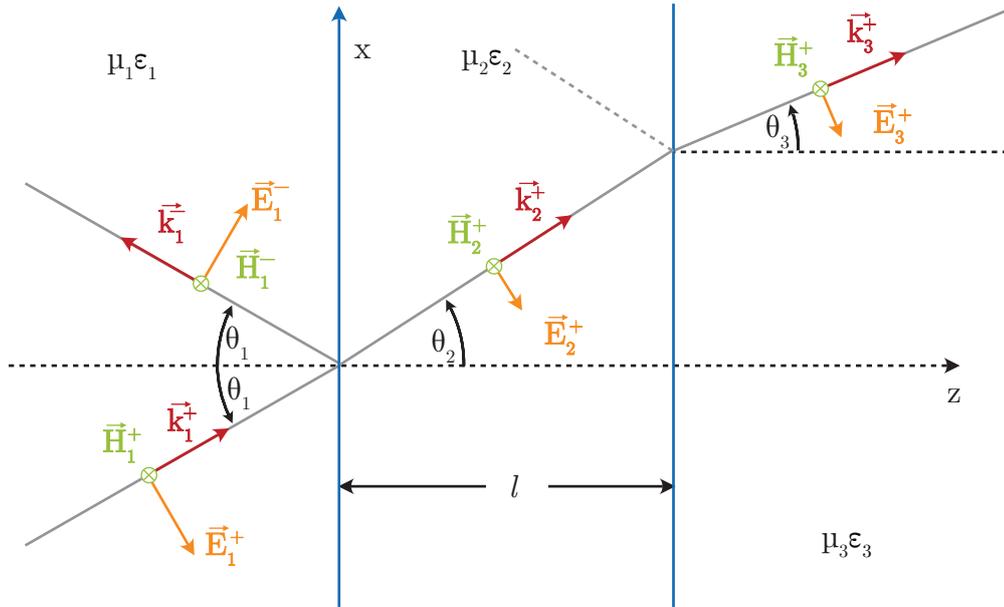
**Grenzflächen zwischen Dielektrikum und Metall** Für den Dünnschichtabschwächer sind vor allem dünne Metallschichten und deren Reflektionsverhalten interessant, so dass im folgenden Abschnitt auf die Grenzfläche zwischen einem Dielektrikum und einem Metall eingegangen wird. Die elektrische Permittivität eines Metalls  $\epsilon_m$  wird nach der Drude Theorie berechnet durch:

$$\epsilon_m = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega(\omega + i\gamma)}. \quad (5.38)$$

Über die Beziehung  $n = \sqrt{\epsilon\mu}$  ist erkennbar, dass der Brechungsindex für Metall eine komplexe Zahl ist. Darüberhinaus kann der komplexe Brechungsindex in einen Real- und einen Imaginärteil zerlegt werden:

$$n = n_0 + ik. \quad (5.39)$$

Dabei ist  $k$  der sog. Extinktionskoeffizient. Beide Werte ( $n_0$  und  $k$ ) können den gängigen Nachschlagewerken entnommen werden. Bei Metallen sind  $n_0$  und  $k$  im sichtbaren Bereich in der selben Größenordnung, während bei Dielektrika gilt:  $n_0 \gg k$ , so dass der Brechungsindex als reell angenommen wird. Da es sich hier um den Übergang von Dielektrikum nach Metall handelt, wird der Brechungsindex und alle von ihm abhängigen Größen komplex berechnet. Die Transfermatrizen bleiben jedoch in ihrer Struktur gleich.



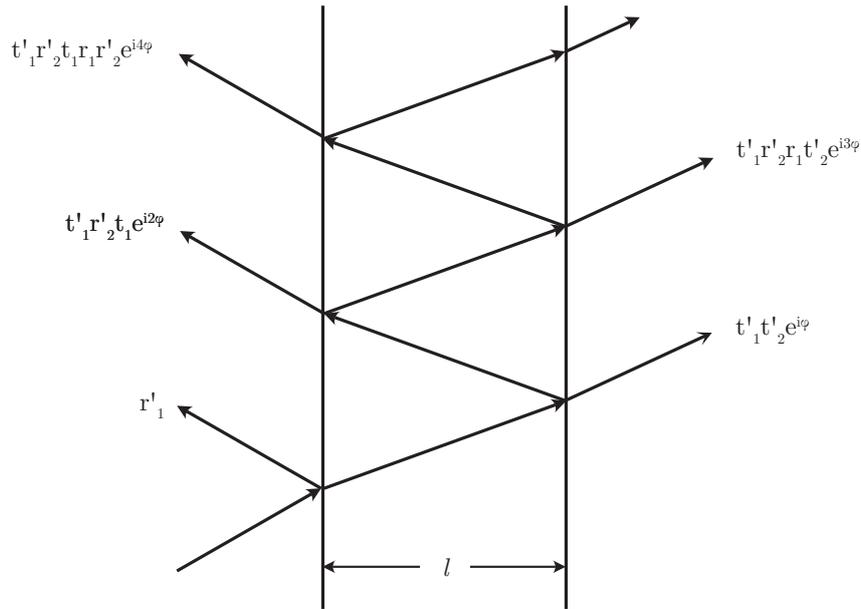
**Abb. 5.6:** Schematische Darstellung der Transmission einer p-polarisierten elektromagnetischen Welle durch eine dünne Schicht der Dicke  $l$  mit drei Grenzflächen.

**Transfermatrizen an dünnen Schichten** Nach dem Kompositionsprinzip für mehrere Übergänge kann die in Abbildung 5.6 gezeigte Anordnung von Reflexion und Transmission mit Transfermatrizen wie folgt beschrieben werden:

$$\begin{pmatrix} E_3^+ \\ E_3^- \end{pmatrix} = M^{12} \begin{pmatrix} e^{ik_{2z}l} & 0 \\ 0 & e^{ik_{2z}l} \end{pmatrix} M^{23} \begin{pmatrix} E_1^+ \\ E_1^- \end{pmatrix} = M^{\text{slab}} \begin{pmatrix} E_1^+ \\ E_1^- \end{pmatrix}. \quad (5.40)$$

Die Matrizen  $M^{12}$  und  $M^{23}$  sind durch Gleichung (5.33) gegeben. Die Diagonalmatrix ist die Transfermatrix für ein homogenes Medium zwischen zwei Grenzflächen. Aus Gründen der Lesbarkeit wird definiert:  $z_{ij} = \frac{\epsilon_j k_{iz}}{\epsilon_i k_{jz}}$  und  $k_z = k \cdot \cos \theta$ . Explizit sind die Einträge für  $M^{\text{slab}}$  wie folgt:

$$\begin{aligned} M_{11}^{\text{slab}} &= \frac{1}{2} [(1 + z_{12}z_{23}) \cos k_{2z}l + i(z_{23} + z_{12}) \sin k_{2z}l] \\ M_{12}^{\text{slab}} &= \frac{1}{2} [(1 - z_{12}z_{23}) \cos k_{2z}l + i(z_{23} - z_{12}) \sin k_{2z}l] \\ M_{21}^{\text{slab}} &= \frac{1}{2} [(1 + z_{12}z_{23}) \cos k_{2z}l - i(z_{23} + z_{12}) \sin k_{2z}l] \\ M_{22}^{\text{slab}} &= \frac{1}{2} [(1 - z_{12}z_{23}) \cos k_{2z}l - i(z_{23} - z_{12}) \sin k_{2z}l]. \end{aligned} \quad (5.41)$$



**Abb. 5.7:** Mehrfach Streuung einer elektromagnetischen Welle innerhalb einer dünnen Schicht. Es gilt  $\phi = kl / \cos \theta_2$ . Die Transmissions- und Reflexionsamplituden bestehen aus einer unendlichen Zahl von Beiträgen durch mehrfach Streuung an den Grenzflächen.

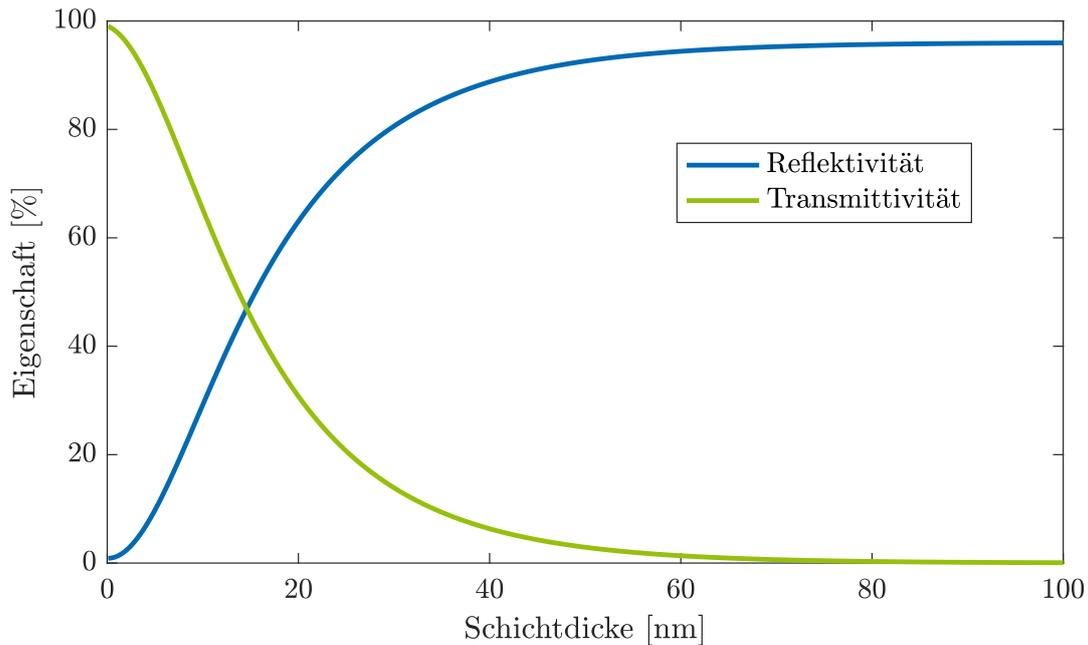
Daraus lassen sich die Transmission  $T$  und die Reflexion  $R$  ausrechnen mit:

$$T = \frac{\operatorname{Re} \frac{k_{3z}^+}{\epsilon_3}}{\operatorname{Re} \frac{k_{z1}^+}{\epsilon_1}} \left| \frac{\det M^{\text{slab}}}{M_{22}} \right|^2 \quad (5.42)$$

$$R = \left| -\frac{M_{21}^{\text{slab}}}{M_{22}^{\text{slab}}} \right|^2.$$

Es ist offensichtlich, dass die Transmission und die Reflexion bei einer dünnen Metallschicht zwischen zwei Dielektrika von der Dicke der Schicht abhängt. Diese Abhängigkeit wird bei der Entwicklung eines Dünnschichtabschwächers genutzt. Abbildung 5.7 zeigt die vielfache Reflexion zwischen zwei Grenzflächen, die analog zu den Streuexperimenten zwischen zwei Potentialen mit der Transfermatrixmethode beschrieben werden kann.

Abbildung 5.8 zeigt die Reflektivitäten und Transmittivitäten von dünnen Goldschichten auf BK7 Substraten in Abhängigkeit von der Dicke der Goldschicht unter einem Auftreffwinkel von  $\phi = 45^\circ$ . Während die Reflektivität mit der Schichtdicke zunimmt und bei ca. 100 nm den Literaturwert von 96 % annimmt, nimmt die Transmittivität mit der Dicke ab[57]. Beim anderen Grenzfall, keiner Goldschicht, entspricht die Reflektivität der von BK7 unter  $45^\circ$  für p-polarisiertes Licht.



**Abb. 5.8:** Transmissivität und Reflektivität von dünnen Goldschichten auf BK7-Spiegeln berechnet mit der Transfermatrixmethode.

Abbildung 5.8 verdeutlicht, dass eine Abschwächung auf der Basis von dünnen Schichten möglich ist.

### 5.3 Aufbau des Dünnschichtabschwächers

Das Wissen aus Kapitel 5.2 wird nun verwendet um einen Abschwächer in Reflexion zu entwickeln, der sich die von der Dicke  $l$  einer dünnen Metallschicht abhängige Reflektivität und Transmittivität zu Nutze macht.

**Auswahl des Metalls** An das Metall, an dem reflektiert werden soll, werden vielfältige Anforderungen gestellt. Zum einen muss es im gewünschten Spektralbereich eine ausreichende hohe Reflektivität besitzen und möglichst konstant bleiben. Weil durch den Abschwächer die spektrale Phase des Pulses nicht verändert werden soll, muss das Metall möglichst ohne dielektrische Schutzschicht, die vor der Reaktion mit Sauerstoff der Luft schützt, auskommen. Zum anderen ist die

technische Verarbeitbarkeit in der Beschichtungsanlage. Nach Berücksichtigung aller Kriterien fiel die Wahl auf Gold.

### 5.3.1 Designüberlegungen

**Segmentspiegel** Für die Realisation des Dünnschichtabschwächers wurden dünne Goldschichten mit einer Beschichtungsanlage<sup>5</sup> auf Glassubstrate durch Sputtern aufgebracht. Der Einsatz als wichtiges Gerät im täglichen Laborbetrieb stellte die Anforderung, dass einfach zwischen den Abschwächungsstufen umgeschaltet werden kann. Dazu wurden jeweils vier Abschwächungsstufen auf einen Segmentspiegel aufgedampft, so dass durch Rotation des Spiegels die Abschwächung verändert wird. Der Laser wird jeweils in einem der vier Quadranten reflektiert.

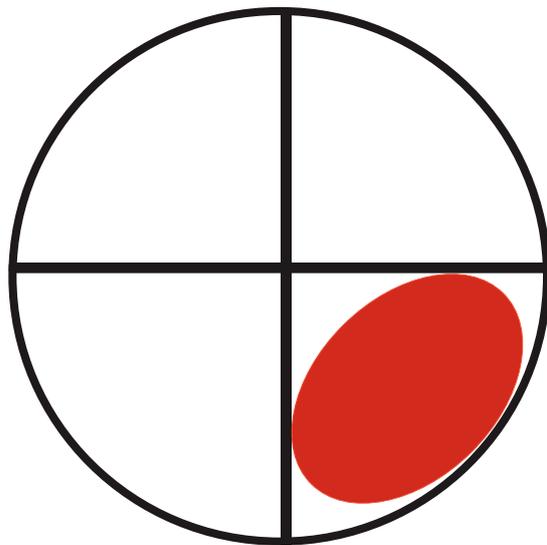
Der schematische Aufbau eines Segmentspiegels ist in Abbildung 5.9a gezeigt. Die technische Realisation des Abschwächers erfolgt durch eine Kombination aus vier Spiegeln, die unter  $45^\circ$  getroffen werden, so dass nach den Spiegeln der Laser wieder auf seinem ursprünglichen Weg verläuft, wie in Abbildung 5.9b dargestellt. Die vier Spiegel (schwarz dargestellt) befinden sich auf einem Verschiebetisch, der in den Strahlweg gefahren werden kann, so dass der Strahl über die vier Spiegel läuft. Ist der Abschwächer nicht im Strahl, dargestellt durch die abgeschwächte Farbgebung (hellrot, grau), so läuft der Strahl nicht über die Spiegel.

Weil die Richtung bei Rotation der Segmentspiegel beibehalten werden muss, müssen Rotations- und Spiegelebene parallel sein. Dafür ist der Segmentspiegel auf einem Spiegelhalter montiert, der wiederum in einem rotierbaren Spiegelhalter montiert ist. Durch den zweiten Spiegelhalter kann die Lage bzw. Richtung des Strahls eingestellt werden. Mit zwei der vier Spiegel, kann ein Beamwalk durchgeführt werden, so dass der Strahl auf dem ursprünglichen Strahlweg liegt. Abbildung 5.10 zeigt die Abweichungen im Experiment für acht verschiedene Stellungen der Segmentspiegel. Der Erhalt der Richtung unter Drehung der Segmentspiegel ist aus zwei Gründen von Bedeutung:

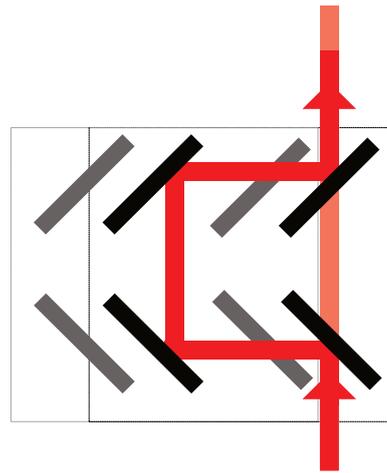
Erstens bedeutet eine laterale Verschiebung der Strahlrichtung auf einem Target, das unter einem Winkel von  $45^\circ$  getroffen wird, einen anderen Auftreffpunkt im fokussierten Strahl, womit eine Abweichung der Fläche und somit der Intensität einhergeht. Zweitens sinkt durch Abbildungsfehler der Parabel die Qualität des Fokus, wenn sie nicht orthogonal getroffen wird,

---

<sup>5</sup>Typ: *Cube* Hersteller: *Mantis Deposition Ltd, Thame* (insolvent seit Sommer 2019)



(a) Segmentspiegel, in dem jeder Quadrant eine eigene Reflektivität hat. Die Segmente sind so gewählt, dass der Strahlquerschnitt des Lasers (rot) in ein Segment passt.

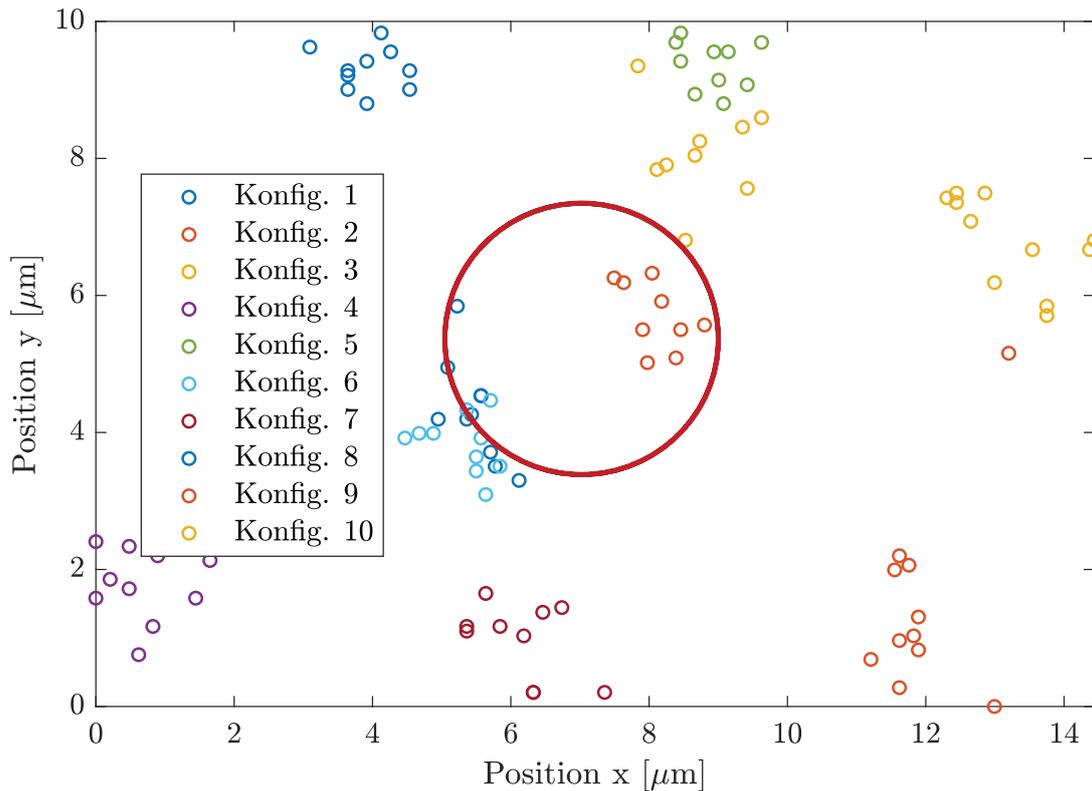


(b) Aufbau des Abschwächers aus vier Segmentspiegeln, die auf einem Verschiebetisch in den Strahlweg eingebracht werden. Sie können so justiert werden, dass der Strahl seinen ursprünglichen Verlauf nimmt. Die kräftigen Farben stellen den Strahlweg mit Abschwächer dar, die abgeschwächten Farben den direkten Weg sowie die Position des Verschiebetisches außerhalb des Strahlweges.

**Abb. 5.9:** Diese Abbildung zeigt links einen Segmentspiegel und rechts den Aufbau des Abschwächers aus vier Segmentspiegeln.

Zur Kontrolle wurde jeder Spiegel zufällig eingestellt und mehrere Laserpulse aufgenommen. Jede Konfiguration ist mit einer Farbe gekennzeichnet und die Schwankungen innerhalb einer Farbe resultieren aus den Fluktuationen des Lasers durch Luftströmungen oder Vibrationen. Außerdem wurde an jeder Stelle die Größe des Fokus bestimmt, die keine Abweichungen zeigt.

Für den Abschwächer wurden also die Segmentspiegel mit vier unterschiedlichen Schichtdicken von Gold beschichtet. Jeder Spiegel erhält ein Segment mit 100 nm Gold um die geringste, mögliche Abschwächung von  $0,942^4 = 0,787$  realisieren zu können. Außerdem wurden drei Spiegel mit je einem unbeschichteten Segment belassen, wodurch sich eine Abschwächung von  $7,2 \cdot 10^{-3}$  auf diesen Segmenten ergibt. Dazwischen wurden durch verschiedene Schichtdicken unterschiedliche Reflektivitäten realisiert, wie sie in Tabelle 5.1 angegeben sind. Wie Abbildung 5.8 gezeigt, ist die Reflektivität nicht-linear von der Schichtdicke abhängig. Deswegen ergeben sich Abweichungen trotz des Ziels gleiche Schichten aufzutragen und somit gleiche Reflektivitäten zu erreichen.



**Abb. 5.10:** Für diese Abbildung wurden alle vier Segmentspiegel in 8 verschiedene Stellungen gebracht und die Abweichung der Richtung im Experiment gemessen. Dazu wurde der aufgeweitete Strahl mit einer  $90^\circ$ -off axis Parabel (EFL = 3") wie im Experiment justiert und auf eine Kamera abgebildet. Zum Vergleich ist ein Kreis mit dem Radius der kleinsten Strahltaille von  $w = 2 \mu\text{m}$  in rot eingezeichnet. Die Schwankungen innerhalb einer Farbe sind Schwankungen, die durch die Fluktuation des Lasers entstehen. Zur Messung wurden jeweils 10 einzelne Laserpulse gespeichert, mit einer Gaußfunktion gefittet und die Positionen des Maximums eingetragen.

Daher wurden alle Segmente vermessen und mit entsprechenden Messfehlern in Tabelle 5.1 angegeben. Bei den unbeschichteten Segmenten ist die Reflektivität von BK7 unter  $45^\circ$  aus der Literatur bekannt und wird daher ohne Fehler angenommen.

