



MASTERARBEIT

Herr
Max Ernstberger, B. Sc.

**Untersuchungen zur Laserablation
von Edelstahl in Abhängigkeit
vom Doppelpuls-Zeitdelay**

2023

MASTERARBEIT

Untersuchungen zur Laserablation von Edelstahl in Abhängigkeit vom Doppelpuls-Zeitdelay

Autor:

Max Ernstberger, B. Sc.

Studiengang:

Lasertechnik/Physikalische Technik

Seminargruppe:

LT20w1-M

Erstprüfer:

Prof. Dr. rer. nat. habil. Alexander Horn

Zweitprüfer:

Dr. rer. nat. Theo Pflug

Mittweida, Februar 2023

Bibliografische Angaben

Ernstberger, Max: Untersuchungen zur Laserablation von Edelstahl in Abhängigkeit vom Doppelpuls-Zeitdelay, 81 Seiten, 55 Abbildungen, Hochschule Mittweida, University of Applied Sciences, Fakultät Ingenieurwissenschaften

Masterarbeit, 2023

Referat

In dieser Arbeit wird der Einfluss des Doppelpuls-Zeitdelays ultrakurz gepulster Laserstrahlung auf die Ablation von dünnen Edelstahlschichten mithilfe von fluenzabhängigen Abtragsuntersuchungen evaluiert. Anhand der Messergebnisse konnten Abhängigkeiten in Bezug auf den Abtragsdurchmesser, die Abtragstiefe und die Schwellfluenz ermittelt werden, weshalb mittels orts- und zeitaufgelöster, vorder- und rückseitiger Pump-Probe Reflektometriemessungen anschließend die Ursachen für diese Abhängigkeiten grundlegend untersucht und die Ergebnisse diskutiert werden. Zur weiteren Auswertung und Diskussion der Messergebnisse dient der simulierte orts- und zeitaufgelöste Verlauf der Elektronen- und Phononentemperatur entlang der Schichtdicke.

I. Inhaltsverzeichnis

Inhaltsverzeichnis	I
Abbildungsverzeichnis	II
Tabellenverzeichnis	III
Abkürzungsverzeichnis	IV
1 Einleitung	1
2 Stand der Technik	3
3 Theoretische Grundlagen	5
3.1 Ultrakurz gepulste Laserstrahlung	5
3.2 Wechselwirkung ultrakurz gepulster Laserstrahlung mit Metallen	6
3.2.1 Zwei-Temperatur-Modell	6
3.2.2 Ablationsmechanismen	12
3.2.2.1 Spallation	12
3.2.2.2 Phasenexplosion	14
4 Material und Methoden	15
4.1 Experimenteller Aufbau	15
4.1.1 Pump-Probe Messaufbau	17
4.1.2 Doppelpulserzeugung	18
4.1.3 Vorder- und rückseitige orts aufgelöste Pump-Probe Reflektometrie	19
4.1.4 Beschreibung der Pump-Probe-Reflektometriemessung	23
4.2 Probencharakterisierung	27
4.2.1 Thermophysikalische Parameter	27
4.2.2 Optische Eigenschaften	28
4.3 Beschreibung der Messparameter	30
4.4 Fehlerbetrachtung	32
5 Experimentelle Ergebnisse und Diskussion	39
5.1 Fluenzabhängige Abtragsuntersuchungen	39
5.1.1 Einzelpulse	39
5.1.2 Doppelpulse	41
5.2 Vorder- und rückseitige Pump-Probe Reflektometrie	47
5.2.1 Einzelpulse	47
5.2.2 Doppelpulse	59
6 Zusammenfassung	71
7 Ausblick	72
Literaturverzeichnis	77

II. Abbildungsverzeichnis

1.1	Vergleich zweier Mikrobohrungen in Edelstahl	1
2.1	Rasterelektronen-Mikroskopieaufnahmen verschiedener Abtragsstrukturen, welche infolge von Einzel- und Doppelpulsbestrahlung in Abhängigkeit von der Pulsenergie und des Doppelpuls-Zeitdelays entstanden sind	4
3.1	Zeitliche und räumliche Intensitätsverteilung eines idealen ultrakurzen Laserpulses	6
3.2	Zustandsdichte und Energiebandmodell von Edelstahl	10
3.3	Idealisierte tiefen- und zeitaufgelöste Änderung der Elektronentemperatur bei Bestrahlung einer dünnen Edelstahlschicht mit einem Pumpstrahlungseinzelpuls . . .	11
3.4	Schematische Darstellung der Spallation an einer dünnen Schicht	13
3.5	Schematische Darstellung der Spallation und Phasenexplosion an einer dünnen Schicht	14
4.1	Experimenteller Versuchsaufbau im Labor	15
4.2	Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus für die Messung der relativen Reflexionsgradänderung	16
4.3	Schematischer Aufbau der Doppelpulsverzögerungsstrecke	18
4.4	Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur vorderseitigen Pump-Probe Reflektometrie	20
4.5	Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur rückseitigen Pump-Probe Reflektometrie	21
4.6	Darstellung des Pump-Probe Mikroskops	22
4.7	Bildaufnahmen der Probenoberfläche	23
4.8	Bestimmung der zeitlichen Referenz t_0 an Silizium	24
4.9	Darstellung des zeitlichen Offsets zwischen den Pumpstrahlungseinzelpulsen sowie von t_0 bei vorder- und rückseitiger PPR	25
4.10	Beispiel für die schrittweise Erstellung der orts- und zeitaufgelösten relativen Reflexionsgradänderung infolge der PPR-Messung	26
4.11	Temperaturabhängige thermophysikalische Parameter von Edelstahl (EN 1.4301) .	27
4.12	Temperaturabhängige optische Parameter von Edelstahl	28

4.13	Wellenlängenabhängige optische Parameter der Edelstahlschicht	29
4.14	Schematische Darstellung der bestrahlten Probe	31
4.15	Vergleich der Pulsenergieschwankungen der Pumpstrahlungseinzel- und -doppelpulse	34
4.16	Darstellung des Einflusses der Probenkontamination und Schichthafffestigkeit anhand beispielhafter Abtragsstrukturen	35
4.17	Darstellung des Einflusses der Verkippung der Probenoberfläche auf die räumliche Überlagerung der Pumpstrahlungsteilpulse bei einer PPR-Messung	36
4.18	Schematische Darstellung zur Berechnung des Signaloffsets und des Rauschens bei den PPR-Messungen anhand Teilaufbau A und Teilaufbau B	37
4.19	Signal-Rausch-Verhältnis der PPR-Messung in Abhängigkeit von der Elektronentemperatur	38
5.1	Vergleich der Strahlparameter, Schwellenergie und -fluenz der beiden Teilpulse, jeweils für die verschiedenen Pumpstrahlengänge, und deren zugehörigen Liu Plots .	40
5.2	Darstellung der fluenzabhängigen Abtragsstrukturen mit den zugehörigen Höhenprofilen entlang y bei $x = 0$ für verschiedene Spitzenfluenzen H_0 und Doppelpuls-Zeitdelays $t_{\text{delay}} \approx 133$ fs sowie $t_{\text{delay}} = (200, 400)$ ps	41
5.3	Darstellung der fluenzabhängigen Abtragsstrukturen mit den zugehörigen Höhenprofilen entlang y bei $x = 0$ für verschiedene Spitzenfluenzen H_0 und Doppelpuls-Zeitdelays $t_{\text{delay}} = (800, 1200, 2000, 3000, 6250)$ ps sowie $t_{\text{delay}} = 1$ s	42
5.4	Liu Plot an einer dünnen Edelstahlschicht bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays	43
5.5	Darstellung des Wirkradius sowie der Schwellfluenz bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays	44
5.6	Darstellung der Abtragstiefe in Abhängigkeit vom Doppelpuls-Zeitdelays bei ausgewählten Spitzenfluenzen	45
5.7	Simulation der orts- und zeitaufgelösten Änderung der Phononentemperatur bei verschiedenen wirksamen Spitzenfluenzen	45
5.8	Darstellung ausgewählter fluenzabhängiger Abtragsstrukturen bei $t_{\text{delay}} \approx 133$ fs . .	46
5.9	Vergleich der Abtragsstrukturen der jeweiligen Teilpulse bei $H_0 = 1.5 \cdot H_{\text{thr}}$	47
5.10	Vergleich der Abtragsstrukturen der jeweiligen Teilpulse bei $H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}}$	48
5.11	Vergleich der PPR-Messungen der jeweiligen Teilpulse bei zwei verschiedenen wirksamen Spitzenfluenzen	49

5.12 Vergleich der sich ausbildenden Newton-Ringe anhand der PPR-Messungen der jeweiligen Teilpulse	50
5.13 Darstellung der bei der rückseitigen PPR-Messung entstandenen Abtragsstruktur sowie von $\Delta R/R(y,t)$ des unverzögerten Teilpulses infolge der rückseitigen Probebestrahlung bei $H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}}$	51
5.14 Darstellung des simulierten zeitlichen Elektronen- und Phononentemperaturverlaufs an der Schichtvorder- und -rückseite infolge der Einzelpulsbestrahlung bei verschiedenen wirksamen Spitzenfluenzen	52
5.15 Theoretischer Verlauf der wirksamen Fluenz $H(y)$ für verschiedene wirksame Spitzenfluenzen H_0 in Abhängigkeit von der y -Koordinate	53
5.16 Darstellung der bei der rückseitigen PPR-Messung entstandenen Abtragsstruktur sowie von $\Delta R/R$ des unverzögerten Teilpulses infolge der rückseitigen Probebestrahlung bei $H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}}$	54
5.17 Vergleich der vorderseitigen PPR-Messung bei $3 \cdot H_{\text{thr}}$ des unverzögerten Teilpulses mit der theoretisch berechneten Änderung von $\Delta R/R$ auf Grundlage der Elektronentemperaturänderung an der Schichtvorderseite	56
5.18 Vergleich der rückseitigen PPR-Messung bei $12 \cdot H_{\text{thr}}$ des unverzögerten Teilpulses mit der theoretisch berechneten Änderung von $\Delta R/R$ auf Grundlage der Elektronentemperaturänderung an der Schichtrückseite	57
5.19 Vergleich der zeitabhängigen Änderungen von $\Delta R/R$ bei x und $y = 0$ infolge von vorder- und rückseitiger PPR der beiden Teilpulse bei verschiedenen wirksamen Spitzenfluenzen	58
5.20 Vergleich der Höhenprofile entlang y bei $x = 0$ der entstandenen Abtragsstrukturen bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays	59
5.21 Vergleich der bei den PPR-Messungen entstandenen Abtragsstrukturen bei unterschiedlichen Doppelpuls-Zeitdelays	60
5.22 Darstellung von $\Delta R/R(x,y)$ bei ausgewählten Zeitschritten für den unverzögerten Teilpuls sowie den Doppelpuls bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays	62
5.23 Vergleich der vorderseitigen PPR-Messergebnisse infolge der Doppelpulsbestrahlung bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays	65

