
BACHELORARBEIT

Herr
Conrad Heiland

**Ultraschnelle Reflektometrie
zu laserinduzierter Anregung
von dünnen Metallschichten**

Mittweida, 2018

Fakultät INW

BACHELORARBEIT

Ultraschnelle Reflektometrie zu laserinduzierter Anregung von dünnen Metallschichten

Autor:

Herr

Conrad Heiland

Studiengang:

Lasertechnik

Seminargruppe:

LT14w1-B

Erstprüfer:

Professor Dr. rer. nat. habil. Alexander Horn

Zweitprüfer:

M.Sc. Theo Pflug

Einreichung:

Mittweida, 15.01.2018

Verteidigung/Bewertung:

Mittweida, 2018

Faculty INW

BACHELOR THESIS

Ultra fast reflectometry of laser induced stimulation of thin metal films

author:

Mr.

Conrad Heiland

course of studies:

Lasertechnik

seminar group:

LT14w1-B

first examiner:

Professor Dr. rer. nat. habil. Alexander Horn

second examiner:

M.Sc. Theo Pflug

submission:

Mittweida, 15.01.2018

defence/ evaluation:

Mittweida, 2018

Bibliografische Beschreibung:

Heiland, Conrad:

Ultraschnelle Reflektometrie zu laserinduzierter Anregung von dünnen Metallschichten. - 2018. - 6, 36, 3 S.

Mittweida, Hochschule Mittweida, Fakultät INW, Bachelorarbeit, 2018

Referat:

In dieser Arbeit werden dünne Schichten von Aluminium, Gold, Molybdän, Nickel und Platin orts- und zeitaufgelöst reflektometrisch untersucht. Dafür werden die Schichten mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung mit einer Pulsdauer von 35 fs bestrahlt.

Inhalt

Inhalt	I
Abbildungsverzeichnis	II
Tabellenverzeichnis	VI
1 Einleitung	1
2 Stand der Technik	3
3 Grundlagen	7
3.1 <i>Freies Elektronengas</i>	7
3.2 <i>Bändermodell</i>	9
3.3 <i>Abtragsmechanismen</i>	12
4 Material und Methoden	15
5 Ergebnisse und Diskussion	18
5.1 <i>Gold</i>	18
5.2 <i>Aluminium</i>	21
5.3 <i>Molybdän</i>	23
5.4 <i>Nickel</i>	26
5.5 <i>Platin</i>	28
5.6 <i>Vergleich der Metalle</i>	30
6 Zusammenfassung und Ausblick	33
7 Literaturverzeichnis	35
Anlagen	38
Selbstständigkeitserklärung	41

Abbildungsverzeichnis

Abbildung 1: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit des Pump-Probe-Delays Δt für verschiedene Schichtdicken; Die den Graphen zugehörigen Schichtdicken sind in Nanometer angegeben; Die Daten wurden mit $\lambda_{pump} = 500$ nm, $\lambda_{probe} = 400$ nm und einer Fluenz $H_{pump} = 1$ mJ/cm ² erzeugt [1].....	3
Abbildung 2: Relative Reflektivitätsänderung von Gold in Abhängigkeit der Elektronentemperatur T_e und der Wellenlänge der Probestrahlung [1].....	4
Abbildung 3: Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz bei zwei verschiedenen Schichtdicken, gemessen mit $\lambda_{pump} = 400$ nm und $\lambda_{probe} = 489$ nm. Die Fluenz wurde bis zur Ablationsschwelle erhöht, die auf der Fluenzachse als 1 dargestellt ist [1].....	4
Abbildung 4: Fermi-Dirac-Verteilung für verschiedene Temperaturen	7
Abbildung 5: Potential eines freien Elektronengases mit Potentialtiefe W , Austrittsarbeit Φ und Fermienergie E_F [4].....	8
Abbildung 6: Zustandsdichte (DOS) für Aluminium und für das freie Elektronengas [5] ...	8
Abbildung 7: Anwendung der Fermiverteilung auf die Zustandsdichten von Aluminium [5]	9
Abbildung 8 Schematische Darstellung von Intra- und Interbandübergängen in Edelmetallen [8].....	10
Abbildung 9: Schematische Darstellung der Zustandsdichte in Abhängigkeit der Energie für Übergangsmetalle wie Eisen, Cobalt oder Nickel, nach [9]. Der graue Bereich stellt die besetzten Zustände dar.	11
Abbildung 10: Schematische Darstellung der Zustandsdichte in Abhängigkeit der Energie für Übergangsmetalle der Kupfer- Zinkgruppe [9].....	11
Abbildung 11: Temperatur-Dichte-Phasendiagramm für Gold: gezeigt ist die Binodale (bn) und die Spinodale (sp) nach [11, 12] mit zwei Anregungspfaden für <i>rot</i> Gentle- und <i>blau</i> Strong-Abtrag[10].....	12

Abbildung 12: Zeitliche sowie spektrale Intensitätsverteilung der verwendeten Laserstrahlung.	15
Abbildung 13: Schematische Darstellung des Pump-Probe-Aufbaus <i>rot</i> Probelaserstrahlung <i>blau</i> Pumplaserstrahlung [15]	16
Abbildung 14: Beispielhaft erhaltene gemittelte Bilder bei der Bestrahlung von Gold mit einer Fluenz der verwendeten Laserstrahlung von $H = 13,7 \text{ J/cm}^2$ zu verschiedenen Zeiten t nach der Bestrahlung	16
Abbildung 15: Beispielhaft erhaltene relative Änderung der Reflektivität bei der Bestrahlung von Gold mit einer Fluenz der verwendeten Laserstrahlung von $H = 13,7 \text{ J/cm}^2$ zu verschiedenen Zeiten t nach der Bestrahlung.	17
Abbildung 16: Querschnitte aus dem Zentrum der Abtragsstrukturen in Abhängigkeit der Zeit <i>links</i> ohne Interpolation <i>rechts</i> mit Interpolation für Gold	17
Abbildung 17: Relative Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung in Abhängigkeit der Fluenz	18
Abbildung 18: Darstellung der relativen Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz bei $t = 31 \text{ ps}$. Gold, das durch Gentle-Abtrag abgetragen wurde, hat sich von der Oberfläche gelöst.	19
Abbildung 19: Quadrat der Länge D der relativen Reflektivitätsänderung logarithmisch über die Fluenz H aufgetragen zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung für Gold	20
Abbildung 20: Relative Reflektivitätsänderung bei verschiedenen Fluenzen in Abhängigkeit der Zeit nach der Bestrahlung für Gold.....	21
Abbildung 21: Relative Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung in Abhängigkeit der Fluenz für Aluminium.....	22
Abbildung 22 Reflektivitätsmessung mit $H = 13,7 \text{ J/cm}^2$ $t = 202 \text{ ps}$ nach der Bestrahlung: Pumplaserstrahlung im Zentrum der bestrahlten Aluminiumfläche, die nicht gefiltert werden konnte	23
Abbildung 23: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Zeit bei verschiedenen Fluenzen für Aluminium.....	23

Abbildung 24: Aufnahme der Oberfläche der verwendeten Molybdänprobe mittels Lichtmikroskopie.....	24
Abbildung 25: Relative Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung in Abhängigkeit der Fluenz für Molybdän	25
Abbildung 26: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Zeit bei verschiedenen Fluenzen für Molybdän	26
Abbildung 27: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz zu verschiedenen Zeiten für Nickel.....	27
Abbildung 28: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Zeit bei verschiedenen Fluenzen für Nickel	28
Abbildung 29: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz zu verschiedenen Zeiten für Platin.....	29
Abbildung 30: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Zeit bei verschiedenen Fluenzen für Platin.....	30
Abbildung 31: Erhaltene gemittelte Bilder bei der Bestrahlung von Platin mit einer Fluenz der Pumplaserstrahlung von $H = 15 \text{ J/cm}^2$ zu verschiedenen Zeiten t nach der Bestrahlung	30
Abbildung 32: Vergleich des zeitlichen Verhaltens der betrachteten Metalle bei $H = 5,4 \text{ J/cm}^2$	31
Abbildung 33: Reflektivitätsänderung durch herausgeschleudertes Material, das durch das Entstehen von Gentle-Abtrag hervorgerufen wird.....	31
Abbildung 34: Zustandsdichteverteilung in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Aluminium [5]	38
Abbildung 35: Zustandsdichteverteilung in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Gold [5]	38
Abbildung 36: Zustandsdichteverteilung in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Molybdän [5]	39

Abbildung 37: Zustandsdichteverteilung nach [5] in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Nickel[5].....	39
Abbildung 38: Zustandsdichteverteilung in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Platin [5]	40

Tabellenverzeichnis

Tabelle 1: Energie E_{ITT} und die daraus resultierende Wellenlänge λ_{ITT} eines Photons für den Interbandübergang..... 12

Tabelle 2: Reflexionsgrade der verwendeten Metalle für die Wellenlänge $\lambda = 800 \text{ nm}$... 32

1 Einleitung

Bei der Beschreibung der Erwärmung von metallischen Werkstoffen mittels Laserstrahlung werden Elektronen- und Phononensystem des Materials getrennt betrachtet, da nur die Elektronen mit der Laserstrahlung wechselwirken. Die Elektronen absorbieren die Photonenenergie und befinden sich nach der Thermalisierungszeit $\tau_{th} \approx 100$ fs im thermodynamischen Gleichgewicht. Die Elektronen diffundieren aufgrund des Temperaturgradienten aus der Wechselwirkungszone in das umliegende Gebiet, wodurch die Temperatur im Wechselwirkungsgebiet abnimmt. Die Energieabgabe an das Gitter wird durch Elektron-Phonon-Stöße realisiert, wobei die Elektronentemperatur weiter sinkt und die Elektronentemperatur des Phononensystems steigt, bis sich ein thermisches Gleichgewicht einstellt und beide Systeme die gleiche Temperatur besitzen [1]. Die Zeit bis zur Einstellung des thermischen Gleichgewichts wird Relaxationszeit τ_R genannt und beträgt in Abhängigkeit der Elektronentemperatur und des Materials einige 10 ps [2]. Bei der Verwendung ultrakurz gepulster Laserstrahlung ist die Pulsdauer der Laserstrahlung geringer als τ_R und τ_{th} , weshalb eine getrennte Betrachtung der beiden Systeme bezüglich der Wärmeleitung notwendig wird. Die exakte Energieverteilung innerhalb des Elektronensystems und der Energietransfer zwischen Elektronen- und Phononensystem sowie die daraus resultierenden Änderungen der thermophysikalischen und optischen Eigenschaften sind bis heute nicht vollständig erklärt.

Zeit- und orts aufgelöste reflektometrische Untersuchungen während und nach der Bestrahlung von Aluminium-, Gold-, Molybdän-, Nickel- und Platinschichten sollen die dynamischen physikalischen Prozesse der Laserstrahlung-Materie-Wechselwirkung aufzeigen. Dies wird durch ein Reflektometer mit Pump-Probe-Aufbau erreicht (siehe Kapitel 4) Dabei wird die Änderung des Reflexionsgrades des Probenmaterials im Wechselwirkungsbereich der Laserstrahlung gemessen. Wird die Laserstrahlung von den Elektronen des bestrahlten Materials absorbiert, ändert sich sein Reflexionsverhalten, was Rückschlüsse auf die Vorgänge im Material zulässt. Besonders Zeiten unterhalb τ_{th} sind hierbei von Bedeutung, da für diesen Zeitraum keine vollständige Beschreibung der Vorgänge im Elektronensystem existiert.

2 Stand der Technik

Mittels Reflektometrie können Änderungen des Reflexionsgrades eines Materials gemessen werden. In Kombination mit einem Pump-Probe-Aufbau wird die zeitliche Auflösung realisiert. Dabei wird das untersuchte Material mit einem anregenden Pump-Puls mit hoher Energie bestrahlt und mit einem zweiten Puls niedriger Energie, dem Probe-Puls, die relative Reflexionsgradänderung $\frac{\Delta R}{R_0} = \frac{R_i - R_0}{R_0}$ bestimmt (Kapitel 3.3). Die Verzögerung des Probe-Pulses zum Pump-Puls sowie die Wellenlänge der Probestrahlung kann bei diesem Aufbau verändert werden. Für dünne metallische Schichten wurden reflektometrische Untersuchungen in Abhängigkeit von:

- der Schichtdicke der Metallschicht
- der Zeit nach der Anregung
- der Wellenlänge der Probe-Strahlung

durchgeführt. Relative Reflektivitätsänderungen $\frac{\Delta R}{R}$ von Goldschichten unterschiedlicher Schichtdicke weisen nach Anregung bei $t > 0$ ps mit größer werdender Schichtdicke zunehmend den Verlauf einer exponentiell abfallenden Funktion auf (Abbildung 1) [1].

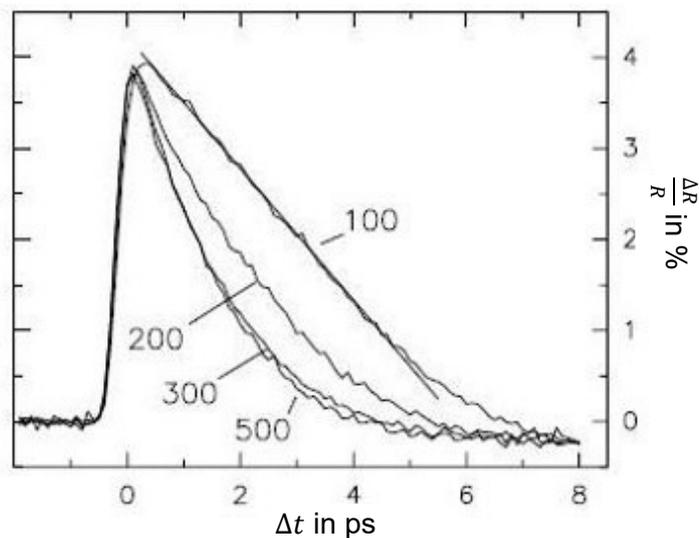


Abbildung 1: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit des Pump-Probe-Delays Δt für verschiedene Schichtdicken; Die den Graphen zugehörigen Schichtdicken sind in Nanometer angegeben; Die Daten wurden mit $\lambda_{\text{probe}} = 500$ nm, $\lambda_{\text{pump}} = 400$ nm und einer Fluenz $H_{\text{pump}} = 1$ mJ/cm² erzeugt [1].

Weiterhin zeigt die relative Reflektivitätsänderung eine Abhängigkeit von der Elektronentemperatur des Materials auf, die für die verschiedenen Probe-Wellenlängen unterschiedlich ist (Abbildung 2). Bei einer Wellenlänge von 400 nm ist die Abhängigkeit von der Elektronentemperatur sehr gering.

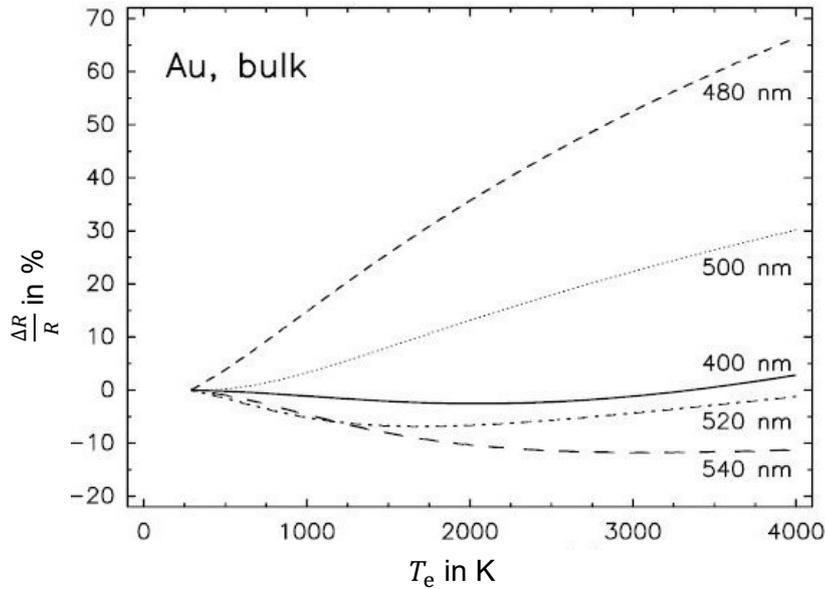


Abbildung 2: Relative Reflektivitätsänderung von Gold in Abhängigkeit der Elektronentemperatur T_e und der Wellenlänge der Probestrahlung [1]

Bei einer Wellenlänge der Probestrahlung von 480 nm nimmt die relative Reflektivitätsänderung am stärksten mit der Elektronentemperatur zu und nimmt mit weiter steigender Wellenlänge ab. Bei Wellenlängen größer als 500 nm wird die Reflektivitätsänderung negativ, da bei diesen Wellenlängen die Photonen ausreichend Energie besitzen um Elektronen im s-/p-Band in das d-Band anzuregen, wobei die Photonenenergie absorbiert wird und dadurch weniger Strahlung reflektiert wird.

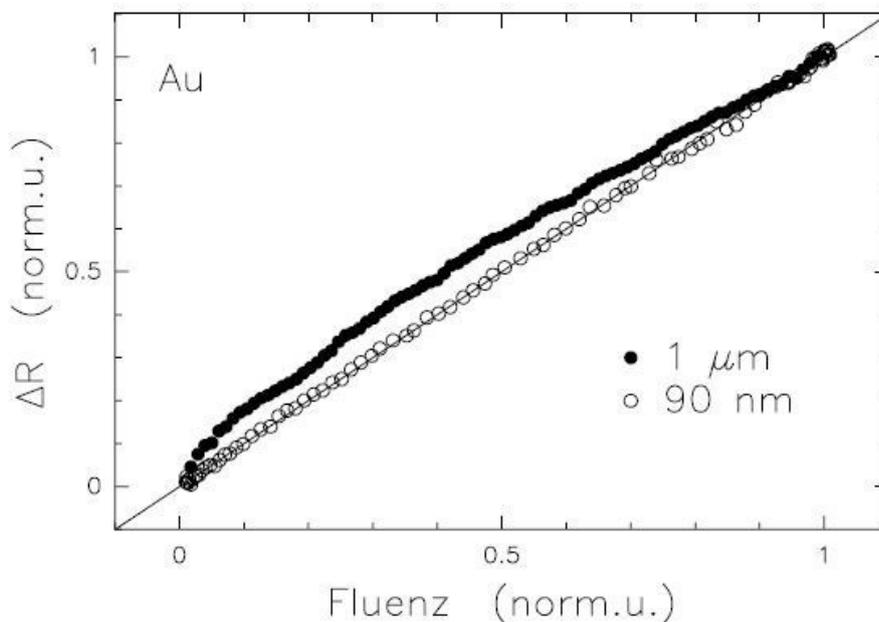


Abbildung 3: Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz bei zwei verschiedenen Schichtdicken, gemessen mit $\lambda_{\text{pump}} = 400 \text{ nm}$ und $\lambda_{\text{probe}} = 489 \text{ nm}$. Die Fluenz wurde bis zur Ablationsschwelle erhöht, die auf der Fluenzachse als 1 dargestellt ist [1].