Abbildung 5.11 zeigt die Permutationen aus den oben genannten Spiegeln und die daraus sich ergebende Gesamtabschwächung. Es ist sichtbar, dass eine feine Abstufung über einen großen Gesamtbereich von 5 Größenordnungen möglich ist. Im Zusammenhang mit der Abschwächung muss ein Nachteil des Abschwächers diskutiert werden. Die Reflektivität von BK7 unterscheidet sich unter  $45^\circ$  für

	Segment 1	Segment 2	Segment 3	Segment 4
<b>Spiegel 1</b>	$0,942 \pm 0,007$	$0,514 \pm 0,024$	$0,369 \pm 0,017$	$0,235 \pm 0,011$
<b>Spiegel 2</b>	$0,942 \pm 0,007$	$0,593 \pm 0,026$	$0,446 \pm 0,020$	$8,95 \cdot 10^{-3}$
<b>Spiegel 3</b>	$0,942 \pm 0,007$	$0,665 \pm 0,031$	$0,256 \pm 0,012$	$8,95 \cdot 10^{-3}$
<b>Spiegel 4</b>	$0,942 \pm 0,007$	$0,470 \pm 0,023$	$0,249 \pm 0,011$	$8,95 \cdot 10^{-3}$

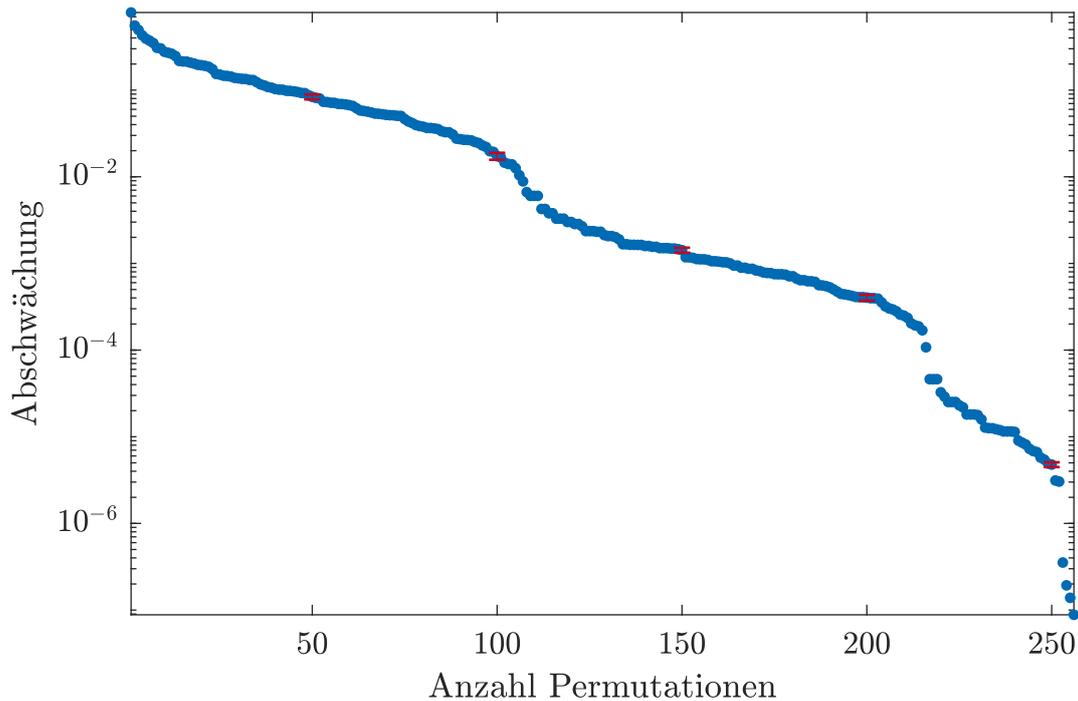
**Tab. 5.1:** Hier sind die Reflektivitäten der Segmente eingetragen, wie sie auf den vier Spiegeln aufgetragen sind. Ebenso sind die Messfehler angegeben. Die Reflektivität jeder einzelnen Schicht wurde vermessen. Die Reflektivitäten für die dicken Schichten (ca. 100 nm) liegen unter dem Literaturwert von 0,966. Auf den Spiegeln 2 - 4 ist jeweils ein Segment unbeschichtet. Folglich sind dort die Literaturwerte der Reflektivitäten für p-polarisiertes Licht bei einer zentralen Wellenlänge von 800 nm unter  $45^\circ$  angegeben.

parallel und senkrecht polarisiertes Licht um eine Größenordnung:  $R_p = 8,95 \cdot 10^{-3}$  und  $R_s = 9,46 \cdot 10^{-2}$ [57]. Senkrecht (s-) polarisiertes Licht wird also besser als parallel (p-) polarisiertes Licht reflektiert, wodurch sich das Verhältnis der beiden Polarisierungen im Laser ändert.

Deshalb wurde oben genanntes Verhältnis bestimmt, indem ein Spiegel aus Quarzglas, das ebenso einen Unterschied in der Reflektivität für beide Polarisierungen besitzt, unter  $45^\circ$  beleuchtet und danach die Intensität des reflektierten Lichtes gemessen. Die spiegelnde Glasoberfläche reflektierte einmal in der Tischebene und einmal senkrecht zur Tischebene. Daraus ergibt sich ein lineares Gleichungssystem, aus dem der Anteil von senkrecht polarisiertem Licht im Laser zu maximal 1% bestimmt wurde (vergleiche Kapitel 3.3). Wenn also der Laser an einem Spiegel aus BK7 reflektiert wird, so erhält man einen Anteil von 10% von s-polarisiertem Licht im Strahl. Da zwischen den beiden Polarisierungen weiterhin eine Größenordnung liegt, ist es noch gerechtfertigt von p-polarisiertem Licht zu sprechen.

Bei einer weiteren Reflexion an BK7 sind gleiche Anteile von beiden Polarisierungen zu erwarten. Weil die Wechselwirkungen des Lasers vor allem für p-polarisiertes Licht bekannt sind, ist es nicht wünschenswert einen großen Anteil von s-polarisiertem Licht im Experiment zu haben. Deshalb stehen lediglich solche Permutationen zur Verfügung, die nur eine Reflexion an einem unbeschichteten Glas beinhalten.

Weil sich bei Gold sich die Reflektivitäten für die beiden Polarisierungen nur geringfügig unterscheiden ( $R_p = 0,98282$ ,  $R_s = 0,96594$ )[57], werden dort beide Polarisierungen gleichmäßig reflektiert, was zu keiner Änderung des Verhältnisses



**Abb. 5.11:** Diese Abbildung zeigt alle Permutationen der beschichteten Spiegel und die daraus resultierende Abschwächung. Exemplarisch sind in rot (zur besseren Sichtbarkeit) Fehlerbalken eingetragen.

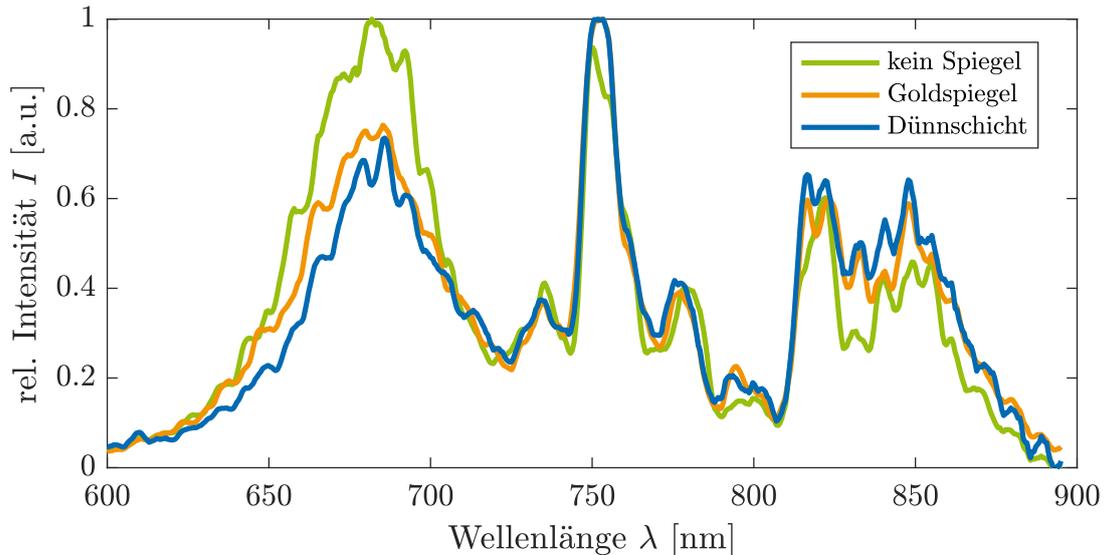
führt. Bei dünnen Goldschichten die Reflektivitäten weichen für senkrecht und parallel Polarisierungen nicht messbar voneinander ab.

### 5.3.2 Pulseigenschaften

Wie bereits diskutiert, darf der Abschwächer wichtige Pulseigenschaften wie Spektrum, spektrale Phase und räumliches Profil nicht verändern.

Abbildung 5.12 vergleicht die Spektren nach dem Abschwächer mit dem Spektrum des Lasers ohne den Dünnschichtabschwächer im Strahl. In Grün ist das ursprüngliche Spektrum dargestellt. In Orange ist ein Spektrum nach der Propagation über alle vier Spiegel in den Segmenten mit dicker Goldschicht ( $R = 94,2\%$ ) im Vergleich zum Spektrum, wenn einer der Spiegel mit einer dünnen Schicht (ca. 5 nm) gewählt wird.

Offensichtlich reflektieren die Goldspiegel vor allem im kurzwelligen Bereich des Spektrums schlechter. Dies deckt sich auch mit den Literaturdaten[57].

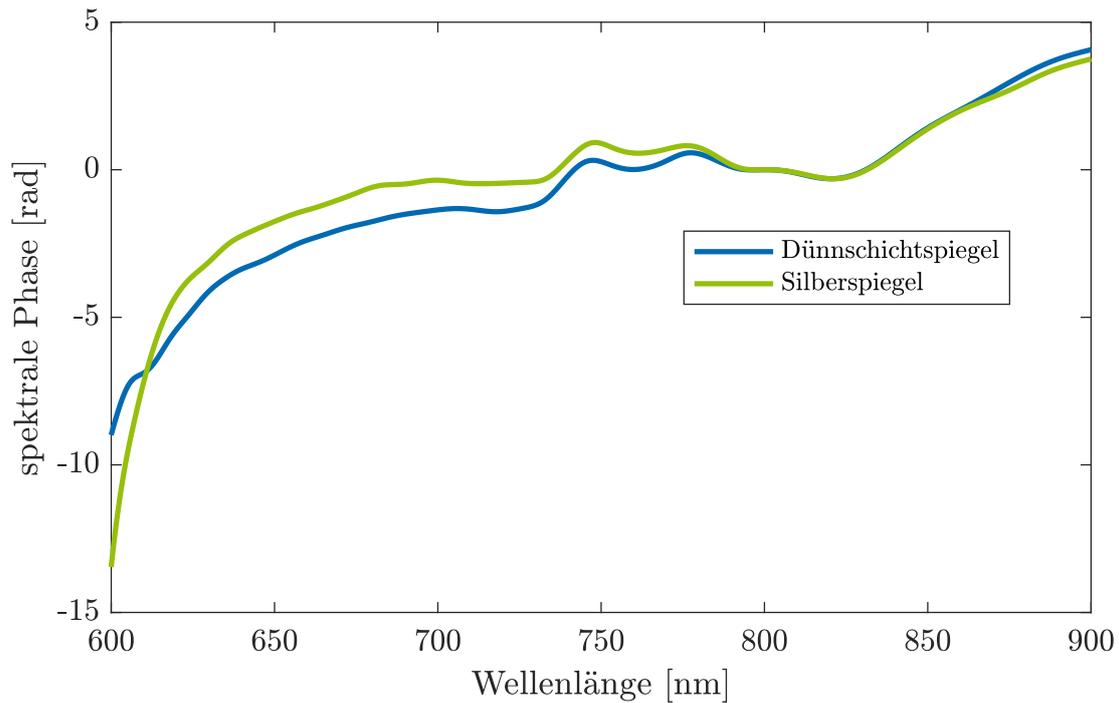


**Abb. 5.12:** Die Abbildung zeigt in grün das Spektrum des Lasers ohne Übergang über die Segmentspiegel. Orange zeigt das Spektrum, nachdem der Puls an vier Segmenten der Abschwächerspiegel mit dicker Goldschicht reflektiert wurde. Im Vergleich dazu ist in Blau das Spektrum dargestellt, wenn ein Segment mit einer dünnen Schicht (ca. 5 nm) verwendet wird. Offensichtlich reflektieren die Goldspiegel, unabhängig von der Schichtdicke, im kurzwelligen Bereich schlecht. Diese Änderung des Spektrums ist unkritisch, zum einen weil die Beschichtung der Fokussierparabel im Experiment Gold ist und so das Spektrum auch ohne den Abschwächer dort verändert wird und zum anderen weil eine Reduktion um 25 % der Intensität im kurzwelligen Bereich an der Rekonstruktion des *few-cycle*-Pulsen nichts ändert. Die spektrale Breite bleibt erhalten.

Die Unterschiede zwischen den Spektren mit und ohne Abschwächer sind unkritisch, weil einerseits die Fokussierparabel im Experiment auch mit Gold beschichtet ist und somit dort auch das Spektrum im kurzwelligen Bereich abgeschwächt wird. Andererseits bleibt die spektrale Breite erhalten, so dass weiterhin ein *few-cycle*-Puls verwendet wird.

Wichtig für die Rekonstruktion der Pulsform ist, dass keine Bereiche ohne Intensität im Spektrum zu finden sind.

Darüber hinaus wurde die Form der Pulse im SPIDER untersucht. In Abbildung 5.13 werden die spektralen Phasen ohne und mit Abschwächer gegenübergestellt. Sie zeigen nur geringe Unterschiede, die keinen Einfluss auf die Pulsform haben. Auch das räumliche Profil des Lasers nach dem Abschwächer zeigt keine Flecken



**Abb. 5.13:** Die Abbildung zeigt die mit dem SPIDER gemessenen spektralen Phasen für die Dünnschichtspiegel und einen üblicherweise verbauten Silberspiegel. Beide Phasen sind im Spektralbereich des Lasers fast deckungsgleich, so dass die Pulsdauer nicht durch die Spiegel verändert wird.

oder Verzerrungen. Der Abschwächer verändert also am Laserpuls nur die Energie und behält die anderen wichtigen Pulsparameter bei. Damit erfüllt dieser neuartige Dünnschichtabschwächer alle Anforderungen.

## 5.4 Fazit

Die Variation der Pulsenergie von Laserpulsen ist ein zentrales Element bei der Arbeit mit Lasern für die Untersuchung der Wechselwirkung zwischen Licht und Materie. Während bei Lasern, die Pulse mit Längen von Nanosekunden, Pikosekunden oder mehreren hundert Femtosekunden emittieren, diese Abschwächung keine besondere Herausforderung darstellt, ist die Reduktion der Energie von *few-cycle*-Laserpulsen, die typischerweise eine Pulsdauer von  $\tau = 8$  fs haben, eine besondere Herausforderung, wie in Kapitel 5.1 dargestellt.

Zum Verständnis des Ablationsprozesses bei *few-cycle*-Laserpulsen ist die Variation unter Beibehaltung der Laserparameter (wie Dauer, zeitliche sowie räumliche Pulsform) die Voraussetzung. Dazu wurde in dieser Arbeit ein neuartiger Abschwächer entwickelt, der auf der verminderten Reflektivität bei dünnen Goldschichten basiert.

Um die verminderte Reflektivität einer dünnen Goldschicht auf einem Glasspiegel berechnen zu können wurde eine Transfermatrixmethode eingeführt und angewendet. Sie ist eine potente Methode, deren Einsatzmöglichkeiten über die hier ausgerechnete Reflektivität hinausgehen. Um als Abschwächung für *few-cycle*-Pulse sinnvoll eingesetzt werden zu können, wurde gezeigt, dass die Dünnschichtspiegel das Spektrum unverändert reflektieren und die spektrale Phase des Pulses nicht verändert wird.

Auf dieser Basis entstand ein Abschwächer, der im täglichen Laborbetrieb schnell und einfach einsetzbar ist. Der Aufbau ist in Kapitel 5.3.1 beschrieben und ermöglicht die Abschwächung des Laserstrahls im Experimentierbetrieb. Abbildung 5.10 zeigt, dass der Aufbau durch mechanische Toleranzen in den Rotationsspiegeln noch nicht ausgereift ist. Eine bessere Erhaltung der Strahlage ist durch präzisere Rotationen zu erreichen.

Darüber hinaus stellt das Verhältnis von paralleler zu senkrechter Polarisation eine Nutzungseinschränkung dar. Eine Möglichkeit diese Einschränkung zu verringern ist, dass die Reflexion an den Spiegeln als senkrecht polarisiertes Licht stattfindet, wozu der Abschwächer um  $90^\circ$  rotiert werden muss, so dass der Strahlverlauf über die Segmentspiegel aus der Tischebene heraus statt findet. Beide Verbesserungsvorhaben befinden sich bereits in der Umsetzung.

Der Dünnschichtabschwächer bietet trotz dieser Schwächen die Voraussetzungen für die Untersuchung der Wechselwirkung von *few-cycle*-Pulsen mit Festkörpern.

# 6 Experimente und Modell zur Kraterbildung

In Kapitel 4 sind Krater gezeigt, bei denen die Intensität durch Änderung der Wechselswirkungsfläche variiert wurde. Diese Messungen zeigen, dass der Krater bei niederen Intensitäten zunächst kleiner als der Laser ist. Zu höheren Intensitäten hin nahm die Kratergröße zu und wurde größer als der Laserspot. Eine Variation der Intensität ist durch die Änderung der Fläche nicht möglich.

Mit dem in Kapitel 5.3.1 beschriebenen, neuartigen Dünnschichtabschwächer ist es nun möglich die zeitliche und räumliche Pulsform sowie die bestrahlte Fläche beizubehalten und nur die Pulsenergie zu variieren.

In diesem Kapitel werden zunächst Krater analysiert, für die die Intensität mit dem neuartigen Abschwächer variiert wurde (Kapitel 6.1). Im darauffolgenden Unterkapitel 6.2 wird ein Überblick über die Modelle der Kraterbildung bei Pulslängen von Nanosekunden bis zu Femtosekunden gegeben. Weil es für die in dieser Arbeit verwendeten, hochintensiven *few-cycle*-Pulse kein Modell für die Kraterbildung gibt, wird in Kapitel 6.3 ein Stufen Modell entwickelt und verifiziert.

## 6.1 Phänomenologie der Krater

In diesem Kapitel werden Krater in Aluminium, die mit je einem Einzelpuls bei einer Dauer  $\tau = 8$  fs und in einem Intensitätsbereich von  $10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> bis  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> erzeugt wurden, analysiert. Die Intensitätsvariation erfolgt mit dem neuartigen Abschwächer. Der Versuchsaufbau ist entspricht dem wie in Kapitel 4 beschrieben und ist in Abbildung 6.16 dargestellt. Die Verfahrnung des Targets in  $z$ -Richtung erübrigt sich jedoch.

Während Abbildung 6.2 die Aufnahmen der Krater mit einem Elektronenmikroskop zeigt, sind in Abbildung 6.1 die Kratertiefen in Abhängigkeit von der Intensität zusammen gefasst.

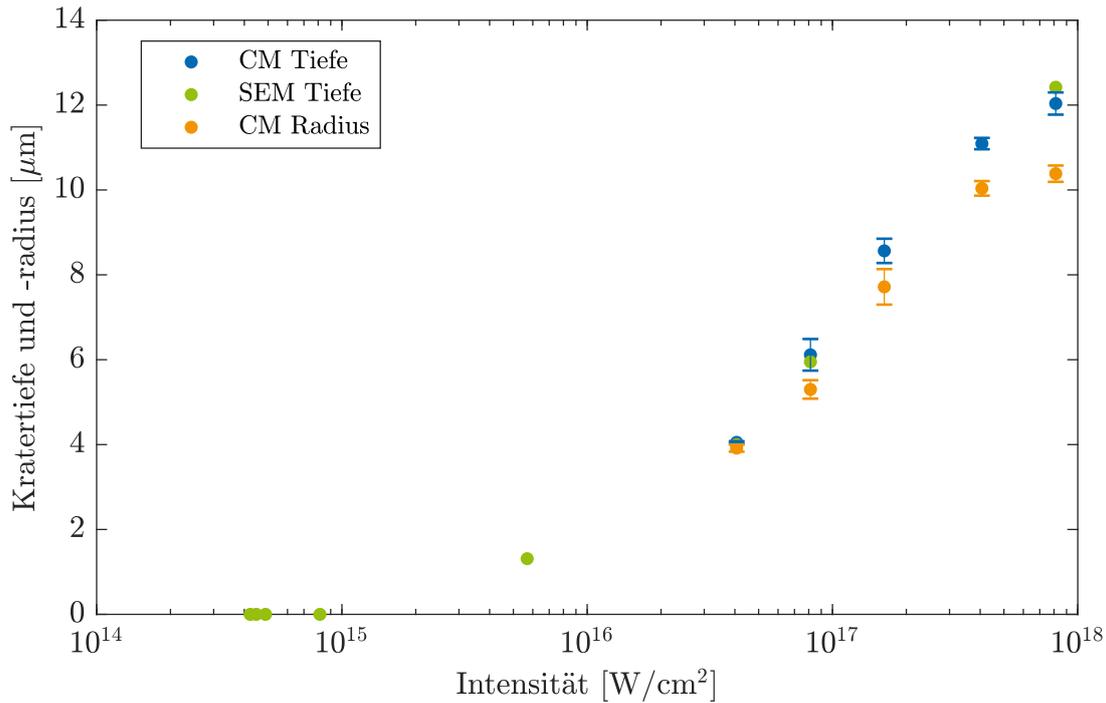
Die Intensität nimmt von Abbildung 6.2a nach 6.2j ab. In der linken Spalte sind die Aufsichten und in der rechten Spalte Ansichten unter einem Winkel von  $54^\circ$  zur Targetoberfläche dargestellt. In die Aufnahmen sind maßstabsgerecht die Laserspots mit einem Durchmesser  $2w_0 = 4 \mu\text{m}$  eingezeichnet. Weil die Probe unter einem Winkel von  $45^\circ$  beleuchtet wurde, ist der Spot elliptisch. Bei den Seitenansichten wurden in den Abbildungen 6.2a, 6.2d, 6.2e und 6.2g Ausschnitte mit einem fokussierten Ionenstrahl ins Material geschnitten (vergl. Kapitel 4.2.2), so dass die Krater von der Seite betrachtet werden können. Daraus ist erkenntlich, dass mit fallender Laserintensität die Kratergröße abnimmt.

Die Aufnahmen bei niedriger Intensität zeigen das zu erwartende Resultat bei der Wechselwirkung von ultrakurzen Laserpulsen mit geringer Intensität: Die Wechselwirkung erstreckt sich auf die vom Laser beleuchtete Fläche. In der Tiefe gibt es keine Auswirkung, wie es in den Abbildungen 6.2j, 6.2i, 6.2h und 6.2g zu sehen ist. Erst ab Abbildung 6.2f gibt es deutliche Ausdehnungen in die Tiefe und der Krater ist größer als die Fläche des Laserspots.

Zu höheren Intensitäten hin nimmt dieser Effekt weiter zu und es ist erkennbar, dass der Krater die Form einer Halbkugel annimmt. Während die Wechselwirkung im Bereich niedriger Intensität auf die Oberfläche und wenige Atomlagen begrenzt ist, findet bei hohen Intensitäten eine gleichmäßige Wechselwirkung lateral wie vertikal statt. Daraus ist ein Unterschied im Mechanismus der Wechselwirkung erkennbar.

Darüber hinaus sind in den Randbereichen der Krater bei hohen Intensitäten die gleichen Oberflächenmodifikationen erkennbar wie bei geringen Intensitäten. Dies ist durch die Gaußsche Intensitätsverteilung auf der Oberfläche zu erklären. Weil die Auswertung der Krater mit einem SEM sehr aufwändig ist, wurden alle Krater auch mit einem konfokalen Mikroskop vermessen. Der Vergleich der beiden Messverfahren ist in Abbildung 6.1 gezeigt.

Abbildung 6.1 zeigt die Kratertiefen und -radien in Abhängigkeit von der Laserintensität. Wie auch in Abbildung 6.2 gezeigt nehmen beide Größen mit der Intensität zu. Zum einen ist der Grafik zu entnehmen, dass die beiden Messverfahren, SEM und CM, gleiche Ergebnisse liefern, weil die SEM Messungen innerhalb der Schwankung der CM Messung liegt. Daraus folgt, dass die Krater mit beiden Verfahren ausgewertet im Rahmen der Fehler zu gleichen Ergebnissen führten. Zum anderen ist deutlich zu erkennen, dass Kraterradius und -tiefe nicht signifikant von einander abweichen, was den Eindruck der Halbkugelform belegt. Mit zunehmender Intensität nimmt die Tiefe mehr als der Radius zu, allerdings liegt



**Abb. 6.1:** Die Abbildung zeigt in blau die mit dem konfokalen Mikroskop bestimmten Kratertiefen, sowie die mit dem CM bestimmten Kraterradien in Abhängigkeit von der eingestrahnten Laserintensität in orange. In grün sind die Tiefen der Krater aufgetragen, wie sie mit dem SEM bestimmt wurden. Mit steigender Intensität nehmen die Radien und Tiefen zu. Die Grafik verdeutlicht einerseits, dass die Auswertungen über CM und SEM im Bereich der Fehler sehr ähnliche Ergebnisse liefern und dass bei kleinen Tiefen die CM an ihre Grenzen kommt. Andererseits macht diese Grafik deutlich, dass die Krater bei hohen Intensitäten die Form einer Halbkugel haben. Details siehe Abbildung 6.1.

diese Abweichung im Maximalfall bei 20%. Bei kleineren Messgrößen unterhalb von  $4 \mu\text{m}$  ist die Messung mit dem konfokalen Mikroskop nicht zuverlässig. Daher wurden in diesem Bereich nur Tiefen und Radien aus den Aufnahmen mit dem SEM verwendet. Bei den Messwerten mit den vier niedrigsten Intensitäten lassen sich die Tiefen auch mit dem SEM nicht mehr bestimmen, so dass dort eine Tiefe  $0 \mu\text{m}$  eingesetzt wird.