5.24	Darstellung der bei der rückseitigen PPR-Messung entstandenen Abtragsstruktur sowie von $\Delta R/R(y,t)$ infolge der Doppelpulsbestrahlung bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps und $H_0 = 2 \times 1.5 \cdot H_{\text{thr}}$ und rückseitiger Probebestrahlung	66
5.25	Darstellung des simulierten zeitlichen Elektronen- und Phononentemperaturverlaufs an der Schichtvorder- und -rückseite infolge der Doppelpulsbestrahlung mit $t_{\text{delay}} = 400$ ps bei verschiedenen wirksamen Spitzenfluenzen	67
5.26	Darstellung der bei der rückseitigen PPR-Messung entstandenen Abtragsstruktur sowie von $\Delta R/R(y,t)$ infolge der Doppelpulsbestrahlung bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps und $H_0 = 2 \times 6 \cdot H_{\text{thr}}$ und rückseitiger Probebestrahlung	68
5.27	Vergleich der zeitabhängigen Änderungen von $\Delta R/R$ bei x und $y = 0$ infolge von vorder- und rückseitiger PPR des Doppelpulses bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays und wirksamen Spitzenfluenzen	69
7.1	Vergleich der bei den vorder- und rückseitigen PPR-Messungen entstandenen Abtragsstrukturen infolge von Einzel- bzw. Doppelpulsbestrahlung bei gleicher wirksamer Spitzenfluenz	73
7.2	Vergleich der transienten relativen Reflexionsgradänderung bei vorder- und rückseitiger PPR infolge von Einzel- bzw. Doppelpulsbestrahlung bei gleicher wirksamer Spitzenfluenz	74

III. Tabellenverzeichnis

5.1 Zusammenfassung der angewendeten Messparameter	39
--	----

IV. Abkürzungsverzeichnis

α	Einfallswinkel
α'	Reflexionswinkel
α_B	Brewsterwinkel
α_{opt}	Absorptionskoeffizient
β	Brechungswinkel
$\Delta\lambda$	Wellenlängenbandbreite
$\Delta\nu$	Frequenzbandbreite
$\Delta R/R$	relative Änderung des Reflexionsgrades
\dot{q}_V	volumetrische Wärmestromdichte
ϵ_r	relative Permittivität auch relative Dielektrizitätskonstante
\hbar	reduziertes Plancksches Wirkungsquantum
λ	Wellenlänge
$\lambda_{\text{th,e}}$	Wärmeleitfähigkeit des Elektronensystems
TEM_{00}	Hermite-Gauß-Resonatormode
μ	chemisches Potenzial
μ_r	relative magnetische Permeabilität auch relative magnetische Leitfähigkeit
ω	Kreisfrequenz der elektromagnetischen Strahlung
ρ	Dichte
σ	Standardabweichung
τ_H	Pulsdauer
$\tilde{\epsilon}_r$	komplexe relative Permittivität auch komplexe relative Dielektrizitätskonstante
\tilde{n}	komplexer Brechungsindex
\vec{r}	Ortsvektor
A	Flächeninhalt der Ellipse, welche durch den schrägen Einfall der Laserstrahlung auf der Oberfläche entsteht
A_0	Flächeninhalt der Querschnittsfläche der Fokustaille
A_{Abl}	Flächeninhalt der ellipsenförmigen Ablationsstruktur
c_0	Vakuumlichtgeschwindigkeit
$C_{V,\Omega}$	Wärmekapazität des Phononensystems bei konstantem Volumen
$C_{V,e}$	Wärmekapazität des Elektronensystems bei konstantem Volumen
D	Zustandsdichte
D	y-Ausdehnung der ellipsenförmigen Ablationsstruktur

d	Schichtdicke
D_K	Kreisäquivalenzdurchmesser
E	Energie
E_γ	Photonenenergie
E_F	Fermienergie
f	Brennweite
$f()$	Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion
f_P	Pulsfolgefrequenz
G	Kopplungsfaktor
H	wirksame Fluenz
h	Plancksches Wirkungsquantum
H_0	wirksame Spitzenfluenz
H_{thr}	Schwellfluenz
I	wirksame Intensität
I_0	Spitzenintensität
k	Extinktionskoeffizient
k_B	Boltzmann-Konstante
m	Masse
M^2	Beugungsmaßzahl
m_Ω	effektive Masse der gebundenen Elektronen
m_e	effektive Masse der freien Elektronen
n	Brechungsindex
p	Druck
Q	Pulsenergie
Q_{thr}	Schwellenergie
R	Reflexionsgrad
R_p	Reflexionsgrad für die parallelen Polarisationskomponente
r_p	Fresnelkoeffizient der parallelen Polarisationskomponente
R_s	Reflexionsgrad für die senkrechten Polarisationskomponente
r_s	Fresnelkoeffizient der senkrechten Polarisationskomponente
T	Temperatur
t	Zeit
t_0	zeitliche Referenz der PPR Messung
$t_{1,min}$	minimaler relativer Zeitversatz zwischen Probe- und Pumpstrahlungspuls bzw. minimaler relativer Zeitschritt zwischen zwei PPM Messungen mit Tei- laufbau A

t_1	einstellbarer absoluter Zeitbereich für die PPM mit Teilaufbau A
$t_{2,\min}$	minimaler relativer Zeitversatz zwischen Probe- und Pumpstrahlungspuls bzw. minimaler relativer Zeitschritt zwischen zwei PPM Messungen mit Teilaufbau B
t_2	einstellbarer absoluter Zeitbereich für die PPM mit Teilaufbau B
T_Ω	Phononentemperatur
T_c	thermodynamische kritische Temperatur
t_{delay}	Doppelpuls-Zeitdelay
T_e	Elektronentemperatur
$t_{\text{ges,max}}$	einstellbarer gesamter maximaler absoluter Zeitbereich für die PPM
u	Advektionsgeschwindigkeit
V	Volumen
$v_{z,\text{Phasenexplosion}}$	Ausbreitungsgeschwindigkeit in z-Richtung für Ablationsmechanismus der Phasenexplosion
$v_{z,\text{Spallation}}$	Ausbreitungsgeschwindigkeit in z-Richtung für Ablationsmechanismus der Spallation
w_0	Fokusradius
w_{aequi}	Kreisäquivalenzfokusradius
w_{wirk}	Wirkradius
w_x	Ellipsenradius bzw. große Halbachse in x-Richtung
w_y	Ellipsenradius bzw. kleine Halbachse in y-Richtung
z_e	optische Eindringtiefe
z_R	Rayleighlänge
CCD	engl. charge-coupled device
Cr	Chrom
DOS	engl. density of states
DusL	Dynamik ultraschneller selektiver Laserprozesse
Fe	Eisen
HDTTM	engl. hydro-dynamic two-temperature model
i	imaginäre Einheit
LHM	Laserinstitut Hochschule Mittweida
Ni	Nickel
OD	optische Dichte
OPA	engl. optical parametric amplifier
PPM	Pump-Probe Mikroskop
PPR	Pump-Probe Reflektometrie

PSTW polarisationsabhängiger Strahlteilerwürfel
SNR engl. signal noise ratio
SPR-KKR engl. spin polarised relativistic-Korringa-Kohn-Rostoker (code for Calculating Solid State Properties)
TDDFT engl. time-dependent density functional theory
TTM engl. two-temperature model

1 Einleitung

Der Einsatz ultrakurz gepulster Laserstrahlung zur Mikro- und Nanomaterialbearbeitung ermöglicht durch die geringe thermische Eindringtiefe der Strahlung eine hohe Präzision bei gleichzeitig geringer Wärmebeeinflussung des zu bearbeitenden Werkstückes (Beispiel in Abbildung 1.1). Dadurch ergeben sich zahlreiche Anwendungsmöglichkeiten in der Fertigungstechnik, beispielsweise beim Lasermikrogravieren, -strukturieren sowie -bohren.

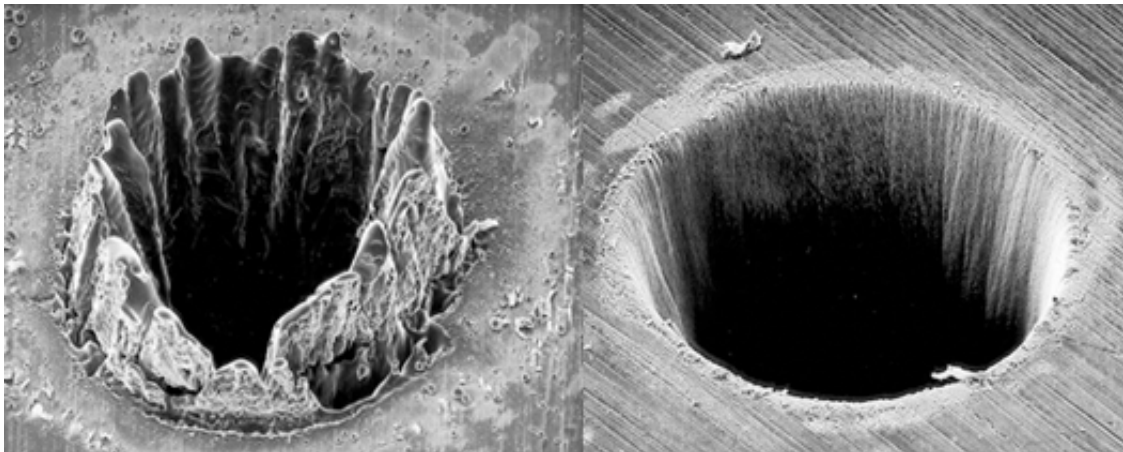


Abbildung 1.1: Vergleich zweier Mikrobohrungen in Edelstahl - links: $\tau_H = 3.3 \text{ ns}$; rechts: $\tau_H = 200 \text{ fs}$ [© Fraunhofer IOF]

Um die Produktivität eines Lasermaterialbearbeitungsprozesses optimieren zu können, ist ein umfassendes Verständnis über die Bearbeitungs- und Einflussparameter notwendig. So ist die stattfindende Laserstrahlung-Materie-Wechselwirkung abhängig von den angewendeten laserspezifischen Prozessparametern, wie beispielsweise Wellenlänge, Pulsdauer, Pulsfolgefrequenz, wirksame Spitzenfluenz, Anzahl an Überfahrten, Streckenenergie, räumliche und zeitliche Intensitätsverteilung sowie räumlicher Pulsabstand. Über eine Variation dieser Parameter können die transienten optischen, thermophysikalischen und topologischen Eigenschaften des zu bearbeitenden Materials sowie die räumliche Expansionsdynamik und die Dichte eines entstehenden Plasmas gesteuert werden. Dadurch wird die Bearbeitungseffizienz vor allem bei Verwendung von hochrepetierender Laserstrahlung oder Multipulsen stark beeinflusst, da die schnell aufeinanderfolgenden Pulse mit dem transienten Zustand des angeregten Materials wechselwirken. Mithilfe von Experimenten und Simulationen kann der Einfluss dieser Parameter grundlagentheoretisch untersucht werden und somit einen Beitrag zum besseren Verständnis und idealerweise zur Steigerung von Qualität und Produktivität liefern.