Die Abhängigkeit der Reflektivitätsänderung $\frac{\Delta R}{R}$ von der Fluenz wurde bei einem konstanten Delay von $\Delta t = 50$ ps überprüft [1]. In Abbildung 3 wird ein konstanter Anstieg der Reflektivitätsänderung mit steigender Fluenz bei einer Schichtdicke von $d = 90$ nm deutlich. Bei $d = 1$ μ m wird der Anstieg mit zunehmender Fluenz kleiner. Das nichtlineare Verhalten der Reflektivitätsänderung wird auf stärkere Diffusion bei großen Schichtdicken zurückgeführt.

In dieser Arbeit wird die Fluenz der verwendeten Pumpstrahlung bis weit über die Abtragschwelle erhöht, sowie eine Zeitspanne von 2 ns mit einer minimalen zeitlichen Auflösung von 40 fs betrachtet, was detailliertere Rückschlüsse auf die Dynamik des Elektronensystems zulässt. Weiterhin werden weitere Metalle bezüglich ihrer relativen Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz und der Zeit betrachtet.

3 Grundlagen

3.1 Freies Elektronengas

Metalle, deren Elektronen nicht fest an die Gitteratome gebunden sind, haben delokalisierte Elektronen. Unter der Annahme, dass diese Elektronen nicht mit den Atomrümpfen und auch nicht miteinander wechselwirken, spricht man von einem freien Elektronengas. Die Zustände, die die Elektronen einnehmen können werden nach dem Pauli-Prinzip besetzt, was besagt, dass zwei Elektronen eines Atoms nicht in allen Quantenzahlen übereinstimmen können. Das führt dazu, dass am absoluten Nullpunkt $T = 0 \text{ K}$ alle Energiezustände von der niedrigsten Energie bis zur Fermienergie besetzt sind und Elektronenzustände höherer Energie unbesetzt sind [3]. Die temperaturabhängige Verteilung der Elektronenzustände wird durch die Fermi-Dirac-Verteilung

$$f(E, T) = \frac{1}{e^{\frac{E-\mu}{k_B T}} + 1} \quad 3-1$$

beschrieben (Abbildung 4). Dabei ist E die Energie des Zustandes des Teilchens, μ das chemische Potential und k_B die Boltzmann-Konstante. Bei Temperaturen $T > 0 \text{ K}$ findet der Übergang von besetzten zu unbesetzten Zuständen in einem Energieintervall von etwa $2 \cdot k_B T$ in der Umgebung der Fermienergie statt.

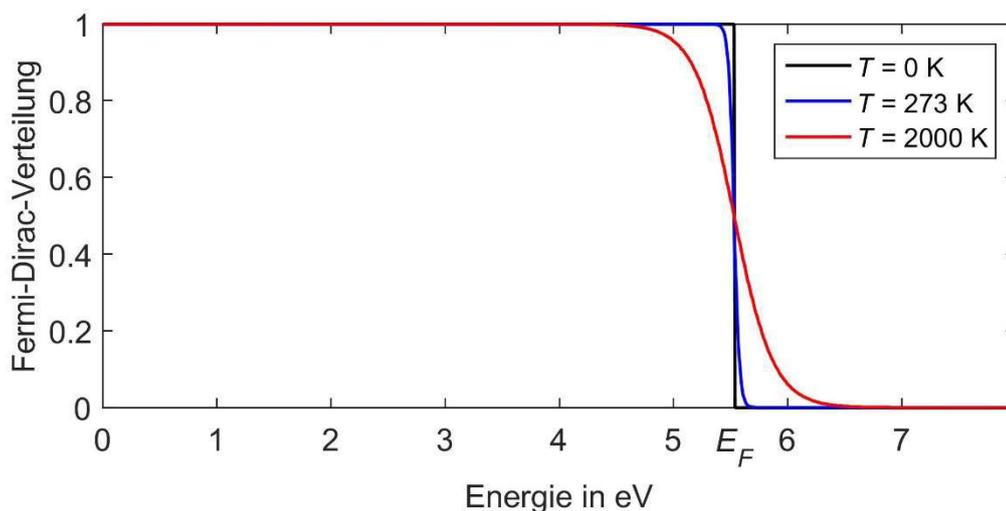


Abbildung 4: Fermi-Dirac-Verteilung für verschiedene Temperaturen

In dieser Näherung befinden sich Elektronen in einem konstanten Potential, das nur durch den Probenrand begrenzt ist. Das Kastenpotential ist in Abbildung 5 für das freie Elektronengas in Metallen dargestellt. Die Potentialtiefe ist mit W bezeichnet und die Austrittsarbeit

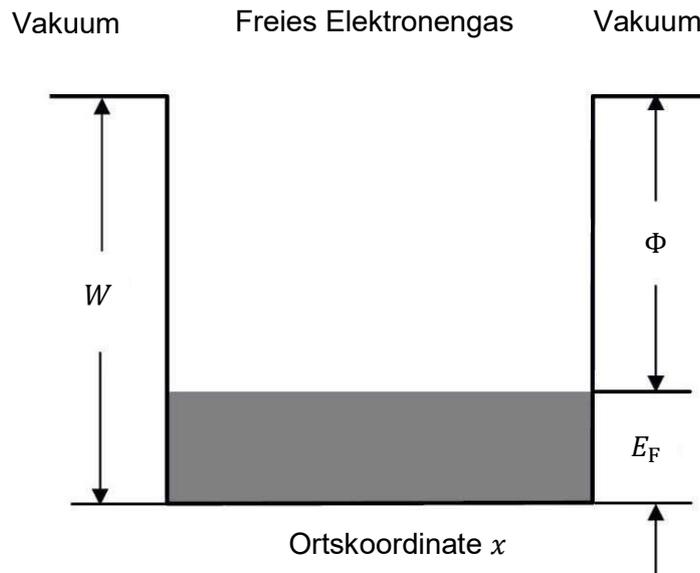


Abbildung 5: Potential eines freien Elektronengases mit Potentialtiefe W , Austrittsarbeit Φ und Fermienergie E_F [4]

Φ muss aufgebracht werden, um ein Elektron aus dem Potential des Metalls zu entfernen [4]. Die Fermi-Dirac-Statistik trifft keine Aussage über die Anzahl der Energiezustände in einem Energieintervall. Für diese Betrachtung wird die Zustandsdichte $D(E)$ verwendet, die sich aus der Beschreibung der Elektronen als Welle in dem Potential des Kristallgitters des Metalls herleitet. Für das 3-dimensionale freie Elektronengas gilt:

$$D(E) = \frac{V}{2 \cdot \pi} \cdot \left(\frac{2 \cdot m}{\hbar^2} \right)^{\frac{3}{2}} \cdot \sqrt{E} \quad 3-2$$

Dabei stellt V das Volumen des Kristalls und m die Masse der Elektronen dar, \hbar ist das reduzierte Planck'sche Wirkungsquantum und E die Energie.

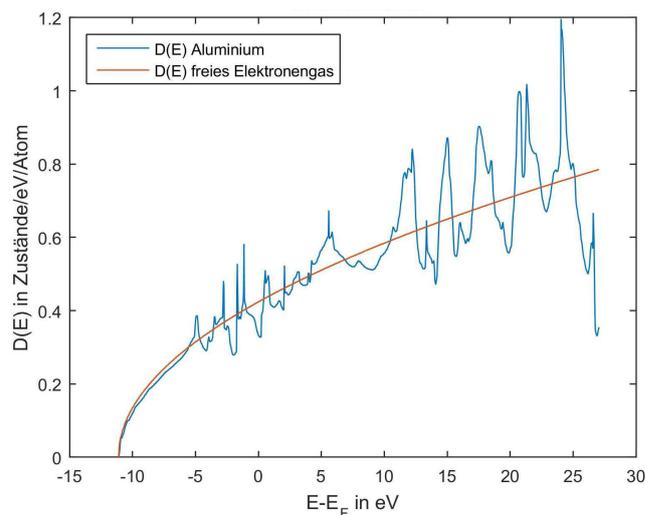


Abbildung 6: Zustandsdichte (DOS) für Aluminium und für das freie Elektronengas [5]

Wird die Verteilung $f(E, T)$ auf die Zustandsdichte $D(E)$ von Metallen angewendet, ergibt $f(E, T) \cdot D(E)$ die Zustandsdichte der besetzten Zustände bei einer bestimmten Temperatur (Abbildung 7) [6]. Die Berücksichtigung der Fermiverteilung macht deutlich, dass bei hohen Elektronentemperaturen Zustände mit der Energie $E > E_F$ angeregt werden können, da deren Besetzungswahrscheinlichkeit nicht mehr Null beträgt.

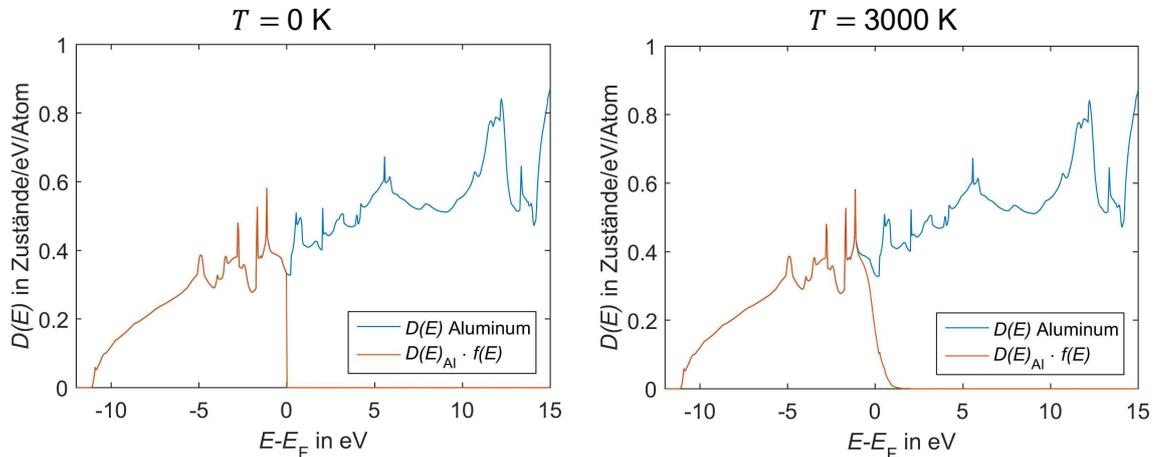


Abbildung 7: Anwendung der Fermiverteilung auf die Zustandsdichten von Aluminium [5]

Das Modell des freien Elektronengases setzt ein ortsunabhängiges und konstantes Potential, sowie eine isotrope Struktur des Kristallgitters des Metalls voraus. Die Verwendung des Modells des freien Elektronengases für Metalle führt zu einer realitätsnahen Beschreibung von einfachen Metallen mit s- und p-Elektronen (Abbildung 6). Bei Übergangsmetallen ist der Einfluss der teilweise gefüllten d-Orbitale auf die Eigenschaften der Metalle größer, weshalb das Modell des freien Elektronengases nicht angewendet werden kann [3]. Weiterhin können nicht alle Eigenschaften von Metallen mit dem Modell des freien Elektronengases erklärt werden, da Metalle ein gitterperiodisches Potential aufweisen. Daraus ergeben sich periodisch auftretende Energiezustände, die durch verbotene Zonen getrennt sind. Innerhalb der verbotenen Zonen können die Elektronen keine Zustände annehmen, weshalb die Einführung von Energiebändern notwendig wird.

3.2 Bändermodell

Das Bändermodell ist eine modellhafte Beschreibung von Energiezuständen der Elektronen in einem idealen Einkristall, das ein periodisches Gitter aufweist. Die Energiezustände werden gemäß dem Pauli-Prinzip besetzt. Die besetzten Energiezustände sind durch das gitterperiodische Potential nicht kontinuierlich, sondern diskret. Mehrere Elektronen können sich im gleichen Energieniveau befinden, wobei jedem Energieniveau Orbitale zugeordnet werden, die die Aufenthaltswahrscheinlichkeit der Elektronen beschreiben. Gibt es nur ein Orbital auf einem Energieniveau, wird es s-Orbital genannt. Bei 3 Orbitalen je Energieniveau spricht man von p-Orbitalen und bei 5 Orbitalen je Energieniveau von d-Orbitalen. Überlagern sich Orbitale einzelner Atome entstehen Energiebänder, dabei entsteht bei der

Überlagerung der s-Orbitale das s-Band und bei der Überlagerung der p-Orbitale entsteht das p-Band [7]. Elemente aus den Nebengruppen weisen außerdem ein d-Band auf und Metalle aus der Gruppe der Lanthanoide und Actinoide besitzen ein f-Band.

Wechselwirkt ein Photon mit der Energie $E = h \cdot \nu$ mit einem Elektron in einem Metall, wird das Elektron in einen höheren Energiezustand angeregt. Ist der angeregte Zustand innerhalb des gleichen Energiebandes, wird von einem Intra-bandübergang gesprochen. Ist die Energie des Photons größer als die Energie eines erlaubten Übergangs zwischen zwei Bändern, findet ein Interbandübergang statt. Die kleinste Energiemenge, die nötig ist, um ein Elektron in einen freien Zustand nahe der Fermienergie anzuregen, wird E_{ITT} (eng. interband transition threshold) genannt und stellt die Schwelle für einen Interbandübergang dar.

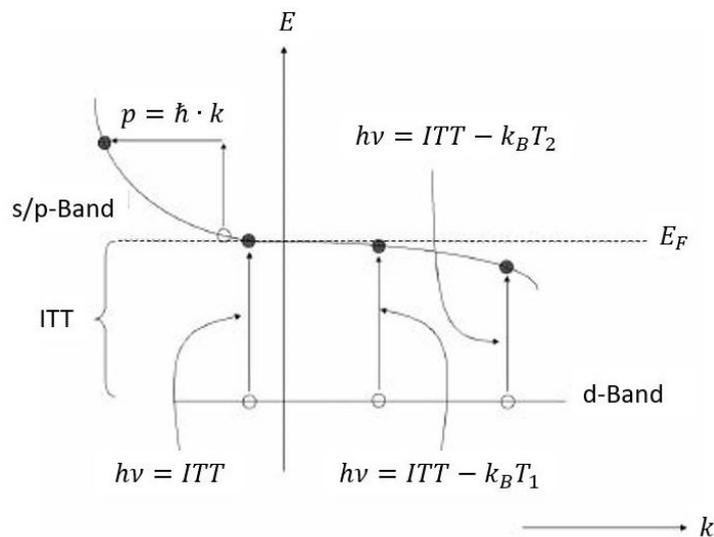


Abbildung 8 Schematische Darstellung von Intra- und Interbandübergängen in Edelmetallen [8]

Sie ist abhängig von der Bandstruktur und der Energiedifferenz zwischen dem äußersten besetzten Band und dem innersten teilweise oder nicht besetzten Band. Dadurch ist die E_{ITT} charakteristisch für jedes Material [8]. Weiterhin muss bei einem Bandübergang der Impulserhaltungssatz erfüllt sein, was bei einem Intra-bandübergang durch Stöße mit Phononen erfolgt. In Abbildung 8 wird deutlich, dass sich bei einem Intra-bandübergang der Impuls des Elektrons $p = \hbar \cdot k$, mit dem Betrag des Wellenzahlvektors k und dem reduzierten Wirkungsquantum \hbar , ändern muss, da es keine zwei Energiezustände mit gleichem Impuls im gleichen Energieband gibt.

Bei Metallen können mehrere Bänder im Bereich der Fermienergie überlappen, wodurch diese Bänder nur teilweise besetzt sein können. Bei Übergangsmetallen ist der Übergang zwischen dem s-/p- und dem d-Band bei einer Energie $E > E_F$, was mehrere Übergänge zwischen energetisch niedrigen Zuständen des d-Bandes zum s-Band erlaubt und gleichzeitig Interbandübergänge in den jeweiligen Bändern zulässt (Abbildung 9) [8].

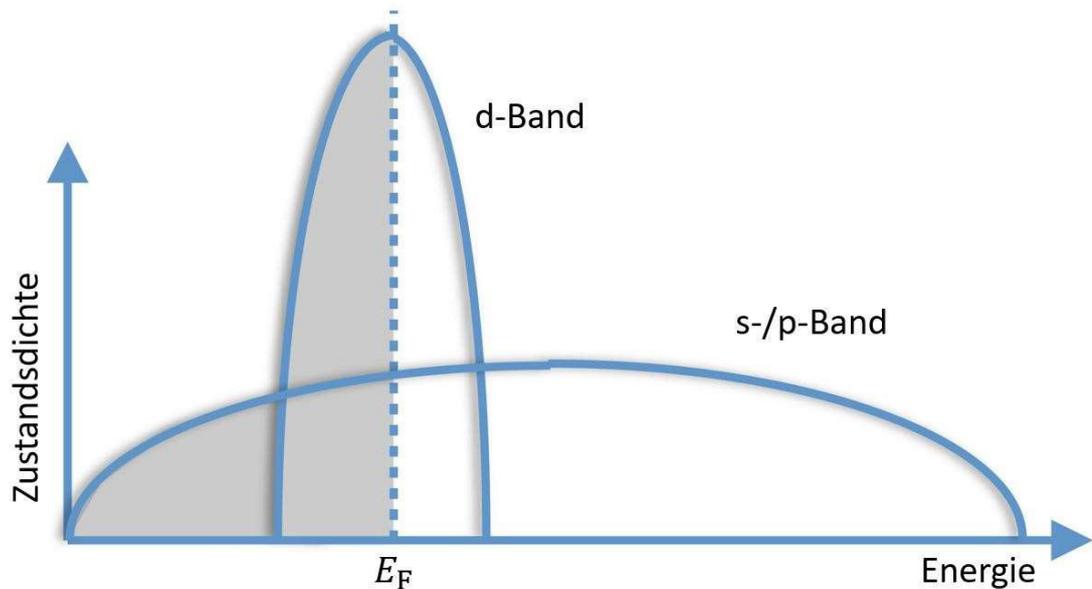


Abbildung 9: Schematische Darstellung der Zustandsdichte in Abhängigkeit der Energie für Übergangsmetalle wie Eisen, Cobalt oder Nickel, nach [9]. Der graue Bereich stellt die besetzten Zustände dar.

Bei Edelmetallen ist die E_{ITT} vergleichsweise hoch, da der Übergang vom s-/p-Band zum d-Band deutlich unterhalb der Fermi-Energie liegt (Abbildung 10). Treffen Photonen mit einer Photonenenergie größer als E_{ITT} auf die Elektronen des d-Bandes, werden diese in unbesetzte Zustände des s-/p-Bandes angeregt. Die E_{ITT} und die äquivalente Photonenwellenlänge $\lambda_{\text{ITT}} = \frac{h \cdot c}{E_{\text{ITT}}}$, sind für Kupfer, Silber und Gold in Tabelle 1 dargestellt. Da nur bei den Metallen Kupfer und Gold diese Wellenlänge im sichtbaren Bereich liegt, sind diese Metalle farbig.