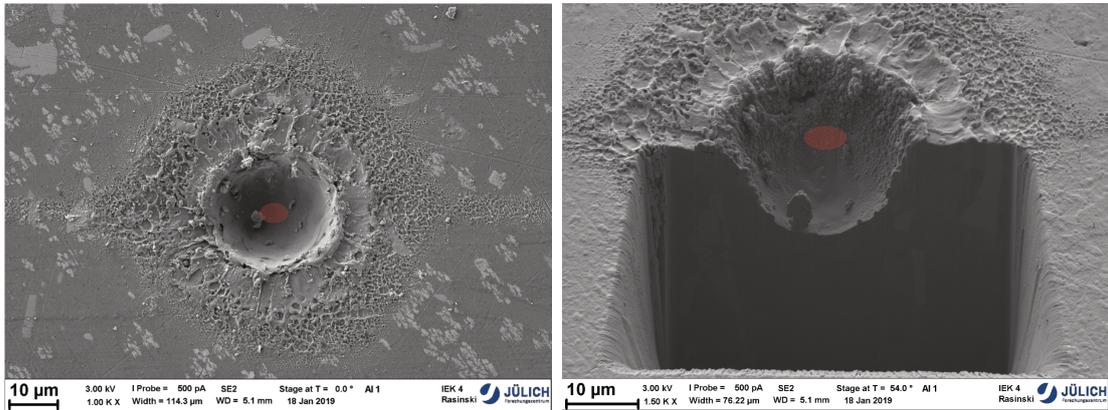
Die experimentellen Befunde aus diesem Kapitel sowie aus Kapitel 4 zeigen, dass für Laserpulse mit einer Pulslänge von unter 10 fs und einer Intensität von über  $2 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  die bekannten Modelle von Nolte et al. zur Ablation nicht genutzt werden können[16]. Die Wechselwirkung ist bei diesen niedrigen Intensitäten ein

eindimensionales Problem, bei dem der Laserpuls mit einzelnen Atomlagen in der Oberfläche interagiert.

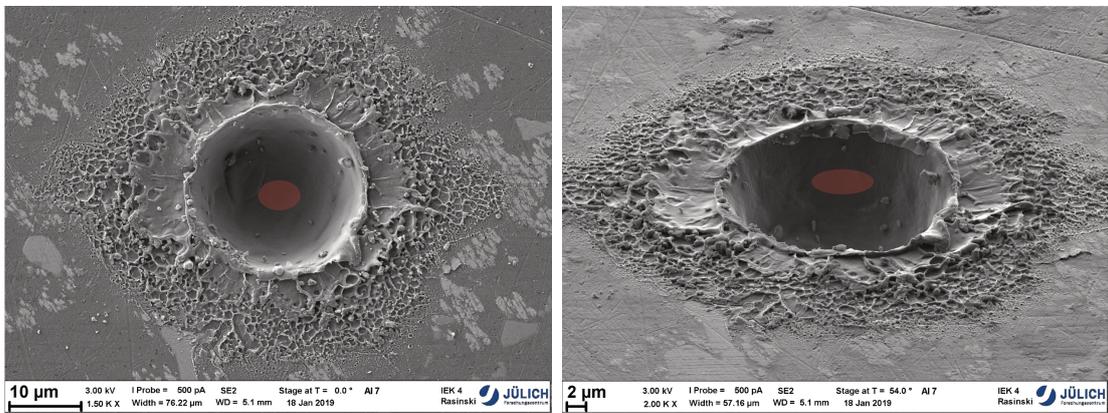
Bei höheren Intensitäten, also ab einer Intensität oberhalb von  $1 \cdot 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup>, versagt dieses Modell offensichtlich, weil der Krater größer als die beleuchtete Fläche wird. Es bildet sich eine dreidimensionale Struktur heraus, die durch einen halbkugelförmigen Krater mit dem kleineren Laserspot in der Mitte charakterisiert ist. Für die Wechselwirkung des *few-cycle* Pulses mit dem Festkörper liegt bisher kein experimentell überprüftes Modell vor

Für diesen höheren Intensitätsbereich gibt es reichhaltige Erkenntnisse (theoretisch und experimentell) über die Wechselwirkung, die sich auf die eigentliche Wechselwirkungszone an der Oberfläche und dem gut zugänglichen Vakuumbereich beziehen.

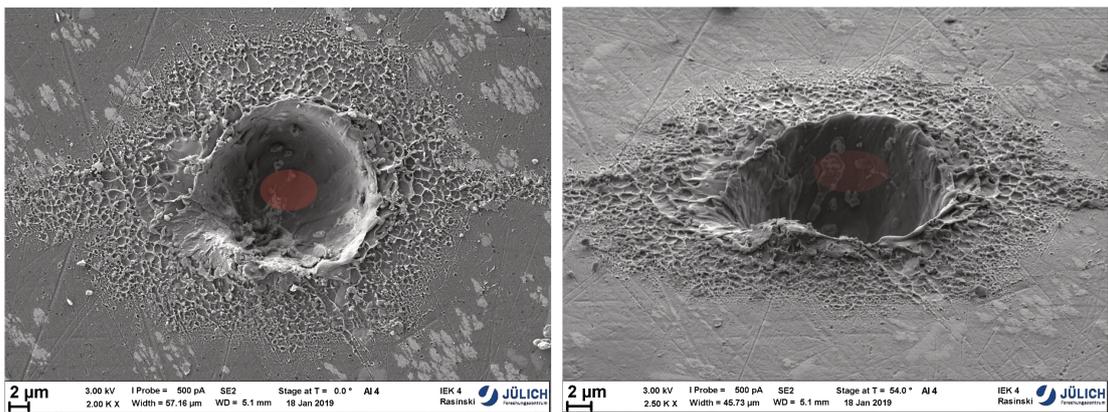
Im Folgenden wird ein Modell entwickelt, das - aufbauend auf diesen bekannten Fakten - die Wechselwirkung in den Festkörper hinein beschreibt. Dem Modell liegen schnelle Elektronen zu Grunde, womit die hier dargestellten Krater ab initio erklärt werden können.



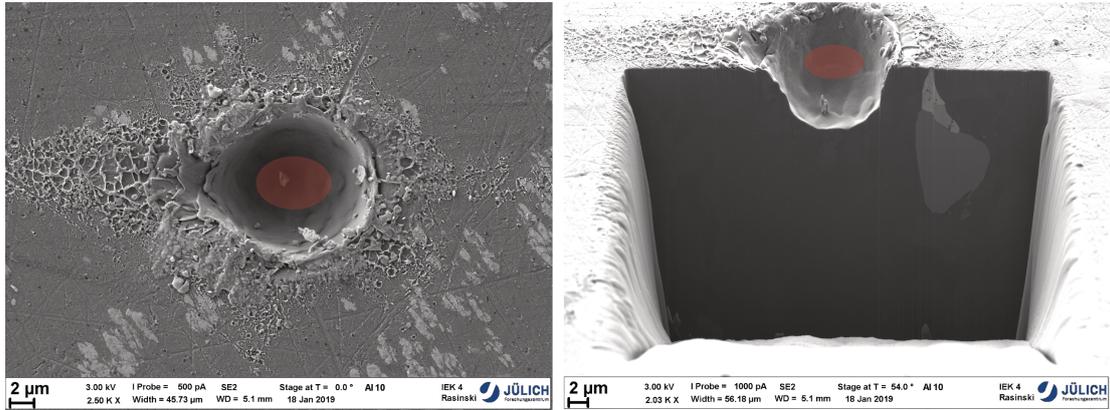
(a) Verwendete Intensität  $I = 7 \cdot 10^{17} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$



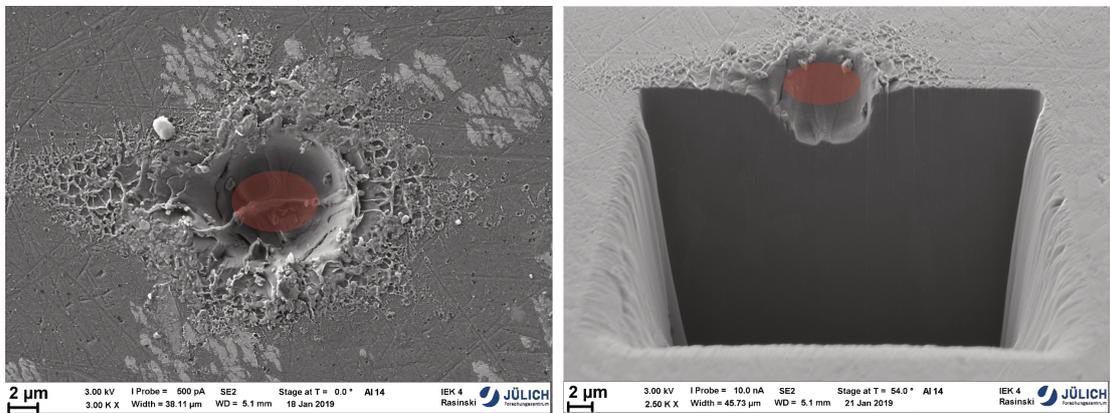
(b) Verwendete Intensität  $I = 3,5 \cdot 10^{17} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$



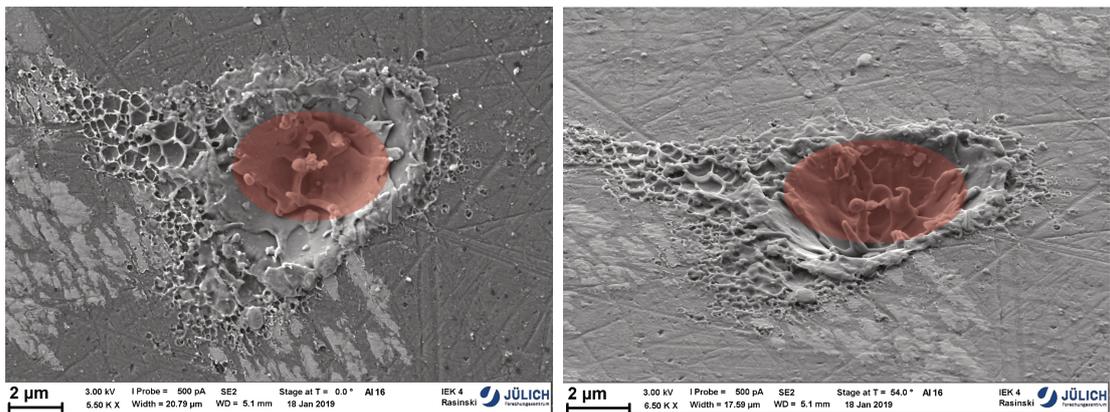
(c) Verwendete Intensität  $I_{max} = 1,4 \cdot 10^{17} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$



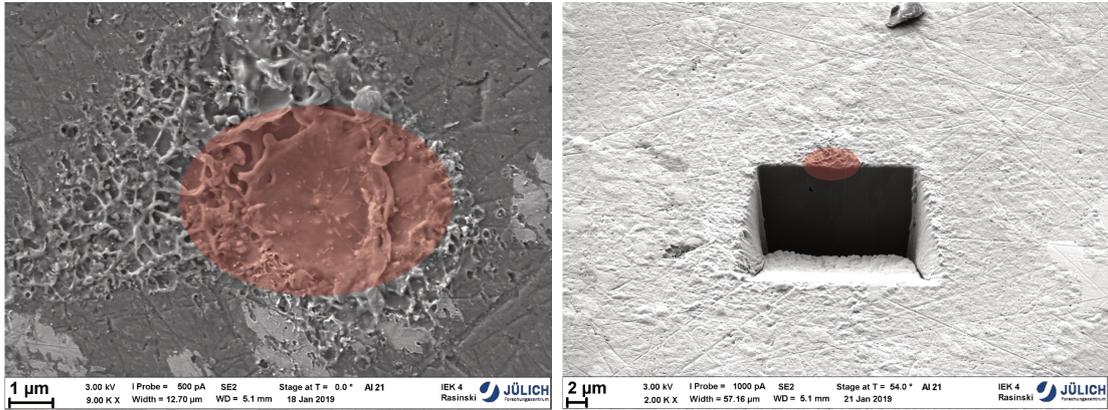
(d) Verwendete Intensität  $I_{max} = 7 \cdot 10^{16} \frac{W}{cm^2}$



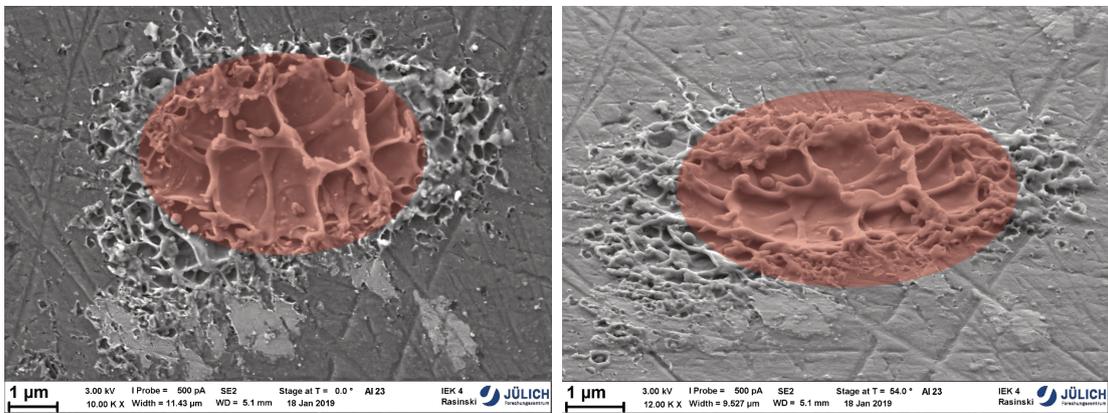
(e) Verwendete Intensität  $I_{max} = 3,5 \cdot 10^{16} \frac{W}{cm^2}$



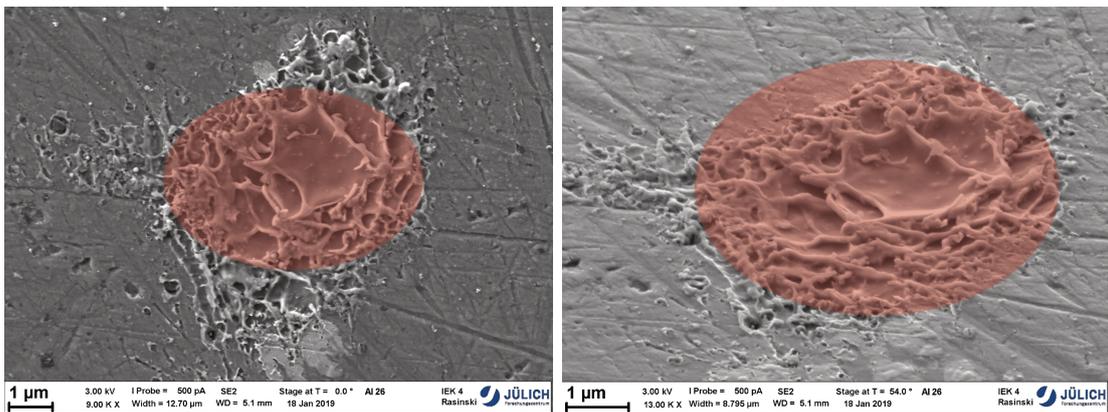
(f) Verwendete Intensität  $I_{max} = 4,9 \cdot 10^{15} \frac{W}{cm^2}$



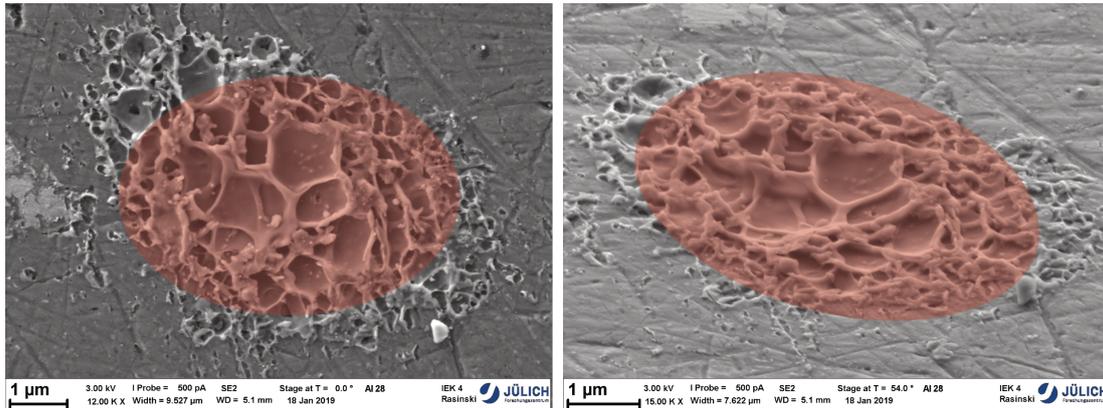
(g) Verwendete Intensität  $I_{max} = 7 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$



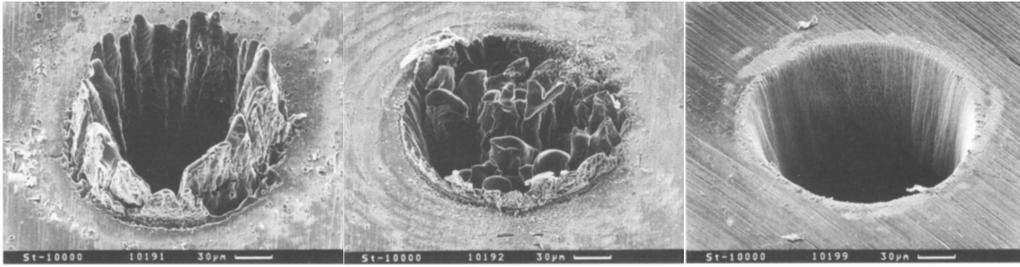
(h) Verwendete Intensität  $I_{max} = 4,2 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$



(i) Verwendete Intensität  $I_{max} = 3,85 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$

(j) Verwendete Intensität  $I_{max} = 2,94 \cdot 10^{14} \frac{W}{cm^2}$ 

**Abb. 6.2:** Diese Abbildung zeigt die mit einem Elektronenmikroskop aufgenommenen Krater. Alle Krater wurden mit einem Laserpuls mit einer Dauer von  $\tau = 8$  fs bei gleicher Spotgröße mit  $w_0 = 2,0 \mu\text{m}$  und variablen Pulsenergien bis zu  $E_{\text{Puls}} = 600$  mJ beleuchtet. In der linken Spalte sind die Aufsichten und in der rechten Spalte die Ansichten unter einem Winkel zur Oberfläche von  $54^\circ$  dargestellt. Bei den Abbildungen 6.2a, 6.2d, 6.2e und 6.2g wurde mit einem Strahl aus schnellen Ionen das Material abgetragen, um die Form und Tiefe des Kraters beurteilen zu können. Die Krater sind nach absteigender Intensität sortiert und in Rot ist der Laserspot mit einem Durchmesser von  $2w_0 = 4 \mu\text{m}$  zum Größenvergleich eingezeichnet. Weil das Material unter einem Winkel von  $45^\circ$  beleuchtet wurde, ist die beleuchtete Fläche elliptisch. Die Kraterflächen und -tiefen nehmen mit steigender Intensität zu. Wie bei schwachen ultrakurzen Laserpulsen zu erwarten ist, wird der Festkörper nur an der Oberfläche in einer Tiefe von wenigen Atomlagen verändert. Die laterale Kraterausdehnung ist deutlich größer als die Ausdehnung in der Tiefe. Nehmen die Intensitäten zu, werden die Krater tiefer und wie insbesondere in den Seitenansichten zu erkennen ist, haben die Krater eine Form einer Halbkugel, so dass die Ausdehnung zur Seite größer als die Tiefenausdehnung ist. Bei hohen Intensitäten ist der Krater in allen Dimensionen deutlich größer als die vom Laser beleuchtete Fläche. Durch diesen Übergang der Wechselwirkung von zwei Dimensionen auf drei Dimensionen liegt es nahe, dass sich auch der zu Grunde liegende physikalische Prozess ändert.



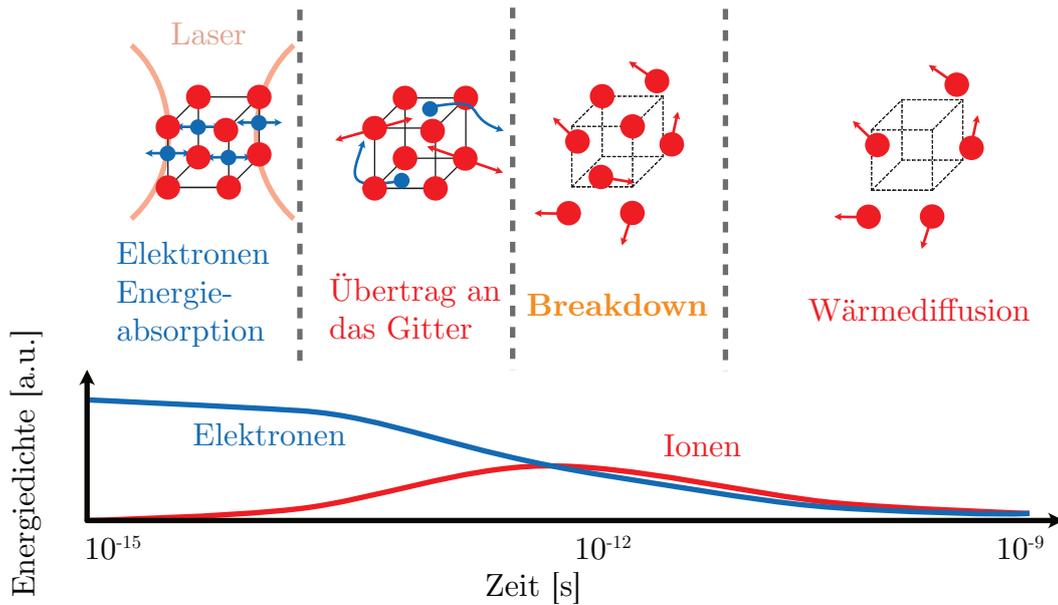
(a)  $\tau = 3,3 \text{ ns}$ ,  $E_P = 1 \text{ mJ}$  (b)  $\tau = 80 \text{ ps}$ ,  $E_P = 900 \mu\text{J}$  (c)  $\tau = 200 \text{ fs}$ ,  $E_P = 120 \mu\text{J}$

**Abb. 6.3:** Hier sind SEM-Bilder dreier Krater in einer  $100 \mu\text{m}$  dicken Stahlfolie zum direkten Vergleich gezeigt. Sie wurden wie angegeben mit Pulsen im Bereich von Nano-, Piko- und Femtosekunden Pulsdauern bearbeitet. Es wurden jeweils  $10^4$  Pulsen beleuchtet und der Laser mit einem Strahldurchmesser von  $20 \text{ mm}$  verwendet[58]. Während die Krater von Nano- und Pikosekundenpulsen (Abbildungen 6.3a und 6.3b) in verschiedenem Maß geschmolzenes Material an den Rändern bzw. im Krater selbst haben, zeigt der Krater der Femtosekundenpulse keine solche Ablagerungen (Abbildung 6.3c). Dadurch ist für den Krater von Femtosekundenpulsen im Gegensatz zu den anderen eine klare Grenze erkennbar.

## 6.2 Von ns über ps zu fs

Gemeinhin wird der klassische Materialabtrag im thermodynamischen Gleichgewicht als Verdampfen bezeichnet. Die Abtragung von Material mittels eines Lasers ist als Laserablation benannt worden um herauszustellen, dass es sich dabei, um einen grundlegend anderen physikalischen Mechanismus handelt. Laserablation wird mit gepulsten Lasern durchgeführt, die sich neben der Pulsenergie vor allem durch die Pulsdauer unterscheiden, die von Nano- über Piko- bis hin zu Femtosekunden variiert. Der Umfang von 6 Größenordnungen in den Pulsdauern hat zur Folge, dass dem Laserablationprozess andere physikalische Mechanismen zu Grunde liegen und sich dadurch die Wechselwirkung von Licht mit dem Festkörper ändert.

In Abbildung 6.3 sind SEM-Bilder von Kratern bei Nano-, Piko- und Femosekundenpulsen gezeigt[58]. Während Pulsenergie und -dauer variiert werden, bleibt die vom Laser beleuchtete Fläche gleich. Abbildung 6.3 verdeutlicht, dass die Präzision der Krater zu kurzen Pulsen hin zunimmt, was ein Vorteil von Femtosekundenpulsen in der Ablation ist. Erkennbar ist dies daran, dass bei Nano- und Pikosekundenpulsen (Abb. 6.3a bzw. 6.3b) eine Korona aus wieder geschmolzenem



**Abb. 6.4:** Die Grafik gibt einen Überblick über die Zeiten bei der Wechselwirkung von *few-cycle*-Pulsen mit Festkörpern. Die Elektronen absorbieren die Laserenergie und übertragen diese an das Gitter. Beim Breakdown wird die Gitterstruktur zerstört. Danach findet klassische Wärmediffusion der Ionen statt. Die Energiedichte für Elektronen nimmt nach dem Puls ab, während die der Ionen bis zum Breakdown zunimmt. Grafik in Anlehnung an [23].

Material zu sehen ist, die bei Femtosekundenpulsen (Abb. 6.3c) komplett fehlt. Diese drei Krater zeigen, dass sich die Mechanismen bei der Kraterentstehung abhängig von der Pulsdauer unterscheiden.