Mithilfe der Pump-Probe-Messtechnik können ultraschnelle physikalische Prozesse, welche in Zeitbereichen weniger Femto- bis hin zu Mikrosekunden stattfinden, untersucht werden [1]. Hierbei werden Pumpstrahlungspulse eingesetzt, welche das Ma-

terial anregen sowie Probestrahlungspulse, die den angeregten Bereich abtasten. In dieser Arbeit wird mithilfe von Pump-Probe Reflektometrie die orts- und zeitaufgelöste Änderung des Reflexionsgrades einer dünnen Edelstahlschicht an der Schichtvorder- sowie Schichtrückseite während und nach der Bestrahlung mit Doppelpulsen ultrakurz gepulster Laserstrahlung detektiert. Zur Vereinfachung wird innerhalb der gesamten nachfolgenden Arbeit der Begriff Doppelpuls verwendet. Ziel dieser Arbeit ist es, die Abhängigkeit der Ablationsmechanismen an einer dünnen Edelstahlschicht vom zeitlichen Abstand der beiden einzelnen Pulse des Doppelpulses (nachfolgend: Doppelpuls-Zeitdelay) grundlegend zu untersuchen. Hierfür wird die transiente relative Reflexionsgradänderung $\Delta R/R$ gemessen und anhand der, in der Literatur dokumentierten, Anregungs- und Ablationsmechanismen diskutiert. Zudem wird die gekoppelte Wärmeleitungsgleichung des Elektronen-Phononensystems numerisch gelöst und die resultierende Elektronen- und Phononentemperatur zur Interpretation der beschriebenen Mechanismen mit den gemessenen Reflexionsgradänderungen qualitativ verglichen. Des Weiteren werden die Ergebnisse durchgeführter fluenzabhängiger Abtragsuntersuchungen erläutert und die entstandenen Abtragsschwellen und Abtragstopologien in Abhängigkeit zum Doppelpuls-Zeitdelay diskutiert.

2 Stand der Technik

Ultrakurz gepulste Laserstrahlung mit hohen Pulsfolgefrequenzen im MHz-Bereich sowie der Einsatz von GHz-Bursts [2] finden in der Industrie zur Lasermikromaterialbearbeitung Anwendung, da mithilfe von Grundlagenuntersuchungen Effizienz- und Qualitätssteigerungen in Bezug auf das abgetragene Volumen bzw. die Oberflächenrauigkeit nachgewiesen werden konnten [3,4]. Der Einfluss der Pulsfolgefrequenz auf den Materialabtrag wird in unterschiedlichsten Experimenten durch zahlreiche Forschungsgruppen weltweit untersucht. Am Laserinstitut Hochschule Mittweida (LHM) werden beispielsweise laserparameterspezifische Abtragsuntersuchungen unter anderem an Edelstahl durchgeführt [5, 6]. Hierbei dient als Laserquelle ein Ultrakurzpulslaser (Carbide) des Herstellers Light Conversion, welcher die Variation der Pulsfolgefrequenz, Pulsdauer uvm. mithilfe der Herstellersoftware innerhalb weniger Sekunden ermöglicht. Von der Forschungsgruppe "Dynamik ultraschneller selektiver Laserprozesse" (DusL) am LHM wurden Einzelpulsexperimente an Edelstahl mithilfe orts- und zeitaufgelöster Pump-Probe-Reflektometrie (PPR) durchgeführt und das Anregungsverhalten der bestrahlten Materie grundlagenspezifisch untersucht [1,7]. Untersuchungen zum Ablationsverhalten mittels PPR wurden oberhalb der Ablationsschwelle orts- und zeitaufgelöst über \leq acht zeitliche Größenordnungen von unterschiedlichen Forschungsgruppen weltweit durchgeführt [7–11]. Hierbei wird die relative Änderung der Reflektivität während und nach der Bestrahlung der Materie gemessen und anschließend zur Interpretation der stattfindenden physikalischen Prozesse genutzt [7]. Ein neuer Versuchsaufbau der Forschungsgruppe DusL ermöglicht die Untersuchungen über zehn zeitliche Größenordnungen, wobei bereits erste Einzelpulsuntersuchungen an dünnen Edelstahl- und Goldschichten durchgeführt wurden [1]. Mithilfe von theoretischen Simulationen, welche durch die Forschungsgruppe DusL erarbeitet oder erweitert wurden, lassen sich die Messergebnisse besser interpretieren, wobei mit den hydrodynamischen Simulationen das Ablationsverhalten der bestrahlten Materie bis einige Nanosekunden beschrieben werden kann [7, 11]. Zudem können mithilfe der experimentellen Einzelpulsuntersuchungen die hydrodynamischen Zwei-Temperatur-Modell (HDTTM) Simulationsergebnisse validiert werden, wodurch sich folglich das theoretische Modell verbessern lässt. Dieses Zusammenspiel ermöglicht die Weiterentwicklung der Modelle sowie des Verständnisses über die stattfindenden Laserstrahlung-Materie-Wechselwirkungen in Abhängigkeit der zahlreichen laserspezifischen Parameter.

Anhand von Doppelpulsexperimenten gelang es einer Forschungsgruppe, herauszufinden, dass die Doppelpulsbearbeitung die Abtragseffizienz von Einzelpulsen mit optimaler Fluenz nicht übertreffen kann, die Oberfläche der Abtragsstruktur jedoch eine geringere Rauheit aufweist, wenn ein Doppelpuls-Zeitdelay im Bereich $10 \text{ ns} \leq t_{\text{delay}} \leq 18 \text{ ns}$ angewendet wird [12]. Die nachfolgende Abbildung stellt einen Auszug aus der genannten Veröffentlichung dar und zeigt verschiedene Abtragsstrukturen, welche mittels Rasterelektronen-Mikroskopie vermessen wurden und infolge der Einzel- bzw. Doppel-

pulsbestrahlung in Abhängigkeit von der Pulsenergie und des Doppelpuls-Zeitdelays entstanden sind. Hierbei wurden die Ergebnisse in drei Regime unterteilt, wobei für Regime 1 das Doppelpuls-Zeitdelay unterhalb der Elektronen-Phonon-Kopplungszeit liegt und die Ergebnisse denen der Einzelpulse entsprechen [12]. Durch eine starke Absorption des verzögerten nachfolgenden Teilpulses an dem entstehenden Plasma sinken hingegen für Regime 2 die Abtragsraten und -effizienzen auf ein Minimum [12]. Regime 3 zeigt wiederum die Abtragsstrukturen und Parameterkombinationen, welche die maximalen Abtragsraten und -effizienzen sowie die geringsten Oberflächenrauigkeiten ausbildeten.

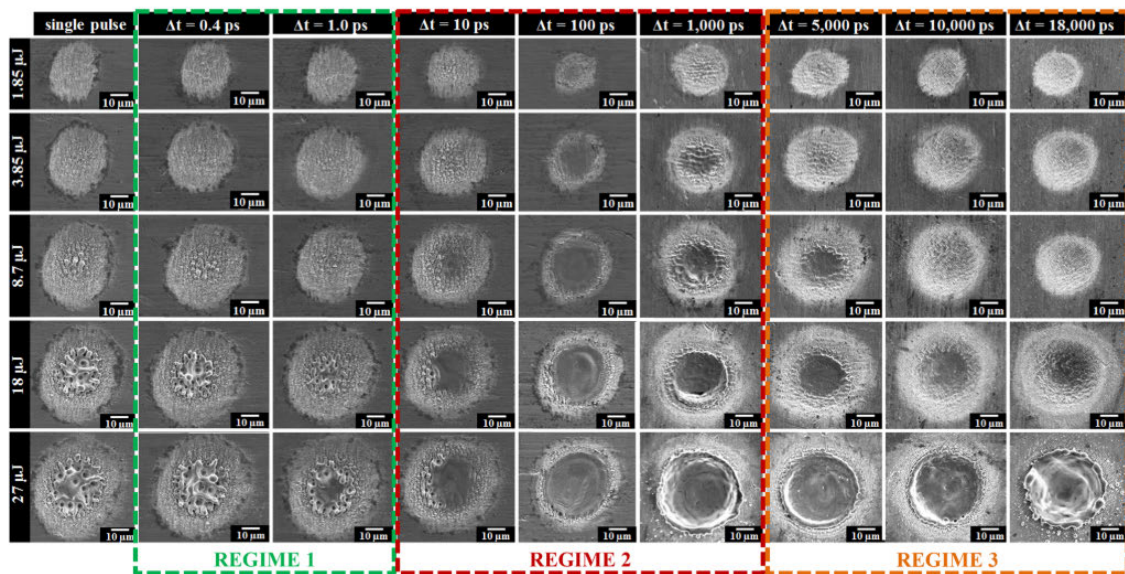


Abbildung 2.1: Rasterelektronen-Mikroskopieaufnahmen verschiedener Abtragsstrukturen, welche infolge von Einzel- und Doppelpulsbestrahlung in Abhängigkeit von der Pulsenergie und des Doppelpuls-Zeitdelays entstanden sind

Eine weitere Veröffentlichung verdeutlicht den experimentell ermittelten Zusammenhang zwischen Doppelpuls-Zeitdelay und Abtragstiefe bei der Bestrahlung von Kupfer. Hierbei zeigt sich ein Sinken der Abtragstiefe mit steigendem Doppelpuls-Zeitdelay bis etwa 100 ps und entsprechend der Abschätzung der Autoren ein anschließendes Steigen der Abtragstiefe mit größer werdendem Doppelpuls-Zeitdelay [13]. Mithilfe theoretischer HDTTM- und molekulardynamischer Simulationen zeigen die Autoren den orts- und zeitaufgelösten Verlauf der Temperatur, des Drucks sowie der Dichte im bestrahlten Material auf und vergleichen die experimentellen und theoretischen Ergebnisse.

Um das Verständniss über die stattfindenden Prozesse zu erweitern und die vorgestellten Ergebnisse anderer Forschungsgruppe zu validieren, werden in dieser Arbeit fluenz aufgelöste Abtragsuntersuchungen und PPR-Messungen an dünnen Edelstahlschichten über zehn zeitliche Größenordnungen durchgeführt und die Ergebnisse ausgewertet.