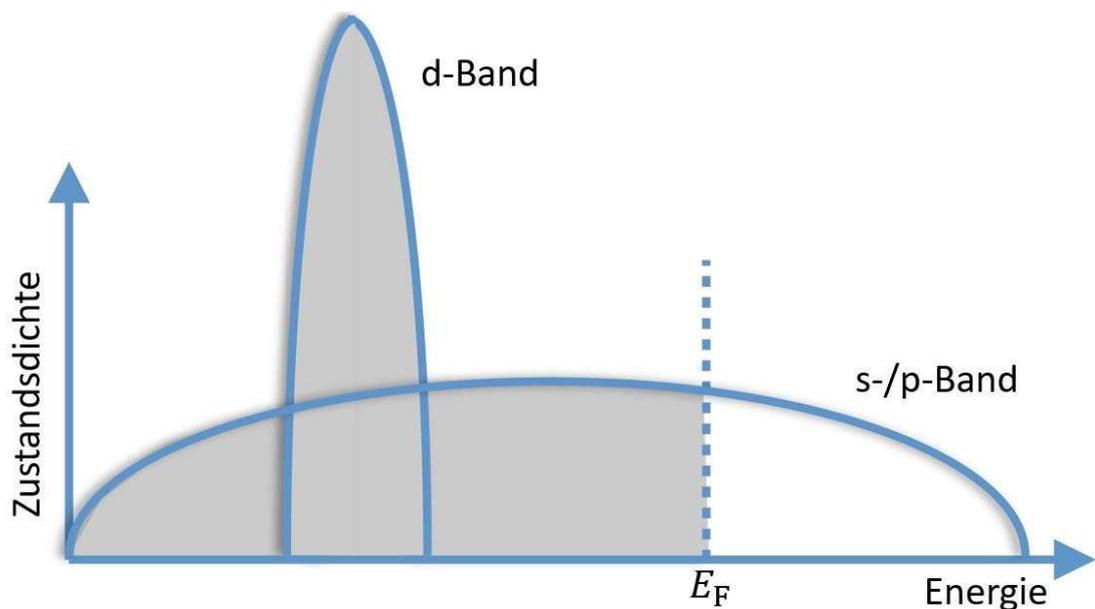


Abbildung 10: Schematische Darstellung der Zustandsdichte in Abhängigkeit der Energie für Übergangsmetalle der Kupfer-Zinkgruppe [9]

Tabelle 1: Energie E_{ITT} und die daraus resultierende Wellenlänge λ_{ITT} eines Photons für den Interbandübergang.

Element	E_{ITT} in eV	λ_{ITT} in nm	Quelle
Cu	2,15	577	[8]
Ag	4,0	310	[8]
Au	2,48	500	[1]

3.3 Abtragsmechanismen

Liegt ein thermodynamisches Gleichgewicht in einem Material vor, stehen die Zustandsgrößen Temperatur, Druck und Dichte in einem festen Verhältnis zueinander. Der Zusammenhang von jeweils zwei Zustandsgrößen kann in einem Phasendiagramm veranschaulicht werden, wobei in Abbildung 11 der Zusammenhang zwischen den Zustandsgrößen Temperatur und Dichte dargestellt ist. Die einzelnen Phasen werden durch Phasengrenzlinien getrennt. Stabile Phasen sind durch einfache Buchstaben (flüssig: l, gasförmig: g und fest: s) und instabile Phasen in Klammern ausgewiesen. Die Binodale (bn) trennt den stabilen Bereich oberhalb vom metastabilen Bereich unterhalb. Sie stellt die Grenze der normalen Verdampfung bzw. Kondensation dar. Metastabile Zustände sind Zustände, die ihrer Zustandsgrößen zufolge eigentlich eine andere Phase aufweisen müssten. Diese Zustände sind solange stabil, bis äußere Einflüsse das Gleichgewicht stören und eine Phasenumwandlung verursachen. Ist das der Fall, bildet sich ein Keim für die neue Phase. Dafür wird eine Keimbildungsarbeit benötigt, die die Phasenumwandlungsenthalpie und die Oberflächenenergie beinhaltet [10].

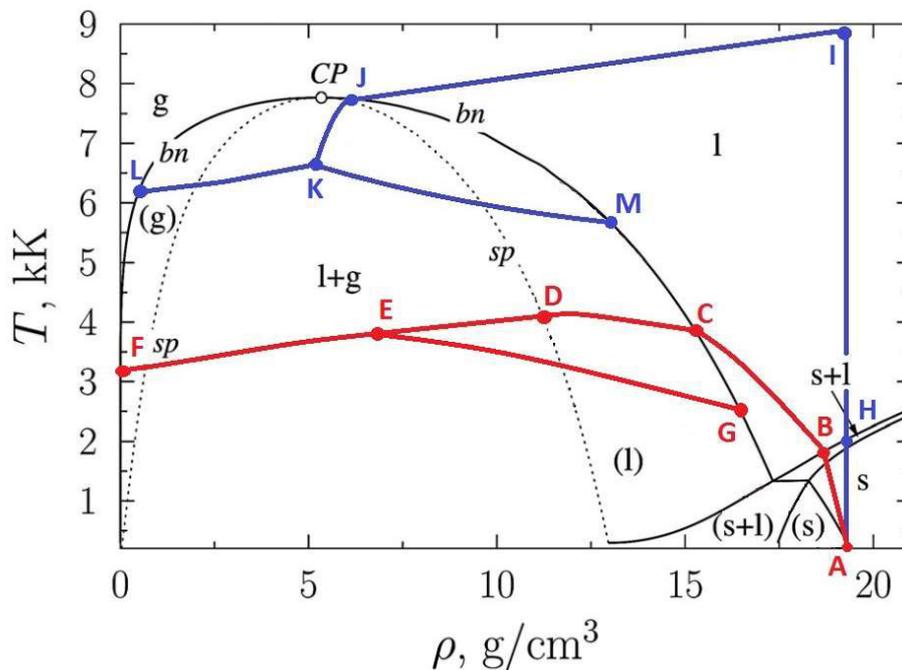


Abbildung 11: Temperatur-Dichte-Phasendiagramm für Gold: gezeigt ist die Binodale (bn) und die Spinodale (sp) nach [11, 12] mit zwei Anregungspfaden für rot Gentle- und blau Strong-Abtrag[10]

Erst wenn die Phasenumwandlungsenthalpie größer ist als die Oberflächenenergie ist der Keim stabil. Phasenumwandlungsenthalpie und Oberflächenenergie werden mit steigender Temperatur kleiner und erreichen bei der kritischen Temperatur den Wert Null, wodurch keine Energie mehr für einen Phasenübergang aufgewandt werden muss, jedoch aber auch keine Energie frei wird. Oberhalb der kritischen Temperatur findet deshalb keine Phasenumwandlung statt. Beide Phasen, flüssig und gasförmig, liegen gleichermaßen vor, und zwischen diesen Phasen kann nicht mehr unterschieden werden. Dieser Zustand wird superkritisches Fluid genannt und hat bei geringen Dichten die Eigenschaften eines Gases und bei steigender Dichte zunehmend Eigenschaften einer Flüssigkeit. An den metastabilen Bereich grenzt die Spinodale, die den Bereich der Koexistenz der beiden Phasen umschließt. Dieser Bereich wird als instabile Zone bezeichnet. In dieser Zone muss zwingend eine Trennung von Gas und Flüssigkeit erfolgen, wobei jedoch die Kriterien zur Bildung von Keimen beachtet werden müssen [10].

Liegt eine unterkühlte oder überhitzte Flüssigkeit vor, kann Keimbildung auftreten. Ist die Keimgröße zu klein, überwiegt die Oberflächenspannung gegenüber der Umwandlungsenthalpie und die Keime lösen sich wieder auf. Erreichen die Keime jedoch eine kritische Größe, wachsen diese stabil weiter und weitere Keime können sich anlagern. Aufgrund der Phasenumwandlung resultiert eine Druckänderung, da die neue Phase eine andere Dichte besitzt [13].

Im Allgemeinen wird bei der Bearbeitung von Metallen mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung von zwei verschiedenen Ablationsregimen gesprochen: dem Gentle-Regime und dem Strong-Regime. Das Gentle-Regime ist gekennzeichnet durch eine Überlagerung aus der Keimbildung der Schmelze an der Oberfläche, was als heterogenes Schmelzen bezeichnet wird, und der Keimbildung im Inneren des Materials durch eine Überhitzung der festen Phasen, was als homogenes Schmelzen bezeichnet wird. Das heterogene Schmelzen findet bei Temperaturen größer als die Schmelztemperatur T_m an der Materialoberfläche statt, wobei sich die Schmelzfront in das Material mit maximal Schallgeschwindigkeit ausbreitet. Das homogene Schmelzen findet bei Temperaturen $T > 1,5 \cdot T_m$ statt und kann deutlich schneller als das heterogene Schmelzen stattfinden [13].

In Abbildung 11 wird der Pfad des Gentle-Regimes durch die rote Linie dargestellt. Diese durchläuft von der festen Phase A über die Strecke A-B den Koexistenzbereich von fester und flüssiger Phase s+l und wird dann als Flüssigkeit im Punkt C weiter erwärmt. Dort geht die Flüssigkeit in eine überhitzte Schmelze über. Im Punkt D wird die Spinodale sp erreicht und die instabile Zone durchlaufen. Dabei entstehen Phasenkeime, die bei Überschreitung der kritischen Größe am Punkt E zur Gasentwicklung führen. Diese Keime besitzen eine wesentlich geringere Dichte, wodurch das Gemisch l+g schlagartig expandiert. Dieser Vorgang wird Phasenexplosion genannt, wobei eine Entmischung stattfindet, was als homogenes Verdampfen bezeichnet wird. Dies findet erst am Phasenkeim und später auch in anderen Gebieten statt, in denen metastabile Phasen existieren und auch dort eine Phasenumwandlung hervorrufen. Je weiter sich die vorherrschende Temperatur der kritischen

Temperatur nähert, desto schneller findet Phasenexplosion statt. Gas und Flüssigkeit trennen sich solange bis die jeweiligen Phasen einen stabilen Zustand entlang der Binodalen (Punkte F und G) einnehmen [10].

Im Strong-Regime wird in Bezug auf den Abtragsmechanismus von „critical point phase separation“ (CPPS) gesprochen. Die Fluenz ist hoch genug, um vorwiegend homogenes Schmelzen im Inneren des Materials zu ermöglichen. Die Vorgänge, die hierbei stattfinden sind in Abbildung 11 blau dargestellt. Durch die schnelle Erwärmung kann sich das Material in der Schmelze nicht ausdehnen, wodurch keine Dichteänderung entsteht, was im Diagramm durch die Gerade AH1 dargestellt wird. Folglich steigen der Druck und die Temperatur. Wenn die Temperatur die kritische Temperatur übersteigt, liegt das Material im Punkt I als superkritisches Fluid vor. Nun setzt die Ausdehnung des Materials ein, wobei oberflächennahe Bereiche, aufgrund des fehlenden Widerstandes gegen die Expansion, als Erstes mit der Expansion beginnen. Danach können sich auch Bereiche tiefer im Inneren des Materials ausdehnen. Wärmediffusion und die damit verbundene Wärmeabgabe sorgt für eine Abkühlung des superkritischen Fluides, wodurch das Material, in Verbindung mit der Expansion, im Phasendiagramm den Punkt J erreicht. Durch weitere Expansion und Abkühlung werden der metastabile Bereich und die Spinodale überschritten, was zu einer Trennung in Dampf und Flüssigkeitstropfen, unter Beachtung der notwendigen Bedingungen zur Keimbildung, führt. Dabei ist die Verdampfungsenthalpie niedrig, da die vorherrschende Temperatur groß ist und damit auch die Oberflächenspannung der Phasenkeime gering ist. Die daraus resultierende Expansion wird kaum gehemmt und sorgt für einen deutlich höheren Materialabtrag als bei der Phasenexplosion [14].

Der Vergleich der Abtragsregime Gentle und Strong zeigt, dass die Phase ausschlaggebend ist, von der aus die instabile Zone erreicht bzw. die Spinodale überschritten wird. Bei der Phasenexplosion wird dies aus einer überhitzten Schmelze getan. Bei CPPS ist das Material in einem superkritischen Zustand bevor die Spinodale überschritten wird. Dadurch ist die Temperatur bei CPPS größer und die Keimbildungsarbeit geringer. Die Keimbildung erfolgt deshalb bei CPPS aufgrund des geringeren Widerstandes zur Phasenumwandlung schneller und führt zu größerem Materialabtrag als bei der Phasenexplosion im Gentle-Regime [10].

4 Material und Methoden

In dieser Arbeit werden Schichten von Aluminium (Dicke $d = 0,3 \mu\text{m}$), Gold ($d = 0,2 \mu\text{m}$), Molybdän ($d = 2 \mu\text{m}$), Nickel ($d = 1 \mu\text{m}$) und Platin ($d = 1 \mu\text{m}$) auf Floatglassubstraten, die mit Einzelpulsen ultrakurz gepulster Laserstrahlung bearbeitet werden, untersucht. Die vom Laser (Astrella, Fa. Coherent Inc.) emittierte Laserstrahlung weist eine mittlere Wellenlänge von $\lambda = 800 \text{ nm}$ und eine Pulsdauer von $\tau = 35 \text{ fs}$ auf (Abbildung 12), welche mit einem GRENOUILLE Modell 8-12-USB (Fa. Swamp Optics, LLC) gemessen werden. Laut Hersteller entspricht die räumliche Verteilung einem TEM_{00} -Mode mit $M^2 > 1,25$.

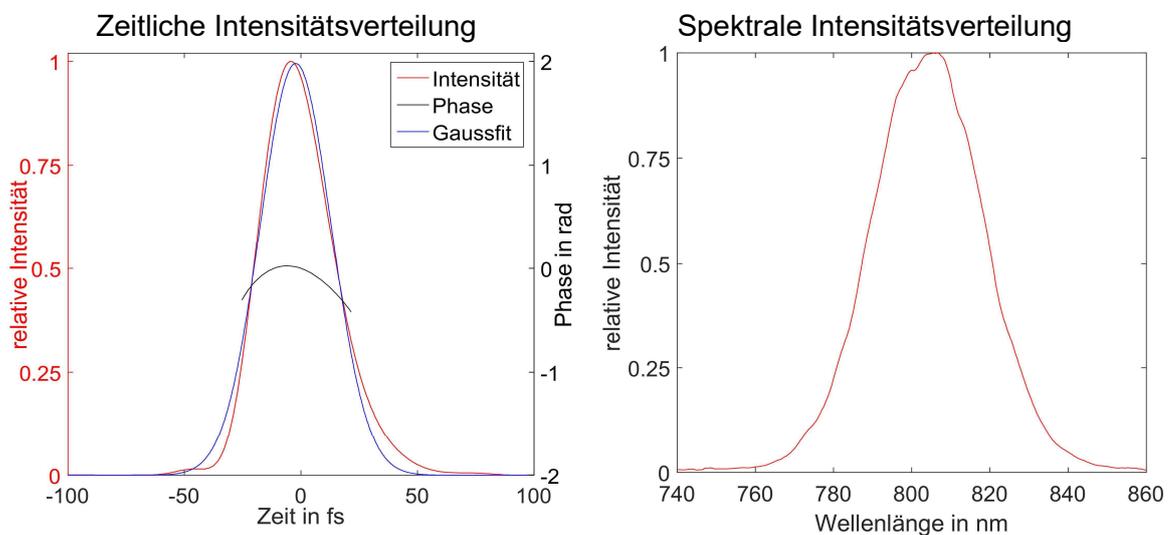


Abbildung 12: Zeitliche sowie spektrale Intensitätsverteilung der verwendeten Laserstrahlung.

Die Metallproben wurden mittels eines Pump-Probe-Aufbaus bestrahlt (Abbildung 13), wobei zwei Pulse verwendet werden. Ein Puls mit großer Energie, welcher eine Materialveränderung hervorruft, wird Pump Laserstrahlung genannt. Der zweite Puls mit geringer Energie registriert die hervorgerufene Veränderung und wird als Probelaserstrahlung bezeichnet. Die Pump Laserstrahlung trifft hierbei senkrecht auf die Metalloberfläche, während die Probelaserstrahlung unter einem Winkel von $\theta = 60^\circ$ einfällt. Die Probelaserstrahlung wird an der Oberfläche der Metallprobe reflektiert und trifft durch einen Filter, der die Streuung der Pump Laserstrahlung herausfiltert, auf die Kamera. Für die Untersuchungen wurde die Energie der Pump Laserstrahlung variiert und die optische Weglänge der Pumpstrahlung so verändert, dass die zeitliche Verzögerung der Probelaserstrahlung 20 äquidistanten Zeitpunkten auf einer logarithmischen Zeitskala von $t = 0 \text{ fs}$ bis $t = 2 \text{ ns}$ entspricht, wobei die kleinste zeitliche Auflösung 40 fs beträgt. Die zeitliche Auflösung wird mittels einer Verzögerungsstrecke im Strahlengang der Pump Laserstrahlung realisiert, welche mit einer Linearachse eingestellt werden kann. Die zeitlichen Abstände, die durch die Äquidistanz einer logarithmischen Skala kleiner sein sollten als 40 fs, werden auf 40 fs festgelegt. Der durch

die Verzögerungsstrecke eingestellte Zeitunterschied zwischen Pump- und Probestrahlung wird Pump-Probe-Delay genannt.

Bei der Erstellung der Bildaufnahmen wurde darauf geachtet, dass mindestens einer der ersten 40 fs-Verzögerungsschritte Aufnahmen des Metalls vor Eintreffen der Pumplaserstrahlung enthalten. Die ersten Aufnahmen der Oberfläche vor der Bestrahlung wurden zur Normierung der Reflektivitätsänderung verwendet. Die Fluenz der verwendeten Pumplaserstrahlung wurde in ca. 40 Abstufungen von ca. 15 J/cm^2 auf null gesenkt, wobei Pulsenergien von $Q_{pump} \leq 65 \mu\text{J}$ auftreten. Die Probelaserstrahlung hat eine Wellenlänge von $\lambda_{probe} = 440 \text{ nm}$ und eine Pulsdauer von $\tau_{probe} = 60 \text{ fs}$.