Um die Unterschiede zwischen den Wechselwirkungen während verschiedener Pulsdauern zu verstehen, müssen zunächst die Zeitkonstanten für die auftretenden Prozesse bei der Laser-Festkörper-Wechselwirkung geklärt werden. In Abbildung 6.4 sind typische Zeitskalen für verschiedene Prozesse eingetragen.

Die Absorption der Photonen durch die Elektronen findet typischerweise auf Zeitskalen unterhalb von Femtosekunden statt. Für die Elektron-Elektron-Wechselwirkung liegt die Zeitkonstante bei  $\tau_{ee} \approx 1$  fs bis 10 fs[59]. Danach folgt der Energieübertrag der Elektronen durch Stöße an die Gitterionen, mit den für die Elektron-Phonon-Relaxation typischen Zeitskalen von  $\tau_{ei} \approx 10$  fs bis 1 ps. Im Zeitraum von 1 ps bis zu 10 ns finden die Auflösungen der Bindungen zwischen den Gitteratomen sowie Relaxationszeiten zwischen den Gitterionen statt.

Mit diesem Überblick über die Zeitkonstanten werden die Vorgänge bei Pulsen verschiedener Länge betrachtet. Zwischen den Pulslängen lassen sich keine festen

Grenzen ziehen, dennoch sind zwecks Übersicht die Abschnitte mit den Regimen überschrieben.

**Nanosekunden** Bei Pulsen mit einer Dauer von Nanosekunden fällt auf, dass die Pulsdauer so lange ist, dass alle Vorgänge bis zur Ablation unter Anwesenheit des Laserpulses durchlaufen werden (vergl. dazu Abbildung 6.4). Die Pulsdauer  $\tau_L$  ist im Vergleich zu den oben beschriebenen charakteristischen Zeiten lang, insbesondere für die Relaxationszeit zwischen Elektronen und Ionen  $\tau_{ei}$ , also  $\tau_L \gg \tau_{ei}$ . Der Laserpuls kann den Festkörper im klassischen Sinne aufheizen, so dass die Elektronen- und die Gittertemperatur gleich sind. Das Material befindet sich nahe am lokalen thermischen Gleichgewicht[58].

Während der Anwesenheit des Pulses findet die Übertragung der Energie von den Photonen auf die Elektronen und weiter an die Gitterionen statt. Das Material wird zunächst geschmolzen und dann verdampft.

Die durch die Elektronen-Phononen-Kopplung verringerte Elektronenenergie kann durch den weiterhin präsenten Laserpuls nachgeliefert werden (vergl. Kapitel 2.2.1). Die Energie wird über Phononen in den Festkörper transportiert und schmelzt den Festkörper weit über den Wechselwirkungsbereich hinaus auf[58]. Aus dieser Schmelze heraus können die Atome nach weiterer Energiezufuhr verdampft werden.

Die Wärme diffundiert signifikant weiter. Bei langen Pulsen entsteht somit beim Ablationsprozess ein durch die Hitze veränderter Bereich um den Ablationskrater herum[60][61]. Im Hinblick auf LIBS in Fusionsmaschinen ist dies unerwünscht, weil dann Tritium aus tieferen Schichten erwärmt und heraus diffundieren kann. Dennoch ist LIBS mit Nanosekundenpulsen wegen der Beschreibung im lokalen thermodynamischen Gleichgewicht ein etabliertes Werkzeug zur Diagnose von Wandmaterialien[3][62].

**Pikosekunden** Pulse, mit Längen im Bereich von Pikosekunden, führen zu einem Regime, in dem gilt:  $\tau_{ee} \ll \tau_L \approx \tau_{ei}$ . Charakteristisch für diesen Bereich ist, dass die Laserpulsdauer ungefähr der Elektronen-Phononen-Relaxationszeit entspricht.

Während die Elektronen in diesem Regime thermalisieren können, gilt dies nicht mehr für die Gitterionen. Die erreichbare Temperatur der Gitterionen entspricht

der Temperatur der Gitterionen am Ende des Pulses[58]. Während die Elektronen durch den Laserpuls weiter Energie gewinnen können, kann diese jedoch in der Anwesenheit des Pulses nicht an die Gitterionen abgegeben werden. Dadurch bleibt die Temperatur der Gitterionen unter der Elektronentemperatur. Es entsteht kein vollständiges thermodynamisches Gleichgewicht, so dass eine Mischung aus thermisch und nicht-thermisch getriebener Ablation vorliegt.

Für hohe Laserfluenzen in diesem Regime beginnen die nicht-thermischen Ablationsprozesse zu dominieren[63]. Pikosekundenlaser für LIBS an Wänden in Fusionsreaktoren sind bereits erfolgreich eingesetzt worden[5].

**Femtosekunden** Bei Pulsdauern im Bereich von Femtosekunden ist die Pulsdauer kürzer als der Energieübertrag der Elektronen zu den Phononen sowie die Elektronenwärmeleitung und liegt etwa im Bereich der Elektronenrelaxationszeit  $\tau_{ee} \approx \tau_L \ll \tau_{ei}$ . Das heißt der Femtosekundenpuls erzeugt mit seinem Feld eine Anzahl beschleunigter Elektronen, die aber nicht in der Anwesenheit des Pulses untereinander thermalisieren können. Die Gitterionen hingegen können für die Pulsdauer  $\tau_L$  als statisch angenommen werden[18].

Es ist sinnvoll, Pulsdauern im Bereich von Femtosekunden noch einmal zu unterteilen, weil ultrakurze und hochintensive Laserpulse im Bereich von bis zu 10 fs anders wechselwirken als Pulse, die ca. 100 fs dauern und nicht so intensiv sind. Pulse im Bereich von 100 fs finden auch über die Wissenschaft hinaus Anwendung. Ihre Wechselwirkung ist hinreichend studiert und bekannt[58][16][24]. Pulse, die jedoch mit ihrer Pulslänge bis hinunter in die Zeitskalen der Elektronenerzeugung gehen, erzeugen andere Ablationsprozesse.

Im folgenden Abschnitt werden zunächst die langen, ultrakurzen Laserpulse und deren Wechselwirkung mit dem Festkörper beschrieben, um dann im Kapitel 6.3 ein neues Modell für den Ablationsprozess bei kurzen, ultrakurzen und hochintensiven Laserpulsen zu entwickeln.

Gamaly et al. entwickelten ein nicht-thermisches Modell zur Ablation mit subpikosekunden Laserpulsen ( $\tau_L = 100$  fs), bei dem die Gitterionen kalt gegenüber den Elektronen sind, weil die Elektronen-Phononen-Relaxationszeit für Kupfer  $\tau_{ei} = 6,4$  ps und damit viel länger als die Pulsdauer ist[24].

Für die Heizung der Elektronen werden nur Elektronen in der Skintiefe  $l_S$  betrachtet, die für Kupfer  $l_S = 67,4$  nm beträgt, woraus sich eine Elektronwärmediffusionszeit von ca.  $t_e \approx 10$  ps ergibt[24]. Weiterhin wird angenommen, dass durch die ansteigende Flanke des Pulses das Material innerhalb der Skintiefe voll

ionisiert wird und danach die Elektronendichte für die Pulsdauer konstant bleibt. Für diese längeren Pulse wird die elektrostatische Ablation beschrieben, bei der Elektronen mit einer Energie höher als die Austrittsarbeit aus der Oberfläche austreten und ein elektrostatisches Feld aufbauen, das die verbleibenden Ionen auslöst[24]. Dafür wird eine kritische freie Elektronendichte  $\rho_c$  definiert, die als Grenze für die Ablation herangezogen wird. Thermische Vergleichsgrößen stehen nicht zur Verfügung.

Dem gegenüber steht die Ablation mit *few-cycle*-Pulsen, die hier betrachtet wird: Kleeschulte et al. [21] haben gezeigt, dass die aus dem Festkörper heraus beschleunigten Elektronen ein starkes elektrostatisches Feld aufbauen.

Kann also der Formalismus für die elektrostatische Ablation angewendet werden? Aus den Grundlagen der Plasmaphysik ist bekannt, dass das elektrische Feld auf der Debyelänge abgeschirmt wird:

$$\lambda_D = \sqrt{\frac{\epsilon_0 k_B T_e}{n_e e^2}}. \quad (6.1)$$

Mit vorstellbaren Temperaturen  $T_e = 10$  keV bei Intensitäten von  $I = 8 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> und einer für den Festkörper typischen Elektronendichte von  $n_e \approx 10^{29}$  m<sup>-3</sup> ergeben sich Debye-Längen von wenigen Nanometern. Da die gemessenen Krater eine Tiefe von bis zu 12  $\mu$ m haben, ist die Tiefe durch eine elektrostatische Ablation nicht erklärbar. An Oberflächen entspricht die Debye-Länge der Skintiefe (vergl. Kapitel 2.2.3).

Für *few-cycle* Pulse, also mit Pulsdauer  $\tau_L < 10$  fs, wie sie in dieser Arbeit verwendet werden, muss berücksichtigt werden, dass für hochintensive (ab  $I = 10^{13}$  W/cm<sup>2</sup>) Pulse die Elektronenrelaxationszeit bis zu  $\tau_{ee} \approx 1$  ps betragen kann[23]. In diesem Fall ist die Pulsdauer sogar viel kürzer als die Thermalisierungszeit der Elektronen und die Annahme, dass die Elektronendichte über die Pulsdauer konstant bleibt, ist nicht mehr gegeben.

Insbesondere entstehen freie Elektronendichten während des Pulses, die größer als die kritische Dichte  $\rho_c$  sind, was der grundlegenden Annahme von Gamaly et al. zur Ablation widerspricht. Daher legen Zhokhov et al. ein Kriterium für den optischen Breakdown fest, bei dem die in den Elektronen gespeicherte Energie mit der zum thermodynamischen Schmelzen benötigten Energie verglichen wird[23]. Die in dieser Arbeit verwendeten Pulsdauern im Bereich von unter 10 fs liegen deutlich näher an den Pulsen aus [23] als an denen aus [24].

Diese Idee wird im Folgenden aufgegriffen, um daraus ein Modell für die Ablation bzw. Kratererzeugung mit hochintensiven *few-cycle* Pulsen zu entwickeln,

das die von den Elektronen im Material deponierte Energie im Vergleich zur Verdampfungsenergie betrachtet.

## 6.3 Drei-Stufen-Modell für Kratererzeugung

In diesem Kapitel wird ein Modell entworfen, mit denen die Kratergrößen in Abhängigkeit von Intensitäten oberhalb von  $I = 1 \cdot 10^{15} \text{ W/cm}^2$  in drei Schritten erklärt werden können:

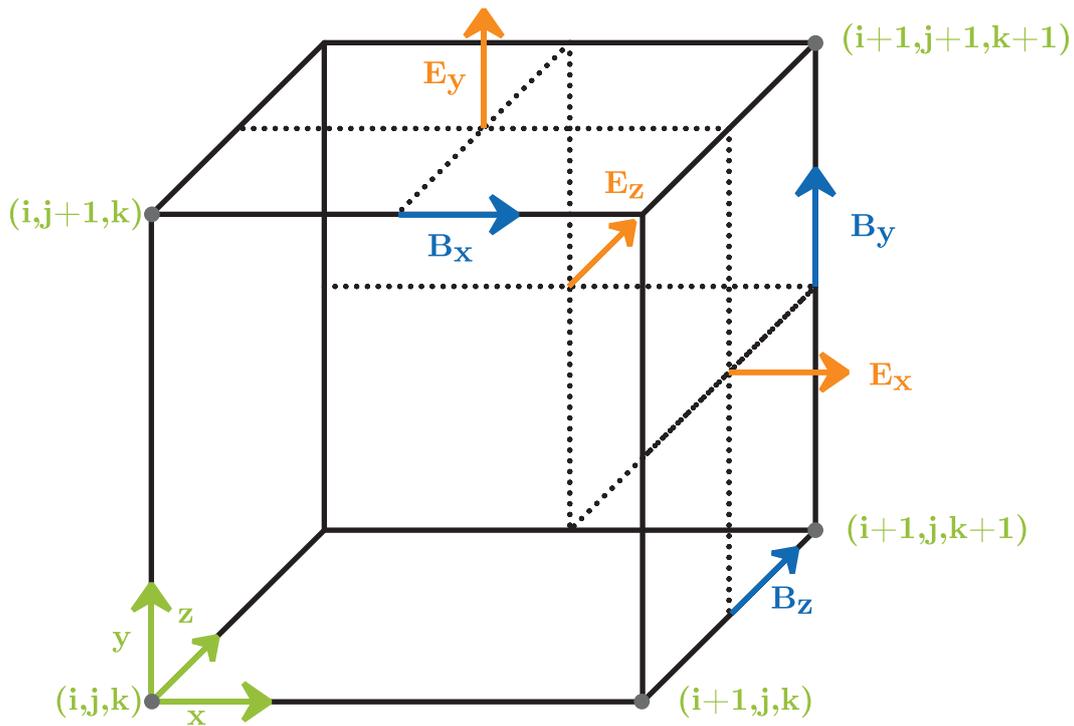
Zunächst werden die Elektronen durch die Wechselwirkung mit dem Laser beschleunigt. Das Spektrum der Laserelektronen im Festkörper wurde durch den PIC-Code EPOCH berechnet. Darin werden die in Kapitel 2.2.4 beschriebenen Mechanismen verwendet.

Im zweiten Schritt wird die Eindringtiefe der Elektronen in den Festkörper und die daraus resultierende Energiedeposition für die Ablation bestimmt.

Die dritte Stufe beschreibt durch elektronische Wärmediffusion ein weiteres Aufschmelzen des Kraters. Nach dem Drei-Stufen Modell können die Krater durch laserbeschleunigte Elektronen beschrieben werden. Die im folgenden Kapitel gezeigten Abbildungen und Werte beziehen sich auf den Prozess der Kraterbildung bei der maximalen Laserintensität von  $I = 8 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$ .

### 6.3.1 EPOCH

Der PIC-Code EPOCH ist von Arber et al an der Universität Warwick entwickelt worden. Bei der *Extendable PIC Open Collaboration* kurz EPOCH handelt es sich um einen offenen *particle in cell* (PIC) code. PIC Codes sind ein weit verbreitetes und etabliertes Werkzeug in der Plasmaphysik. Ihre Funktionsweise wird im folgenden Kapitel beschrieben und orientiert sich an [20]. Die zugrunde liegenden Prozesse in der Laserabsorption sind im Kapitel 2.2.1 beschrieben.

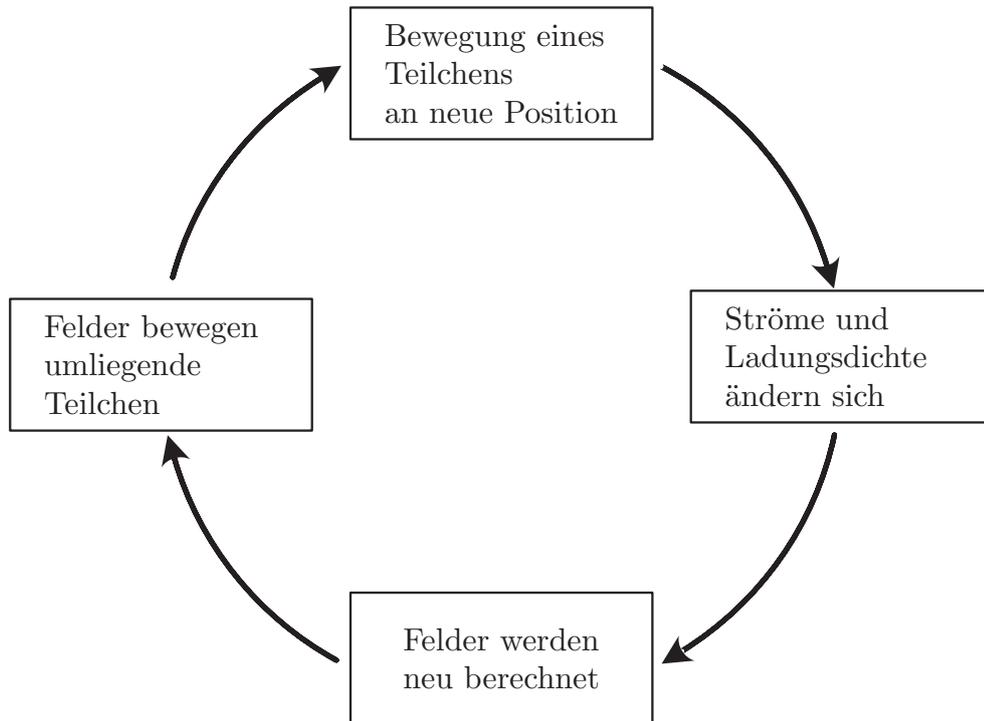


**Abb. 6.5:** Diese Abbildung zeigt eine Zelle des Yee-Gitters, auf dessen Flächenmitten die elektrischen Felder und auf dessen Kanten die magnetischen Felder definiert sind. Außerdem sind die Ortskoordinaten definiert.

### PIC-Codes

Das Ziel eines PIC Codes ist die Berechnung der Teilchendynamik in einem Plasma, das heißt die Lösung der Bewegungsgleichung aller Teilchen. Weil Plasmen aus geladenen Teilchen bestehen, ist die Dynamik an die Maxwell-Gleichungen gekoppelt. Für die beschleunigenden Kräfte müssen die Felder über die Maxwell-Gleichungen bestimmt werden. Die Berechnung aller Teilchenpositionen und Felder in einem Plasma führt zu einer langen Rechenzeit, weil diese mit der Teilchenzahl im Quadrat  $N^2$  ansteigt. Um die Rechenzeit zu reduzieren, ersetzt ein PIC Code das Konzept einer fixen Anzahl von Teilchen durch ein Makroteilchen, das eine fixe Ladung und Masse besitzt. Der Simulationsraum wird aus Zellen zusammengesetzt, in denen jeweils zu Beginn ein Makroteilchen sitzt. Die elektrischen Felder werden dann auf den Flächenmitten sowie die Ströme und somit das magnetische Feld an den Kanten der Zelle berechnet, wie es in Abbildung 6.5 gezeigt ist. Alle Zellen sind in einem Yee-Gitter angeordnet. Die Makroteilchen können sich innerhalb

der Zellen ohne Wechselwirkung bewegen, so dass nur Felder entstehen, wenn sie die Zelle wechseln. Die Teilchenbewegungen werden dann mit Hilfe des folgenden



**Abb. 6.6:** Mit dieser Abbildung wird der im Text beschriebene Algorithmus zusammengefasst, der Grundlage für jeden PIC Code ist.

Algorithmus berechnet, der auch in Abbildung 6.5 dargestellt ist:

- Innerhalb eines Zeitschrittes  $\Delta t$  bewegt sich ein Teilchen, beschleunigt durch Kräfte, die sich aus den umliegenden Feldern ergeben, mit einer gewissen Geschwindigkeit  $\vec{v}$  zu seiner neuen Position  $\vec{x}_1$ .
- Aus der Bewegung folgt ein neuer Strom  $\vec{J}$  und eine neue Ladungsdichte  $\rho$  innerhalb der Zelle am Ort  $\vec{x}_1$ .
- Aus der geänderten Ladungsdichte  $\rho$  und dem Strom  $\vec{J}$  werden mit den Maxwellgleichungen die  $\vec{E}$  und  $\vec{B}$  Felder berechnet.
- Mit den veränderten Feldern wird die Bewegungsgleichung für alle umliegenden Teilchen gelöst, so dass auf Grund der Bewegung der Teilchen der anderen Zellen die Routine wieder von vorne beginnt.

Wie dem Algorithmus zu entnehmen ist, besteht EPOCH aus zwei Lösern für die Bewegungs- und die Maxwellgleichungen, die im folgenden vorgestellt werden: Die Feldgleichungen nach Maxwell in SI Einheiten lauten:

$$\nabla \cdot \vec{E} = \frac{\rho}{\epsilon_0} \quad (6.2)$$

$$\nabla \cdot \vec{B} = 0 \quad (6.3)$$

$$\nabla \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (6.4)$$

$$\nabla \times \vec{B} = \mu_0 \vec{j} + \mu_0 \epsilon_0 \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (6.5)$$

Die FDTD (*finit-difference time domain*) Methode ist eine Standardtechnik zur numerischen Lösung der Maxwell-Gleichungen. Weil die Größen auf dem Yee-Gitter definiert sind, lassen sich zentrierte Differenzenquotienten einfach verwenden. Die partielle Ableitung des elektrischen Feldes in  $x$ -Richtung ist beispielsweise wie folgt definiert:

$$\left( \frac{\partial E_y}{\partial x} \right)_{i,j,k} = \frac{E_{y_{i+1,j,k}} - E_{y_{i,j,k}}}{\Delta x} + \mathcal{O}(\Delta x^2) \quad (6.6)$$

Weil die räumlichen Ableitungen nur für die Berechnung einer weiteren Größe benötigt werden und deren Definitionen ähnlich sind, sind alle Ableitungen in der zweiten Ordnung genau, wie der Fehlerterm in Gleichung 6.6 zeigt. EPOCH nutzt in der FDTP Methode ein abgewandeltes *leapfrog*-Schema, das die Felder sowohl nach einem halben als auch nach einem ganzen Zeitschritt aktualisiert: Zunächst werden die Felder nach einem halben Zeitschritt  $n + \frac{1}{2}$  aus Strömen, die zum Zeitpunkt  $n$  gelten, berechnet. Im Anschluss daran werden die Ströme mit Hilfe der Lösung der Bewegungsgleichungen auf den Zeitpunkt  $n + 1$  bestimmt. Aus den neuen Strömen werden die Felder vom Zeitpunkt  $n + \frac{1}{2}$  auf  $n + 1$  aktualisiert. Obwohl natürlich die Aufteilung in halbe Zeitschritte im Grunde auch der FDTD-Methode folgt, hat diese Vorgehensweise ihre Begründung darin, dass die Felder im halben Zeitschritt für die Berechnung der Teilchenbewegung benutzt werden, die aus den Bewegungsgleichungen berechnet werden und nicht auf das Gitter begrenzt sind.

$$\frac{\vec{x}^{n+1} - \vec{x}^n}{\Delta t} = \vec{v}^{n+1/2} \quad (6.7)$$

$$\frac{\vec{v}^{n+1/2} - \vec{v}^{n-1/2}}{\Delta t} = \frac{q}{m} \left( \vec{E}^n + \frac{\vec{v}^{n+1/2} + \vec{v}^{n-1/2}}{2} \times \vec{B}^n \right). \quad (6.8)$$

Durch die Boris Methode [20] werden die Gleichungen (6.8) vereinfacht zu:

$$\vec{v}^{n-1/2} = \vec{v}^- - \frac{q\vec{E}}{m} \frac{\Delta t}{2} \quad (6.9)$$

$$\vec{v}^{n+1/2} = \vec{v}^+ + \frac{q\vec{E}}{m} \frac{\Delta t}{2}. \quad (6.10)$$

Aus den Geschwindigkeiten, die zwischen den normalen Zeitschritten errechnet werden, ergibt sich die Gleichung für den *particle pusher* zu:

$$\frac{\vec{v}^+ - \vec{v}^-}{\Delta t} = \frac{q}{2m} (\vec{v}^+ + \vec{v}^-) \times \vec{B}. \quad (6.11)$$

Die Bewegungsgleichungen für die Teilchen sind im Gegensatz zu den Feldgleichungen nicht an das Gitter gebunden, so dass sich die Teilchen frei bewegen können.