3 Theoretische Grundlagen

3.1 Ultrakurz gepulste Laserstrahlung

Die Erzeugung ultrakurzer Laserpulse bedarf einer großen Frequenzbandbreite $\Delta\nu$ der verwendeten elektromagnetischen Strahlung infolge der Frequenz-Zeit-Unschärferelation. Demnach gilt: Je kürzer der Laserpuls, desto größer dessen Bandbreite. Für Laserstrahlung mit gaußförmiger zeitlicher Intensitätsverteilung ergibt sich das Zeit-Bandbreite-Produkt

$$\tau_H \cdot \Delta\nu = \tau_H \cdot \frac{c_0}{\lambda^2} \cdot \Delta\lambda \geq 0.441 \quad , \quad (3.1)$$

wobei τ_H der Pulsdauer, c_0 der Vakuumlichtgeschwindigkeit, λ der zentralen Wellenlänge der Laserstrahlung und $\Delta\lambda$ der Wellenlängenbandbreite des Laserpulses entspricht [14]. Demnach ergibt sich beispielsweise für einen gaußförmigen Laserpuls mit $\tau_H = 40$ fs und $\lambda = 800$ nm idealerweise eine Wellenlängenbandbreite von $\Delta\lambda = 23.5$ nm. Mithilfe der ortsabhängigen Fluenz $H(\vec{r})$ lässt sich ausgehend von der Pulsenergie Q und dem Fokusradius w_0 die Energie pro Fläche der Laserstrahlung über

$$H(\vec{r}) = \frac{2 \cdot Q(\vec{r})}{\pi \cdot w_0^2} \quad (3.2)$$

beschreiben. Die ultrakurz gepulste Laserstrahlung lässt sich durch die räumliche und zeitliche Intensitätsverteilung $I(t, \vec{r})$ beschreiben, wobei diese abhängig von der Spitzenintensität I_{\max} , der Pulsdauer τ_H sowie dem Fokusradius w_0 ist und sich für einen gaußförmigen Verlauf wie folgt ergibt

$$I(t, \vec{r}) = I_{\max} \cdot e^{-4 \cdot \ln(2) \cdot \left(\frac{t-t_0}{\tau_H}\right)^2} \cdot e^{-2 \cdot \left(\frac{\vec{r}-\vec{r}_0}{w_0}\right)^2} \quad . \quad (3.3)$$

Hierbei entspricht t der Zeit, \vec{r} dem Ortsvektor sowie t_0 dem Zeitpunkt und \vec{r}_0 dem Ortsvektor bei I_{\max} . Anhand von Abbildung 3.1 wird der zeitliche und räumliche Verlauf eines idealen gaußförmigen ultrakurzen Laserpulses mit der Beugungsmaßzahl $M^2 = 1$ anhand ausgewählter Zeitpunkte verdeutlicht.

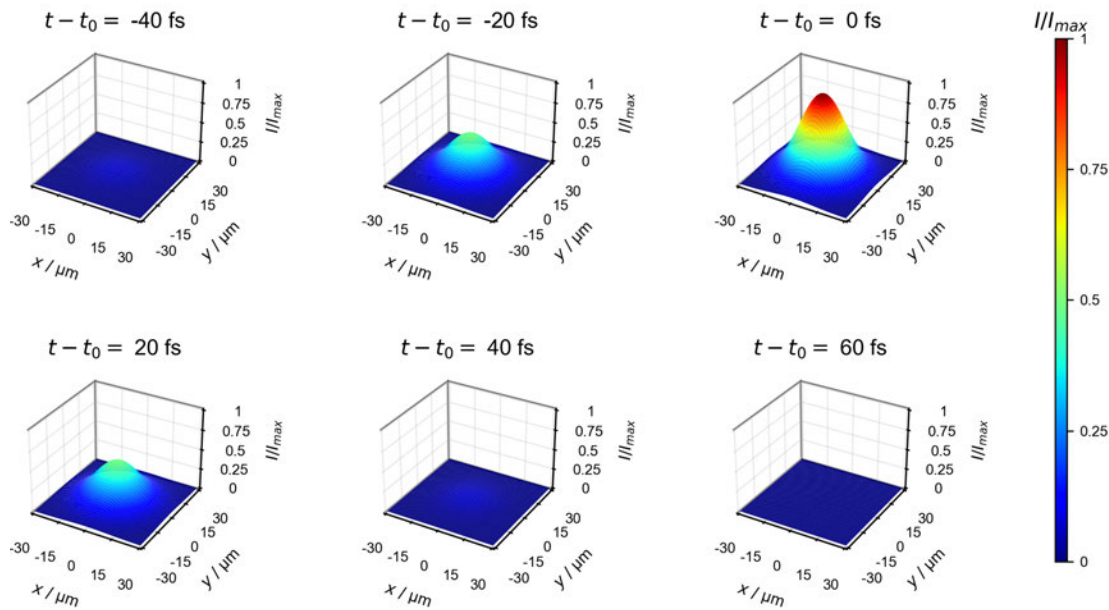


Abbildung 3.1: Darstellung der zeitlichen und räumlichen Intensitätsverteilung eines idealen ultrakurzen Laserpulses mit $\tau_H = 40$ fs bei ausgewählten Zeitpunkten

Die Spitzenintensität berechnet sich über

$$I_{\max} = \frac{2 \cdot P_{\max}}{\pi \cdot w_0^2} = \frac{2 \cdot Q}{1.064 \cdot \tau_H \cdot \pi \cdot w_0^2} \quad (3.4)$$

und ist demnach abhängig von der Pulsdauer und der Pulsenergie bzw. der Pulsspitzenleistung P_{\max} sowie dem Fokusradius. Somit ergibt sich für ultrakurze Laserpulse eine Spitzenintensität im Bereich von einigen $\frac{\text{TW}}{\text{cm}^2}$, im aufgeführten Beispiel von $I_{\max} = 1.18 \cdot 10^{13} \frac{\text{W}}{\text{cm}^2}$.

3.2 Wechselwirkung ultrakurz gepulster Laserstrahlung mit Metallen

Die Bestrahlung einer Materialoberfläche mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung bewirkt eine Wechselwirkung zwischen dem elektromagnetischen Strahlungsfeld und den Ladungsträgern der bestrahlten Materie. Anhand dieser Effekte lassen sich die Vorgänge Strahlungsreflexion, -transmission und -absorption beschreiben [15].

3.2.1 Zwei-Temperatur-Modell

Im Falle der Strahlungsabsorption kommt es zur irreversiblen Energieübertragung von Photon zu Valenzelektron, wodurch folglich das Elektron in ein höheres Energieniveau angeregt und das Photon vernichtet wird. Ein derartiger Elektronenübergang kann

innerhalb eines Energiebandes (Intrabandübergang) unter Phononenstoßbeteiligung oder zwischen zwei Energiebändern (Interbandenergieübergang) erfolgen. Dieser Vorgang läuft linear ab, wenn die Photonenenergie E_γ größer gleich der Energiedifferenz der Energieniveaus ist. Nichtlineare Absorptionsprozesse, wie die Multiphotonenabsorption [16], Tunnelionisation und Avalancheionisation [15], welche bei hohen Spitzenintensitäten wie beispielsweise bei ultrakurz gepulster Laserstrahlung auftreten können, sind bei Metallen eher unwahrscheinlich, da die quasifreien Elektronen den Hauptprozess über lineare Absorption übernehmen [17]. Da der Absorptionsvorgang innerhalb von $\lesssim 1$ fs [17] stattfindet, steigt die Dichte an Elektronen oberhalb der Fermienergie schlagartig an und es liegt somit ein Nichtgleichgewichtszustand im Elektronensystem vor. Dieser gleicht sich anschließend durch Stöße zwischen angeregten und nicht angeregten Elektronen aus, wodurch die Elektronen folglich im thermischen Gleichgewicht sind und sich die Elektronentemperatur T_e einstellt. Die Elektron-Elektron Stoßzeit τ_{ee} beträgt bei Metallen infolge der hohen Elektronendichten in etwa 10 fs [17]. Aufgrund der Elektronentemperaturerhöhung findet durch Elektron-Phonon-Stöße eine Energieübertragung vom Elektronen- zum Phononensystem statt, wodurch sich auch die Phononentemperatur T_Ω erhöht. Aufgrund des geringen Energieübertrags bzw. Masseverhältnisses ($m_\Omega > m_e$) bei Metallen beträgt die Elektron-Phonon Stoßzeit 1 ps $\lesssim \tau_{e\Omega} \lesssim 100$ ps [17]. Demzufolge müssen T_e und T_Ω eigenständig betrachtet werden und können mithilfe des Zwei-Temperatur-Modells (TTM) numerisch berechnet werden [18]. Da der Laserpuls als Energiequelle für das Elektronensystem und die Kopplung zwischen Elektronen und Phononen als Energiequelle für das Phononensystem dient [19], können die Vorgänge durch zwei gekoppelte Wärmeleitungsgleichungen, für das Elektronensystem

$$\frac{C_{V,e}(T_e)}{V} \cdot \frac{\partial T_e}{\partial t} = \nabla \cdot (\lambda_{th,e}(T_e, T_\Omega) \cdot \nabla T_e) - G(T_e) \cdot (T_e - T_\Omega) + \dot{q}_V(t, \vec{r}) \quad (3.5)$$

und das Phonensystem

$$\frac{C_{V,\Omega}}{V} \cdot \frac{\partial T_\Omega}{\partial t} = G(T_e) \cdot (T_e - T_\Omega) \quad , \quad (3.6)$$

beschrieben werden. Hierbei entspricht $C_{V,e}$ bzw. $C_{V,\Omega}$ der Wärmekapazität des Elektronen- bzw. Phononensystems bei konstantem Volumen, $\lambda_{th,e}$ der Wärmeleitfähigkeit des Elektronensystems, G dem Kopplungsfaktor und \dot{q}_V der volumetrischen Wärmestromdichte (Quellterm des Elektronensystems). Das Produkt $G(T_e) \cdot (T_e - T_\Omega)$ aus Kopplungsfaktor und Temperaturdifferenz stellt den Verlustterm für das Elektronensystem und den Quellterm für das Phononensystem dar. Mithilfe der Finite-Differenzen-Methode lassen sich die gekoppelten Differentialgleichungen numerisch lösen, wodurch die orts- und zeitabhängige Temperaturänderung des Materials während und nach der Bestrahlung abgeschätzt werden kann. Infolge der Temperaturabhängigkeit der thermophysikalischen und optischen Eigenschaften des bestrahlten Materials ergibt sich für die in den nachfolgenden Gleichungen aufgeführten Parameter eine Abhängigkeit von der

Elektronentemperatur. Da der absorbierte Laserpuls über die Tiefe z als Volumenwärmequelle wirkt, ergibt sich die resultierende volumetrische Wärmestromdichte \dot{q}_V zu

$$\dot{q}_V(t, \vec{r}, T_e) = (1 - R(T_e)) \cdot I(t, \vec{r}) \cdot \alpha_{\text{opt}}(T_e) \cdot e^{-\alpha_{\text{opt}}(T_e) \cdot z} \quad . \quad (3.7)$$