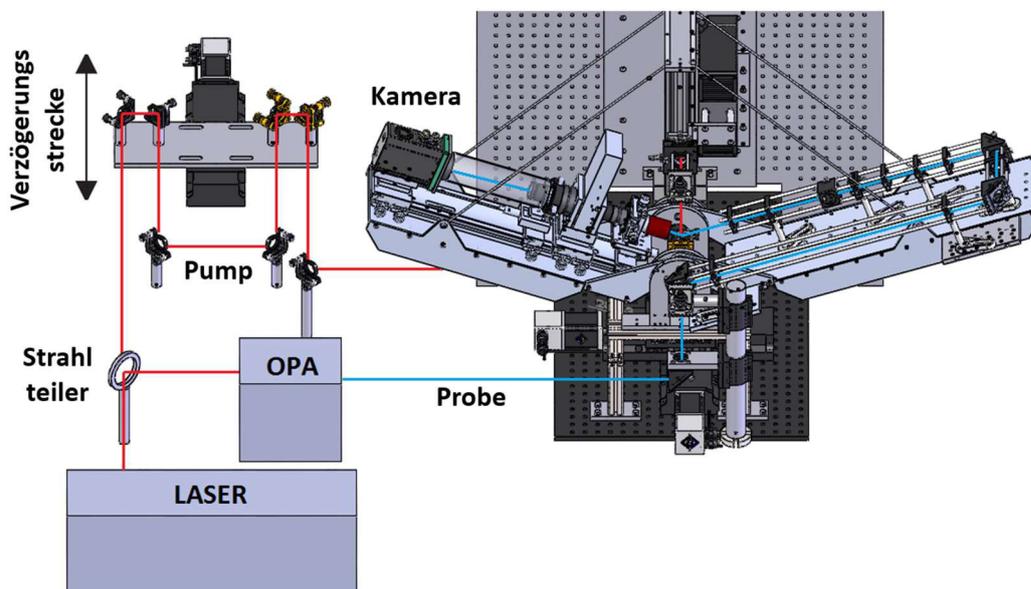


Abbildung 13: Schematische Darstellung des Pump-Probe-Aufbaus rot Probelaserstrahlung blau Pumplaserstrahlung [15]

Aus den Helligkeitswerten der von der Metallprobe reflektierten Strahlung von 3 Bildern mit gleichen Parametern wird das arithmetische Mittel gebildet und die Helligkeitswerte des Hintergrundrauschens durch Zimmerbeleuchtung abgezogen (Abbildung 14).

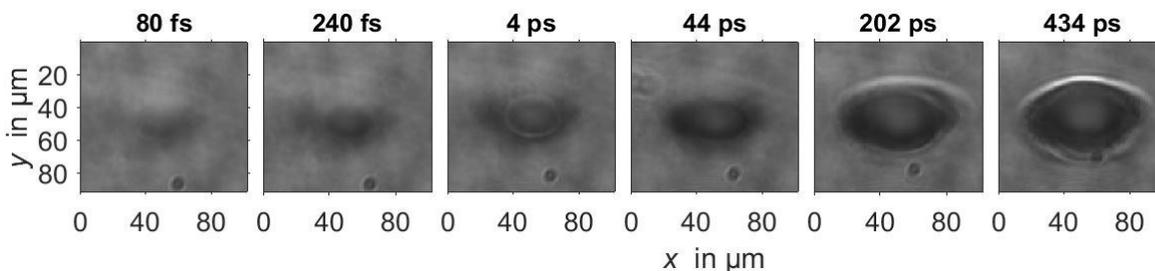


Abbildung 14: Beispielhaft erhaltene gemittelte Bilder bei der Bestrahlung von Gold mit einer Fluenz der verwendeten Laserstrahlung von $H = 13,7 \text{ J/cm}^2$ zu verschiedenen Zeiten t nach der Bestrahlung

Die Änderung des Reflexionsverhaltens zu späteren Zeitpunkten wird auf R_0 normiert, welches sich aus den Aufnahmen vor der Bestrahlung ergibt, sodass die relative Reflektivitätsänderung:

$$\frac{\Delta R}{R_0} = \frac{R - R_0}{R_0}$$

berechnet wird. Mit dieser Methode werden Falschfarbendarstellungen der erhaltenen Bilder erstellt (Abbildung 15).

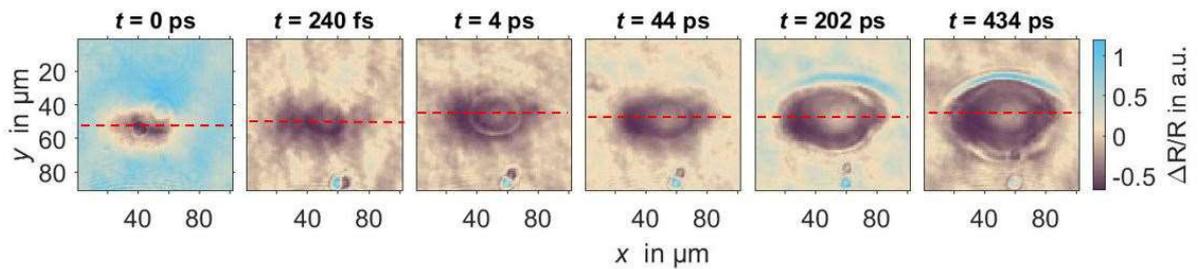


Abbildung 15: Beispielhaft erhaltene relative Änderung der Reflektivität bei der Bestrahlung von Gold mit einer Fluenz der verwendeten Laserstrahlung von $H = 13,7 \text{ J/cm}^2$ zu verschiedenen Zeiten t nach der Bestrahlung.

Das Verhältnis $\frac{\Delta R}{R}$ wird für alle verwendeten 5 Metalle in 20 verschiedenen Pump-Probe-Delays mit jeweils ca. 40 Abstufungen der Fluenz der Pumplaserstrahlung für das erhaltene Bild berechnet. Zur Darstellung der Ergebnisse wird von den Bildern des Abtrages jeweils ein Querschnitt betrachtet, der durch das Zentrum der Abtragstruktur verläuft (Abbildung 15). Die Querschnitte werden dann zu einem bestimmten Pump-Probe-Delay in Abhängigkeit der Fluenz oder zu einer bestimmten Fluenz in Abhängigkeit des Pump-Probe-Delays der verwendeten Laserstrahlung dargestellt (Abbildung 16). Die Werte zwischen den 20 Zeit- und ca. 40 Fluenzstufen werden interpoliert und die relative Reflektivitätsänderung ebenfalls in Falschfarben wiedergegeben.

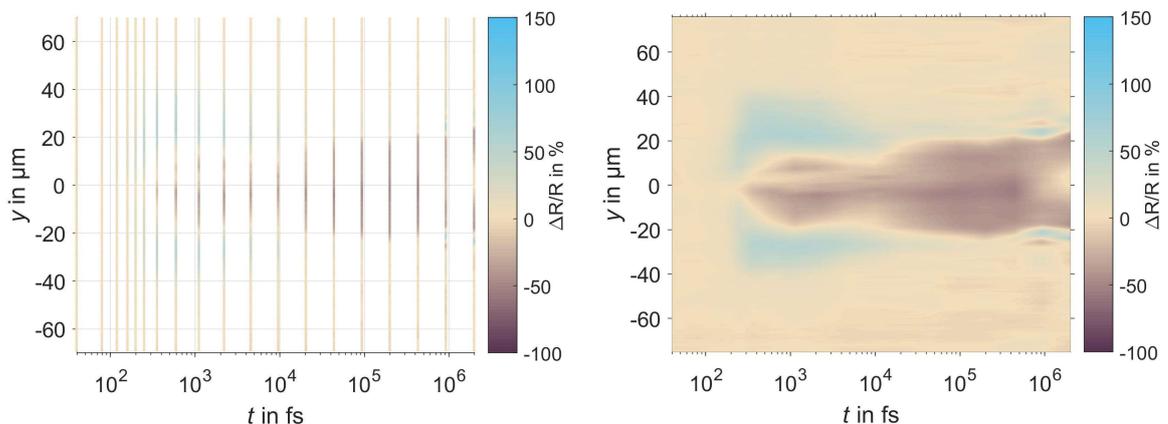


Abbildung 16: Querschnitte aus dem Zentrum der Abtragstrukturen in Abhängigkeit der Zeit *links* ohne Interpolation *rechts* mit Interpolation für Gold

5 Ergebnisse und Diskussion

5.1 Gold

Bei der Untersuchung einer $0,2 \mu\text{m}$ dicken Goldschicht wurde die Abhängigkeit der relativen Reflektivitätsänderung $\frac{\Delta R}{R}$ von der Fluenz der Pumplaserstrahlung zu verschiedenen Zeiten im Intervall $0 \text{ fs} < t < 2 \text{ ns}$ nach der Bestrahlung betrachtet. Bei $t = 53 \text{ fs}$ nach der Bestrahlung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung wird eine ausschließlich positive relative Reflektivitätsänderung gemessen (Abbildung 17). Durch die Photonenenergie der Probelaserstrahlung werden Elektronen zum Übergang vom d-Band in das s-/p-Band angeregt, da die Energie der Photonen größer ist als E_{ITT} . Treffen die Photonen der Probe-Laserstrahlung jedoch auf bereits durch die Pumplaserstrahlung angeregte Elektronen, werden die Photonen nicht absorbiert, sondern reflektiert, was sich in einer positiven Änderung der Reflektivität widerspiegelt. Die Ausdehnung der positiven Reflektivitätsänderung wird mit zunehmender Fluenz größer.

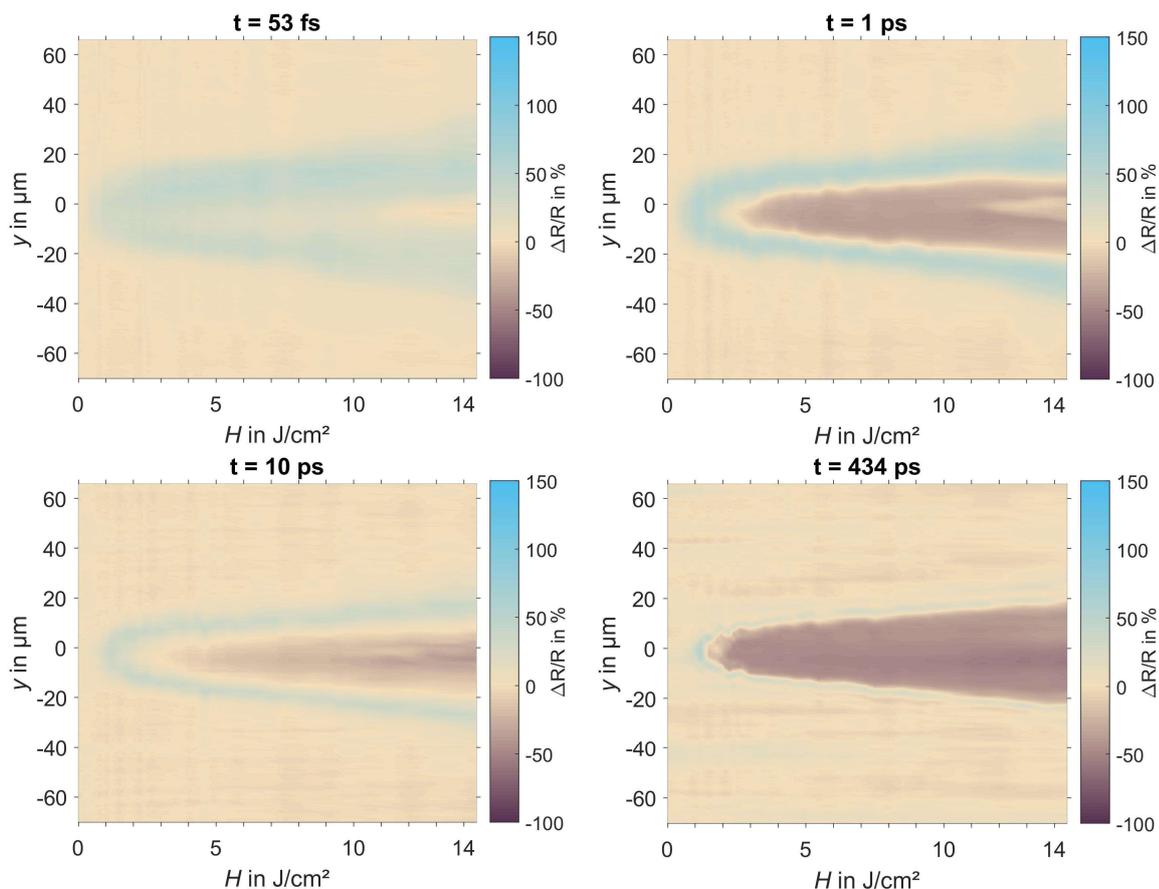


Abbildung 17: Relative Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung in Abhängigkeit der Fluenz

Nach einer Pikosekunde ist bei Fluenzen größer als 3 J/cm^2 ein Bereich negativer Reflektivitätsänderung bei $y = 0 \text{ }\mu\text{m}$ zu beobachten, der von einem Bereich positiver Reflektivitätsänderung umhüllt ist. Nach einer Pikosekunde hat das Elektronensystem über Stöße einen Teil seiner Energie an das Phononensystem abgegeben. Dadurch erhitzt sich das Material, wobei die Reflektivität abnimmt. Dies geschieht bis das Material, wie in Kapitel 3.3 beschrieben, in ein überkritisches Fluid übergeht. Bei der darauffolgenden Trennung von Flüssig- und Gasphase bis $t = 10 \text{ ps}$ entsteht Strong-Abtrag und die Reflektivität nimmt ab, da die Struktur weniger reflektiert als die Metalloberfläche. Bis $t = 44 \text{ ps}$ wird der Bereich negativer Reflektivität größer und $\frac{\Delta R}{R}$ nimmt weiter ab und bleibt nach 94 ps bis $t = 434 \text{ ps}$ gleich groß (Die Darstellungen zu jedem gemessenen Zeitpunkt sind in Anlage II zu finden). Der umhüllende Bereich positiver Reflektivitätsänderung ist kleiner geworden, da die angeregten Elektronen ihre Energie weitestgehend an das Gitter abgegeben haben und wieder in ihren Grundzustand übergehen. 931 ps nach der Bestrahlung wird das Material, das im Gentle-Regime abgetragen wird, durch den Druck im Material von der Oberfläche weg befördert [16], was in Abbildung 18 als Struktur mit $\frac{\Delta R}{R} > 50 \%$ erkennbar ist. Diese Struktur tritt bereits bei Fluenzen oberhalb von H_G auf, was den Schluss zulässt, dass es sich dabei um Gentle-Abtrag handelt.

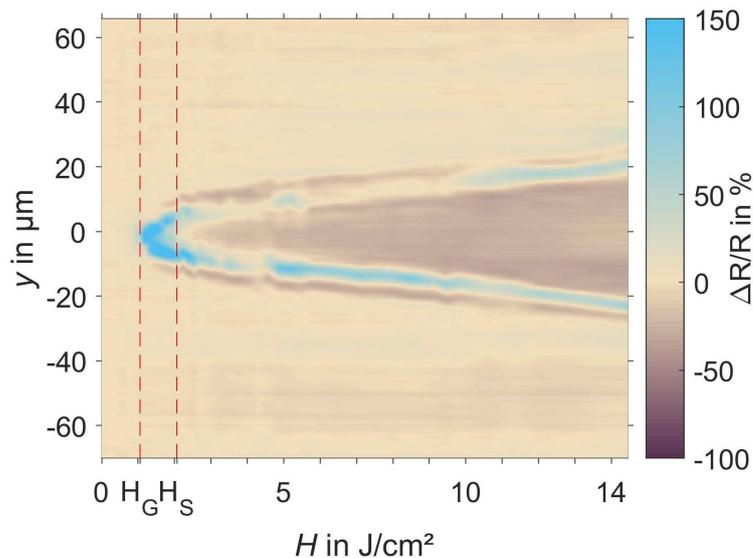


Abbildung 18: Darstellung der relativen Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz bei $t = 31 \text{ ps}$. Gold, das durch Gentle-Abtrag abgetragen wurde, hat sich von der Oberfläche gelöst.

Mit der Annahme einer gaußförmigen räumlichen Verteilung der Pumplaserstrahlung lässt sich bei jeder Fluenz der Abstand zum Pulsschwerpunkt zuordnen, an dem die Schwellfluenz für den Materialabtrag erreicht ist. Die Schwellfluenzen für Materialabtrag, die nach der Methode von Liu [17] bestimmt wurden und im Gentle-Regime $H_G = 1,1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ und im Strong-Regime $H_S = 2,1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ betragen, sind in Abbildung 18 hervorgehoben. Dadurch wird eine Betrachtung der Abhängigkeit der Reflektivitätsänderung vom Abtragsregime möglich. Wird dazu, wie bei der Bestimmung der Schwellfluenz nach der Methode von Liu, die Darstellung des Durchmesserquadrates des Abtrages über den dekadischen Logarithmus der Fluenz

verwendet, ergeben sich $D^2(H = H_G)$ und $D^2(H = H_S)$ zu Geraden. In Abbildung 19 wird dies dargestellt, wobei eine Abweichung von einem linearen Verhalten für hohe Fluenzen vor allem für negative D^2 -Werte auffällt. Die Erhöhung der Reflektivität findet schon vor Erreichen der Schwelle für Gentle-Abtrag statt, hat jedoch ihr Maximum im Fluenzbereich zwischen H_G und H_S , bevor sie wieder abnimmt und mit Übersteigen der Schwellfluenz für Strong-Abtrag negativ wird. In Abbildung 19 werden die gleichen Zeitpunkte betrachtet wie in Abbildung 18 und eine Unabhängigkeit der Reflektivitätserhöhung bei $t = 53$ fs von den Abtragsschwellen wird deutlich, denn da tritt positive Reflektivitätsänderung unterhalb von H_G und oberhalb von H_S auf. Mit zunehmender Zeit beschränkt sich der Bereich mit positiver $\frac{\Delta R}{R}$ auf Fluenzen kleiner H_S . Weiterhin kann gezeigt werden, dass nur bei Fluenzen $H > H_S$ bei $t = 1$ ps ein Bereich negativer Reflektivitätsänderung auftritt, der bei $t = 10$ ps ein $\frac{\Delta R}{R} \approx 0\%$ aufweist und danach wieder negativ wird. Da dieses Verhalten ausschließlich bei Fluenzen oberhalb von H_S auftritt, wird die Vermutung bestärkt, dass dies auf den Mechanismus des Strong-Abtrages zurückzuführen ist.