### 6.3.2 Beschleunigte Elektronen im Festkörper

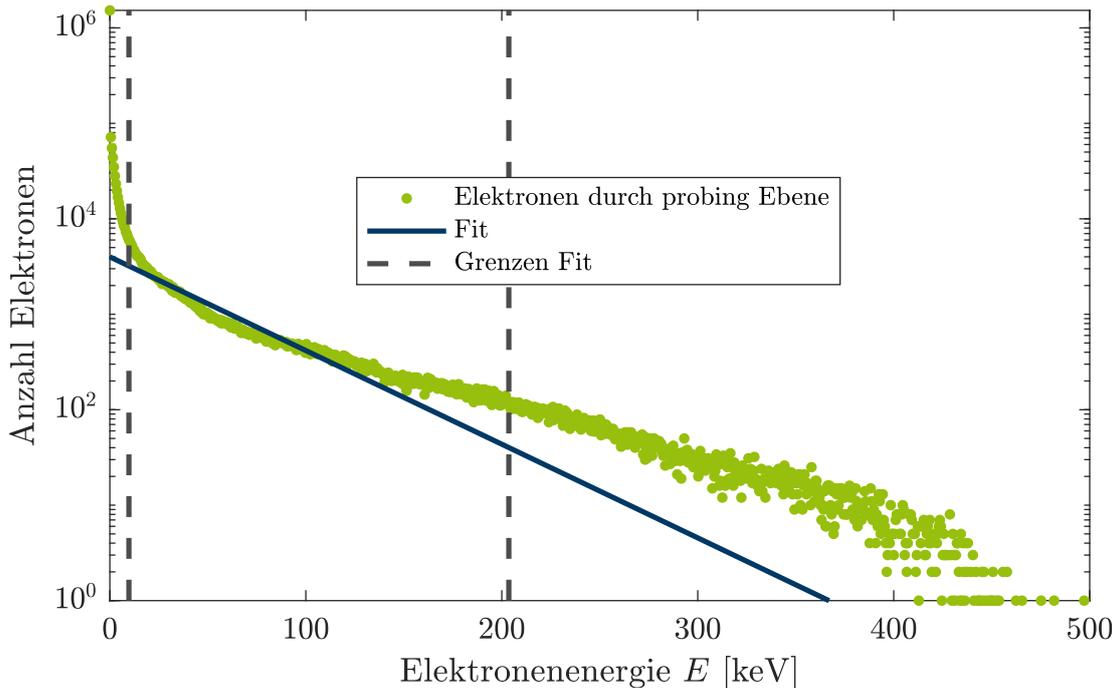
Ohne äußere Störung würde ein für einen PIC Code generiertes Plasma auf den betrachteten Zeitskalen vom Femtosekunden keine Expansion erfahren. Als externer Einfluss kann ein Laserpuls eingebracht werden, der mit dem Plasma wechselwirkt. Zu jedem Zeitpunkt können dann Feld- und Teilchenparameter ausgegeben werden. Ein mächtiges Werkzeug in EPOCH ist die Möglichkeit eine Ebene zu definieren, die alle Teilchen sowie deren Eigenschaften erfasst, die diese Ebene passieren. Aus diesen Daten können also die Elektronenspektren in Abhängigkeit von der Intensität des Laserpulses erstellt werden.

Abbildung 6.7 zeigt die Energieverteilung von Elektronen, die beim Durchtritt einer Ebene, die 1  $\mu\text{m}$  hinter der Oberfläche liegt, gemessen wurden. Die Verteilung ist halblogarithmisch dargestellt und zeigt bei hohen Energien einen exponentiellen Abfall. Erwähnenswert ist, dass sich eine signifikante Anzahl an Elektronen bis zu Energien von  $E_e = 300 \text{ keV}$  in den Festkörper hinein bewegt.

An diese Verteilung wurde mit dem Verfahren der kleinsten Quadrate eine Exponentialfunktion angepasst:

$$\frac{dN(E)}{dE} = A * \exp \left[ -\frac{E}{B} \right]. \quad (6.12)$$

Die gestrichelten Linien zeigen die Grenzen der Daten, die für den Fit verwendet wurden, weil sie nur wenig Energie bezogen auf die Pulsenergie besitzen. Außerdem



**Abb. 6.7:** Diese Abbildung zeigt das Energiespektrum von laserbeschleunigten Elektronen, die durch eine Ebene sich bewegt haben, die  $1 \mu\text{m}$  hinter der Oberfläche liegt, in halblogarithmischer Darstellung. An die Verteilung wurde eine Exponentialfunktion angepasst, die mit Fit bezeichnet ist. Die Laserintensität beträgt  $I = 8 \cdot 10^{18} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$ . Der Fit ergibt eine Abfalllänge der exponentiellen Elektronenverteilung von  $B = 44 \text{ keV}$  (vergleiche Gleichung (6.12)).

ist ihre Reichweite im Festkörper gering (siehe dazu Kapitel 6.3.3), so dass sie nicht für die Erklärung des Kraters geeignet sind. Nur vergleichsweise geringe Anzahlen von Elektronen besitzen hohe Energien (rechts der zweiten Fit-Grenze) und werden somit beim Fit nicht berücksichtigt.

Aus dem Fit ergibt sich eine charakteristische Abfalllänge von  $B = 44 \text{ keV}$  für das exponentiell angenommene Elektronenspektrum. Wie diese Elektronen ihre Energie im Festkörper deponieren wird im folgenden Kapitel 6.3.3 erklärt.

### 6.3.3 Quasi-elastisches Stoßmodell

Lindhard et al. [64] entwickelten eine Theorie über die Eindringtiefe von schweren Ionen in Festkörpern, die sog. LSS Theorie. Daraus leiteten Kanaya und Okayama [65] ein quasi elastisches Stoßmodell für die mittlere Eindringtiefe von schnellen

Elektronen in Festkörpern ab. Seit Ende des 19. Jahrhunderts wurden die Eindringtiefen von Elektronen in Festkörpern untersucht. Für die in den 70er Jahren des 20. Jahrhunderts aufkommenden Analyseverfahren, wie zum Beispiel *scanning elektron microscopy*, wurde eine einfache, halb empirische Theorie der Elektronenstreuung benötigt. Elektronen, die in einen Festkörper eindringen, können entweder elastisch oder inelastisch stoßen. Auf der einen Seite werden Elektronen durch Kollisionen untereinander abgebremst, wenn sie mit atomar gebundenen Elektronen stoßen. Der dazu gehörende Impulsübertrag ist gering, aber der Energieübertrag groß. Andererseits können Elektronen an den Atomkernen fast elastisch mit Energie- und Impulsübertrag stoßen. Also verlieren die Elektronen bei ihrem Weg ins Target Energie auf Grund von Elektronen-Elektronen-Stößen und werden durch Streuung an Kernen abgelenkt. Weil die Anregung von Plasmonen im Vergleich zu den Verlusten durch Elektron-Elektron-Stöße kleiner ist, wird sie hier vernachlässigt. Validiert wird diese Theorie durch den Vergleich mit verschiedenen Experimenten, die die Eindringtiefen von Elektronen in Festkörpern bestimmt haben.

Nach dieser quasi-elastischen Streutheorie ist der differentielle Wirkungsquerschnitt für den Energieverlust durch Elektronenkollision gegeben mit:

$$d\sigma_e = \lambda_s \frac{\pi a^3}{2} \left( \frac{2e^2}{aE} \right)^{\frac{5}{3}} \frac{T_m^{\frac{5}{6}} dT}{T^{\frac{11}{6}}}. \quad (6.13)$$

Hier ist  $\lambda_s$  eine empirische Konstante,  $T$  der Energieübertrag und  $T_m$  dessen maximaler Wert,  $E$  ist die Elektronenenergie und  $a$  der Atomradius.

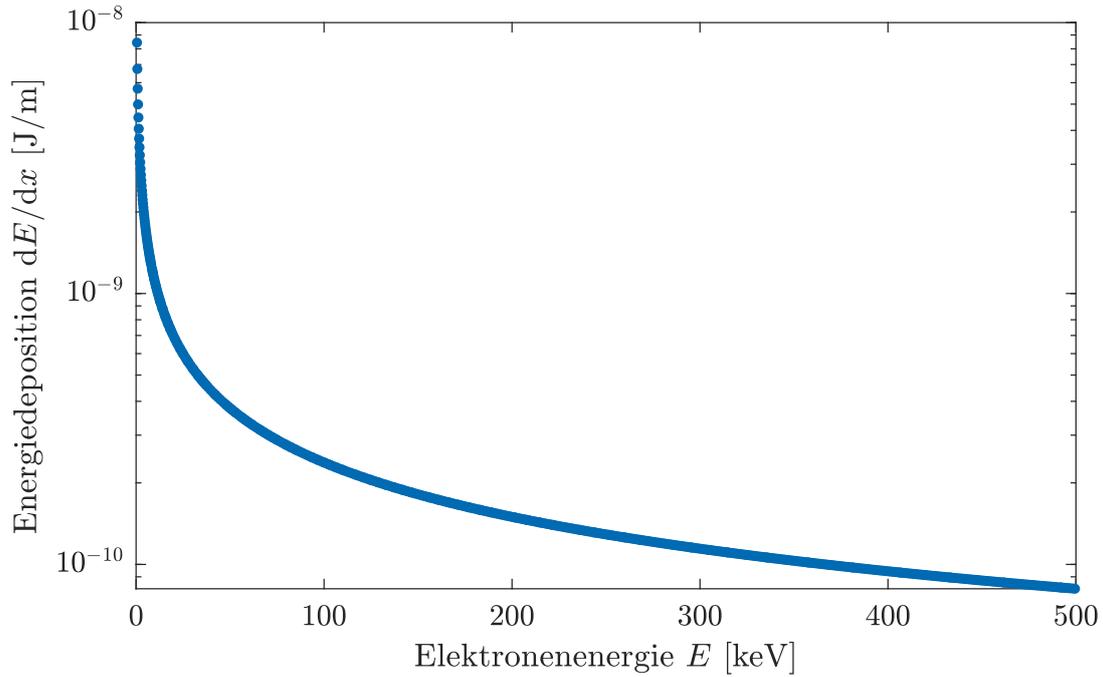
Der Energieverlust pro Streckenelement kann nun berechnet werden aus:

$$\begin{aligned} \frac{dE}{dx} &= NZ \int_0^{T_m} T \frac{d\sigma_e}{dT} dT \\ &= \lambda_s NZ \frac{3 \times 2^{\frac{5}{3}} \pi a^{\frac{1}{3}}}{E^{\frac{2}{3}}} \left( \frac{e}{\sqrt{4\pi\epsilon_0}} \right)^{\frac{10}{3}}. \end{aligned} \quad (6.14)$$

und ist in Abbildung 6.8 zu sehen. Es ist zu erkennen, dass hochenergetische Elektronen weniger Energie deponieren als langsame Elektronen.

Bei Elektronen mit einer Startenergie  $E_0$  kann die Restenergie  $E_{\text{Rest}}$  nach Durchdringen einer Strecke  $dx$  berechnet werden aus:

$$E_{\text{Rest}} = E_0 - dE \Big|_{E_0}. \quad (6.15)$$



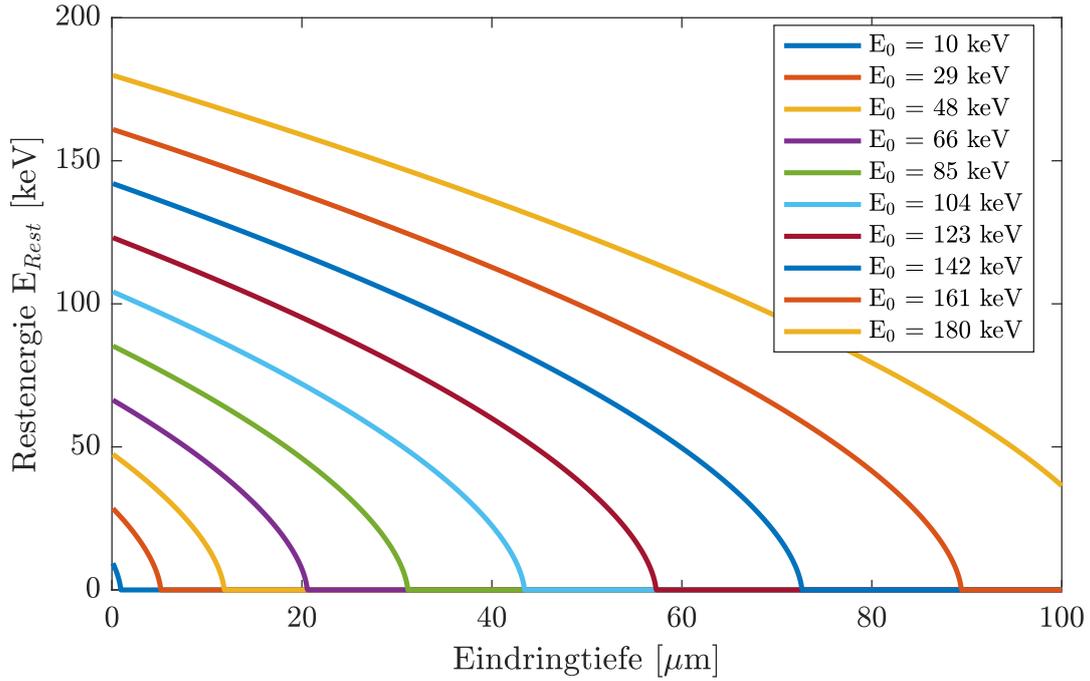
**Abb. 6.8:** Energieverlust eines Elektrons pro Streckenelement abhängig von seiner Energie  $E$  in Aluminium.

Nach einem weiteren Streckenelement  $dx$  hat das Elektron die Energie  $\tilde{E}_{\text{Rest}}$ :

$$\tilde{E}_{\text{Rest}} = E_{\text{Rest}} - dE \Big|_{E_{\text{Rest}}} . \quad (6.16)$$

Dabei ist die im Material deponierte Energie eines Elektrons  $dE \Big|_{E_{\text{Rest}}}$  auf einer Länge  $dx$ . Die Energiedeposition eines Elektrons mit einer Startenergie  $E_0$  für verschiedene Startenergien ist in Abbildung 6.10 gezeigt. Es ist zu erkennen, dass Elektronen lange Zeit wenig Energie abgeben und bei geringen Geschwindigkeiten wie bei einem Bragg-Peak auf einer kurzen Distanz stecken bleiben. Dabei ist zu erwähnen, dass es sich hierbei um den Energieverlust eines mittleren Elektrons handelt. Konkrete Elektronen haben eine starke Streuung um den Peak herum. Die Schritte aus Gleichung (6.15) werden so lange wiederholt bis die Restenergie des Elektrons null ist. Daraus ist die deponierte Energie für alle Elektronen mit bestimmten Startenergien bekannt. Für das Elektronenspektrum wurde eine exponentielle Verteilung angenommen wie sie auch dem Fit aus Abbildung 6.7 zu Grunde liegt und aus der sich der Wert für  $B$  ergibt:

$$\frac{dN(E)}{dE} = A \cdot \exp \left[ -\frac{E}{B} \right] . \quad (6.17)$$



**Abb. 6.9:** Restenergie  $E_{\text{Rest}}$  eines Elektrons mit der Startenergie  $E_0$  nach Durchdringen einer bestimmten Strecke im Material. Dieser Abbildung kann auch die maximale Eindringtiefe eines Elektrons mit einer Startenergie  $E_0$  entnommen werden.

Der Faktor  $A$  ist bisher nicht bestimmt und wird über die Pulsenergie bestimmt. Alle Elektronen in Summe dürfen nicht mehr Energie als die Pulsenergie besitzen, woraus folgt:

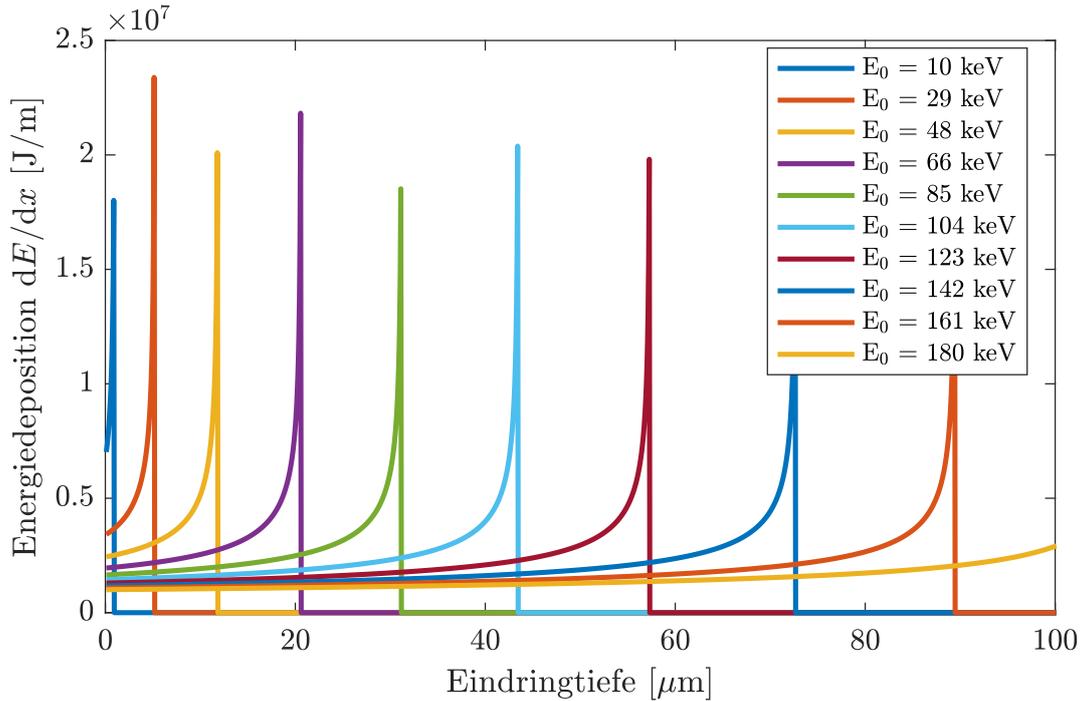
$$E_{\text{Puls}} = \int_0^{\infty} E \frac{dN(E)}{dE} dE. \quad (6.18)$$

Der Faktor  $A$  ergibt sich daraus zu  $A = \frac{E_{\text{Puls}}}{B^2}$ . Die Anzahl an Elektronen pro Energieintervall wird also über die Pulsenergie bestimmt. Eine Gesamtanzahl an Elektronen wird nicht angenommen.

Die Anzahl der Elektronen pro Energieintervall der Startenergie  $dE$  beträgt:

$$N(E^*) = \int_{E^*}^{E^*+dE} \frac{dN(E)}{dE} dE. \quad (6.19)$$

Die Startenergien der Elektronen werden mit der Anzahl der Elektronen bei diesen Startenergien gewichtet. Um die gesamte, pro Streckenelement deponierte Energie



**Abb. 6.10:** Deponierte Energie in Abhängigkeit von der Tiefe im Material für verschiedene Startenergien  $E_0$  der Elektronen. Zu beachten ist, dass diese Darstellung den Energieverlust eines „mittleren Elektrons“ beschreibt. Für konkrete Elektronen ergibt sich eine starke Streuung um den Peak herum, so dass in Realität keine solchen Peaks entstehen.

zu bestimmen, wird die deponierte Energie von allen Elektronen summiert.

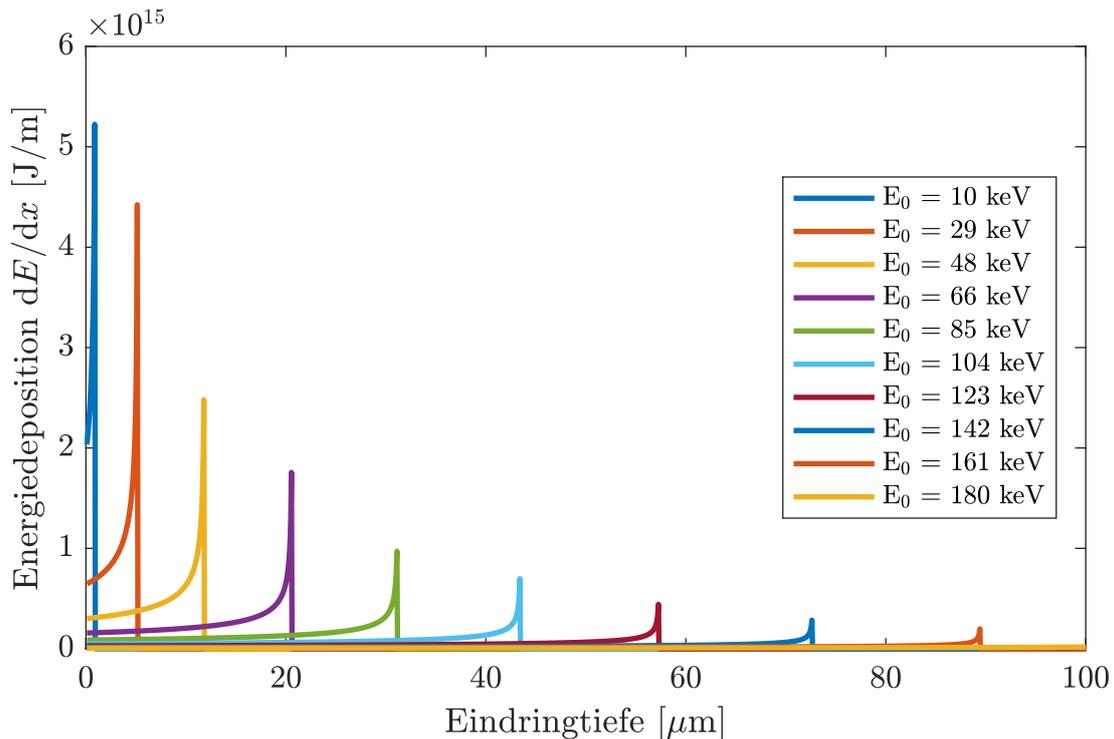
$$\frac{dE_{sum}}{dx} = \sum_{i=0}^{E_{max}} \left. \frac{dE}{dx} \right|_{E_i} \cdot \left. \frac{dN}{dE} \right|_{E_i}. \quad (6.20)$$

Die mit dem Elektronenspektrum gewichtete, deponierte Energie der Elektronen  $E_{sum}$  ist in Abbildung 6.11 zu sehen. Die Elektronen deponieren ihre Energie in einer Halbkugel, so dass nun noch durch die Oberfläche einer Halbkugel geteilt werden muss:

$$\frac{dE_{sum}}{dV} = \frac{\frac{dE_{sum}}{dx}}{2\pi(dx)^2}. \quad (6.21)$$

Für das Verdampfen eines Festkörpers muss sowohl dessen spezifische Schmelz- als auch dessen Verdampfungswärme  $q_S$  bzw.  $q_V$  aufgebracht werden. Zudem muss noch die spezifische Wärmekapazität  $c$  hinsichtlich der Temperaturänderung  $\Delta T$  berücksichtigt werden:

$$q_{ges} = q_S + q_V + c \cdot \Delta T. \quad (6.22)$$

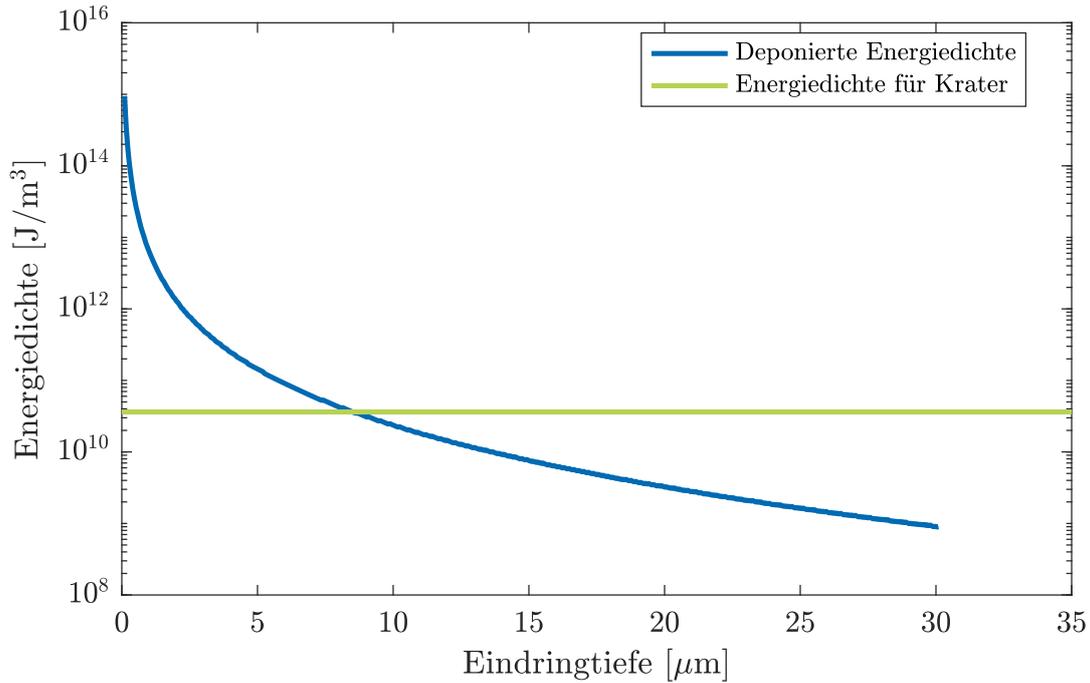


**Abb. 6.11:** Die deponierte Energie gewichtet mit dem Elektronenspektrum. Die Energieverteilung der Elektronen entspricht dem Fit aus Abbildung 6.7.

In Abbildung 6.12 ist die gesamte Energiedichte, die von den allen Elektronen in der jeweiligen Tiefe deponiert werden, gezeigt. Zum Vergleich ist die Energiedichte eingetragen, die benötigt wird, um einen Krater zu erzeugen. Sie ist die Summe aus Schmelzenergie, Energie zum Aufheizen und Verdampfungsenergie. Der Schnittpunkt der beiden Kurven liegt bei etwa  $7 \mu\text{m}$ . Die Energiedeposition durch die Elektron-Elektron-Stöße reicht offensichtlich nicht aus um einen Krater der gemessenen Tiefe von  $12 \mu\text{m}$  zu erklären.