Da die Intensität I eines elektromagnetischen Strahlungsfeldes, welches mit Materie wechselwirkt, über die Tiefe z abgeschwächt wird, ergibt sich der Zusammenhang

$$I(z) = I_0 \cdot e^{-\alpha_{\text{opt}}(T_e) \cdot z} \quad (3.8)$$

nach dem Lambert-Beerschen Gesetz, wobei $\alpha_{\text{opt}}(T_e)$ dem Absorptionskoeffizienten entspricht. Dieser bzw. die optische Eindringtiefe $z_e(T_e)$ berechnet sich in Abhängigkeit von der Wellenlänge sowie dem Extinktionskoeffizienten k nach

$$\alpha_{\text{opt}}(T_e) = \frac{1}{z_e(T_e)} = \frac{4 \cdot \pi \cdot k(T_e)}{\lambda} = \frac{2 \cdot \omega \cdot k(T_e)}{c_0} \quad , \quad (3.9)$$

und weist deshalb ebenfalls eine Temperaturabhängigkeit auf, wobei ω der Kreisfrequenz der elektromagnetischen Strahlung und c_0 der Vakuumlichtgeschwindigkeit entspricht. In Abhängigkeit der vorliegenden Elektronentemperatur weist die bestrahlte Materie eine Änderung in der Polarisierbarkeit auf, weshalb sich diese während und nach der Bestrahlung zeitabhängig ändert. Mithilfe der temperaturabhängigen komplexen relativen Permittivität $\tilde{\epsilon}_r(T_e)$ lässt sich die Polarisierbarkeit beschreiben. Somit kann ausgehend von $\tilde{\epsilon}_r(T_e)$ der temperaturabhängige komplexe Brechungsindex $\tilde{n}(T_e)$ über

$$\tilde{n}(T_e) = \sqrt{\tilde{\epsilon}_r(T_e)} = n(T_e) - ik(T_e) \quad (3.10)$$

und somit auch der Brechungsindex $n(T_e)$ und Extinktionskoeffizient $k(T_e)$ theoretisch berechnet werden. Fällt die Laserstrahlung unter einem Einfallswinkel α ein, so ergibt sich der Reflexionsgrad R aus dem polarisationsabhängigen Fresnelkoeffizienten r , dem Brechungswinkel β , der relativen magnetischen Permeabilität μ_r und dem komplexen Brechungsindex \tilde{n} für die Medien 1 und 2, wie folgt [1]

$$R_s(T_e) = |r_s(T_e)|^2 = \left| \frac{\tilde{n}_1(T_e) \cdot \cos\alpha - \tilde{n}_2(T_e) \cdot \frac{\mu_{r,1}}{\mu_{r,2}} \cdot \cos\beta}{\tilde{n}_1(T_e) \cdot \cos\alpha + \tilde{n}_2(T_e) \cdot \frac{\mu_{r,1}}{\mu_{r,2}} \cdot \cos\beta} \right|^2 \quad (3.11)$$

$$R_p(T_e) = |r_p(T_e)|^2 = \left| \frac{\tilde{n}_2(T_e) \cdot \frac{\mu_{r,1}}{\mu_{r,2}} \cdot \cos\alpha - \tilde{n}_1(T_e) \cdot \cos\beta}{\tilde{n}_2(T_e) \cdot \frac{\mu_{r,1}}{\mu_{r,2}} \cdot \cos\alpha + \tilde{n}_1(T_e) \cdot \cos\beta} \right|^2 \quad . \quad (3.12)$$

Bei zirkularer Polarisation lässt sich der resultierende Reflexionsgrad R aus dem arithmetischen Mittel von R_s und R_p durch

$$R = \frac{R_s + R_p}{2} \quad (3.13)$$

berechnen.

Um die temperaturabhängigen thermophysikalischen und optischen Eigenschaften theoretisch berechnen zu können, muss die Zustandsdichte D mithilfe der zeitabhängigen Dichtefunktionaltheorie (TDDFT) ermittelt werden. Die Zustandsdichte in einem Kristall ergibt sich aus der vorhandenen Anzahl an Energiezuständen pro Volumen V und Energieintervall in Abhängigkeit von der Energie E über

$$D(E) = \frac{V}{2\pi^2} \cdot \left(\frac{2m}{\hbar^2}\right)^{\frac{3}{2}} \cdot E^{\frac{1}{2}} \quad , \quad (3.14)$$

wobei m der Elektronenmasse und \hbar dem reduzierten Planckschen Wirkungsquantum entspricht. Die Besetzungswahrscheinlichkeit der Energieniveaus folgt hingegen der Fermi-Dirac-Verteilungsfunktion durch

$$f(E, T) = \frac{1}{e^{\frac{E-\mu}{k_B T}} + 1} \quad , \quad (3.15)$$

wobei T der Temperatur, k_B der Boltzmannkonstante und μ dem chemischen Potential entsprechen. Somit lässt sich durch $f(E, T) \cdot D(E)$ die Anzahl der tatsächlich besetzten Zustände im Kristall für die jeweilige Elektronentemperatur T_e ermitteln. Mithilfe der TDDFT können somit Aussagen über die ultraschnelle Anregungs- und Thermalisierungsdynamik der angeregten Elektronen getroffen werden [20]. So lassen sich Zustandsdichteänderungen im Attosekundenbereich ermitteln, wodurch theoretisch eine quantitative Bestimmung von τ_{ee} möglich wäre. Ebenso wie τ_{ee} kann auch die Elektron-Phonon Stoßfrequenz theoretisch ermittelt werden und ist abhängig von der Bandstruktur und Zustandsdichte der bestrahlten Materie sowie den jeweils durch die Photonenabsorption ausgelösten materialabhängigen Elektronenübergängen. Am Beispiel von Edelstahl ($Fe_{0,72}Cr_{0,18}Ni_{0,1}$) ist in Abbildung 3.2 a+c) der Verlauf der Zustandsdichte anhand der schwarz gestrichelten Linie, hingegen die besetzten Zustände ($f(E, T) \cdot D(E)$) bei zwei verschiedenen Elektronentemperaturen anhand der roten bzw. blauen Linie verdeutlicht. So ist bei Raumtemperatur ersichtlich, dass oberhalb von E_F alle Zustände unbesetzt und unterhalb von E_F besetzt sind. Hingegen mit steigender Temperatur zeigt sich eine Verbreiterung der Fermikante, da immer mehr Zustände oberhalb von E_F besetzt und unterhalb von E_F frei werden. [1]

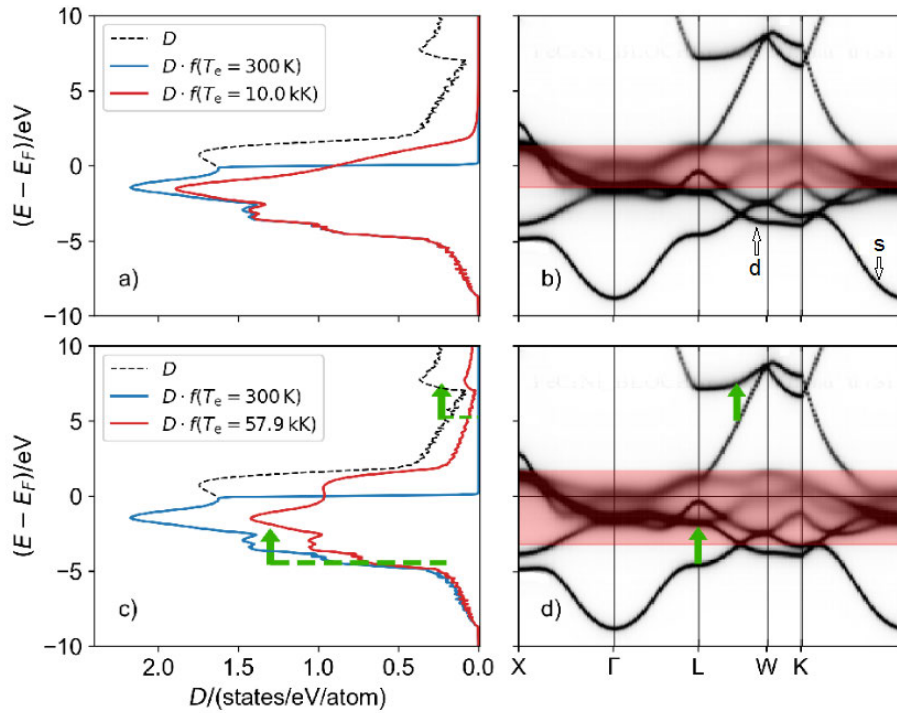


Abbildung 3.2: Darstellung der Zustandsdichte (schwarz) und besetzten Zustände von Edelstahl bei Raumtemperatur (blau) bzw. verschiedenen Elektronentemperaturen (rot) (a+c). Energiebandmodell von Edelstahl (EN 1.4301), berechnet mithilfe des SPR-KKR Programmpaketes [21], wobei der rote Streifen alle Zustände mit einer geringen Wahrscheinlichkeit für Elektronenanregungen visualisiert (da weniger besetzte Zustände unterhalb von E_F bzw. mehr besetzte Zustände oberhalb von E_F vorliegen) (b+d). Die grünen Pfeile stellen wahrscheinliche Interbandübergänge, welche durch die Probestrahlung $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ induziert werden können, dar, wobei die Pfeilspitzenlänge E_{zu} entspricht und die Darstellungen a+b) sowie c+d) korrelieren. [1, 7, 21]

Die Bandstruktur des Kristalls im Grundzustand wurde mithilfe des Programmpaketes SPR-KKR berechnet [21] und ist in Abbildung 3.2 b+d) dargestellt. So zeigt sich im Bereich von $-9 \text{ eV} < E - E_F < -5 \text{ eV}$ ein s-Band, von $-5 \text{ eV} < E - E_F < 2 \text{ eV}$ hingegen ein d-Band [21].

Da mithilfe der TDDFT die volumetrische Wärmekapazität des Elektronensystems bei konstantem Druck $C_{V,e}(T_e)$, der Elektronen-Phononen-Kopplungsfaktor $G(T_e)$ sowie die Wärmeleitfähigkeit des Elektronensystems $\lambda_{\text{th,e}}(T_e, T_\Omega)$ berechnet werden kann, sind die genannten Parameter für bestimmte Metalle in der Literatur vorzufinden [21, 22]. Wie bereits erwähnt ist die Photonenenergie der Laserstrahlung entscheidend für die stattfindenden Elektronenübergänge, weshalb diese Wellenlängenabhängigkeit auch für die optischen Eigenschaften der bestrahlten Materie gilt. Mithilfe des Drude-Lorentz-Modells [1] können die transienten optischen Eigenschaften für Metalle im nahen Infrarot in guter Näherung abgeschätzt werden. Dieses Modell vereint die Wechselwirkung der Laserstrahlung mit den Leitungsbandelektronen (Drude-Modell) und mit einem an den Atomrumpf gebundenen Elektron (Lorentz-Modell) sowie den jeweils daraus resultierenden optischen Eigenschaften. Anhand von Gleichung 3.10

lässt sich somit der temperaturabhängige komplexe Brechungsindex bestimmen. Alternativ können die optischen Eigenschaften, entsprechend der Literatur [23], über die theoretisch berechnete optische Leitfähigkeit ermittelt werden. Des Weiteren kann der komplexe Brechungsindex experimentell mithilfe der Pump-Probe-Ellipsometrie orts- und zeitaufgelöst bestimmt werden [24,25], wobei jedoch keine direkte Zuordnung zur Elektronentemperatur möglich ist. In diesem Fall kann eine Verknüpfung von T_e und T_Ω zu den optischen Eigenschaften nur qualitativ durch den Abgleich von Modell und Experiment gewährleistet werden.

Der Anstieg der Elektronentemperatur infolge der Photonenabsorption wurde für die in dieser Arbeit angewendeten Messparameter (siehe Kapitel 4.3) berechnet.