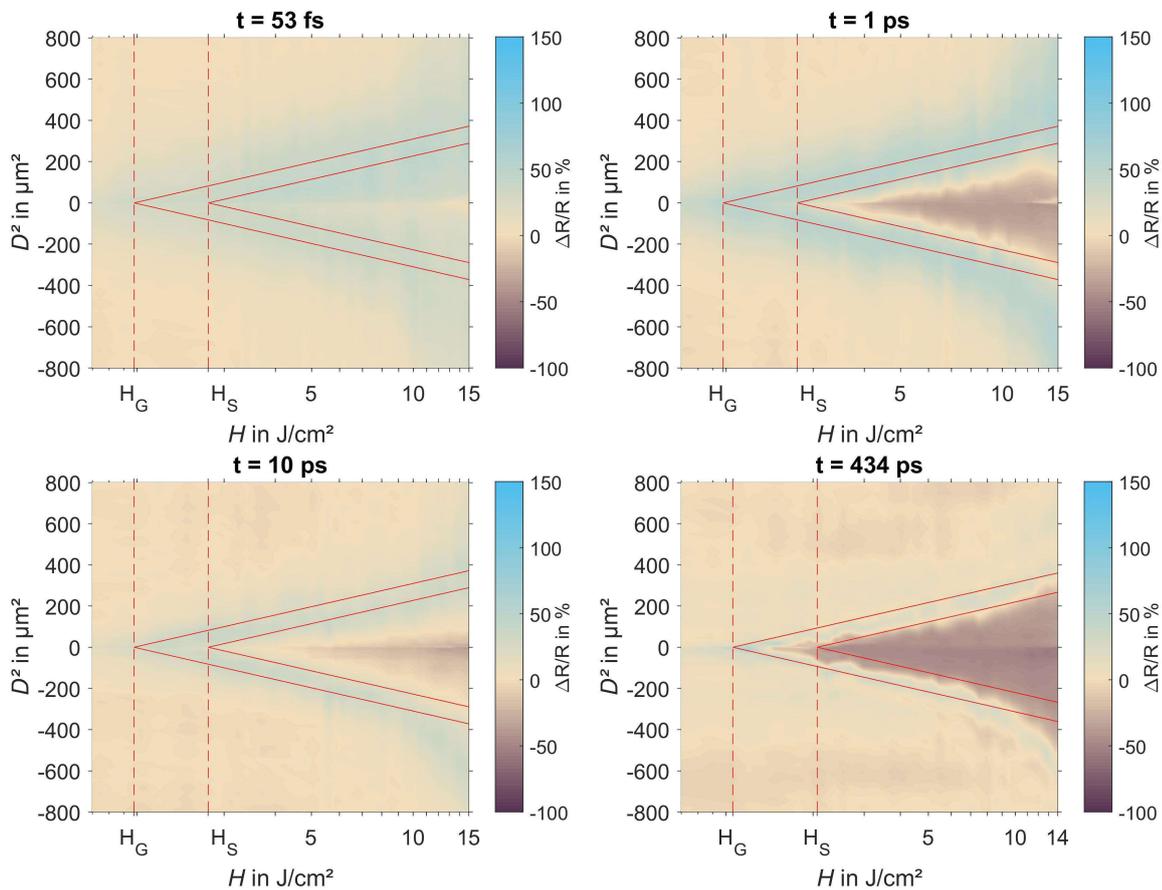


Abbildung 19: Quadrat der Länge D der relativen Reflektivitätsänderung logarithmisch über die Fluenz H aufgetragen zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung für Gold

Wird nun der zeitliche Verlauf als Funktion der Fluenz betrachtet (Abbildung 20), wird bei $H = 1,2$ J/cm² deutlich, dass der Bereich mit $\frac{\Delta R}{R} > 0$ bis $t = 250$ fs größer wird und danach durch Energieabgabe der Elektronen an das Gitter und der damit verbundenen Rückgang

in den Grundzustand die Reflektivitätsänderung abnimmt. Bei Fluenzen über $H = 3 \text{ J/cm}^2$ wird der Rückgang des Bereichs negativer Reflektivität bis etwa $t = 10 \text{ ps}$ deutlich, da hier

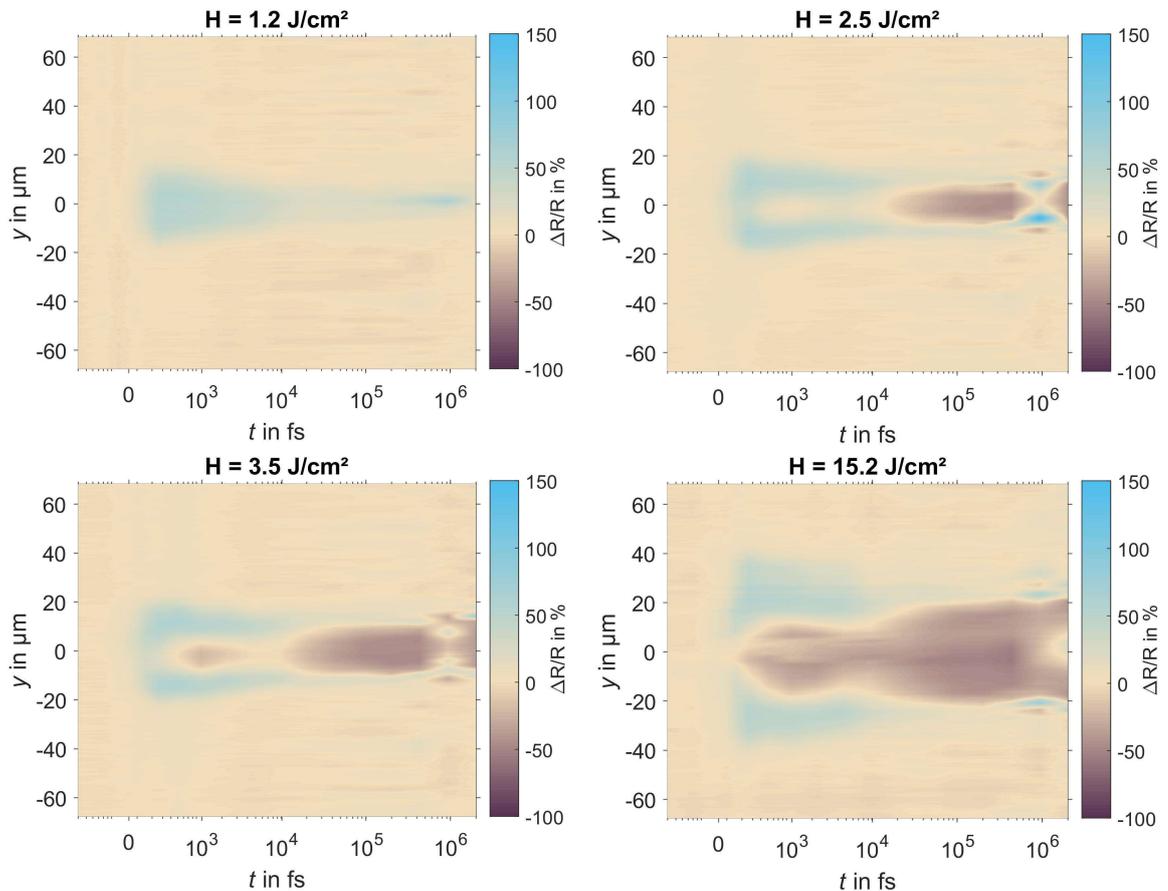


Abbildung 20: Relative Reflektivitätsänderung bei verschiedenen Fluenzen in Abhängigkeit der Zeit nach der Bestrahlung für Gold

das überkritische Fluid entstehen könnte, wie bereits beschrieben. Weiterhin ist bei Fluenzen oberhalb der Abtragsschwelle für Gentle-Abtrag ein Bereich mit positiven $\Delta \frac{R}{R}$ bei $t = 1 \text{ ns}$ zu erkennen, der durch das herausgeschleuderte Material entsteht, das sich von der Materialoberfläche abhebt.

5.2 Aluminium

Der Zustand der freien Elektronen von Aluminium lässt sich durch ein Elektronengas beschreiben (siehe Kapitel 3.1), da die Elektronen keine d-Orbitale besetzen und kein Interbandübergang stattfinden. Durch die Absorption der Pumplaserstrahlung entsteht im Elektronensystem ein thermodynamisches Ungleichgewicht. Nach der Relaxation des Elektronensystems stellt sich eine Fermiverteilung mit höherer Temperatur als vor der Bestrahlung ein. Dadurch entstehen freie Zustände unterhalb der Fermienergie, die die Elektronen besetzen können, wodurch der Absorptionsgrad steigt und die Reflektivität sinkt. Wie bei Gold wird zunächst die Abhängigkeit der relativen Reflektivitätsänderung von der Fluenz der

Pumplaserstrahlung zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung gemessen (Abbildung 21).

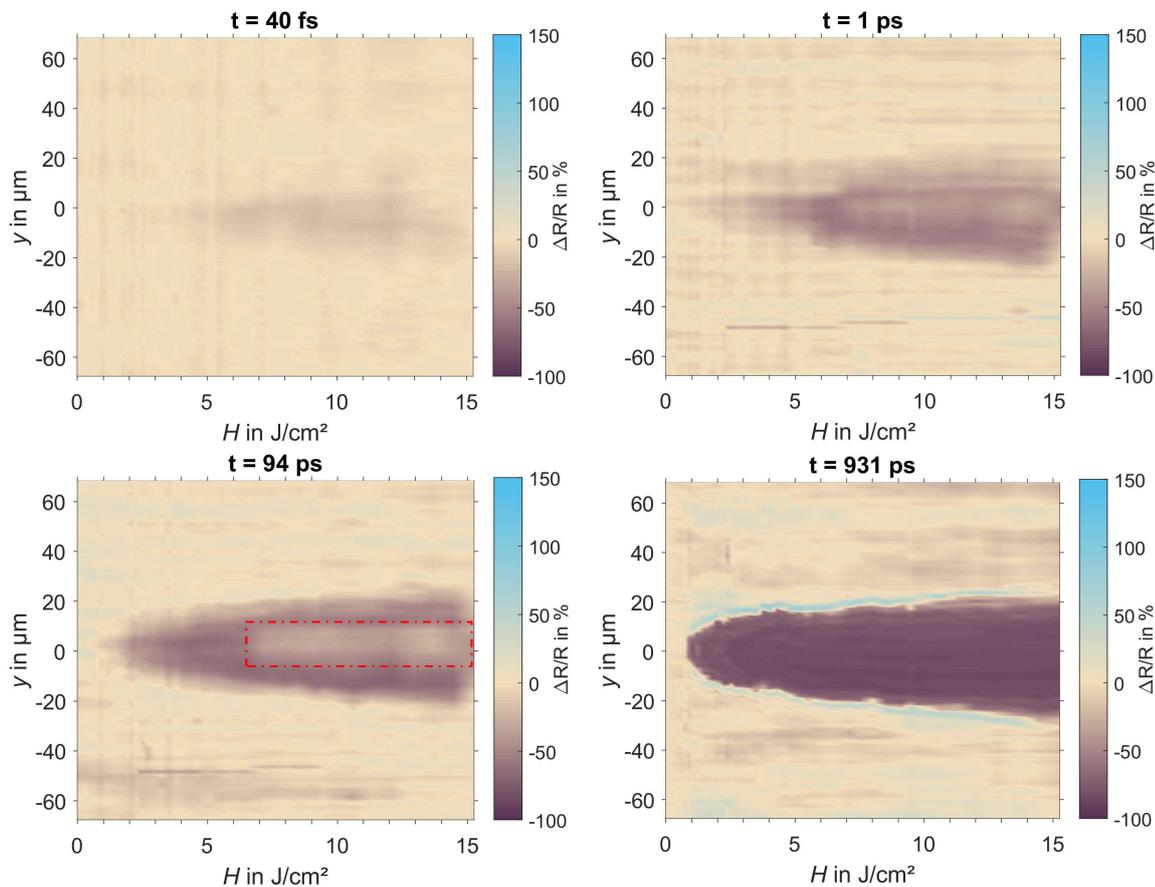


Abbildung 21: Relative Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung in Abhängigkeit der Fluenz für Aluminium

Eine Reflektivitätsänderung von etwa -10 % ist bei Fluenzen $H > 5 \text{ J}/\text{cm}^2$ nach 40 fs nach der Bestrahlung der 0,3 μm dicken Aluminiumschicht zu erkennen. Bei $t = 1 \text{ ps}$ ist in diesem Bereich die Reflektivitätsänderung auf etwa $\frac{\Delta R}{R} = -80\%$ gefallen, wobei ein Teilbereich davon eine relative Reflektivität von etwa -10 % beibehält. Dieser Teilbereich ist bei $t = 94 \text{ ps}$ deutlicher zu erkennen (rot markierter Bereich) und ist vermutlich auf Pumplaserstrahlung zurückzuführen, die nicht vom Filter vor der Kamera gefiltert wird, weil die Intensität der auf den Filter treffenden Strahlung zu hoch ist (Abbildung 22). Weiterhin wird bei $t = 94 \text{ ps}$ die negative Reflektivitätsänderung von -80 % bei niedrigeren Fluenzen der Pumplaserstrahlung deutlich.

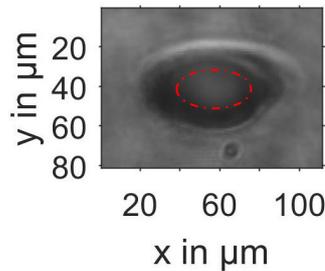


Abbildung 22 Reflektivitätsmessung mit $H = 13,7 \text{ J/cm}^2$ $t = 202 \text{ ps}$ nach der Bestrahlung: Pumplaserstrahlung im Zentrum der bestrahlten Aluminiumfläche, die nicht gefiltert werden konnte

Die Untersuchungen für die Delays $t = 931 \text{ ps}$ und $t = 2 \text{ ns}$ wurden an einem anderen Tag durchgeführt, an dem keine Streustrahlung im Zentrum der Strukturen auftrat. Dafür treten Bereiche mit $\frac{\Delta R}{R} = 150 \%$ an den Rändern der Strukturen auf. Diese sind vermutlich auf einen systematischen Fehler zurückzuführen, da das Gleiche auch bei der Untersuchung der letzten zwei Delays von Nickel passiert ist, welche am selben Tag stattfand.

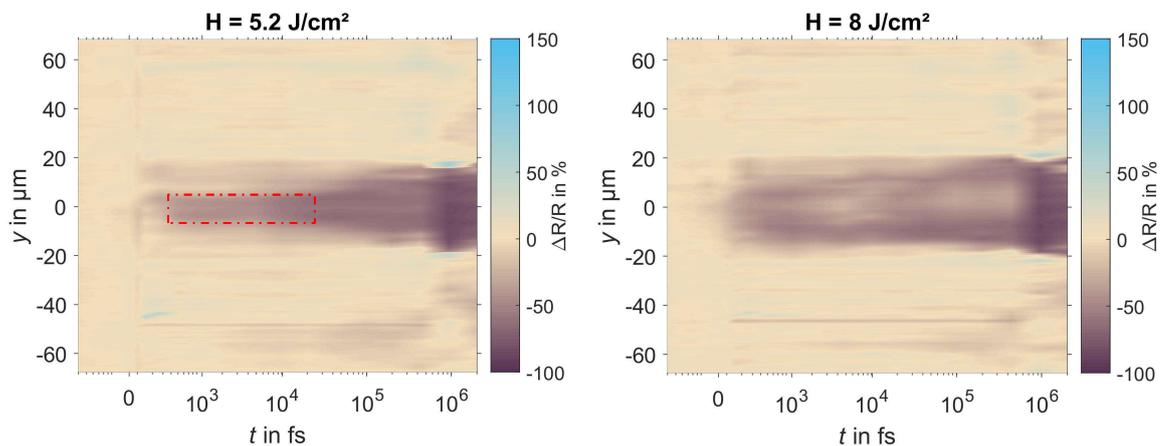


Abbildung 23: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Zeit bei verschiedenen Fluenzen für Aluminium

In Abbildung 23 ist links ein $10 \mu\text{m}$ breiter Streifen mit $\frac{\Delta R}{R} = -80 \%$ im Bereich $-10 \mu\text{m} < y < 10 \mu\text{m}$ zu sehen, der nach etwa $t = 10^4 \text{ fs} = 10 \text{ ps}$ breiter wird und nach 100 ps etwa $40 \mu\text{m}$ breit wird. Der schmale Streifen (rot markiert) stellt vermutlich wie bei Gold das überkritische Fluid dar. Im rechten Bild ist die Fluenz der Laserstrahlung höher, wodurch mehr Volumen des überkritischen Fluides entsteht, was zur Verbreiterung des Streifens führt. Bei Fluenzen $H > 8 \text{ J/cm}^2$ ist zu jedem Zeitpunkt nach der Bestrahlung der Bereich negativer Reflektivitätsänderung $40 \mu\text{m}$ breit.

5.3 Molybdän

Bei der $2 \mu\text{m}$ dicken Molybdänprobe ist zu bemerken, dass die verwendete Probe eine sehr raue Oberfläche aufweist, die mit Partikulaten versetzt ist (Abbildung 24). Da bei der Auswertung jeweils Bilder vor der Bestrahlung von Bildern während der Bestrahlung subtrahiert

werden, kommt es dadurch zu hohem Rauschen, was sich punktuell in Sprüngen der Reflektivitätsänderungen von bis zu 100% auswirkt. Dabei ist zu bemerken, dass das Hintergrundrauschen hier besonders stark auftritt. Trotzdem lassen sich grundlegende Aussagen über das Verhalten des Materials bei Bestrahlung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung treffen.

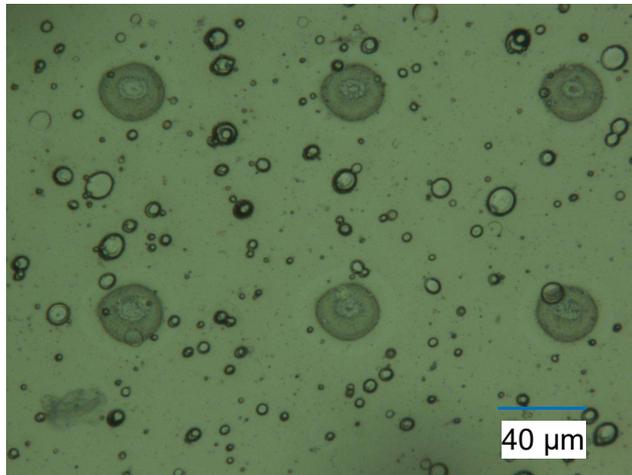


Abbildung 24: Aufnahme der Oberfläche der verwendeten Molybdänprobe mittels Lichtmikroskopie.

Die Zustandsdichteverteilung (siehe Anlagen) der Elektronen für Molybdän zeigt, dass das d-Band bei $T = 0$ K teilweise besetzt ist (vgl. Kapitel 3.2) und somit bei Bestrahlung mit Pump Laserstrahlung weitere Zustände im d-Band besetzt werden. Dafür werden die Photonen absorbiert und die relative Reflektivitätsänderung ist negativ. In Abbildung 25 ist die Abhängigkeit der relativen Reflektivitätsänderung von der Fluenz der Bestrahlung mit Pump Laserstrahlung für die Molybdänprobe zu verschiedenen Zeitpunkten nach der Bestrahlung dargestellt. Durch die Pump Laserstrahlung ist bei $t = 0$ fs kaum eine Änderung im Betrag von $\frac{\Delta R}{R}$ zu erkennen, jedoch ist der bestrahlte Bereich zu erkennen, da das Rauschen in diesem Bereich kleiner wird. Nach $t = 21$ ps ist die Reflektivitätsänderung deutlicher zu erkennen, die im Inneren (rot markiert) eine relative Reflektivitätsänderung von etwa 0 % aufweist. Dieser Bereich mit $\frac{\Delta R}{R} \approx 0$ % ist vermutlich auf Reflexion der Pump Laserstrahlung zurückzuführen, die aufgrund der Verschlusszeit der Kamera von 1 ms detektiert wird. Weiterhin nimmt der Einfluss der Pump Laserstrahlung mit der Zeit ab, sodass bei $t \approx 2$ ns kaum noch Pump Laserstrahlung zu erkennen ist.