### 6.3.4 Elektronenwärmediffusion

Abbildung 6.12 zeigt die Energiedeposition pro Volumen einen starken Gradienten. Dem zufolge ist davon auszugehen, dass in dem Material ein hoher räumlicher Temperaturgradient herrscht, nachdem die Elektronen ihre Energie an das Gitter übertragen haben. Jedes thermodynamische System strebt nach dem Ausgleich des Gradienten durch Diffusion. Wie in Kapitel 6.3.2 bereits begründet wird die Energie hauptsächlich auf Elektronen übertragen, sodass die vorliegende Energie



**Abb. 6.12:** Hier ist die gesamte deponierte Elektronen pro Volumen gewichtet mit dem exponentiellen Elektronenspektrum gezeigt. Zum Vergleich ist noch die Energie für die Kraterentstehung eingetragen.

in kinetischer Energie von Elektronen vorliegt.

Die hier folgende Herleitung der Wärmeleitfähigkeit ist angelehnt an [66]. Nach der kinetischen Gastheorie kann die Energie der Elektronen als Temperatur angegeben werden:

$$E_{\text{kin}} = \frac{1}{2} m_e v^2 = \frac{3}{2} k_B T_e. \quad (6.23)$$

Das allgemeine Diffusionsgesetz lautet:

$$\frac{\partial T(x, t)}{\partial t} = a \cdot \frac{\partial^2 T(x, t)}{\partial x^2}. \quad (6.24)$$

Dabei ist  $a$  die Temperaturleitfähigkeit in  $\text{m}^2/\text{s}$  definiert als der Quotient aus der thermischen Leitfähigkeit  $\kappa$  und dem Produkt aus Dichte  $\rho$  und spezifischer Wärmekapazität  $c_P$ :

$$a = \frac{\kappa_e}{\rho \cdot c_P}. \quad (6.25)$$

Für Elektronen gilt:  $\rho \cdot c_P = \frac{3}{2} n k_B$ , wobei  $n$  die Elektronendichte und  $k_B$  die Boltzmann-Konstante ist. Folglich muss noch die thermische Leitfähigkeit  $\kappa_e$  für ein Elektronengas bestimmt werden. Allgemein ist die thermische Leitfähigkeit

definiert als:

$$\kappa = -\frac{|\vec{Q}|}{|\nabla T|}. \quad (6.26)$$

mit dem Wärmefluss  $\vec{Q}$ . Wird das Bild der kinetischen Gastheorie angewendet, so wird die Energieänderungsrate eines Teilchens mit Wärmekapazität  $c$  und Geschwindigkeit  $\vec{v}$  bedingt durch einen Temperaturgradienten beschrieben durch:

$$\frac{\partial E}{\partial t} = c\vec{v} \cdot \nabla T. \quad (6.27)$$

Weiterhin ist der gesamte Wärmefluss  $\vec{Q}$  für alle Teilchen, mit den spitzen Klammern als Symbol für die Mittelung über alle Teilchen:

$$\vec{Q} = -nc\tau \langle \vec{v}\vec{v} \rangle \nabla T = -\frac{1}{3}nc\tau v^2 \nabla T. \quad (6.28)$$

Aus den Gleichungen (6.26), (6.27) und (6.28) kann die Wärmeleitfähigkeit bestimmt werden zu:

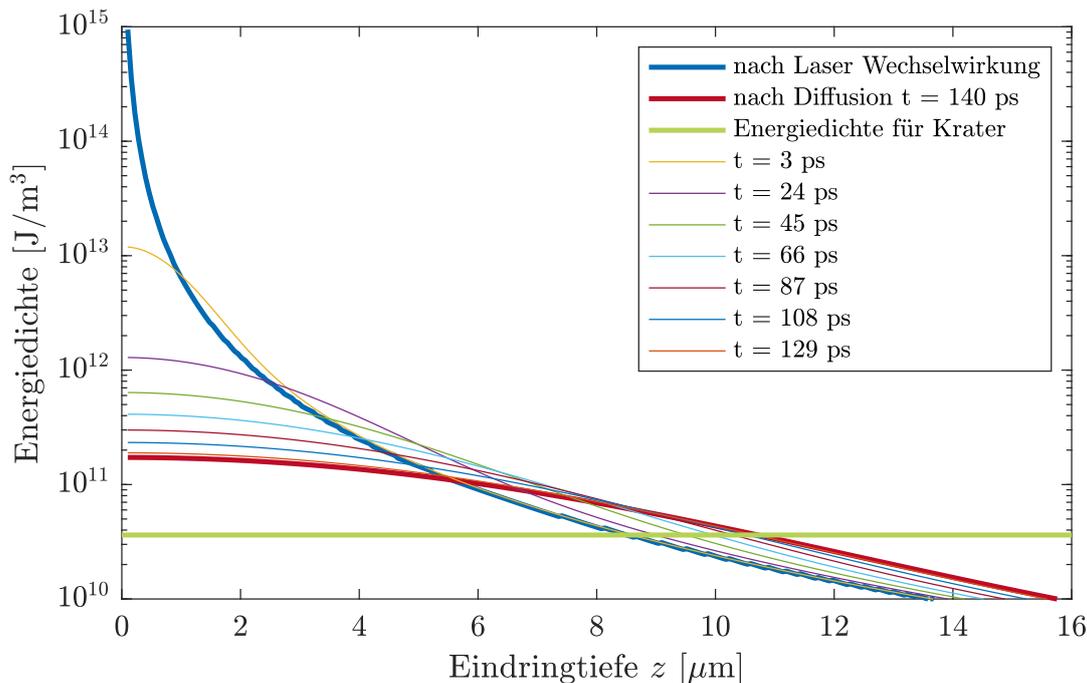
$$\kappa = \frac{1}{3}nc\tau v^2. \quad (6.29)$$

Dabei kann  $l = v\tau$  durch die mittlere freie Weglänge  $l$  ersetzt werden. Weil es sich beim vorliegenden Problem um Elektronen handelt, liegt es nahe Formalismen aus der Plasmatheorie für die Stoßfrequenz  $\nu$  anzuwenden. Die Relaxationszeit  $\tau$  ist definiert als das Reziproke der mittleren Stoßfrequenz, für die bei Elektronen-Elektronen-Stößen gilt:

$$\langle \nu_{e-e} \rangle = \sqrt{\frac{2}{m_e (\pi k_B)^3}} \cdot \frac{e^4}{12\epsilon_0^2} \cdot \frac{n_e \ln \Lambda_C}{T_e^{\frac{3}{2}}}. \quad (6.30)$$

mit dem Coulomb-Logarithmus  $\ln \Lambda_C$ . Für die Elektronendichte  $n_e$  wird die Dichte der Valenzbandelektronen von Aluminium verwendet. Die Berechnung der Elektronentemperatur und -geschwindigkeit durch Gleichung (6.23) verwendet den integralen Mittelwert aus der Elektronenenergieverteilung in Höhe von  $T_e = 3,4 \cdot 10^6$  K. Damit wird zugunsten eines vereinfachten Modells auf die Temperaturabhängigkeit der Stoßfrequenz und damit der thermischen Leitfähigkeit verzichtet.

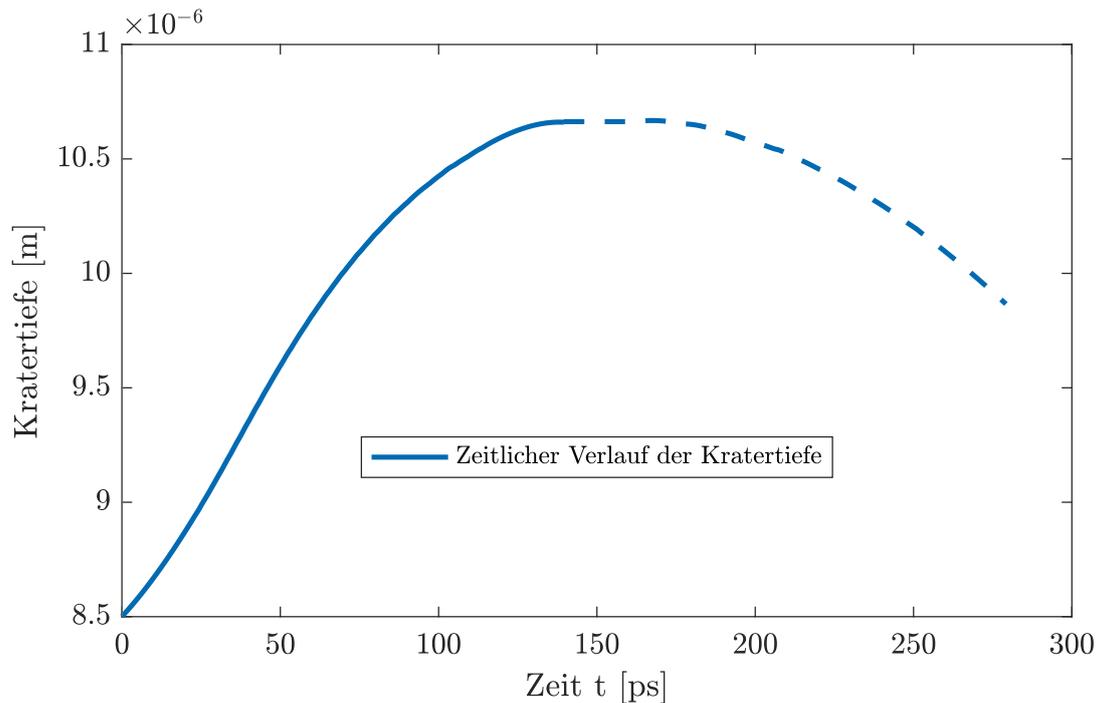
So sind alle Größen bekannt, um die Wärmediffusionsgleichung zu lösen. Die Lösung der Differentialgleichung erfolgt numerisch durch die Finite-Differenzen-Methode. Weil es sich bei der Umrechnung von Wärme in Energie um einen konstanten Faktor handelt, können Wärme oder Energie, bzw. bei Normierung auf das Volumen die Energiedichte austauschbar, verwendet werden. Abbildung



**Abb. 6.13:** Diese Abbildung zeigt die zeitliche Entwicklung der Energiedichte im Festkörper. Die blaue und die grüne Kurve sind analog zu Figur 6.12. Der Schnittpunkt definiert die Kratergröße. Die rote Kurve zeigt die Energiedichteverteilung, die den größten Krater verursacht. Die dünneren verschiedenfarbigen Kurven sind die Verteilungen im zeitlichen Verlauf.

6.13 zeigt die Energiedichteverteilung analog zu Abbildung 6.12 nach der Laserwechselwirkung in Blau und in Grün die Energiedichte für die Kraterbildung. In Rot ist die Energiedichteverteilung nach der Wärmediffusion gezeigt, wie sie sich aus Gleichung (6.27) berechnet. Die dünneren, mehrfarbigen Kurven dazwischen zeigen die Energiedichteverteilungen zu verschiedenen Zeitpunkten. Getrieben durch den anfänglich hohen Gradienten in der Energiedichte diffundiert die Energie bedingt durch die Elektronenbewegungen tiefer in den Festkörper.

Der Schnittpunkt zwischen der Energiedichte  $q_{ges}$ , die für die Kratererzeugung benötigt wird, und der Energiedichte durch die Elektronen ist nun tiefer im Festkörper. Eingetragen ist hier die maximale Tiefe, in der eine ausreichende Energiedichte erreicht wird. Im weiteren Verlauf flacht die Kurve weiter ab und die Tiefe wird geringer. Abbildung 6.14 zeigt den zeitlichen Verlauf der Schnittpunkte wie oben beschrieben aus Abbildung 6.13. Nach dem beschriebenen Modell mit den durch den Laser beschleunigten Elektronen ergibt sich eine maximale Kratertiefe von  $10,5 \mu\text{m}$  nach einer Zeit von  $650 \text{ ps}$ . Bei einer Laserintensität von  $10^{18} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$



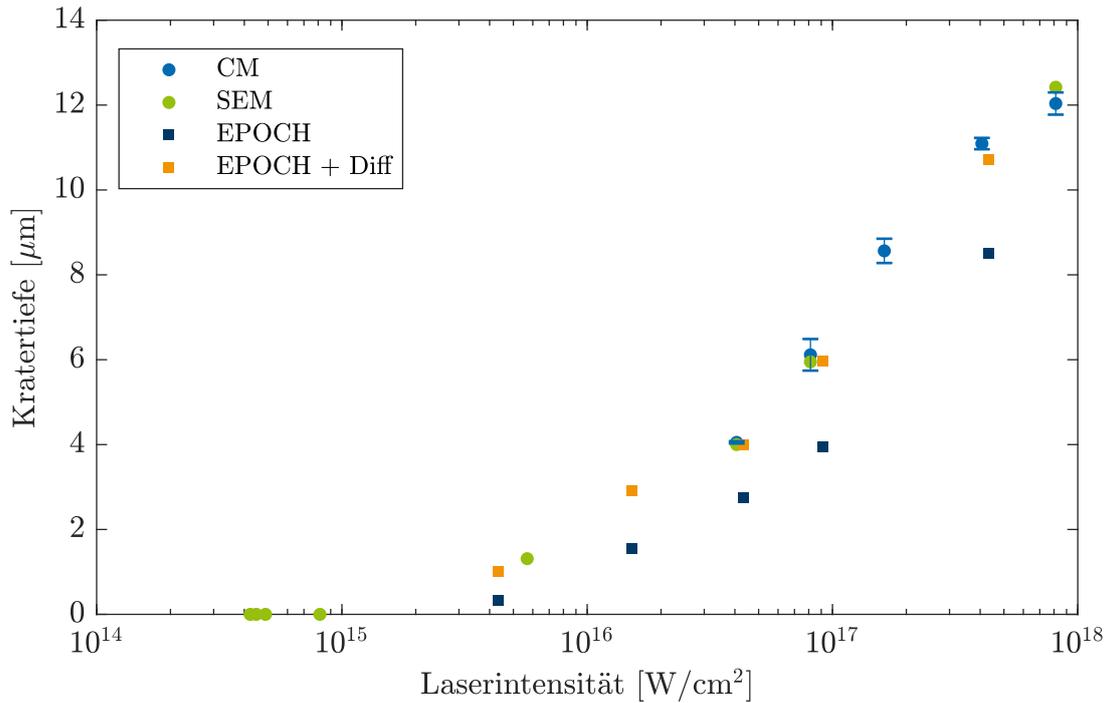
**Abb. 6.14:** In dieser Grafik ist der Schnittpunkt zwischen der zur Kratererzeugung benötigten Energiedichte und der durch die Diffusion veränderte Energiedichte in Abhängigkeit von der Zeit aufgetragen. Die Zeit bis zur maximalen Kratertiefe von  $10.5 \mu\text{m}$  beträgt 650 ps.

wurde eine Kratertiefe von  $12 \mu\text{m}$  mit dem SEM gemessen. Durch das Modell der beschleunigten Elektronen lässt sich also der Krater mit einer Abweichung von 12,5 % bestimmen.

### 6.3.5 Ergebnisse der Modellrechnungen

In Kapitel 6.1 wurden die Krater mit Hilfe von Mikroskopiemethoden untersucht und hinsichtlich ihrer Form und Tiefe ausgewertet. Die Ergebnisse sind in Abbildung 6.15 abhängig von der auf dem Target aufgetragenen Intensität gezeigt. Die Intensität wurde im Bereich zwischen  $10^{14} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  und  $10^{18} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  variiert. Bei den Kratertiefen ergeben sich für steigende Intensitäten zunehmende Kratertiefen, die zwischen  $0,1 \mu\text{m}$  und  $12 \mu\text{m}$  liegen.

Mit hellblauen Punkten markierte Werte wurden mit einem konfokalen Mikroskop aufgenommen. Bei Kratertiefen unter  $4 \mu\text{m}$  ist die Auflösung des konfokalen



**Abb. 6.15:** Diese Grafik vergleicht die gemessenen Kratergrößen mit dem konfokalen Mikroskop (CM) und dem Elektronenmikroskop (SEM) (vergl. Kapitel 6.1 und Abbildung 6.15) mit den Ergebnissen aus dem Drei-Stufen-Modell. Beide Messmethoden zeigen übereinstimmende Werte für die Kratertiefen. Beim Drei-Stufen-Modell ist zu sehen, dass die Ergebnisse zwar deutlich unter den Messungen liegen, aber prinzipiell einen ähnlichen Verlauf aufweisen. Außerdem werden hier die Kratertiefen mit und ohne Elektronenwärmediffusion beschrieben.

Mikroskops nicht mehr ausreichend, so dass das Elektronenmikroskop für die Bestimmung der Kratertiefen verwendet wurde (grüne Punkte). Um zu zeigen, dass beide Messmethoden die gleichen Ergebnisse liefern wurden einige Werte mit beiden Methoden gemessen (vergl. Kapitel 6.1). Des Weiteren zeigt die Grafik die Ergebnisse der Rechnungen aus dem Drei-Stufen-Modell. Diese sind unterteilt in die blauen Punkte, die sich aus der Energiedeposition nach dem Modell von Kanaya Okayama ergeben (Stufe 1 und 2) und in mit orange markierten Punkte, in die auch die Energiediffusion eingeflossen ist. Die Ergebnisse des Drei-Stufen-Modells folgen den Messwerten.

Unterhalb des letzten Wertes der Modellrechnung lassen sich aus dem Modell keine sinnvollen Werte mehr ermitteln. Die Energie der Elektronen reicht dann nicht mehr aus, um Krater von messbarer Tiefe zu erzeugen, wie in den Aufnahmen

des SEM zu sehen ist.

In den Ergebnissen des Modells sind keine Fehler angegeben, weil sie sich nicht quantifizieren lassen. Sie liegen vielmehr in den Annahmen des gewählten Modells, die in Kapitel 6.3 beschrieben sind. Die Fehler belaufen sich also auf die Annahmen.

### 6.3.6 Schlussfolgerungen aus dem Modell

Das in Kapitel 6.3 entwickelte Drei-Stufen-Modell stimmt mit den Messdaten überein. Im Folgenden werden zwei Parameter der Ergebnisse des Drei-Stufen-Modells genauer betrachtet, und anderen Überlegungen gegenüber gestellt. Beginnend mit der Anzahl an Elektronen, die zur Wechselwirkung zur Verfügung stehen, werden im Anschluss die Zeitskalen und abschließend die benötigte Pulsenergie betrachtet, zu der in Kapitel 6.4 noch ein ergänzendes Experiment durchgeführt wird.

**Elektronenanzahl** Die elektromagnetische Welle des Lasers kann nur auf der Fläche des Fokus in lateraler Richtung wechselwirken. Sie ergibt sich zu  $A_f = \pi w_0$ . Nach der Drude-Theorie nimmt die Feldamplitude des Lichts exponentiell im Medium ab. Die Abfalllänge wird als Skinlänge  $l_S$  bezeichnet (vergl. Kapitel 2.2.3) und ist abhängig von der Wellenlänge  $\lambda$  und vom Absorptionskoeffizienten des Materials  $k(\lambda)$ :

$$l_S = \frac{\lambda}{2\pi k}. \quad (6.31)$$

Aus Gleichung (6.31) ergibt sich eine Skintiefe von  $l_S = 15$  nm. Aus der Skintiefe  $l_S$  und der lateralen Ausdehnung des Laserspots auf der Oberfläche ergibt sich ein zylindrisches Volumen  $V_{\text{WW}}$ , mit dem die elektromagnetische Welle wechselwirken kann. Die Krater selbst sind deutlich größer als das Volumen  $V_{\text{WW}}$ , so dass andere Mechanismen für die Kraterentstehung verantwortlich sein müssen.

Zudem erzeugt der Laserpuls in der ansteigenden Flanke ein dichtes Plasma, an dem das Laserlicht reflektiert wird. Somit kann auch im Plasmazustand der Laser nicht mit der tieferen Materie wechselwirken. Die Energie muss also auf anderem Wege in das Material transportiert werden. Wie bereits in Kapitel 6.3.3 kann das Laserlicht Elektronen beschleunigen. Sie können sich durch die Oberfläche der kritischen Dichte hindurch bewegen und tiefer in den Festkörper eindringen. Dort

Intensität [W/cm <sup>2</sup> ]	Anzahl Elektronen	Diffusionszeit [ps]	Anteil Pulsenergie
$4,3 \cdot 10^{17}$	$9,6 \cdot 10^{10}$	140	100 %
$9,0 \cdot 10^{16}$	$7,6 \cdot 10^{10}$	22	50 %
$4,3 \cdot 10^{16}$	$4,3 \cdot 10^{10}$	33	33 %
$1,8 \cdot 10^{16}$	$3,6 \cdot 10^{10}$	4,8	33 %
$4,3 \cdot 10^{15}$	$2,6 \cdot 10^{10}$	0,7	17 %

**Tab. 6.1:** Die Tabelle zeigt die Anzahl der Elektronen, die nach dem Drei-Stufen-Modell zur Erzeugung der Krater in Aluminium nötig sind, in Abhängigkeit von der verwendeten Laserintensität, sowie die Zeit, nach der die größte Kraterausdehnung, getrieben durch die elektronische Diffusion, erreicht wird. Die Elektronenzahl weicht nicht signifikant von der zur Verfügung stehenden Anzahl ab. Die Zeit ist auf einer vertretbaren Zeitskala. In der letzten Spalte ist der Anteil der Pulsenergie eingetragen, die für die Erzeugung des Kraters bei der angegebenen Intensität aufgewendet werden muss. Der Anteil nimmt mit steigender Pulsenergie zu, was passend zu den Messungen des spekulär reflektierten Pulses in Kapitel 6.4 ist.

erzeugen sie den Krater nach dem beschriebenen Drei-Stufen-Modell.

Zur Bestimmung der Energiedeposition der Elektronen im Material wird ein exponentielles Spektrum an Elektronen angenommen. Die zwei Freiheitsgrade zur Bestimmung der Elektronenanzahl sind zum einen die Abfalllänge der Verteilung und zum anderen die Gesamtenergie, die die Elektronen besitzen. Diese beiden Parameter sind durch die PIC Simulation und die Pulsenergie des Lasers gegeben. Insbesondere die Pulsenergie darf nicht überschritten werden, weil mehr Energie zur Kratererzeugung nicht zur Verfügung stehen kann. Die Anzahl der Elektronen ergibt sich aus der Verteilung, die mit den beiden Parametern erstellt wurde. Nun ist es interessant, diese benötigte Anzahl mit den zur Verfügung stehenden Elektronen in dem Volumen  $V_{WW}$  zu vergleichen. Das hier verwendete Material Aluminium besitzt drei Elektronen im Leitungsband. Aus den drei Leitungsbandelektronen und der Dichte von Aluminium ergibt sich eine Anzahl Elektronen  $N$  im Volumen  $V_{WW}$  von  $N = 2,6 \cdot 10^{10}$  Elektronen.

Tabelle 6.1 zeigt die zur Kratererzeugung benötigten Elektronen nach dem Drei-Stufen-Modell über den großen abgedeckten Intensitätsbereich zwischen  $8,1 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> und  $8,1 \cdot 10^{15}$  W/cm<sup>2</sup>. Die Anzahl der Elektronen liegt im Bereich der Zahl der Elektronen, die im Volumen  $V_{WW}$  zur Verfügung gestellt wird. Der

Anstieg zu hohen Intensitäten hin lässt sich dadurch erklären, dass die stärkeren Felder des Lasers auch Elektronen aus dem Valenzband entfernen. Grundsätzlich ergibt sich aus dem Drei-Stufen-Modell, in dem eingangs nicht die Elektronenzahl verwendet wurde, eine sinnvolle Elektronenanzahl, wie oben begründet. Dieses Ergebnis stützt das Drei-Stufen-Modell.

**Zeitskalen** Darüber hinaus lässt sich das Drei-Stufen-Modell noch über die Zeitskalen verifizieren. Der Laserpuls hat eine Länge  $\tau = 10$  fs. Im Folgenden wird Pulslänge mit anderen Zeitskalen in der Licht-Festkörper-Wechselwirkung verglichen.

Tabelle 6.1 beinhaltet die mit dem Drei-Stufen-Modell berechneten Zeiten für die Elektronendiffusion. Sie liegen im Bereich von 230 fs bis hinzu 59 ps und nehmen mit der Intensität zu. Für die Diffusionszeiten bei hohen Intensitäten sind keine Literaturwerte bekannt. Sie lassen sich dennoch einordnen:

Die Energieübertragzeiten erstrecken sich über eine hohe Anzahl an Größenordnungen. Während der Energieübertrag vom Laserpuls auf die Elektronen im Bereich von Subfemtosekunden bis hin zu Femtosekunden liegt, erstreckt sich der Energieübertrag auf die Gitteratome im Bereich von Pikosekunden. Die Wärmediffusion als letzte Stufe findet auf Zeitskalen bis zu Nanosekunden statt. Hier darf jedoch die Wärmediffusion der Gitteratome nicht mit der Diffusion der Elektronen verwechselt werden, wie sie im Drei-Stufen-Modell angewendet wird.

Die Einordnung der Zeitskalen verifiziert also das Drei-Stufen-Modell und somit schnelle Elektronen als Ursache für die Kratererzeugung mit ultrakurzen Laserpulsen.