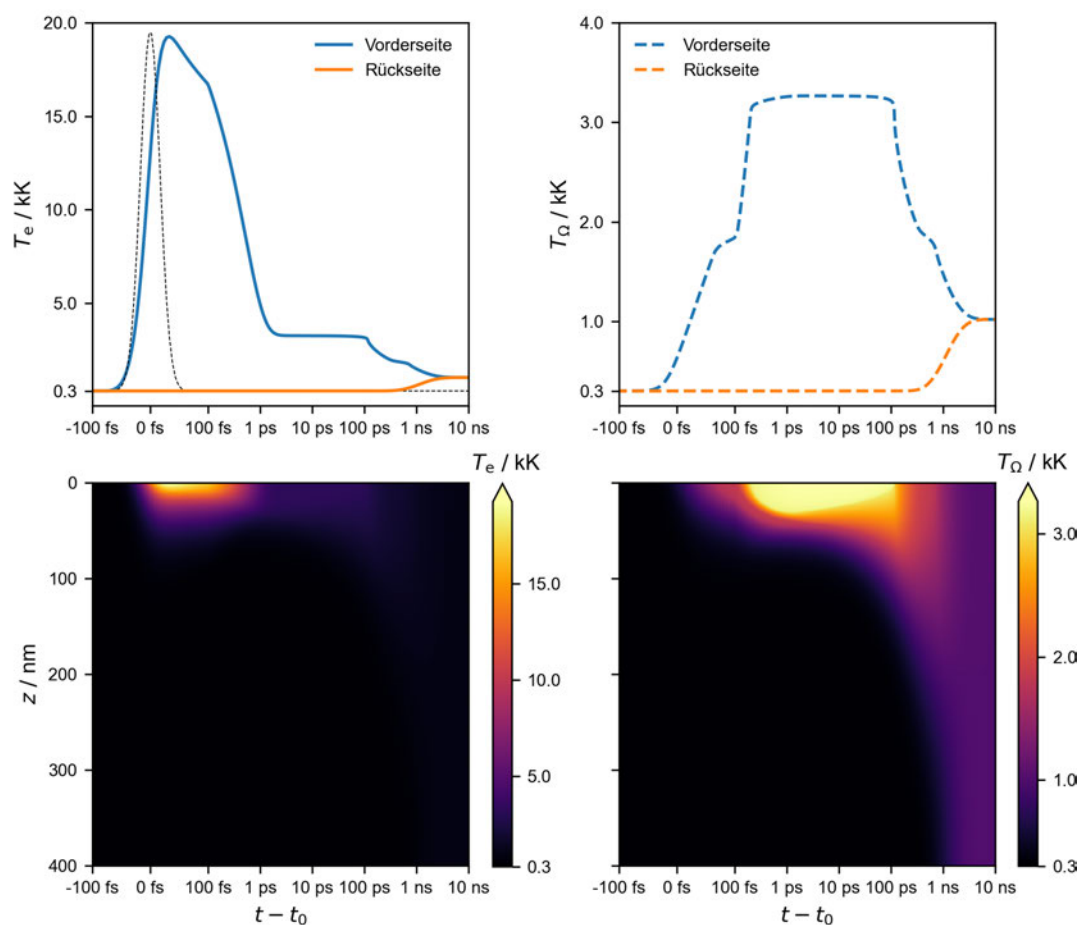


Abbildung 3.3: Idealisierte tiefen- und zeitaufgelöste Darstellung der Elektronen- und Phonontemperaturänderung bei Bestrahlung einer 400 nm dünnen Edelmetallschicht mit ultrakurzen Pumpstrahlungseinpulsen unter Vernachlässigung von Wechselwirkungen mit ablatierten Teilchen ($\lambda_{\text{pump}} = 800 \text{ nm}$, $\tau_{\text{H}} = 40 \text{ fs}$, $H_{0,\text{pump}} = 0.27 \text{ J/cm}^2$)

Die zeitabhängige Darstellung der Elektronentemperatur entlang der Edelmetallschicht, infolge der Bestrahlung mit einem Pumpstrahlungseinpuls, ist auf Grundlage des TTM in Abbildung 3.3 beispielhaft dargestellt. Hierbei wurde die Ablation von Materi-

al und der damit verbundene Verlust von Energie im Modell nicht berücksichtigt. Mithilfe des hydrodynamischen Zwei-Temperatur-Modells (HDTTM) [7, 11] können diese Mechanismen jedoch einbezogen werden. In Abbildung 3.3 zeigt sich, dass T_e an der Schichtvorderseite direkt proportional zur zeitlichen Intensitätsverteilung der Pumplaserstrahlung ansteigt, hingegen an der Schichtrückseite infolge der Wärmeleitung erst nach etwa 1 ns einen Anstieg verzeichnet.

3.2.2 Ablationsmechanismen

Infolge der isochoren phononischen Thermalisierung von Festkörpern nach der Bestrahlung treten fluenzabhängig unterschiedliche Phononentemperaturen und folglich verschiedene Drücke und Dichten im Material auf. Übersteigt die vorherrschende Phononentemperatur materialspezifische Schwellwerte, wie beispielsweise die Schmelz- oder Verdampfungstemperatur, so werden entsprechende Phasenübergänge induziert und die Dynamik von Druck und Dichte bewirkt eine Materialablation. Die Parameter können idealisiert durch die Lösung der Eulergleichungen entlang der Oberflächennormalen (z -Koordinate) im Festkörper unter Zuhilfenahme von reflektierenden Randbedingungen beschrieben werden. Hierbei ändern sich Dichte ρ , Impuls (abhängig von der Advektionsgeschwindigkeit u), Druck p und Innere Energie ε orts- und zeitabhängig [11, 19, 26]. Die Kopplung der Eulergleichungen (speziell der Energiegleichung) mit dem Zwei-Temperatur-Modell ermöglicht die Verknüpfung des Advektions- und Diffusionsmodells und berücksichtigt damit den Laserpuls als Energiequelle sowie die zeit- und ortsabhängige Elektronen-Phononen-Kopplung. Folglich ermöglicht dies die zeit- und ortsabhängige Berechnung der Dichteverteilung im Material, wobei mithilfe eines Phasendiagramms für das jeweilige Material auch der Phasenzustand und folglich der Druck orts- und zeitabhängig dargestellt werden kann. Eine vollumfängliche Beschreibung dieses hydrodynamischen Zwei-Temperatur-Modells (HDTTM) sowie einige Beispiele findet sich in der Literatur [7, 11, 27]. [1]

3.2.2.1 Spallation

Ausgehend von der Bestrahlung der Materialoberfläche ergibt sich durch die Photoabsorption ein Anstieg der Elektronentemperatur und infolge der Elektron-Phonon-Kopplung eine Erhöhung der Phononentemperatur. Der infolge hoher Phononentemperaturen entstehende hohe Phononendruck p_Ω in den oberflächennahen Schichten induziert Spannungen, wodurch Stoßwellen erzeugt werden. Diese propagieren als zwei Verdichtungswellen in entgegengesetzte Richtungen entlang der Oberflächennormalen durch das Material. Die Richtung Oberfläche laufende Welle wird an dieser reflektiert, propagiert folglich als Verdünnungswellen zurück Richtung Materialinnenseite, und induziert dadurch Zugbelastungen [28]. Die erwähnte Verdichtungswelle hingegen bewirkt eine Druckerhöhung. Innerhalb dieses Zeitraums wird das Phononensystem weiter erwärmt, woraufhin das Material in die flüssige Phase übergeht. Die Verdünnungswelle

breitet sich nun durch das flüssige Material aus, welches sich daraufhin ausdehnt und das oberflächennahe Material in Richtung Vakuum beschleunigt [11]. Zudem sinkt der Gesamtdruck weit unter den Sättigungsdampfdruck und induziert die Keimbildung von Blasen an den Stellen des niedrigsten Drucks unterhalb der Oberfläche im gedehnten flüssigen Material, was als Kavitation bezeichnet wird [11]. Wenn die Zeitdauer unter vermindertem Druck die für die Blasenbildung benötigte Zeit übersteigt, werden die Blasen stabil und dehnen sich aus, wodurch die Ablation durch Spallation von flüssigem Material eingeleitet wird [11]. Zur Veranschaulichung ist die Spallation einer dünnen Schicht in der nachfolgenden Abbildung 3.4 dargestellt. Infolge der ortsabhängigen wirksamen Fluenz bei Anregung mit einer gaußförmigen räumlichen Intensitätsverteilung ergibt sich die größte Beschleunigung im Zentrum des spallierten Scheibchens und demnach, wie in der Abbildung schematisch dargestellt, eine Krümmung des Scheibchens abhängig von der Ausbreitungsgeschwindigkeit in z-Richtung $v_{z, \text{Spallation}}$. Fällt nun während der Spallation Probestrahlung auf das spallierte Scheibchen ein, so wird diese in Abhängigkeit von den optischen Eigenschaften des Materials teilweise reflektiert, absorbiert und transmittiert. Diese Effekte wiederholen sich an allen Grenzschichten, wie in der Abbildung dargestellt ist, wodurch die jeweils reflektierte Strahlung konstruktiv und destruktiv interferieren kann und bei der Aufnahme mit einer Kamera Newton-Ringe entstehen können [29]. Die Beobachtung des Spallationsvorgangs mittels orts- und zeitaufgelöster PPR ermöglicht die Darstellung der orts- und zeitabhängigen Änderung von Newton-Ringen. Dadurch lassen sich Rückschlüsse auf die Form und Ausbreitungsgeschwindigkeit der spallierten Schicht ziehen.

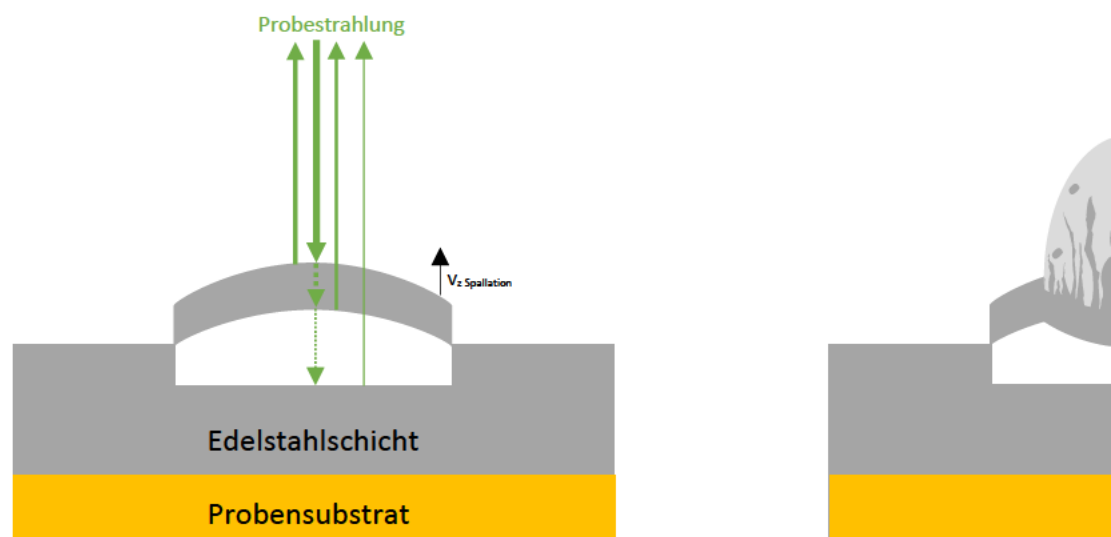


Abbildung 3.4: Schematische Darstellung der Spallation an einer dünnen Schicht sowie der damit verbundenen Mehrfachreflexion von einfallender Probestrahlung