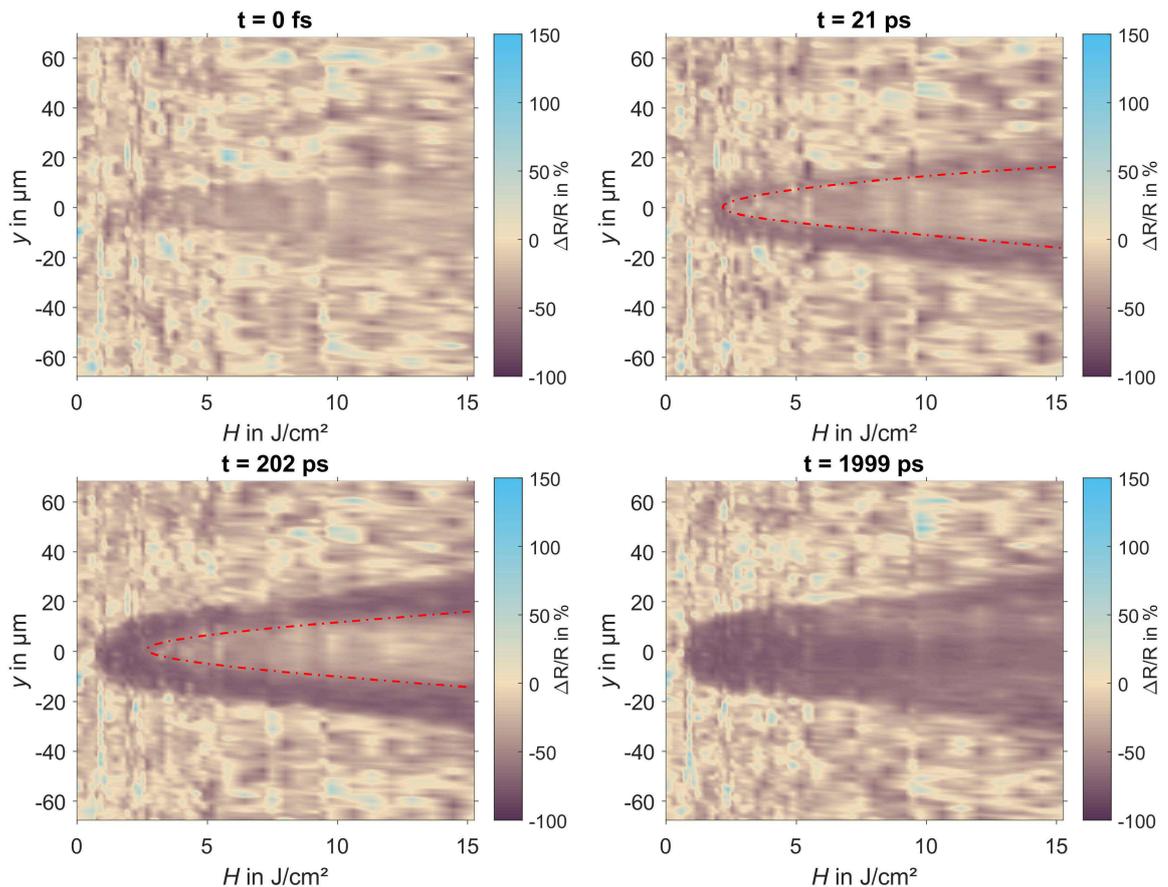


Abbildung 25: Relative Reflektivitätsänderung zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung in Abhängigkeit der Fluenz für Molybdän

Bei der Betrachtung des Verhaltens der relativen Reflektivität über die Zeit nach der Bestrahlung bei verschiedenen Fluenzen (Abbildung 26) wird deutlich, dass der Bereich der negativen Änderungen der Reflektivität mit steigender Fluenz größer wird und zeitlich früher sichtbar wird. Das führt dazu, dass vermeintlich die Änderung der Reflektivität vor dem Eintreffen der Pump-Laserstrahlung stattfindet. Vermutlich wurde bei den Untersuchungen die Verzögerung der Probelaserstrahlung zur Pumplaserstrahlung zu groß gewählt. Weiterhin wird bei hohen Fluenzen die den Filter passierende Pumplaserstrahlung deutlich.

Bei einer Fluenz von $2,5 \text{ J/cm}^2$ ist eine Strukturverbreitung nach 10 ps sichtbar, wobei auffällt, dass die Ausdehnung der Reflexionsänderung nach 10 ps zunimmt, was vermutlich auf das entstehende superkritische Fluid zurückzuführen ist. Bei $14,4 \text{ J/cm}^2$ ist die Vergrößerung der Ausdehnung kaum erkennbar. Dahingegen ist deutlich die Pumplaserstrahlung (rot markiert) zu erkennen, die trotz Filter auf die Kamera trifft und als $20 \mu\text{m}$ breiten Streifen von $-10 \mu\text{m} < y < 10 \mu\text{m}$ zu erkennen ist und eine relative Reflektivitätsänderung von etwa 0% aufweist.

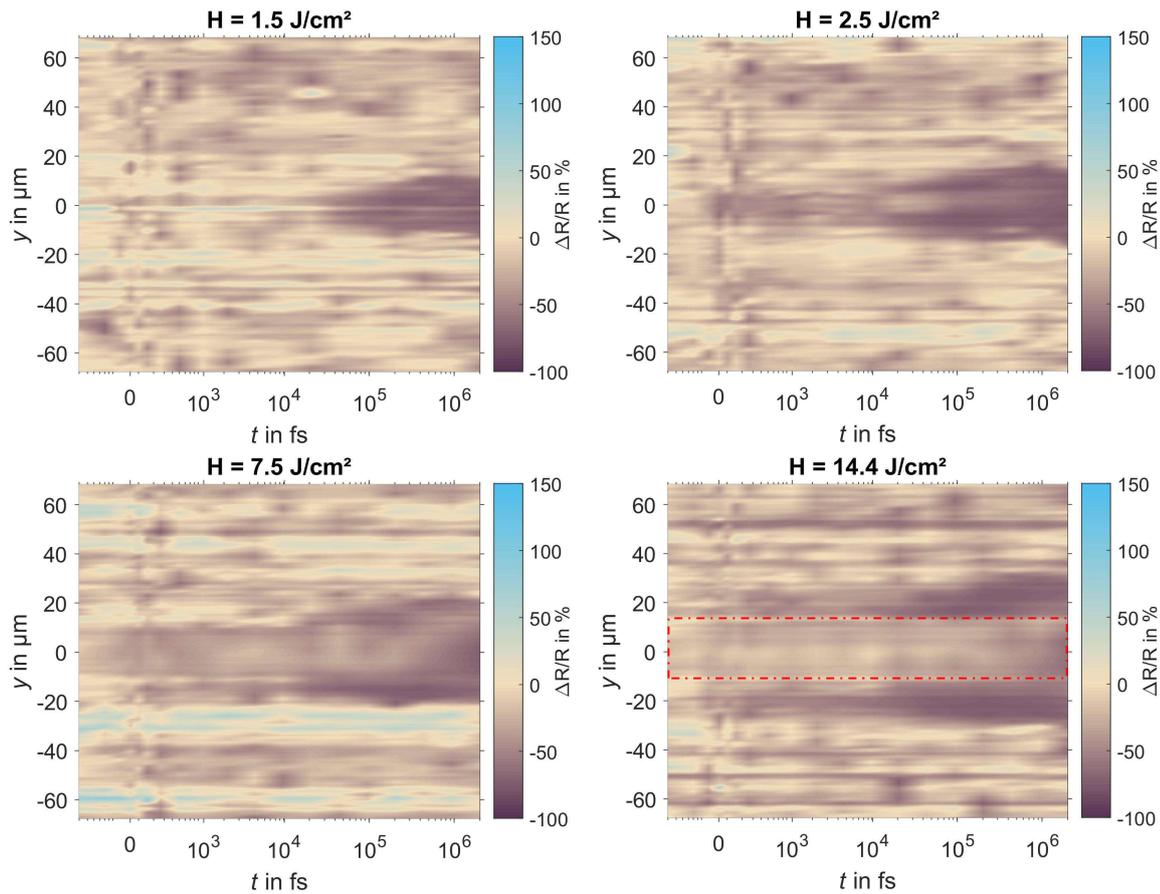


Abbildung 26: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Zeit bei verschiedenen Fluenzen für Molybdän

5.4 Nickel

Die Zustandsdichteverteilung der Elektronen für Nickel (siehe Anlagen) zeigt, dass das d-Band bei $T = 0$ K nahezu vollständig besetzt ist (vgl. Kapitel 3.2). Durch die Bestrahlung mit Pump Laserstrahlung werden weitere Zustände im d-Band besetzt. Die Photonenenergie wird absorbiert, da Intradbandübergänge im d-Band stattfinden, weshalb die relative Reflektivitätsänderung negativ wird.

In Abbildung 27 ist die Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz dargestellt und wird zu verschiedenen Zeiten nach der Bestrahlung einer 1 μm dicken Nickelschicht betrachtet.

Die erste Reflektivitätsänderung wird durch einen Bereich positiver relativer Reflektivitätsänderung im Zentrum gekennzeichnet, und ist von einem Bereich mit $\frac{\Delta R}{R} \approx -20\%$ umgeben. Die positive Reflektivitätsänderung erreicht dabei $\frac{\Delta R}{R} \approx 70\%$. Diese Reflektivitätsänderung tritt bei Fluenzen $H > 5 \text{ J/cm}^2$ auf. Nach 20 ps tritt eine Reflektivitätsänderung auf, die einen größeren Bereich negativer Reflektivität aufweist und schon bei Fluenzen von 2 J/cm^2 zu sehen ist. Der Bereich im Zentrum, der bei $t = 0$ fs eine positive Reflektivitätsänderung aufweist, hat bei $t = 20$ ps eine Reflektivitätsänderung $\frac{\Delta R}{R} \approx 0\%$. Der Bereich mit $\frac{\Delta R}{R} \geq 0\%$ tritt

hier bei Fluenzen größer als 5 J/cm^2 auf und ist vermutlich auf Pumplaserstrahlung zurückzuführen, die trotz Filter auf die Kamera trifft. Dieser Bereich (rot markiert) ist bei $t = 94 \text{ ps}$ deutlich zu erkennen. Nach etwa 2 ns ist dieser Bereich nicht mehr sichtbar, auch der Bereich bei Fluenzen größer 14 J/cm^2 mit $\frac{\Delta R}{R} \approx 100\%$ ist nicht mehr erkennbar.

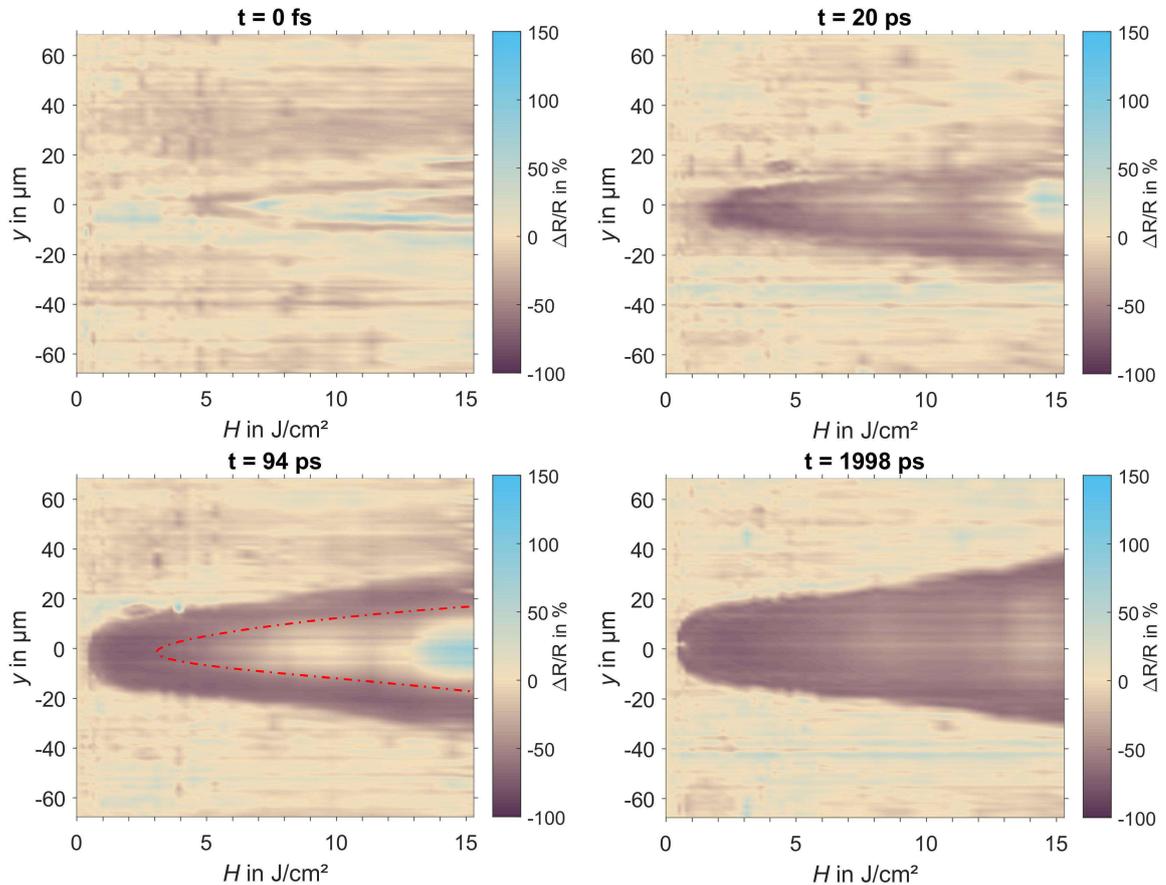


Abbildung 27: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz zu verschiedenen Zeiten für Nickel.

Bei der Betrachtung der relativen Reflektivitätsänderung über der Zeit bei konstanter Fluenz (Abbildung 28) ist bei $H = 0,6 \text{ J/cm}^2$ eine Reflektivitätsänderung nach etwa $t = 100 \text{ ps}$ zu erkennen. Bei geringeren Fluenzen ist dies nicht der Fall. Unter der Annahme, dass Reflektivitätsänderungen erst bei Fluenzen über der Schwellfluenz für Gentle-Abtrag H_G stattfinden, kann vermutet werden, dass Gentle-Abtragsstrukturen nach etwa 100 ps entstehen. Dies wird in Abbildung 27 bei $t = 94 \text{ ps}$ deutlich, da dort im Vergleich zu $t = 20 \text{ ps}$ negative Reflektivitätsänderung schon bei Fluenzen unter $H = 1 \text{ J/cm}^2$ auftreten. In Abbildung 28 wird der zeitliche Beginn der Reflektivitätsänderung ebenfalls deutlich. Bei Fluenzen über $H > 3,7 \text{ J/cm}^2$ wird ein schmaler Bereich (rot markiert) negativer Reflektivitätsänderung bereits bei $t = 1 \text{ ps}$ sichtbar, der anschließend größer wird. Wie bei Gold findet in diesem Zeitraum vermutlich die Bildung eines überkritischen Fluides statt, was sich anschließend in eine Flüssig- und Gasphase trennt, wobei der Abtrag entsteht und der Bereich der relativen Reflektivitätsänderung größer wird. Bei Fluenzen $H > 13,7 \text{ J/cm}^2$ ist das Auftreten der Pumplaserstrahlung, die durch den Filter auf die Kamera trifft, am deutlichsten zu erkennen (rot markiert).

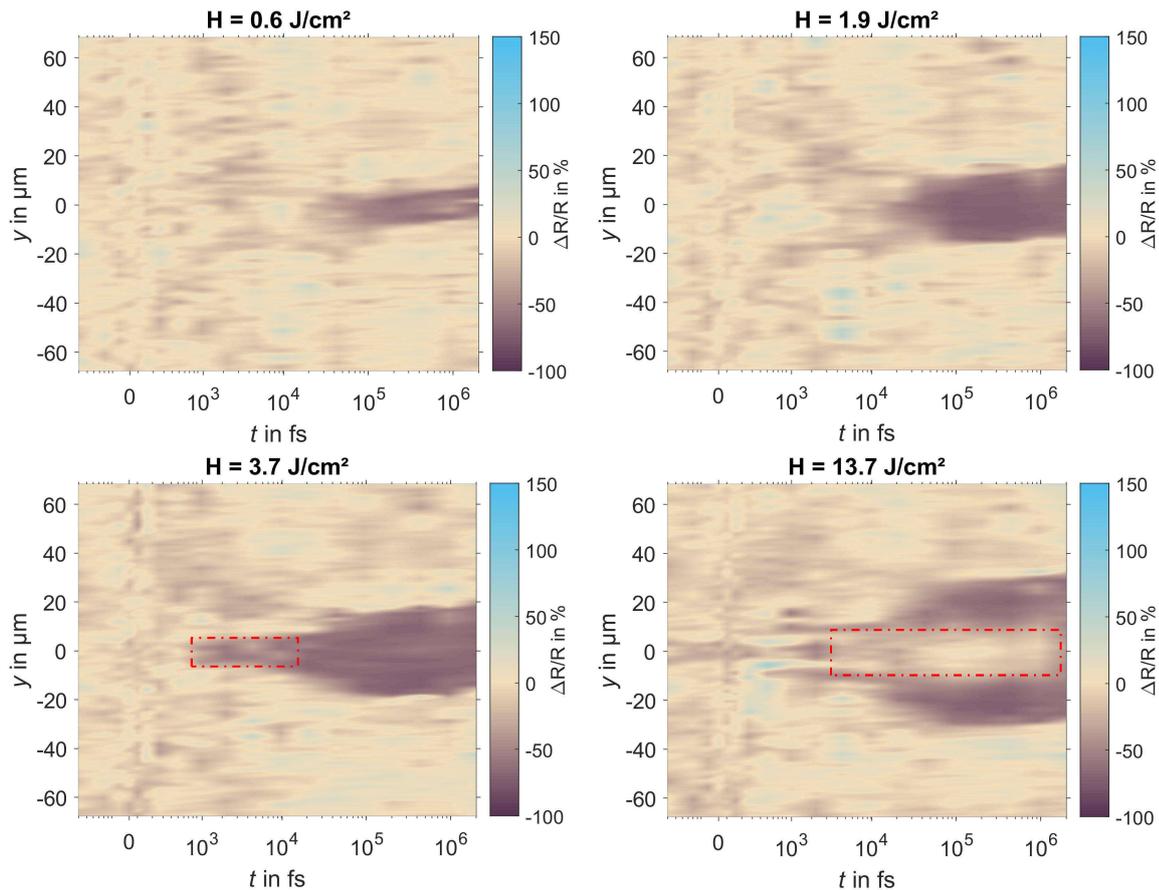


Abbildung 28: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Zeit bei verschiedenen Fluenzen für Nickel

5.5 Platin

Die Zustandsdichte von Platin ist der von Nickel bezüglich der relativen Lage der Fermienergie E_F zum d-Band sehr ähnlich (siehe Anlagen). Daher wird die relative Reflektivitätsänderung ebenfalls negativ (vgl. Kapitel 5.4).