Nach Shirk und Molian [67] muss ein Modell für Ablation drei Aspekte berücksichtigen:

Erstens muss das Volumen des Ablationsmaterials genug Energie aufnehmen können um einen Phasenübergang zu erreichen.

Zweitens muss die Wärmeleitung aus dem Material hinaus möglich sein und die Energie für Schmelzen und Verdampfen deponiert werden können.

Während viele Publikationen die freie Elektronendichte als kritischen Parameter für Laserschädigungen und beginnende Ablation angeben, ist dennoch drittens im Endeffekt die absorbierte Energie verantwortlich für die Ablation. Das hier vorliegende Drei-Stufen-Modell berücksichtigt vor allem die im Festkörper deponierte Energie.

Wegen des großen Volumens des Targets von  $V_T = 5 \text{ cm}^3$  ist die Wärmeaufnahme unkritisch. Außerdem besitzt Aluminium, verglichen mit anderen Materialien, eine sehr hohe Wärmeleitfähigkeit. Die Aufspaltung in ein Drei-Stufen-Modell ist wegen der zeitlichen Trennung der verschiedenen Prozesse zulässig[18]. Das Drei-Stufen-Modell nimmt als Schwelle für Ablation die Summe aus Schmelz- und Verdampfungsenergie. Der Festkörper wechselt also seinen Aggregatzustand. Beim Schmelzen des Festkörpers wird zwischen thermischen und nicht-thermischen Schmelzen unterschieden. Beim thermischen Schmelzen beginnt der Vorgang an der Oberfläche und eine Schmelzfront propagiert in das Material hinein. Bei Hochleistungslasern können Schmelzzeiten von 1 ps erreicht werden. Begrenzt wird dieser Vorgang durch die Zeit für Elektron-Gitter Heizen, das im Bereich von wenigen Pikosekunden liegt, wie Experimente an Aluminium [68] zeigen.

Werden hingegen die Materialien mit Intensitäten deutlich oberhalb der Ablationsschwelle beleuchtet, so wird ein extremer Nichtgleichgewichtszustand erreicht, der für einige Pikosekunden existieren kann und sich durch die Existenz von sehr heißen, das heißt schnellen Elektronen, auszeichnet. Sie thermalisieren durch Elektronen-Elektronen Stöße, während die Gitteratome kalt bleiben. Die energetischen Elektronen erzeugen in Isolatoren Elektronen-Loch-Paare, die zu einer Potentialstörung führen. Der Mechanismus ist in Metallen noch nicht untersucht worden. Bei ausreichend starken Feldern löst sich die Ordnung des Festkörpers auf, bevor das inkohärente Elektronen-Phononen Heizen dominant wird.

Dieser Vorgang kann als Schmelzen angesehen werden und wird als nicht-thermisches Schmelzen bezeichnet. Nach der Theorie von Stampfli und Bennemann tritt nicht-thermisches Schmelzen auf, wenn angeregte, also schnelle Ladungsträger existieren, die zu einer Gitterinstabilität führen[69]. Alle statischen ab initio Modelle zeigen das Auftreten von Gitterinstabilitäten für ausreichend hohe Elektronentemperaturen, was die Annahme, dass heiße Elektronen für den Energietransport in den Festkörper verantwortlich sind, stützt. Bisher wurde nur das Schmelzen betrachtet, aber für Ablation muss auch Verdampfung stattfinden. Für Isolatoren ist die Coulombexplosion bekannt, die auftritt, wenn es einen räumlich begrenzten Überschuss an Rumpfladung gibt, die nicht ausgeglichen werden kann. In Metallen kann diese Raumladung jedoch schnell genug ausgeglichen werden[18].

Ablation findet bei hohen Intensitäten deutlich später statt und ist begleitet von vielen ausgestoßenen Teilchen. Die Dynamik kann durch verschiedene Modelle wie hydrodynamische Codes oder das Zwei-Temperatur-Modell beschrieben werden. Aus den Modellen können Zeitskalen für die Expansion der ablatierten Materie

gewonnen werden. Auch für niedere Intensitäten mit langen, ultrakurzen Pulsen liegt die Zeit für Ablation im Bereich von 500 fs bis 100 ps. Diese Zeitskalen zeigen, dass sich die Zeiten aus dem Drei-Stufen-Modell im vernünftigen Bereich bewegen.

**Aufgewandte Energie** In Tabelle 6.1 sind auch die Anteile der Pulsenergie aufgetragen, die benötigt werden, um mit den durch den Laser beschleunigten Elektronen einen Krater der gemessenen Größe zu erzeugen. Die benötigte Energie nimmt mit der eingestrahnten Intensität zu und führt zu der Erwartung, dass das eingestrahlte Laserlicht bei hohen Intensitäten besser absorbiert werden müsste. Zur Überprüfung dieser These wurde ein ergänzendes Experiment durchgeführt, wie es in Kapitel 6.4 beschrieben ist.

Mit dem Drei-Stufen-Modell wurde ein ab initio Modell für die Kratererzeugung mit hochintensiven, *few-cycle* Pulsen entwickelt, das die Kratergrößen, die deutlich größer als die Laserfläche sind, erklären kann.

## 6.4 Absorptionsmessungen

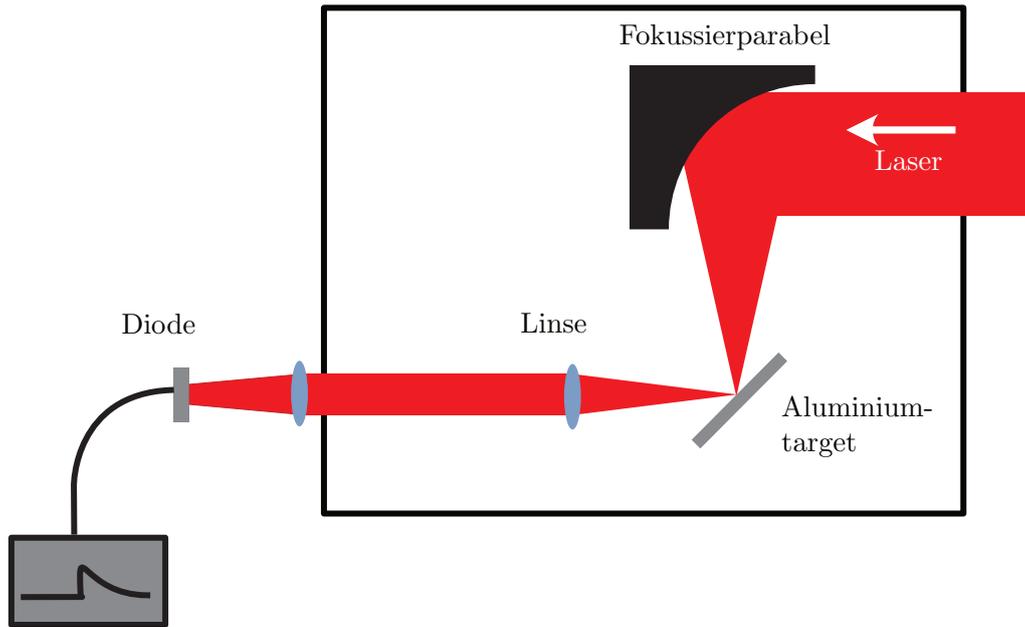
Aus dem Drei-Stufen-Modells zeigt sich, dass für die Krater abhängig von der Intensität ein unterschiedlicher Anteil der Pulsenergie aufgewendet werden muss. Um diesen Effekt weiter zu vermessen, wurde eine Zusatzmessung gemacht, bei der die spekulär reflektierte Intensität in Abhängigkeit von der eingestrahnten Intensität detektiert wird. Dabei fällt auf, dass dessen Intensität abnimmt, wenn die auf das Target eingestrahlte Intensität zunimmt. Dieser Effekt wurde systematisch untersucht, indem das spekulär reflektierte Licht auf eine Diode abgebildet wurde. Der Aufbau ist in Abbildung 6.16 gezeigt.

Das kollimierte Licht wurde dann wieder auf einer Diode<sup>1</sup> gesammelt. Der Spannungsverlauf  $U(t)$  an der Diode kann mit einem Oszilloskop gemessen werden, wobei die Intensität proportional zur abfließenden Ladung  $Q$  ist. Dabei gilt:

$$Q = \int_0^{\infty} I dt = \int_0^{\infty} \frac{U(t)}{R} dt. \quad (6.32)$$

---

<sup>1</sup>Modell: *PIN-10D* vom Hersteller *OSI Optoelectronics*, Hawthorne



**Abb. 6.16:** Aufbau der Absorptionsmessung in spekularer Richtung. Der Laserstrahl wird, wie gehabt, über eine *3off-axis*-Parabel fokussiert. Das spekulär reflektierte Licht wird zunächst kollimiert und dann auf einer Diode gesammelt.

mit dem über den Widerstand  $R$  des Oszilloskops abfließenden Strom  $I(t)$ .

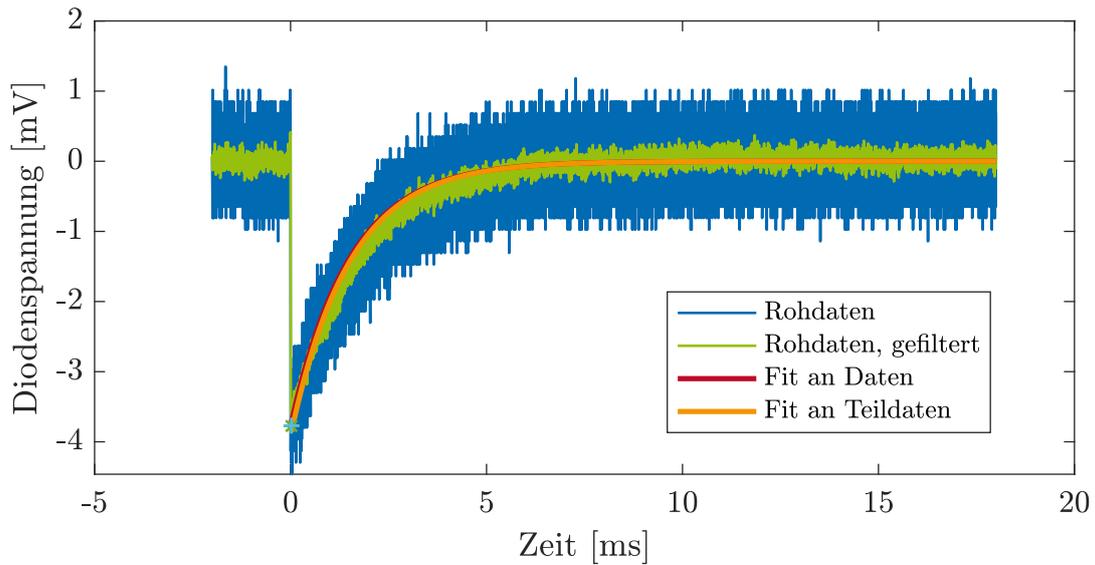
Abbildung 6.17 zeigt zwei typische Spannungsverläufe auf dem Oszilloskop. In Blau sind die Rohdaten aufgetragen, die mit Hilfe eines Sawatzky-Golay-Filters geglättet wurden und dann in Grün dargestellt sind. In Gleichung (6.32) ist der Spannungsverlauf  $U(t)$  eine Exponentialfunktion, für die mit der Abklingzeit  $\bar{t}$  und Amplitude  $U_0$  gilt:

$$\int_0^{\infty} U(t) dt = \int_0^{\infty} U_0 \cdot \exp\left[-\frac{t}{\bar{t}}\right] dt = U_0 \cdot \bar{t}. \quad (6.33)$$

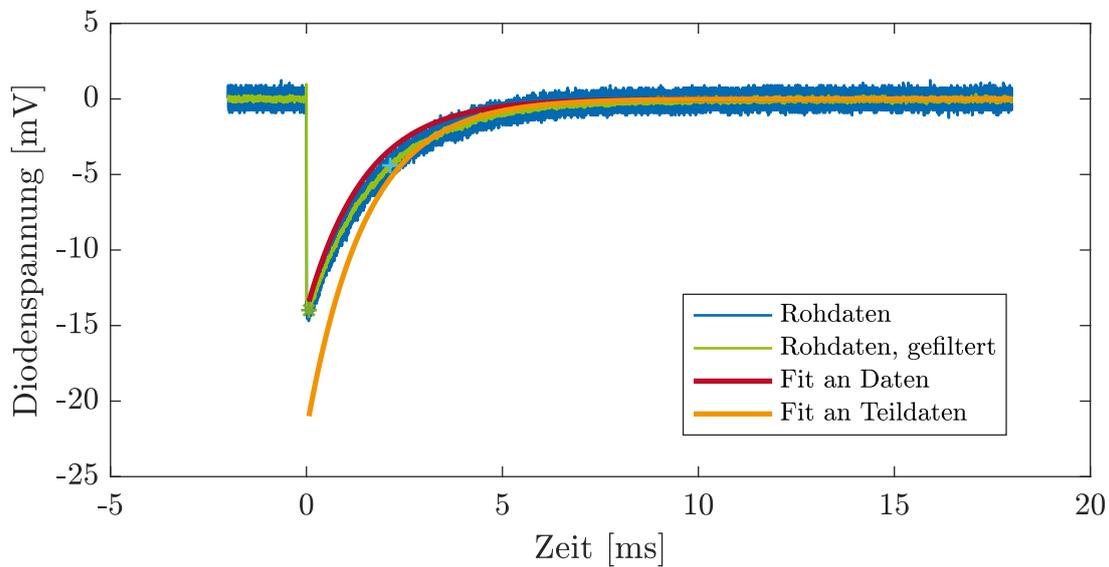
Für die Berechnung der von der Diode gemessenen Intensität müssen  $U_0$  und  $\bar{t}$  bekannt sein. Während Abklingzeit  $\bar{t}$  aus dem Datenblatt bekannt ist, muss die Amplitude  $U_0$  bestimmt werden.

Beide Spannungsverläufe in Abbildungen 6.17a und 6.17b sehen auf den ersten Blick wie Exponentialfunktionen aus. Beim Fit<sup>2</sup> einer Exponentialfunktion an die Rohdaten in Abbildung 6.17a stimmt bei fixer Abklingzeit  $\bar{t} = 15 \mu\text{s}$  (aus den Datenblatt) die Amplitude des Fits mit der der Rohdaten überein. Außerdem

<sup>2</sup>Levenberg-Marquardt nicht-lineare Regression

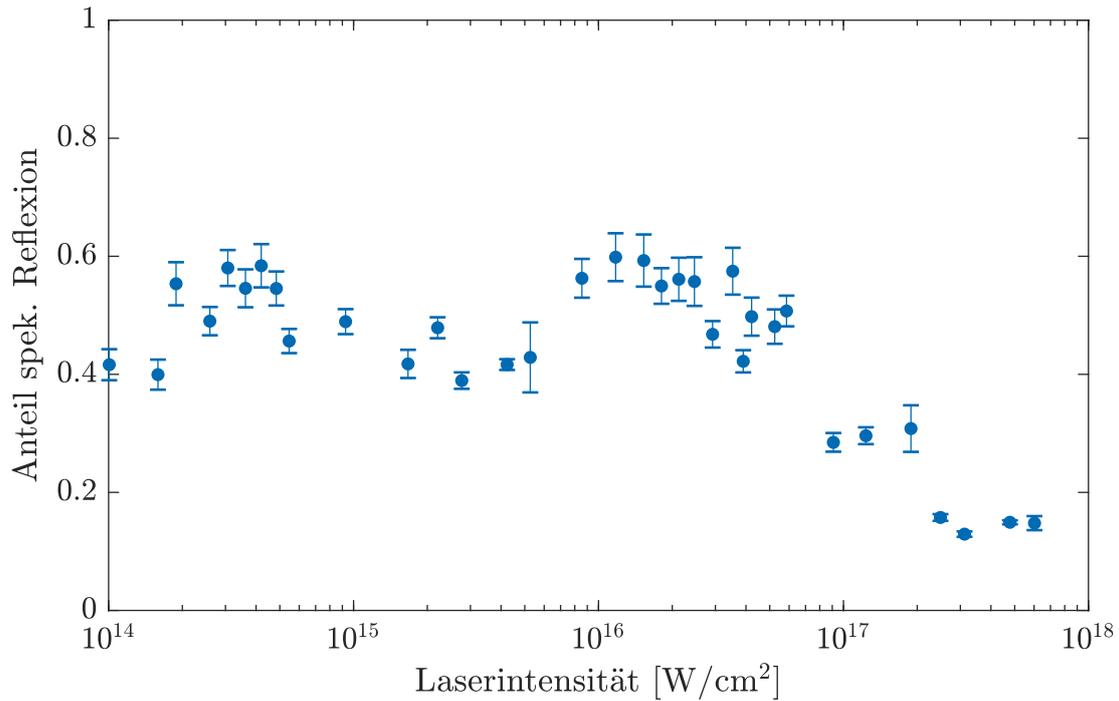


(a) Spannungsverlauf der ungesättigten Diode mit Fits



(b) Signalverlauf der gesättigten Diode mit Fits

**Abb. 6.17:** Die Abbildung zeigt den Signalverlauf der Diode bei schwachem Signal (Abbildung 6.17a) und bei starkem Signal (Abbildung 6.17b), jeweils als Rohdaten und gefiltert. Obwohl beide Verläufe auf den ersten Blick wie ein exponentieller Abfall aussehen, ist zu erkennen, dass beim unteren Bild ein Fit, der die Abklingzeit der Diode als fixe Größe annimmt, eine deutlich größere Amplitude zeigt. Das Verfahren zur Bestimmung der Amplitude, die zur Integration des Diodensignals benötigt wird, wird im Text beschrieben.



**Abb. 6.18:** Hier ist der Anteil des spekulär reflektierten Laserlichts von einlaufenden Laserpuls gezeigt. Die Variation der Intensität wurde mit dem Dünnschichtabschwächer vorgenommen und zeigt eine deutliche Verringerung der Intensität in spekulärer Reflexionsrichtung mit zunehmender Pulsenergie. Bei geringen Intensitäten schwankt der Anteil des Lichtes um ca. 50 % und fällt ab einer Intensität von  $I = 5 \cdot 10^{16} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$  auf unter 20% ab.

liegt der Fit in den Rohdaten.

Bei einem Fit an die Daten in Abbildung 6.17b mit der Amplitude der Rohdaten fällt auf, dass der entsprechende Verlauf außerhalb der Rohdaten liegt (in Rot). Die Diode ist also bereits in Sättigung und der Fit ergibt eine falsche Amplitude. Um dennoch die richtige Amplitude zu erhalten, wird folgendes Vorgehen gewählt: Die Amplitude des Fits wird als komplett variabel gehalten und ein Teilbereich der Rohdaten zum Fit ausgewählt. Dieser Bereich wird schrittweise verändert und so der Fit ausgewählt, der den kleinsten Fehler zu den ausgewählten Daten ergibt. Das Ergebnis dieses Algorithmus ist in Orange dargestellt. Es ist offensichtlich, dass die Amplitude deutlich höher liegt als durch einen einfachen Fit an die Daten angenommen wird. Der orangene Verlauf zeigt das Ergebnis dieser Anpassung und ist der Spannungsverlauf  $U(t)$  für die Auswertung der Ladung gemäß Gleichung (6.33).

Die Spannungsverläufe wurden für verschiedene Intensitäten ausgewertet, wobei

die Intensität über fast vier Größenordnungen mit dem Dünnschichtabschwächer variiert wurde. Als Abszisse ist der Anteil des reflektierten Lichts vom ungestörten Laserpuls aufgetragen. Während zunächst der Anteil des spekulär reflektierten Lichtes zwischen Intensitäten von  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und  $I = 10^{16}$  W/cm<sup>2</sup> um einen Wert von ca. 50 % schwankt, fällt der Anteil zu hohen Intensitäten hin deutlich ab. Bei einer Spitzenintensität von  $I = 7 \cdot 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> liegt der Anteil des spekulär reflektierten Laserlichts bei unter 20 %.

In Tabelle 6.1 sind die Anteile der Pulsenergie eingetragen, die zur Erzeugung des gemessenen Krater benötigt werden. Sie nehmen mit steigender Intensität zu und in Verbindung mit den Ergebnissen des spekulär reflektierten Pulses (siehe Abbildung 6.18) verifizieren sie das entwickelte Drei-Stufen-Modell. In Verbindung mit den gemessenen Krater deutet dieser Verlauf daraufhin, dass bei hohen Intensitäten die Elektronenbeschleunigung deutlich effektiver ist.

## 6.5 Fazit

Die Ablation von Material mit Hilfe von Laserpulsen lässt sich bei Pulsdauern im Bereich von Nanosekunden und Pikosekunden gut durch bekannte Modelle beschreiben[24]. Die existierenden Zwei-Temperatur-Modelle für Subpikosekundenlaser lassen Beschreibungen nur bei schwachintensiven Pulsen und Dauern im Bereich von 100 fs zu[18]. Ausgehend von den Simulationen von Zhokhov et al. [23] wurde ein Drei-Stufen-Modell zur Ablation mit *few-cycle*-Pulsen entwickelt, das die Krater bei Intensitäten von  $10^{15}$  W/cm<sup>2</sup> bis zu  $10^{18}$  W/cm<sup>2</sup> erklärt.

Basierend auf laserbeschleunigten Elektronen, die in den Festkörper getrieben werden, wurde mit Hilfe des quasi-elastischen Stoßmodells die Energiedeposition mit der zum Verdampfen benötigten Wärme verglichen. Darauf aufbauend wurde diese Energieverteilung mit Elektronenwärmediffusion im zeitlichen Verlauf beschrieben. Durch dieses Drei-Stufen-Modell ist es möglich die Krater bei hochintensiven und ultrakurzen Laserpulsen zu beschreiben. Die Verifizierung des Modells erfolgt mittels der Betrachtung von Elektronenzahlen, der Zeitkonstante für die Diffusion und der Anteile der reflektierten Energie.

Neben den post mortem-Untersuchungen der Krater wurde während der Experimente auch die spekulär reflektierter Laserintensität vermessen. Es findet ein Vergleich des Anteils der reflektierten Intensität mit der Pulsenergie statt, die zur

Kratererzeugung benötigt wird. Es zeigt sich, dass das Verhältnis der reflektierten Energie zur Laserpulsenergie zu hohen Intensitäten hin abnimmt, so wie der Anteil der Pulsenergie, der zur Erzeugung der Krater benötigten Energie zunimmt.

Darüber hinaus wurde in diesem Kapitel gezeigt, dass *few-cycle*-Pulse ein vielversprechendes Werkzeug sind um LIBS an Fusionsreaktoren durchzuführen. Das Problem bisheriger LIBS-Diagnostiken ist die Diffusion von Tritium aus tieferen Schichten an die Oberfläche, so dass aus den spektroskopischen Daten keine gesicherten Aussagen über die Einlagerung von Tritium in dem vom Laser beleuchteten Bereich möglich sind.

Abbildung 6.13 zeigt, dass der Verlauf der Energiedichte, die durch den Laser induziert wird am Schnittpunkt, eine hohe Steigung hat. Dies hat zur Folge, dass die Energie im Festkörper außerhalb des Krater so gering ist, dass eine wärmegetriebenen Diffusion von Tritium in obere Schichten eine massiv geringere Rolle spielt.

Das Drei-Stufen-Modell erklärt ab initio die Entstehung von Kratern bei *few-cycle*-Pulsen nur mittels schneller, laserbeschleunigter Elektronen. Es zeichnet sich vor allem dadurch aus, dass es die Ergebnisse eines etablierten PIC-Codes verwendet und mit bekannten Daten zur Elektronen-Festkörper-Wechselwirkung erweitert. Somit verifiziert dieses Modell auch die Elektronenbeschleunigung durch *few-cycle*-Pulsen in den Festkörper, die durch den Krater indirekt gemessen werden kann und die durch den PIC-Code vorhergesagt wird.



# 7 Zusammenfassung

## 7.1 Fazit

Für die Erstellung der experimentellen Arbeiten dieser Dissertation wurde das Lasersystem PHASER am Lehrstuhl von Prof. G. Pretzler an der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf verwendet. Damit werden hochintensive *few-cycle*-Laserpulse mit einer Pulsdauer von  $\tau \approx 8$  fs mit einer Pulsenergie bis zu  $E_{\text{Puls}} = 600 \mu\text{J}$  bereitgestellt, die zu Intensitäten bis zu  $I_{\text{max}} = 7 \cdot 10^{17} \text{ W/cm}^2$  fokussiert werden können.