3.2.2.2 Phasenexplosion

Bei hohen Fluenzen, wenn $H(x, y) > H_{\text{thr, Phasenexplosion}}$, wird der Ablationsprozess nahe der Oberfläche jedoch hauptsächlich durch die Phasenexplosion dominiert. Die Phasenexplosion wird durch homogenes explosives Sieden unter starker Gitterüberhitzung und rascher Zersetzung in Dampf- und Flüssigkeitströpfchen induziert. Dies geschieht bei Temperaturen von etwa $0.9 \cdot T_c$, wobei T_c die kritische Temperatur des Materials ist [30]. [1]

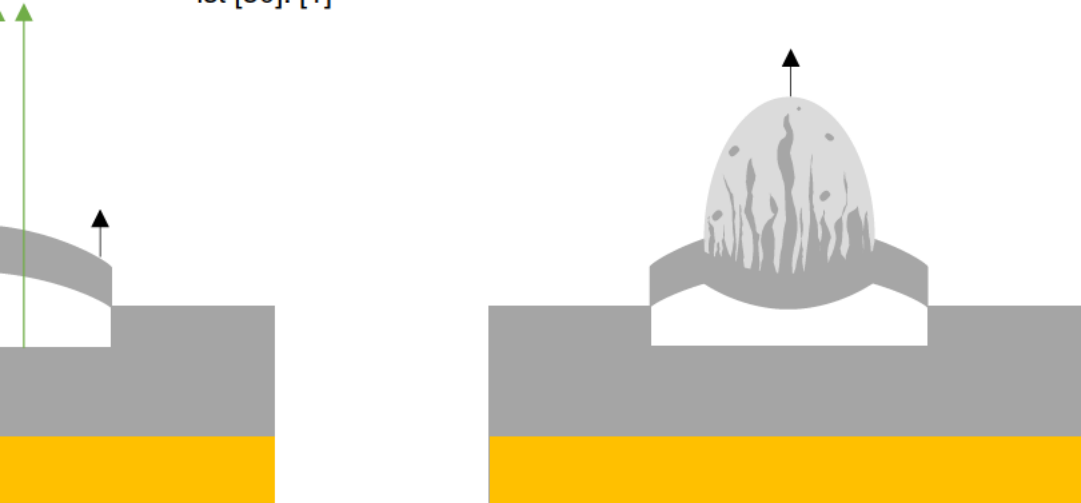


Abbildung 3.5: Schematische Darstellung der Spallation und Phasenexplosion an einer dünnen Schicht

Die vorgestellten Ablationsmechanismen sind in Abbildung 3.5 schematisch zusammengefasst. Bei Bestrahlung einer Materialoberfläche mit einem gaußförmigen räumlichen Intensitätsprofil ergibt sich demnach die größte Intensität im Zentrum der bestrahlten Fläche. Daraus folgt, dass T_e und folglich T_Ω in diesem Bereich am größten wird und somit die ablatierte Materie in diesem Bereich die größte Beschleunigung und Geschwindigkeit erfährt. Somit ergibt sich ein direkter Zusammenhang zwischen der wirksamen Fluenz und der räumlichen Verteilung der ablatierten Teilchen. Prinzipiell tritt die Phasenexplosion in Kombination mit der Spallation auf, da die notwendige Schwellfluenz oberhalb der für die reine Spallation liegt. Infolge der Ausbreitung der phasenexplodierten Teilchen nach oben wirkt ein Beschleunigungsvektor in die entgegengesetzte Richtung und bewirkt eine Verformung der spallatierten Schicht nach unten, was je nach Materialart, -dicke, wirksamer Fluenz, uvm. zu Materialrückständen in der Abtragsstruktur sorgen könnte [7].

4 Material und Methoden

4.1 Experimenteller Aufbau

Der experimentelle Aufbau besteht prinzipiell aus einer Pump- und Probestrahlungsquelle, mehreren optischen Bauteilen zur Parametervariation der Laserstrahlung, einer Doppelpulsverzögerungsstrecke, einem Pump-Probe Mikroskop (PPM) sowie schließlich aus der zu bestrahlenden Probe. Um einen Eindruck vom tatsächlichen Versuchsaufbau im Labor zu erhalten, sind die bedeutsamsten Komponenten in der nachfolgenden Abbildung 4.1 dargestellt.

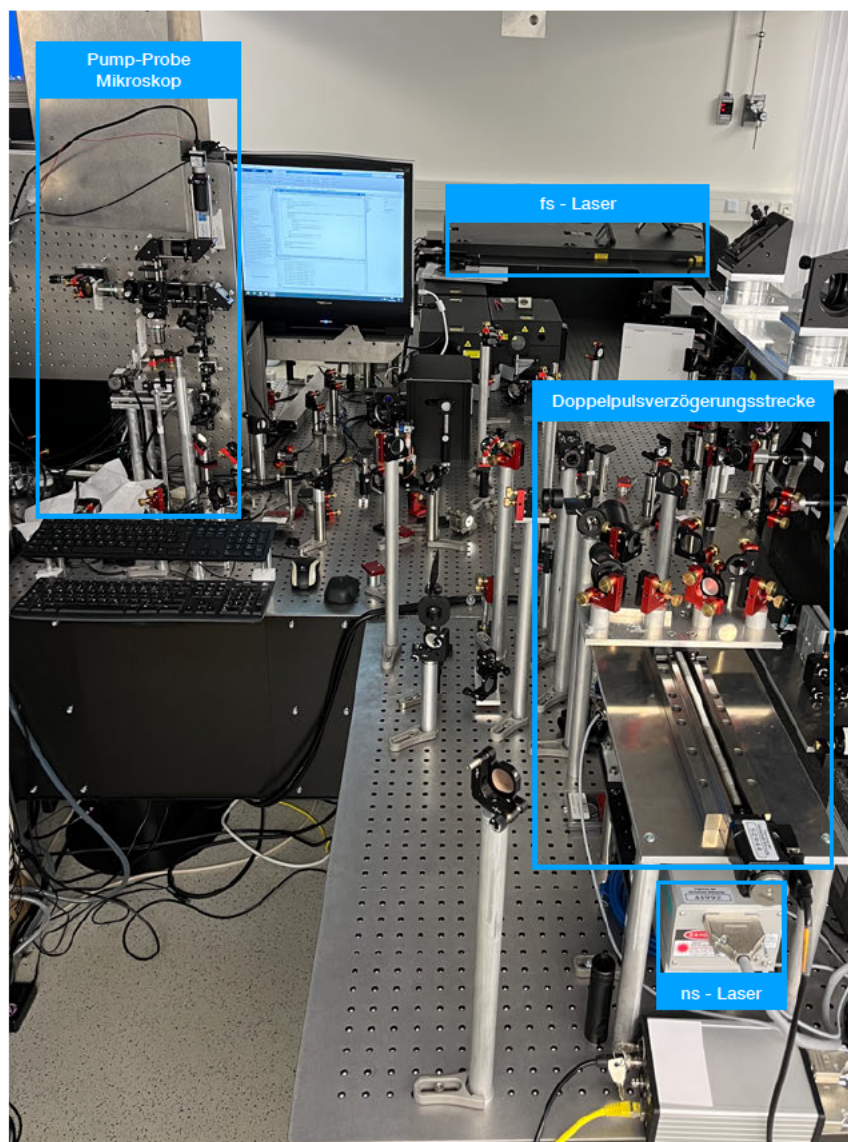


Abbildung 4.1: Experimenteller Versuchsaufbau im Labor

Ein detaillierter schematischer Überblick aller einzelnen Komponenten ist in Abbildung 4.2 gegeben.

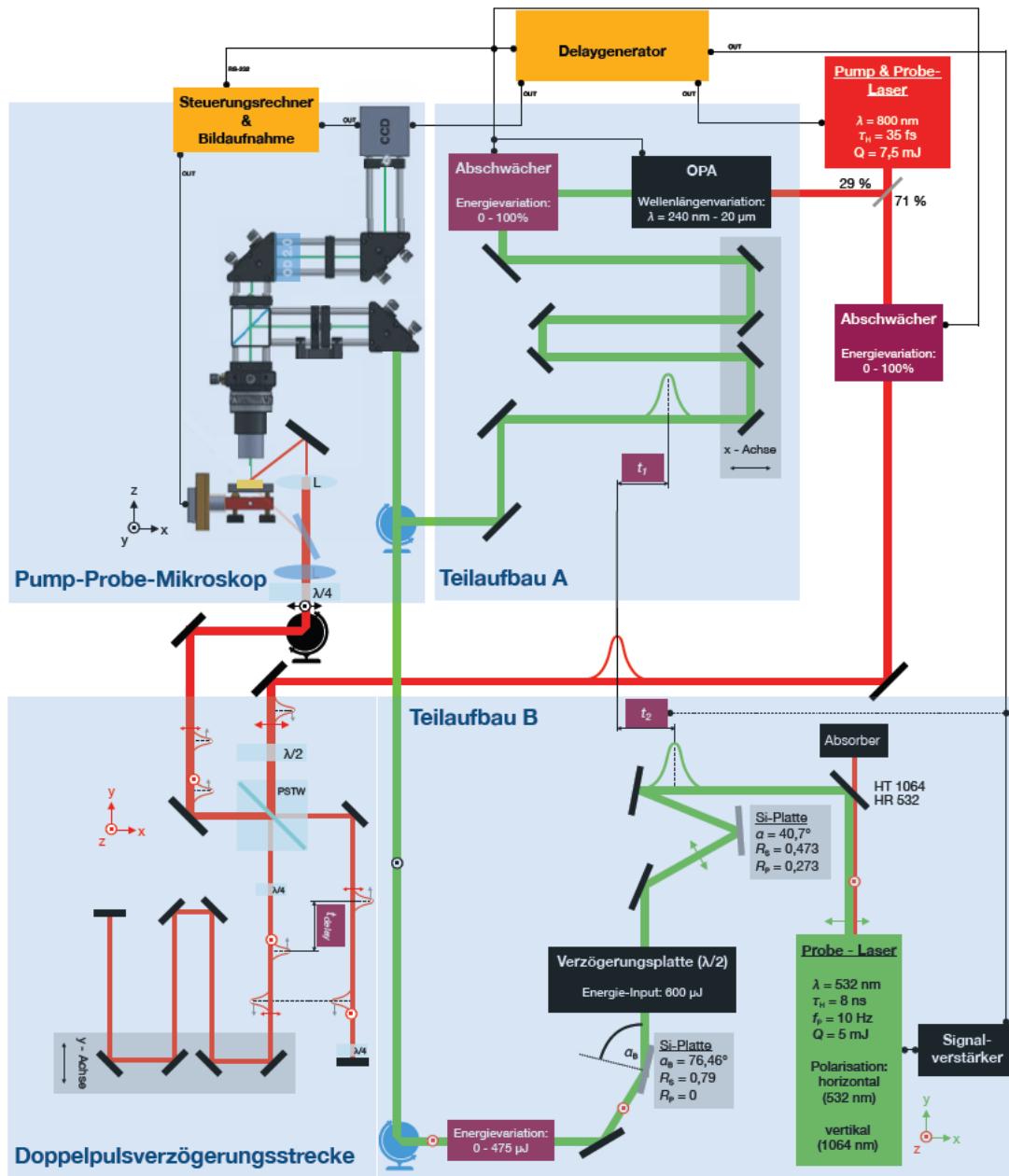


Abbildung 4.2: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus für die Messung der relativen Reflexionsgradänderung eines Probenmaterials nach Anregung mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung

Im folgenden wird die Erzeugung der Pump- und Probelaserstrahlung, die Doppelpulsverzögerungsstrecke und das Pump-Probe Mikroskop separat erläutert.