Bei den Untersuchungen einer 1 μm dicken Platinschicht wird die erste Änderung der Reflektivität bei $t = 0$ fs in einem Bereich (rot markiert) von $-30 \mu\text{m} < y < 30 \mu\text{m}$ sichtbar, der bei Fluenzen $H > 1 \text{ J/cm}^2$ auftritt. Dieser ist mit etwa $\frac{\Delta R}{R} = -30 \%$ zu erkennen und ab $H > 5 \text{ J/cm}^2$ ist ein innerer Bereich mit $\frac{\Delta R}{R} = 0 \%$ im Bereich $-10 \mu\text{m} < y < 10 \mu\text{m}$ (Abbildung 29) zu sehen. Der innere Bereich wird mit steigender Fluenz größer. Bei $t = 1$ ps nimmt die Reflektivitätsänderung des breiten Bereiches auf $\frac{\Delta R}{R} = -50 \%$ ab und der innere Bereich weist an seinem Rand eine relative Reflektivitätsänderung von mit $\frac{\Delta R}{R} = -80 \%$ auf. Auf die Herkunft und Ursache des inneren Bereiches wird später eingegangen. Der breite Bereich ist nach 94 ps nicht mehr zu erkennen, der innere Bereich hat nun eine negative Reflektivitätsänderung, welche vermutlich, wie bei Gold, durch den Materialabtrag hervorgerufen wird. Nach etwa 2 ns sind in dem Bereich mit negativer Reflektivitätsänderung am

Rand schmale Bereiche mit $\frac{\Delta R}{R} = 0\%$ zu erkennen. Diese stellen, ähnlich wie bei Gold, eine Materialschicht dar, die sich von der Oberfläche abhebt.

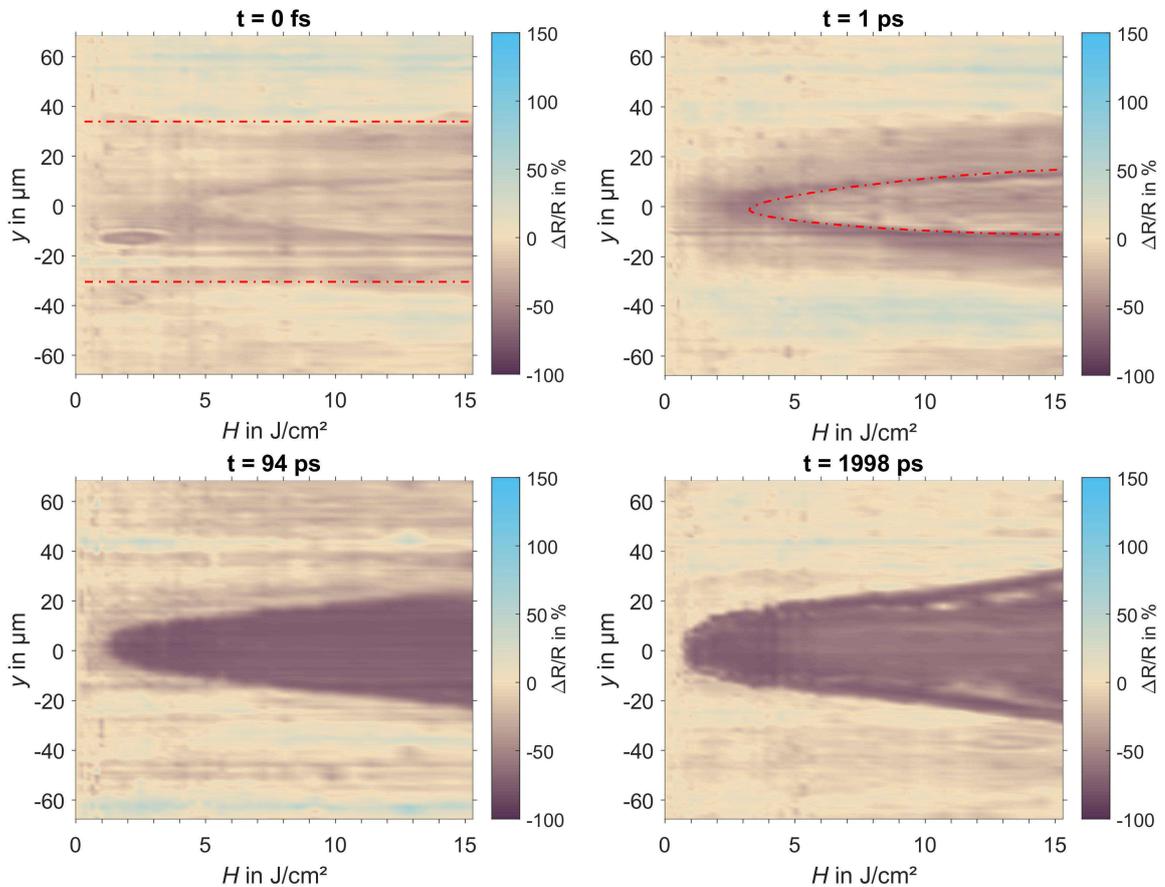


Abbildung 29: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Fluenz zu verschiedenen Zeiten für Platin

In Abbildung 30 ist bei $H = 0,6 \text{ J/cm}^2$ die erste negative Reflektivitätsänderung in einem Bereich von $-20 \mu\text{m} < y < 20 \mu\text{m}$ zu erkennen, der nach etwa 100 ps wieder kleiner wird, was durch das Abkühlen des Materials zu erklären ist. Bei einer Fluenz von $H = 3,4 \text{ J/cm}^2$ ist im Bereich um $y = 0 \mu\text{m}$ (rot markiert) erst eine relative Reflektivitätsänderung von $\frac{\Delta R}{R} = -30\%$ zu erkennen, die $\frac{\Delta R}{R} = 0\%$ nach 10 ps erreicht und nach etwa 40 ps eine Reflektivitätsänderung von $\frac{\Delta R}{R} = -100\%$ aufweist. Bei höheren Fluenzen ist im Bereich $-10 \mu\text{m} < y < 10 \mu\text{m}$ bis etwa 10 ps ein Bereich mit $\frac{\Delta R}{R} = 0\%$ zu erkennen, der schon in Abbildung 29 aufgefallen ist (rot markiert). In Abbildung 31 sind Aufnahmen der Bestrahlung der Platinschicht mit $H = 15 \text{ J/cm}^2$ zu verschiedenen Zeitpunkten zu sehen, die diesen Bereich zeigen. Bei $t = 0 \text{ ps}$ wird eine ringförmige Struktur oder Reflexion innerhalb des dunklen Bereichs gezeigt, die in Abbildung 29 bei $t = 0 \text{ fs}$ und $t = 1 \text{ ps}$ zu $\frac{\Delta R}{R} = 0\%$ im inneren des breiten Bereichs negativer Reflektivitätsänderung führt. Diese Struktur oder Reflexion ist 44 ps nach der Bestrahlung nur noch vage und nach 94 ps nicht mehr zu erkennen. Der Ursprung der Struktur oder Reflexion ist ungeklärt.

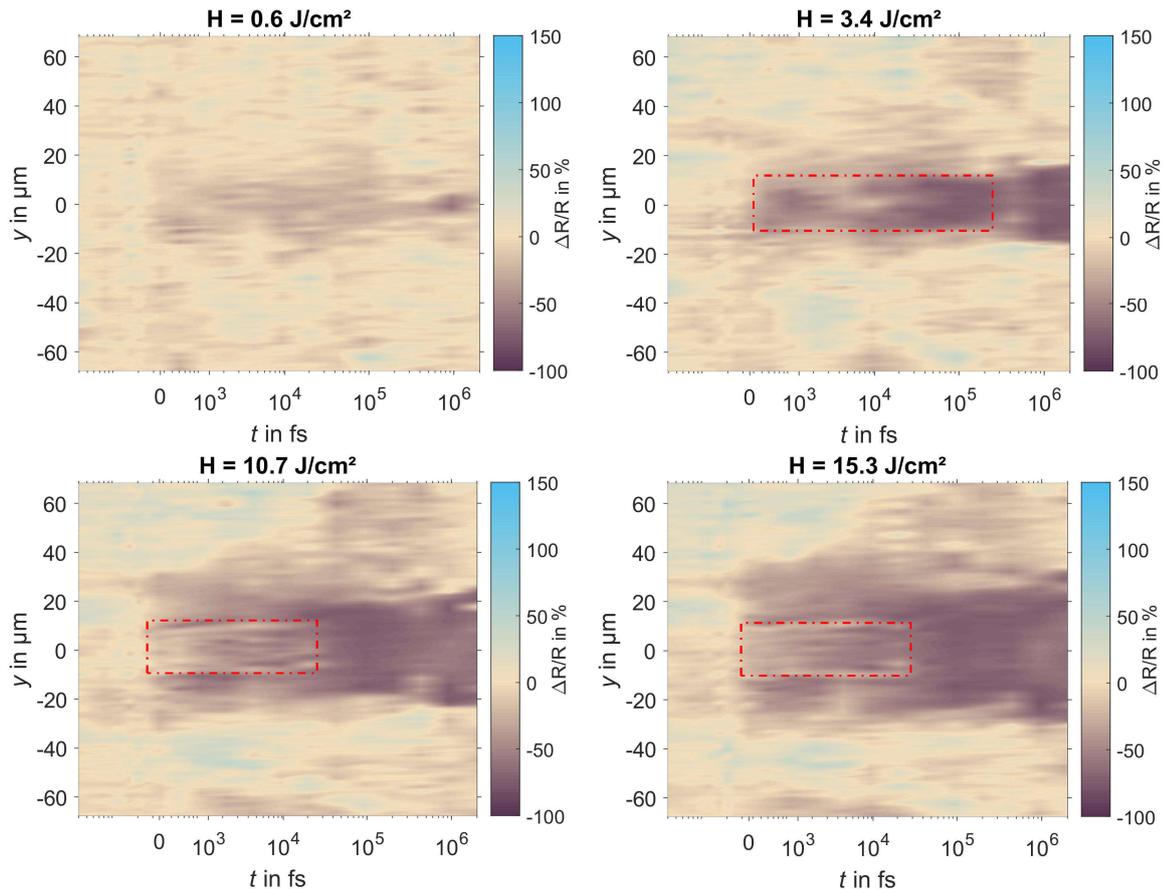


Abbildung 30: Relative Reflektivitätsänderung in Abhängigkeit der Zeit bei verschiedenen Fluenzen für Platin.

Bemerkenswert hierbei ist, dass kein schmaler Bereich negativer Reflektivitätsänderung gemessen wird, der mit der Zeit größer wird, wie das bei anderen Metallen der Fall ist.

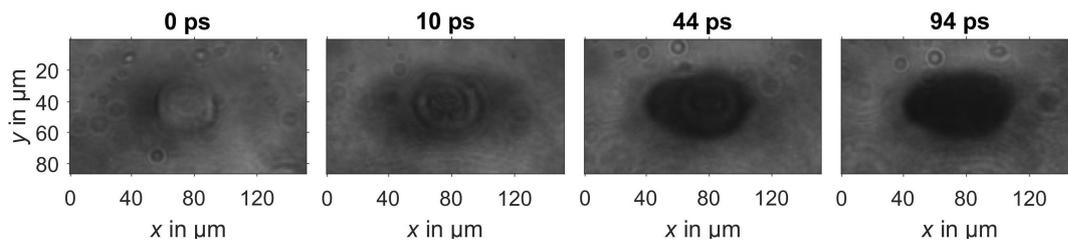


Abbildung 31: Erhaltene gemittelte Bilder bei der Bestrahlung von Platin mit einer Fluenz der Pumplaserstrahlung von $H = 15 \text{ J/cm}^2$ zu verschiedenen Zeiten t nach der Bestrahlung

5.6 Vergleich der Metalle

Die betrachteten Metalle weisen unterschiedliche thermophysikalische Eigenschaften und Elektronenzustandsdichten auf [2]. Trotzdem ist das zeitliche Verhalten der Metalle ähnlich, wenn sie mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung bestrahlt werden. In Abbildung 32 sind die relativen Reflektivitätsänderung aller untersuchten Metalle bei einer Fluenz von etwa

5,4 J/cm² dargestellt. Aluminium, Gold, Molybdän und Nickel weisen eine deutliche Verbreiterung des Bereiches negativer Reflektivitätsänderung nach etwa 20 ps auf, was bei diesen Metallen auf die Bildung des überkritischen Fluides (vgl. Kapitel 3.3) zurückzuführen ist. Das zu dieser Zeit vollzieht sich eine Trennung in Flüssig- und Gasphase, da sich das Material ausbreitet und der Druck und die Temperatur im Material sinkt [18]. Bei Platin tritt ein anderer Effekt im gleichen Zeitintervall auf, der zu einem Bereich mit $\frac{\Delta R}{R} = 0\%$ führt, und von einem Bereich negativer Reflektivitätsänderung umgeben ist. Die Ursache gilt es zu untersuchen.

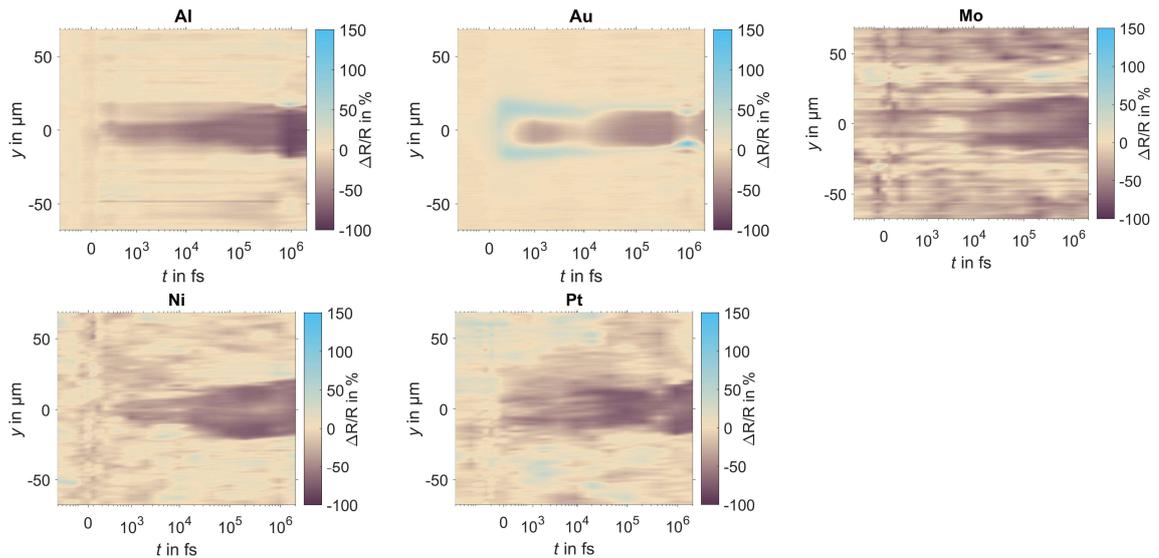


Abbildung 32: Vergleich des zeitlichen Verhaltens der betrachteten Metalle bei $H = 5,4 \text{ J/cm}^2$

Eine weitere Gemeinsamkeit für alle betrachteten Metalle ist das Heraustreten von Materialschichten [16]. Diese sind in Abbildung 33 als Bereiche mit $\frac{\Delta R}{R} \geq 0\%$ am Rand der Bereiche negativer Reflektivitätsänderung erkennbar. In Aluminium tritt dies nach etwa 2 ns auf,

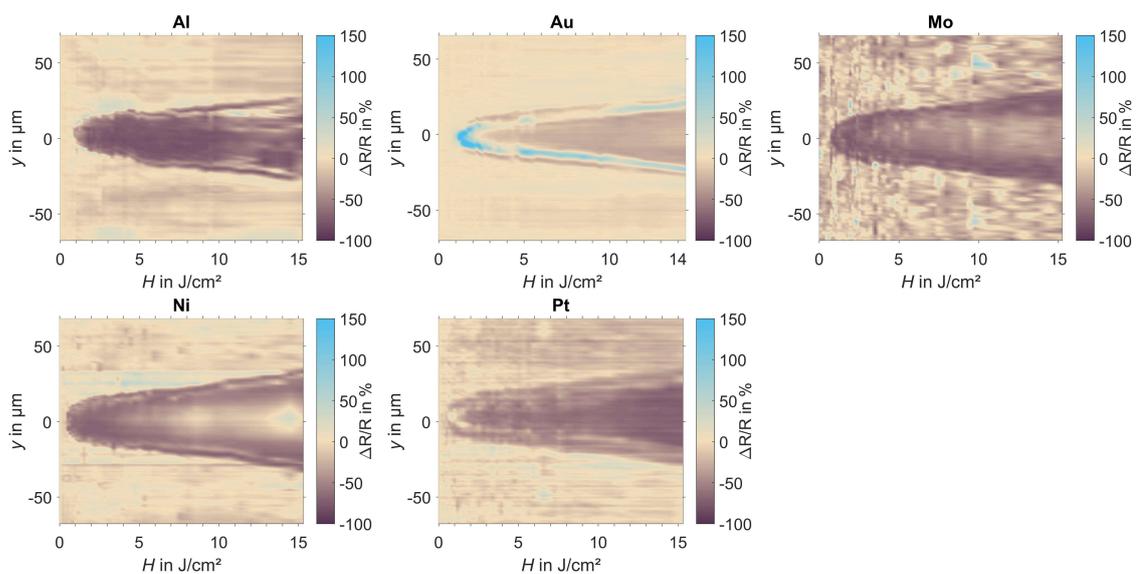


Abbildung 33: Reflektivitätsänderung durch herausgeschleudertes Material, das durch das Entstehen von Gentle-Abtrag hervorgerufen wird

bei Gold und Nickel nach etwa 930 ps und bei Molybdän und Platin noch früher, nach rund 400 ps. Der Grund für das vergleichsweise frühe Ablösen der Materialschicht bei Molybdän könnte auf die starke Kopplung des Elektronensystems mit dem Photonensystem zurückzuführen sein, wodurch die absorbierte Energie der Elektronen schnell an die Phononen weitergegeben wird. Bei Gold wird die ablatierte Schicht besonders deutlich, da sie besonders hell erscheint. Bei Molybdän ist diese Schicht am wenigsten deutlich zu erkennen, da durch die raue Oberfläche kaum ein Unterschied zur nicht bestrahlten Oberfläche erkennbar ist.