Im ersten Schritt der Analyse von Ablation mit *few-cycle*-Lasepulsen wurde die Ablation von Molybdän in Abhängigkeit von der eingestrahlten Intensität im Bereich zwischen  $I = 10^{13} \text{ W/cm}^2$  und  $I = 10^{18} \text{ W/cm}^2$  untersucht (vergl. Kapitel 4). Die Intensitätsvariation wurde hier durch eine Änderung der Strahlfläche realisiert. Für die Auswertung der Ablationskrater wurde ein Elektronenmikroskop und ein konfokales Mikroskop verwendet, die in Kapitel 4.2.2 beschrieben sind. Es konnten fünf Regime für die Ablation gefunden und beschrieben werden. Bei zwei Regimen konnten die bekannten Modelle bestätigt werden, während zwei weitere Regime in Anlehnung an die Ablation mit langen Pulsen beschrieben wurden. Im Regime mit den höchsten Intensitäten fiel auf, dass die Ablationskrater deutlich größer als die beleuchtete Fläche ist. Dieses Ergebnis war nicht mit den bekannten Modellen für die Ablation mit *few-cycle*-Laserpulsen erklärbar.

Beschränkt wurde eine genauere Untersuchung dieses Phänomens dadurch, dass die Intensitätsänderung über die Variation der Fläche, die durch den Laser beleuchtet wird, keinen Rückschluss darauf zulässt, wie die Kratergröße mit der Intensität zusammen hängt.

Da gängige Abschwächungsmethoden für hochintensive *few-cycle*-Laserpulse versagen (siehe Kapitel 5), wurde ein neuartiger Abschwächer auf der Grundlage von dünnen Metallschichten entwickelt. Dazu wurde mit Hilfe einer Transfermatrixmethode (siehe Kapitel 5.2) berechnet, wie sich die Reflektivität in Abhängigkeit von der Schichtdicke ändert.

Auf Grundlage dieser Erkenntnis wurde der Spiegelabschwächer konzipiert, der eine definierte Veränderung der Pulsenergie unter Erhaltung der Pulseigenschaften wie radiales Profil, Spektrum und spektraler Phase ermöglicht.

Unter Verwendung dieses Abschwächers wurde die Ablation von Aluminium in einem Intensitätsbereich von  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> und  $I = 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> untersucht. Die Krater zeigen halbkugelförmige Gestalt, deren Radius mit steigender Intensität zunimmt. Zur Erklärung der Kraterbildung wurde ein Drei-Stufen-Modell entwickelt:

In der ersten Stufe werden die Elektronen durch den Laser in den Festkörper hinein beschleunigt. Die Energieverteilung der Elektronen wurde mit dem PIC-Code EPOCH bestimmt.

In der zweiten Stufe wird mit dem quasi-elastischen Stoßmodell nach Kanaya und Okayama die Reichweite und die Energiedeposition von Elektronen im Festkörper berechnet. Die deponierte Energie wurde auf das Volumen verschieden dicker Kugelschalen gemittelt und mit der zum Verdampfen benötigten Energiedichte verglichen. Die Wechselwirkung der Primärelektronen allein reicht allerdings nicht aus um die gemessenen Krater zu erklären.

In Stufe drei wird die Energiediffusion durch aufgeheizte Sekundärelektronen berücksichtigt. Dadurch konnte insgesamt gezeigt werden, dass bis zur gemessenen Kratertiefe Energiedichten im Festkörper erreicht werden, die zum Verdampfen ausreichen.

Die Energiedichte im Festkörper zeigt eine steile radiale Abnahme und beweist so die implizit angenommene, geringe thermische Diffusion, sodass die Beeinflussung des Festkörpers außerhalb des Kraters nur eine kurze Reichweite hat. Es bestätigt die oft geäußerte Ansicht, dass die thermischen Effekte bei Femtosekundenpulsen eine geringe Rolle spielen.

Wegen der guten Übereinstimmung mit den Messwerten wurden weitere Kriterien zur Verifikation des Modells herangezogen, die das Modell quantitativ bekräftigen:

- Die Anzahl der Elektronen, die sich aus den Elektronenspektren ergeben, passt zu der Anzahl im Volumen, das durch den Laserspot in der Skintiefe erreicht werden kann.

- Aus der Elektronendiffusion konnten die Zeiten für die Kraterentstehung entnommen werden, die zu den bekannten Zeiten aus niedrigeren Intensitäten passen.
- Zuletzt wurde die Gesamtenergie betrachtet, die für den Ablationsprozess nach dem Drei-Stufen-Modell benötigt wird. Mit steigender Energie nahm der Anteil an der Pulsenergie zu, was durch eine Messung des spekulär reflektierten Lichts verifiziert wurde.

Zusammengefasst wurden folgende Neuheiten präsentiert:

- Ein neuartiger Dünnschichtabschwächer ermöglicht die Variation der Pulsenergie von *few-cycle*-Pulsen unter Beibehaltung der Pulsparameter.
- Für den Bereich von  $I = 10^{14}$  W/cm<sup>2</sup> bis  $I = 10^{17}$  W/cm<sup>2</sup> wurde ein Modell für die Ablation auf Grundlage von schnellen Elektronen entwickelt und durch Vergleich mit experimentellen Daten bestätigt.
- Die Ergebnisse des PIC-Codes „EPOCH“ für Elektronen, die in den Festkörper hinein beschleunigt werden, wurden durch die Messungen verifiziert.
- Es wurde gezeigt, dass die thermischen Effekte nur marginal (wenige  $\mu\text{m}$ ) über den Krater hinausreichen.

## 7.2 Ausblick

Ziel dieser Arbeit war die Erklärung und quantitative Beschreibung der Laserablation mit hochintensiven *few-cycle*-Pulsen. Aus den gewonnenen Erkenntnissen ergeben sich Ansätze für weitere Experimente und Optimierungen:

- Das Drei-Stufen-Modell kann mit Materialien mit verschiedenen Ordnungszahlen und Laserpulsdauern auf seine Zuverlässigkeit überprüft werden.
- Der Einsatz von senkrecht polarisiertem Licht kann Schlüsse auf die zu Grunde liegenden Absorptionsprozesse zulassen.

- Der Abschwächer muss in seinem Aufbau um  $90^\circ$  gedreht werden, so dass die Problematik mit dem zunehmenden senkrecht polarisiertem Strahlanteil reduziert werden kann. Ebenso kann die Genauigkeit in der Rotation der Segmentspiegel durch eine genauere Mechanik verbessert werden.

Die Erkenntnisse dieser Arbeit können mit Erkenntnissen aus der Plasmaentwicklung verbunden werden und ein umfassendes Bild zur Laser-Festkörper-Wechselwirkung im Bereich von hochintensiven *few-cycle*-Pulsen liefern[70].

Das Drei-Stufen-Modell macht sehr grobe Annahmen in der Wechselwirkung von hochenergetischen Elektronen mit dem Festkörper. In dieser Hinsicht kann das Modell unter der Zuhilfenahme von Monte-Carlo-Simulationen in dieser Stufe verbessert werden.

Im Rahmen des laufenden DFG-Projektes soll untersucht werden, ob es möglich ist Femtosekundenpulse für LIBS zur Diagnostik der Wandzusammensetzung in Fusionsplasmaanlagen einzusetzen. Ein erster Schritt ist hiermit getan. Die Ablationsbereiche sind experimentell gut charakterisiert und aus dem Drei-Stufen-Modell heraus erklärt. Nun gilt es möglichst die LIBS-Plasmen zu charakterisieren und die Spektroskopie quantitativ zu untermauern. Dieser Arbeit legt darüber hinaus mit ihrem grundlegendem Verständnis der Ablation mit *few-cycle*-Pulsen den Grundstein für eine Reihe anderer Anwendungen der Ablation mit Femtosekunden.

# Publikationen

- D. Zhao, N. Gierse, J. Wegner, M. Rasinski, J. Oelmann, G. Pretzler, Y. Liang, O. Neubauer, S. Brezinsek, L. Wang, J. Chen, G. Luo, H. Ding: Observation of significant regimes in femtosecond ablation of molybdenum targets, *submitted*, 2019
- J. Wegner, J. Kunzelmann, G. Pretzler: Dispersionless attenuation of few-cycle laser pulses, *to be submitted*, 2019



# Übernommene Teile aus Publikationen:

## **Observation of significant regimes in femtosecond ablation of molybdenum targets**

Der Inhalt von Kapitel 4.1 wurde teilweise in angepasster Form dem Manuskript entnommen.

Zu der Veröffentlichung wurde folgendes beigetragen:

- Konzeption und Durchführung der Experimente
- Beschreibung des experimentellen Aufbaus
- Beschreibung der Krater bei den höchsten Fluenzen und Übertragung der CSDA auf die Kraterbildung

## **Dispersionless attenuation of few-cycle laser pulses**

Der Inhalt von Kapitel 5 wurde teilweise in angepasster Form dem Manuskript entnommen.

Zu der Veröffentlichung wurde folgendes beigetragen:

- Konzeption des Abschwächers
- Beschreibung der Abschwächung durch eine Transfermatrixmethode
- Charakterisierung des Abschwächers



# Literatur

- [1] Huber, A. u. a. „Development of laser-based diagnostics for surface characterisation of wall components in fusion devices“. In: *Fusion Engineering and Design* 86.6-8 (Okt. 2011), S. 1336–1340. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2011.01.090.
- [2] Li, Cong u. a. „Review of LIBS application in nuclear fusion technology“. In: *Frontiers of Physics* 11.6 (Dez. 2016), S. 114214. DOI: 10.1007/s11467-016-0606-1.
- [3] Gierse, N u. a. „Time resolved imaging of laser induced ablation spectroscopy (LIAS) in TEXTOR and comparison with modeling“. In: *Physica Scripta* T167.1 (2016), S. 014034. DOI: 10.1088/0031-8949/t167/1/014034.
- [4] Huber, A. u. a. „Study of the feasibility of applying laser-induced breakdown spectroscopy for in-situ characterization of deposited layers in fusion devices“. In: *Physica Scripta T* T145 (2011). DOI: 10.1088/0031-8949/2011/T145/014028.
- [5] Li, Cong u. a. „Laser-induced breakdown spectroscopy for Wendelstein 7-X stellarator limiter tile analysis“. In: *Physica Scripta* T170.T170 (Jan. 2017), S. 014004. DOI: 10.1088/0031-8949/2017/T170/014004.
- [6] Xiao, Q. u. a. „Application of laser-induced breakdown spectroscopy for characterization of material deposits and tritium retention in fusion devices“. In: *Fusion Engineering and Design* 88.9-10 (Okt. 2013), S. 1813–1817. DOI: 10.1016/j.fusengdes.2013.05.083.
- [7] Moulton, P. F. „Spectroscopic and laser characteristics of Ti:Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>“. In: *Journal of the Optical Society of America B* 3.1 (Jan. 1986), S. 125. DOI: 10.1364/JOSAB.3.000125.
- [8] Potter, E. D. u. a. „Femtosecond laser control of a chemical reaction“. In: *Nature* 355.6355 (Jan. 1992), S. 66–68. DOI: 10.1038/355066a0.
- [9] Udem, Th, Holzwarth, R. und Hänsch, T. W. „Optical frequency metrology“. In: *Nature* 416.6877 (März 2002), S. 233–237. DOI: 10.1038/416233a.

- [10] Strickland, Donna und Mourou, Gerard. „Compression of amplified chirped optical pulses“. In: *Optics Communications* 55.6 (Okt. 1985), S. 447–449. DOI: 10.1016/0030-4018(85)90151-8.
- [11] Rundquist, A. „Phase-Matched Generation of Coherent Soft X-rays“. In: *Science* 280.5368 (Mai 1998), S. 1412–1415. DOI: 10.1126/science.280.5368.1412.
- [12] Zepf, M. u. a. „Role of the plasma scale length in the harmonic generation from solid targets“. In: *Physical Review E - Statistical Physics, Plasmas, Fluids, and Related Interdisciplinary Topics* 58.5 (1998), R5253–R5256. DOI: 10.1103/PhysRevE.58.R5253.
- [13] Mao, J. Y. u. a. „Spectrally peaked electron beams produced via surface guiding and acceleration in femtosecond laser-solid interactions“. In: *Physical Review E - Statistical, Nonlinear, and Soft Matter Physics* 85.2 (2012), S. 1–4. DOI: 10.1103/PhysRevE.85.025401.
- [14] Green, J. S. u. a. „High efficiency proton beam generation through target thickness control in femtosecond laser-plasma interactions“. In: *Applied Physics Letters* 104.21 (2014). DOI: 10.1063/1.4879641.
- [15] Campbell, E. Michael und Hogan, William J. „The National Ignition Facility - Applications for inertial fusion energy and high-energy-density science“. In: *Plasma Physics and Controlled Fusion* 41.SUPPL. 12B (1999). DOI: 10.1088/0741-3335/41/12B/303.
- [16] Nolte, S u. a. „Ablation of metals by ultrashort laser pulses“. In: *Journal of the Optical Society of America B* 14.10 (1997), S. 2716–2722.
- [17] Momma, Carsten u. a. „Short-pulse laser ablation of solid targets“. In: *Optics Communications* 129.12 (Aug. 1996), S. 134–142. DOI: 10.1016/0030-4018(96)00250-7.
- [18] Rethfeld, Baerbel u. a. „Modelling ultrafast laser ablation“. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 50.19 (Mai 2017), S. 193001. DOI: 10.1088/1361-6463/50/19/193001.
- [19] Gamaly, E.G. „The physics of ultra-short laser interaction with solids at non-relativistic intensities“. In: *Physics Reports* 508.4-5 (Nov. 2011), S. 91–243. DOI: 10.1016/j.physrep.2011.07.002.

- [20] Arber, T. D. u. a. „Contemporary particle-in-cell approach to laser-plasma modelling“. In: *Plasma Physics and Controlled Fusion* 57 (2015), S. 113001. DOI: 10.1088/0741-3335/57/11/113001.
- [21] Kleeschulte, F. u. a. „Fast electrons generated by quasistatic electric fields of a fs-laser-pulse-induced plasma“. In: *Physical Review E* 96.3 (Sep. 2017), S. 033201. DOI: 10.1103/PhysRevE.96.033201.
- [22] Hemmers, D. u. a. „Temporal coherence of high-order harmonics generated at solid surfaces“. In: *Applied Physics B: Lasers and Optics* 116.1 (2014), S. 121–127. DOI: 10.1007/s00340-013-5658-0.
- [23] Zhokhov, P. A. und Zheltikov, A. M. „Optical breakdown of solids by few-cycle laser pulses“. In: *Scientific Reports* 8.1 (Dez. 2018), S. 1824. DOI: 10.1038/s41598-017-18624-z.
- [24] Gamaly, E. G. u. a. „Ablation of solids by femtosecond lasers: Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics“. In: *Physics of Plasmas* 9.3 (März 2002), S. 949–957. DOI: 10.1063/1.1447555.
- [25] Spatschek, Karl-Heinz. *High Temperature Plasmas*. Weinheim, Germany: Wiley-VCH Verlag GmbH & Co. KGaA, Nov. 2011.
- [26] Gibbon, P. *Short Pulse Laser Interactions with Matter: An Introduction*. Imperial College Press Oxford, 2005.
- [27] Catto, P. J. und More, R. M. „Sheath inverse bremsstrahlung in laser produced plasmas“. In: *Physics of Fluids* 20.4 (1977), S. 704. DOI: 10.1063/1.861930.
- [28] Yang, T. Y. Br u. a. „Absorption of laser light in overdense plasmas by sheath inverse bremsstrahlung“. In: *Physics of Plasmas* 2.8 (Aug. 1995), S. 3146–3154. DOI: 10.1063/1.871146.
- [29] Kleeschulte, F. „Analyse der Elektronenemission bei der Wechselwirkung ultrakurzer, hochintensiver, CEP-stabilsierter Laserpulse mit Festkörperplasmen“. Dissertation. Heinrich-Heine-Universität, 2017.
- [30] Brunel, F. „Not-so-resonant, resonant absorption“. In: *Physical Review Letters* 59.1 (Juli 1987), S. 52–55. DOI: 10.1103/PhysRevLett.59.52.
- [31] Gross, Rudolf und Marx, Achim. *Festkörperphysik*. Berlin: De Gruyter, Jan. 2018. DOI: 10.1515/9783110559187.

- [32] Wegner, Julian. „Nichtlineare Effekte an Oberflächen zur Charakterisierung ultrakurzer Laserpulse“. Bachelorarbeit. Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, 2011.
- [33] Kim, Yong Ki und Stone, Philip M. „Ionization of boron, aluminum, gallium, and indium by electron impact“. In: *Physical Review A - Atomic, Molecular, and Optical Physics* 64.5 (2001), S. 11. DOI: 10.1103/PhysRevA.64.052707.
- [34] Gold, Albert und Bebb, H. Barry. „Theory of Multiphoton Ionization“. In: *Physical Review Letters* 14.3 (Jan. 1965), S. 60–63. DOI: 10.1103/PhysRevLett.14.60.
- [35] Paulus, G. G. u. a. „Plateau in above threshold ionization spectra“. In: *Physical Review Letters* 72.18 (Mai 1994), S. 2851–2854. DOI: 10.1103/PhysRevLett.72.2851.
- [36] Ammosov, M.V., Delone, N.B. und Krainov, V.P. „Tunnel ionization of complex atoms and of atomic ions ins an alternating electromagnetic field“. In: *Journal of Experimental and Theoretical Physics* 91.12 (1986), S. 2008–2013.
- [37] Keldysh, L.V. „Ionization in the field of a strong electromagnetic wave“. In: *Soviet Physics Journal of Experimental and Theoretical Physics* 47.11 (1965), S. 1945–1957.
- [38] Perelomov, A., Popov, V. und Terentev, M. „Ionization of Atoms in an Alternating Electric Field“. In: *Soviet Journal of Experimental and Theoretical Physics* 23.5 (1966), S. 924.
- [39] Brandl, F. u. a. „Directed Acceleration of Electrons from a Solid Surface by Sub-10-fs Laser Pulses“. In: *Physical Review Letters* 102.19 (Mai 2009), S. 195001. DOI: 10.1103/PhysRevLett.102.195001.
- [40] Nisoli, M. u. a. „Ultra-broadband continuum generation by hollow-fiber cascading“. In: *Applied Physics B: Lasers and Optics* 75.6-7 (Nov. 2002), S. 601–604. DOI: 10.1007/s00340-002-1042-1.
- [41] Nisoli, M. u. a. „Toward a terawatt-scale sub-10-fs laser technology“. In: *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics* 4.2 (1998), S. 414–420. DOI: 10.1109/2944.686749.
- [42] Binhammer, T. *Spider - Manual*. 1.5. Venteon Laser Technologies GmbH, 2013.

- [43] Iaconis, Chris und Walmsley, Ian A. „Spectral phase interferometry for direct electric-field reconstruction of ultrashort optical pulses“. In: *Optics Letters* 23.10 (Mai 1998), S. 792. DOI: 10.1364/OL.23.000792.
- [44] Iaconis, C. und Walmsley, I.A. „Self-referencing spectral interferometry for measuring ultrashort optical pulses“. In: *IEEE Journal of Quantum Electronics* 35.4 (Apr. 1999), S. 501–509. DOI: 10.1109/3.753654.
- [45] Vogel, Tim. „Aufbau eines Autokorrelators 3. Ordnung“. Bachelorarbeit. Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, 2015.
- [46] Kunzelmann, Julia. „Intensitätsabhängige Reflexion eines Plasma-erzeugenden Laserpulses“. Bachelorarbeit. Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, 2018.
- [47] Zhao, Dongye u. a. „Observation of significant regimes in femtosecond ablation of molybdenum targets“. In: *submitted* (2019).
- [48] Ordal, Mark A. u. a. „Optical properties of Al, Fe, Ti, Ta, W, and Mo at submillimeter wavelengths“. In: *Applied Optics* 27.6 (März 1988), S. 1203. DOI: 10.1364/AO.27.001203.
- [49] Amoruso, S und Bruzzese, R. „Characterization of laser-ablation plasmas“. In: *Journal of Physics B: At. Mol. Opt. Phys.* 131.32 (1999), R131–R1782.
- [50] Zhigilei, Leonid V., Lin, Zhibin und Ivanov, Dmitriy S. „Atomistic Modeling of Short Pulse Laser Ablation of Metals: Connections between Melting, Spallation, and Phase Explosion“. In: *The Journal of Physical Chemistry C* 113.27 (Juli 2009), S. 11892–11906. DOI: 10.1021/jp902294m.
- [51] Yoo, J. H. u. a. „Evidence for phase-explosion and generation of large particles during high power nanosecond laser ablation of silicon“. In: *Applied Physics Letters* 76.6 (Feb. 2000), S. 783–785. DOI: 10.1063/1.125894.
- [52] *NIST ESTAR Database*. URL: <https://physics.nist.gov/PhysRefData/Star/Text/method.html> (besucht am 03.04.2017).
- [53] Kersten, Maria. „Diagnostik dichter Oberflächen-Laserplasmen mit XUV-Ionenspektroskopie“. Masterarbeit. Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf, 2017.
- [54] Garmire, E., Chiao, R. Y. und Townes, C. H. „Dynamics and characteristics of the self-trapping of intense light beams“. In: *Physical Review Letters* 16.9 (1966), S. 347–349. DOI: 10.1103/PhysRevLett.16.347.

- [55] Stolen, R. H. und Lin, Chinlon. „Self-phase-modulation in silica optical fibers“. In: *Physical Review A* 17.4 (Apr. 1978), S. 1448–1453. DOI: 10.1103/PhysRevA.17.1448.
- [56] Markos, Peter und Soukoulis, Costas. *Wave Propagation From Electrons to Photonic Crystals and Left-Handed Materials*. Princeton: Princeton University Press, 2009.
- [57] Polyanskiy, Mikhail N. *Refractive index database*. URL: <https://www.refractiveindex.info> (besucht am 13.11.2019).
- [58] Chichkov, B. N. u. a. „Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids“. In: *Applied Physics A Materials Science & Processing* 63.2 (Aug. 1996), S. 109–115. DOI: 10.1007/BF01567637.
- [59] Harilal, Svananandan S. u. a. *Laser-Induced Breakdown Spectroscopy*. Hrsg. von Musazzi, Sergio und Perini, Umberto. Bd. 182. Springer Series in Optical Sciences. Berlin: Springer, 2014. DOI: 10.1007/978-3-642-45085-3.
- [60] Hamad, Abubaker Hassan. „Effects of Different Laser Pulse Regimes (Nanosecond, Picosecond and Femtosecond) on the Ablation of Materials for Production of Nanoparticles in Liquid Solution“. In: *High Energy and Short Pulse Lasers*. InTech, Sep. 2016. DOI: 10.5772/63892.
- [61] Jaeggi, B. u. a. „Influence of the pulse duration in the ps-regime on the ablation efficiency of metals“. In: *Physics Procedia* 12.PART 2 (2011), S. 164–171. DOI: 10.1016/j.phpro.2011.03.118.
- [62] Philipps, V. u. a. „Development of laser-based techniques for in situ characterization of the first wall in ITER and future fusion devices“. In: *Nuclear Fusion* 53.9 (2013). DOI: 10.1088/0029-5515/53/9/093002.
- [63] Yang, Jianjun u. a. „Ablation of metallic targets by high-intensity ultrashort laser pulses“. In: *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics* 76.16 (2007), S. 1–10. DOI: 10.1103/PhysRevB.76.165430.
- [64] Lindhard, J, Scharff, M und Schiøtt, H E. „Range Concepts and heavy ion ranges“. In: *Mat. Fys. Medd. Dan id Selsk.* 14.33 (1963).
- [65] Kanaya, K und Okayama, S. „Penetration and energy-loss theory of electrons in solid targets“. In: *Journal of Physics D: Applied Physics* 5.1 (Jan. 1972), S. 308. DOI: 10.1088/0022-3727/5/1/308.
- [66] Tritt, Terry M. *Thermal Conductivity*. Hrsg. von Tritt, Terry M. Springer US, 2004. DOI: 10.1007/b136496.

- [67] Shirk, M D und Molian, P A. „A review of ultrashort pulsed laser ablation of materials“. In: *Journal of Laser Applications* 10.1 (Feb. 1998), S. 18–28. DOI: 10.2351/1.521827.
- [68] Siwick, Bradley J u. a. „An Atomic-Level View of Melting Using Femtosecond Electron Diffraction“. In: *Science* 302.5649 (Nov. 2003), S. 1382–1385. DOI: 10.1126/science.1090052.
- [69] Stampfli, P. und Bennemann, K. H. „Time dependence of the laser-induced femtosecond lattice instability of Si and GaAs: Role of longitudinal optical distortions“. In: *Physical Review B* 49.11 (März 1994), S. 7299–7305. DOI: 10.1103/PhysRevB.49.7299.
- [70] Stumpf, Michael. „Pump-probe-Experimente zur Diagnostik von Ultrakurzpuls-Laser-Plasmen“. Masterarbeit. Heinrich Heine Universität Düsseldorf, 2017.



# Eigenständigkeitserklärung

Ich, Julian Christian Wegner, geboren am 14. November 1987 in Solingen, versichere an Eides statt, dass die Dissertation von mir selbständig und ohne unzulässige fremde Hilfe unter Beachtung der „Grundsätze zur Sicherung guter wissenschaftlicher Praxis an der Heinrich-Heine-Universität Düsseldorf“ erstellt worden ist.

Düsseldorf, den 2. März 2020

Julian Wegner