Bei den Metallen Aluminium, Molybdän und Nickel ist bei hohen Fluenzen ein heller Bereich im Zentrum der Abtragsstruktur aufgetreten, was als Pump Laserstrahlung identifiziert wurde, die wegen ihrer hohen Intensität nicht vollständig vom Filter gefiltert werden kann. Die Pump Laserstrahlung gelangt durch Streuung von der bestrahlten Oberfläche zum Filter. Raue Oberflächen streuen einen größeren Teil der einfallenden Pump Laserstrahlung als glatte Oberflächen. Für Molybdän wurde gezeigt (Kapitel 5.3), dass die Oberfläche rau ist, weshalb die Pump Laserstrahlung an der Oberfläche stark gestreut wird. Bei Gold wird keine Streustrahlung gemessen, da diese Probe ein Goldspiegel der Firma Thorlabs ist und dementsprechend eine besonders glatte Oberfläche aufweist, und dadurch weniger Pump Laserstrahlung gestreut wird. Die Rauheiten der Proben wurden nicht untersucht, jedoch ist anzunehmen, dass die Oberflächen der Proben von Aluminium, Molybdän und Nickel größere Rauheiten aufweisen als die Oberflächen von Gold und Platin.

Alle verwendeten Metalle weisen einen Reflexionsgrad $R > 86\%$ auf (Tabelle 2). Sowohl Metalle bei denen Streustrahlung gemessen wurde als auch Metalle, bei denen keine Streustrahlung gemessen wurde, haben einen Reflexionsgrad $R > 95\%$. Deshalb ist eine Abhängigkeit des Auftretens der Streustrahlung von dem Reflexionsgrad des Metalls auszuschließen.

Tabelle 2: Reflexionsgrade der verwendeten Metalle für die Wellenlänge $\lambda = 800\text{ nm}$

Metall	R in %	Streustrahlung gemessen?	Quelle
Aluminium	0,8603	Ja	[19]
Gold	0,9512	Nein	[20]
Molybdän	0,9525	Ja	[20]
Nickel	0,8967	Ja	[20]
Platin	0,9660	Nein	[20]

6 Zusammenfassung und Ausblick

Die reflektometrischen Untersuchungen von Aluminium, Gold, Molybdän, Nickel und Platin wurden bei einer Pulsdauer der verwendeten Laserstrahlung von $\tau_{\text{pump}} = 35$ fs und $\tau_{\text{probe}} = 60$ fs durchgeführt. Dabei wurden die Metalle mit energiereicher Pump Laserstrahlung senkrecht zur Oberfläche bestrahlt und angeregt. Die Prob Laserstrahlung traf in einem Winkel von $\theta = 60^\circ$ auf die Oberfläche und die Reflexion wurde als Bild aufgenommen. Dafür wurden die Wellenlängen der Laserstrahlung $\lambda_{\text{pump}} = 800$ nm und $\lambda_{\text{probe}} = 400$ nm verwendet. Dabei wurde auf einer logarithmischen Zeitskala von $t = 0$ fs bis $t = 2$ ns äquidistante Zeitabstände der Verzögerung der Pump Laserstrahlung zur Prob Laserstrahlung gewählt. Die Fluenz der Pulse der Pump Laserstrahlung wurde in 40 Fluenzstufen von $H = 0$ J/cm² auf $H = 15$ J/cm² erhöht. Für jede Zeit und Fluenz wurden drei Bilder aufgenommen und die Helligkeitswerte gemittelt. Die Änderung des Reflexionsverhaltens der Oberfläche zu späteren Zeitpunkten wurde auf ein Bild vor dem Eintreffen der Pump Laserstrahlung normiert, sodass eine relative Reflektivitätsänderung $\frac{\Delta R}{R}$ zu jedem Zeitpunkt ermittelt wurde. Die relative Reflektivitätsänderung wurde in Falschfarbendarstellung dargestellt. Aus jedem dieser Darstellungen wurde ein Querschnitt betrachtet und in Abhängigkeit der Fluenz und Verzögerung untersucht. Die Werte zwischen den Fluenz- und Verzögerungsstufen wurden interpoliert. Die kleinste zeitliche Auflösung betrug 40 fs und die örtliche Auflösung 0,9 μm .

Aufgrund der Elektronenzustandsdichteverteilungen der einzelnen Metalle zeigen alle untersuchten Metalle außer Gold negative Reflektivitätsänderung. Da bei Gold ein Interbandübergang aus dem d-band in das s-/p-Band stattfindet und die Wellenlänge der Prob Laserstrahlung geeignet gewählt wurde, kann der Interbandübergang als positive Reflektivitätsänderung detektiert werden.

Die Ergebnisse zeigen für alle Metalle bei Fluenzen oberhalb der Abtragschwelle für Strong-Abtrag H_S ein ähnliches Verhalten. Die bis $t = 1$ ps nach der Bestrahlung auftretende negative Reflektivitätsänderung geht in eine Reflektivitätsänderung von $\frac{\Delta R}{R} = 0$ % über. Nach etwa 20 ps ist die Reflektivitätsänderung wieder negativ. Das ist auf den Beginn der Entstehung von Abtragsstrukturen zurückzuführen, wobei ein überkritisches Fluid entsteht, woraufhin eine Trennung von Gas und Flüssigkeit stattfindet (siehe Kapitel 3.3) [18]. Eine Ausnahme bildet hierbei Platin, da bis $t = 40$ ps eine Reflexion oder Struktur am Ort der Bestrahlung auftritt, deren Ursache ungeklärt ist. Weiterhin sind bei den verwendeten Metallen Schichten zu sehen, die sich von der Oberfläche abheben bzw. aus dem Material aufgrund von thermischen Spannungen im Material herausgeschleudert werden [16]. Diese Metallschichten werden bei den verwendeten Metallen zu verschiedenen Zeiten im Zeitintervall 434 ps $< t < 2$ ns gemessen.

Bei der Betrachtung der Fluenzabhängigkeit der Reflektivitätsänderung ist festzustellen, dass Fluenzen deutlich über der Abtragsschwelle für Strong-Abtrag H_S lediglich zu einer Verbreiterung des Bereichs negativer Reflektivitätsänderung führen. Außerdem führen hohe Fluenzen bei rauen Oberflächen zu starker Streuung der Pumplaserstrahlung, die von dem Filter vor der Kamera nicht mehr gefiltert werden kann.

Für weitere Untersuchungen ist das Fluenzintervall von $0 \text{ J/cm}^2 < H < 7,5 \text{ J/cm}^2$ von Interesse, da bei größeren Fluenzen keine weiteren Effekte auftreten und Streuung der Pumplaserstrahlung die Messungen stören. Um den Einfluss von Streuung weiter zu minimieren, kann ein Shutter dem Aufbau hinzugefügt werden, sodass ein Bild der Oberfläche ohne Bestrahlung mit Pumplaserstrahlung und ein Bild mit der Bestrahlung erstellt wird. Die Differenz der beiden Bilder stellt die Reflektivitätsänderung örtlich exakt dar, wodurch Relativmessungen der Reflektivität genauer werden.

Um die Dynamik des überkritischen Fluids besser beschreiben und verstehen zu können, sind weitere Untersuchungen mit einer höheren zeitlichen Auflösung im Intervall $0 \text{ fs} < t < 20 \text{ ps}$ notwendig. Auch die herausgeschleuderten Metallschichten gilt es weiter zu analysieren. Dazu wird ebenfalls eine höhere zeitliche Auflösung sowie eine Änderung des Einfallwinkels der Probelaserstrahlung empfohlen.

7 Literaturverzeichnis

1. S.-S. Wellershoff, *Untersuchung zur Energierelaxationsdynamik in Metallen nach Anregung mit ultrakurzen Laserpulsen*. Dissertation (Freie Universität Berlin, 2000)
2. M. Olbrich, E. Punzel, P. Lickschat, S. Weißmantel, A. Horn, *Physics Procedia* **83**, 93 (2016)
3. R. Gross, A. Marx, *Festkörperphysik* (Oldenbourg, München, 2012)
4. S. Hunklinger, *Festkörperphysik* (Oldenbourg, München, 2009)
5. Z. Lin, L.V. Zhigilei, V. Celli, *Phys. Rev. B* **77**, 776 (2008)
6. C. Kittel, *Einführung in die Festkörperphysik* (Oldenbourg, München, 2006)
7. H.-J. Bargel, G. Schulze, H. Hilbrans (eds), *Werkstoffkunde* (Springer-Verlag, Berlin, Heidelberg, 2008)
8. P.E. Hopkins, J.C. Duda, R.N. Salaway, J.L. Smoyer, P.M. Norris, *Nanoscale and Microscale Thermophysical Engineering* **12**, 320 (2008)
9. Penn State University, *Inorganic Chemistry (Wikibook)*, https://en.wikibooks.org/wiki/Introduction_to_Inorganic_Chemistry (2017)
10. M. Frank, *Untersuchung der Ablationsdynamik dünner Metallschichten durch ultrakurz gepulste Laserstrahlung*. Masterarbeit (Hochschule Mittweida, 2017)
11. J. Cheng, C.-s. Liu, S. Shang, D. Liu, W. Perrie, G. Dearden, K. Watkins, *Optics & Laser Technology* **46**, 88 (2013)
12. M.E. Povarnitsyn, T.E. Itina, M. Sentis, K.V. Khishchenko, P.R. Levashov, *Phys. Rev. B* **75**, S95 (2007)
13. I. Mingareev, *Ultrafast dynamics of melting and ablation at large laser intensities*. Dissertation (RWTH Aachen, 2009)
14. C. Cheng, X. Xu, *Phys. Rev. B* **72** (2005)
15. Theo Pflug, *Untersuchungen zur ultraschnellen Ellipsometrie von Laserprozessen*. Masterarbeit (Hochschule Mittweida, 2017)

16. K.J. Schrider, B. Torralva, S.M. Yalisove, *Appl. Phys. Lett.* **107**, 124101 (2015)
17. J.M. Liu, *Opt. Lett.* **7**, 196 (1982)
18. S. Rapp, J. Winter, H.P. Huber, M. Schmidt, in *Pump-probe reflectometric and ellipsometric investigation of femtosecond laser pulse induced ablation in molybdenum*, ed. by A. Heisterkamp, P.R. Herman, M. Meunier, R. Osellame (SPIE, 2017), p. 1009419
19. K.M. McPeak, S.V. Jayanti, S.J.P. Kress, S. Meyer, S. Iotti, A. Rossinelli, D.J. Norris, *ACS photonics* **2**, 326 (2015)
20. W.S.M. Werner, K. Glantschnig, C. Ambrosch-Draxl, *Journal of Physical and Chemical Reference Data* **38**, 1013 (2009)

Anlagen

Zustandsdichteverteilungen der verwendeten Metalle:

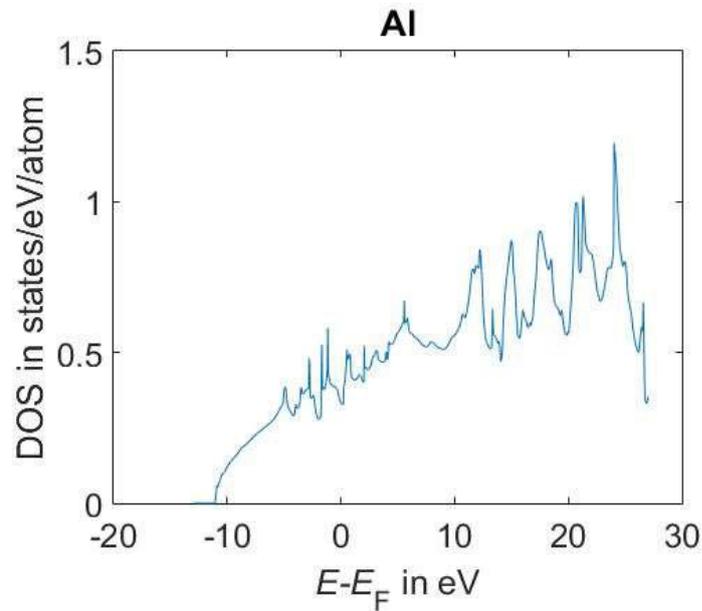


Abbildung 34: Zustandsdichteverteilung in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Aluminium [5]

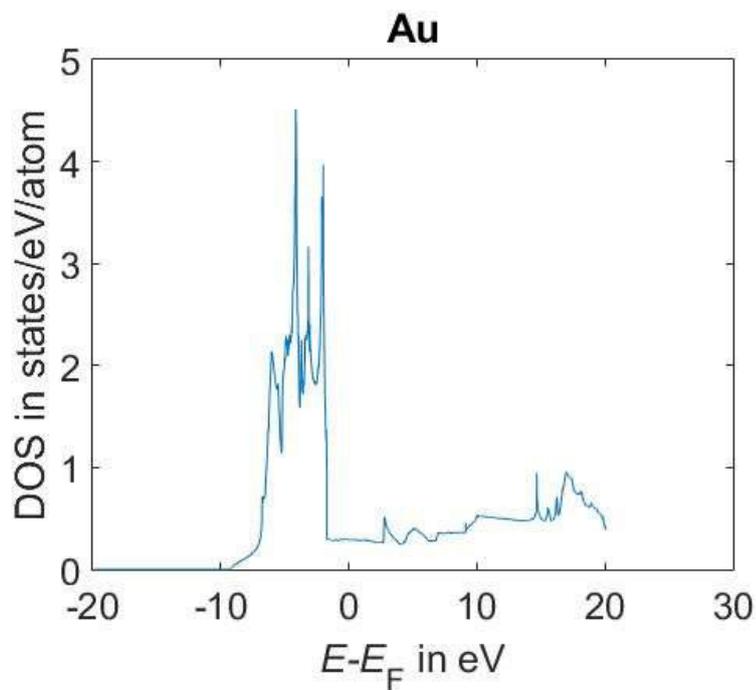


Abbildung 35: Zustandsdichteverteilung in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Gold [5]

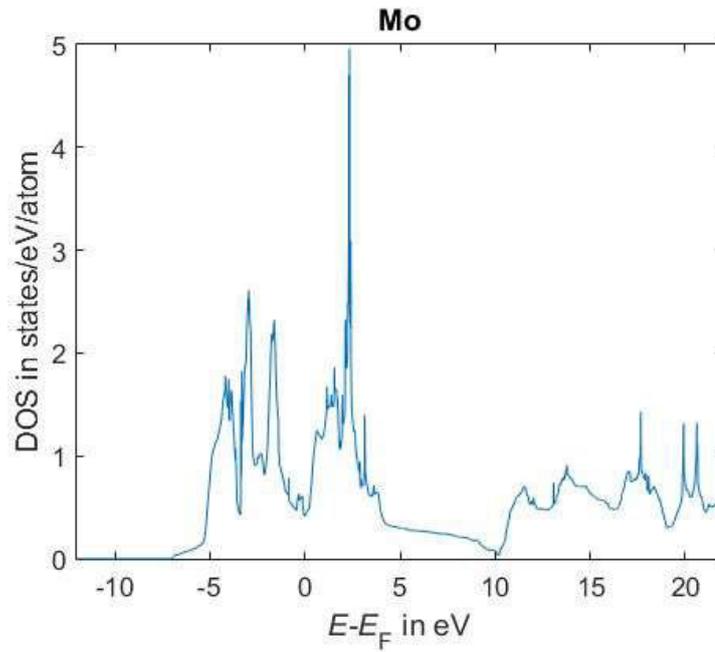


Abbildung 36: Zustandsdichteverteilung in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Molybdän [5]

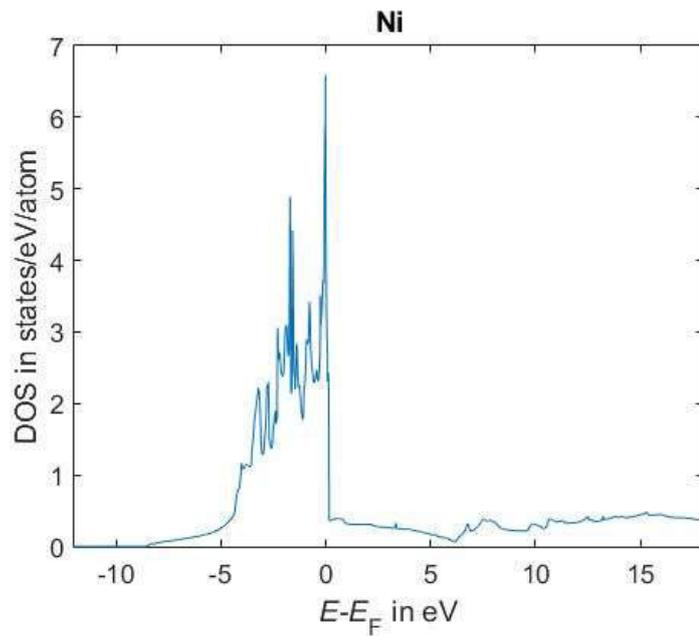


Abbildung 37: Zustandsdichteverteilung nach [5] in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Nickel[5]

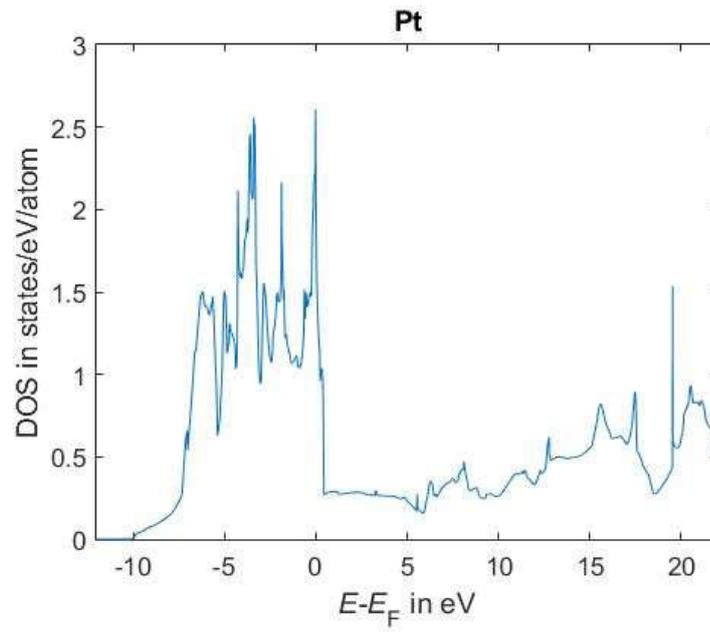


Abbildung 38: Zustandsdichteverteilung in Abhängigkeit der Energie E reduziert um die Fermienergie E_F für Platin [5]

Selbstständigkeitserklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die vorliegende Arbeit selbstständig und nur unter Verwendung der angegebenen Literatur und Hilfsmittel angefertigt habe.

Stellen, die wörtlich oder sinngemäß aus Quellen entnommen wurden, sind als solche kenntlich gemacht.

Diese Arbeit wurde in gleicher oder ähnlicher Form noch keiner anderen Prüfungsbehörde vorgelegt.

Mittweida, den 09.01.2018

Conrad Heiland