4.1.1 Pump-Probe Messaufbau

Zur Erzeugung der ultrakurz gepulsten Pump Laserstrahlung wird ein verstärkter Ti:Saphir Laser verwendet (Astrella, Coherent Inc., [31], $\lambda = 800 \text{ nm}$, $\tau_H \geq 35 \text{ fs}$, $f_P = 1 \text{ kHz}$, $Q = 7.5 \text{ mJ}$, $M^2 \geq 1.2$), wobei die erzeugte Laserstrahlung mit einem Strahlteiler im Verhältnis von 2:5 in zwei Teilstrahlen aufgeteilt wird. Im Gegensatz zur Pump Laserstrahlung, kann die Probelaserstrahlung durch die zwei verschiedenen Teilaufbauten A und B bereitgestellt werden. Für den in Abbildung 4.2 dargestellten Teilaufbau A dient der leistungsstärkere Teilstrahl als Pumpstrahlungsquelle mit $Q_{\text{Pump}} \lesssim 5.4 \text{ mJ}$ und der leistungsärmere Teilstrahl als Probestrahungsquelle. Die Wellenlänge der Probestrahlung lässt sich mithilfe eines optisch parametrischen Verstärkers (TOPAS Prime, Light Conversion Inc., [31]) automatisiert im Bereich von 260 nm bis 14 μm variieren. Zudem kann Q_{Pump} und Q_{Probe} automatisiert im Bereich von 0 % bis 100 % abgeschwächt werden. Der Teilaufbau A ermöglicht durch Einsatz einer mechanischen Verzögerungsstrecke eine zeitliche Verzögerung zwischen der Pump- und Probestrahlung von $t_1 = t_0 + 4 \text{ ns}$ mit einer theoretisch minimalen zeitlichen Auflösung von 13.33 fs, die aus der Schrittweite $dx = 1 \mu\text{m}$ der Achse in Kombination mit vier Umlenkspiegeln resultiert. Die reale zeitliche Auflösung $t_{1,\text{min}} \approx 50 \text{ fs}$ ist zudem von der Pulsdauer der Probelaserstrahlung begrenzt, welche einen positiven Chirp aufgrund der auftretenden chromatischen Dispersion im optischen Medium des Objektivs auf $\tau_H \approx 50 \text{ fs}$ erfährt [7]. Die Probestrahlung wird anschließend in das PPM eingekoppelt.

Der Teilaufbau B ist auch in Abbildung 4.2 dargestellt und verwendet ebenfalls den leistungsstärkeren Teilstrahl des verstärkten Ti:Saphir Lasers als Pumpstrahlungsquelle mit $Q_{\text{Pump}} \lesssim 5.4 \text{ mJ}$. Hingegen als Probestrahungsquelle kommt ein diodengepumpter, gütegeschalteter Nd:YAG Laser (Q1B-10-1064-TH, Quantum Light Instruments Ltd., $\lambda_{\text{Probe}} = 1064 \text{ nm}$, $\tau_{H,\text{Probe}} < 8 \text{ ns}$, $f_{P,\text{Probe}} = 10 \text{ Hz}$, $Q_{\text{Probe}} = 5 \text{ mJ}$, $M_{\text{Probe}}^2 \lesssim 1.85$ ([32])) zum Einsatz. Mittels eines frequenzverdoppelnden Kristalls wird die zweite harmonische Wellenlänge aus der fundamentalen Wellenlänge der Probestrahlung erzeugt. Da die Fundamentale und zweite Harmonische kollinear propagieren, wird ein dielektrischer Spiegel zur Trennung beider Anteile verwendet. Ausschließlich der Strahlungsanteil mit $\lambda_{\text{Pump}} = 532 \text{ nm}$ wird am dielektrischen Spiegel reflektiert und kann somit bis zur Probenoberfläche gelangen, während die fundamentale Wellenlänge transmittiert wird und in einen Absorber gelangt. Die Energievariation der Probestrahlung geschieht durch manuelle Drehung einer $\lambda/2$ -Platte (0° bis 45°), im Zusammenspiel mit der danach im Strahlengang eingebrachten Siliziumplatte, auf welche unter dem Brewsterwinkel eingestrahlt wird. Liegt die optische Achse der $\lambda/2$ -Platte in der Ebene der horizontal polarisierten Probestrahlung, so ist diese bei Bestrahlung der Siliziumplatte parallel zur Einfallsebene polarisiert und wird entsprechend dem Brewster Gesetz nicht reflektiert. Wird die $\lambda/2$ -Platte jedoch manuell um 45° gedreht, so ergibt sich, infolge der in der $\lambda/2$ -Platte auftretenden Doppelbrechung, eine Drehung der Polarisationssebene um 90° , wodurch anschließend eine vertikale Polarisation der Probestrahlung vorliegt. Somit ist diese, bei Bestrahlung der Siliziumplatte, senkrecht zur Einfallsebene polarisiert und wird entsprechend dem Brewster Gesetz zu rund 79 % reflektiert. Dadurch kann Q_{Pump}

im Bereich von nahezu 0 bis $475 \mu\text{J}$ variiert werden. Anschließend wird die Probestrahlung, wie auch bei Teilaufbau A, in das PPM eingestrahlt. Durch Einsatz eines Delaygenerators (SDG Elite, Coherent Inc.) kann der Triggereingang des Pumpasers und des Probelasers angesteuert werden. Dadurch kann eine zeitliche Verzögerung zwischen der Pump- und Probestrahlung von $t_2 = t_0 + 800 \mu\text{s}$, welche eine durch die Pulsdauer ($\tau_{\text{H,Probe}} < 2.7 \text{ ns}$) und den Jitter begrenzte minimale zeitliche Auflösung $t_{2,\text{min}} = 2.7 \text{ ns}$ aufweist, eingestellt werden. [32]

Eine detaillierte Beschreibung der einzustellenden Parameter sowie der Geräteansteuerung findet sich in der Literatur [7, 32].

4.1.2 Doppelpulserzeugung

Zur Durchführung von Doppelpuls-Pump-Probe Experimenten kommt im Pumpstrahlengang eine Doppelpulsverzögerungsstrecke zum Einsatz, dessen detaillierte Validierung in der Literatur zu finden ist [2]. Der schematische Aufbau der Doppelpulsverzögerungsstrecke ist in Abbildung 4.3 dargestellt.

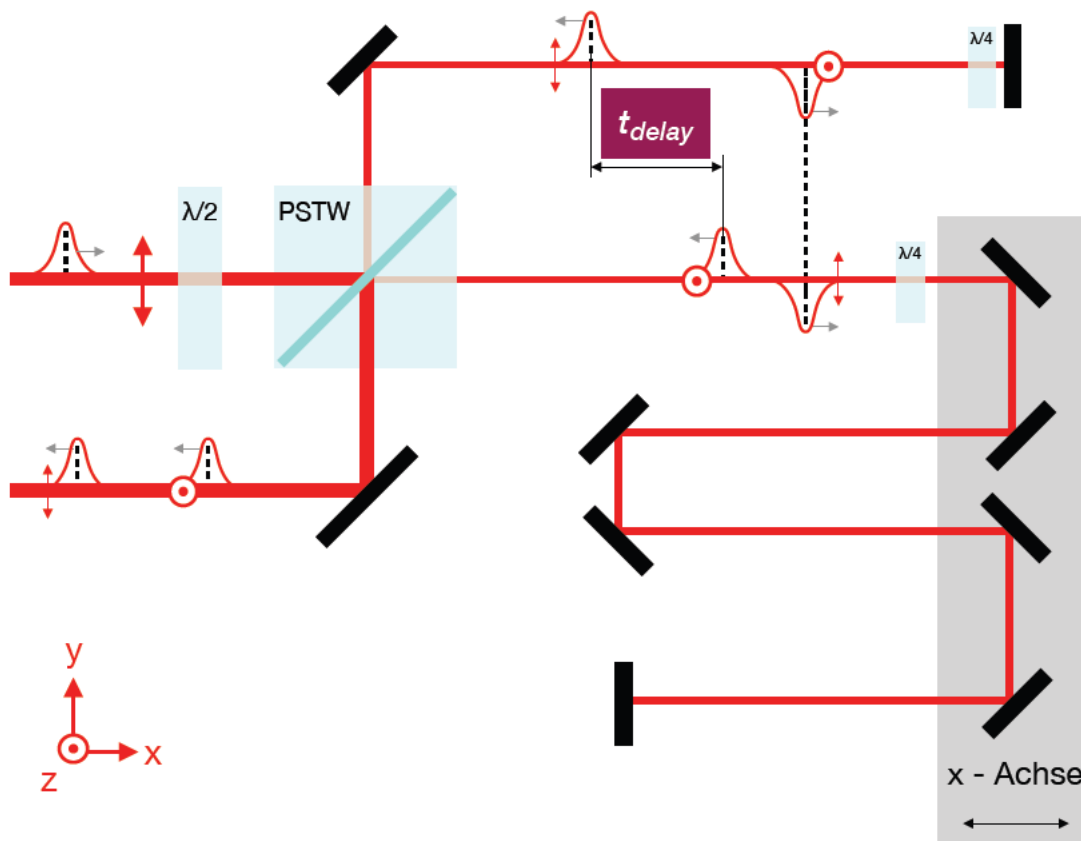


Abbildung 4.3: Schematischer Aufbau der Doppelpulsverzögerungsstrecke

Die eingestrahelte Pumpstrahlung ist parallel zur x - y -Ebene polarisiert und erfährt nach

Durchstrahlen der $\lambda/2$ -Platte eine Drehung der Polarisationsrichtung um 45° , wodurch folglich die linear polarisierte Strahlung zu gleichen Anteilen eine parallele und senkrechte Komponente aufweist. Mithilfe eines anschließend im Strahlengang eingebrachten polarisationsabhängigen Strahlteilerwürfels (PSTW) wird die Pumpstrahlung in zwei Teilstrahlen aufgespalten. Hierbei wird die senkrechte Komponente reflektiert und durchstrahlt nach einer gewissen Wegstrecke eine $\lambda/4$ -Platte, wodurch die Strahlung nun zirkular polarisiert ist. Anschließend wird die Strahlung an einem Spiegel senkrecht rückreflektiert und durchstrahlt erneut die $\lambda/4$ -Platte, wodurch diese nun parallel polarisiert ist und folglich am PSTW transmittiert und anschließend in das PPM eingekoppelt wird. Hingegen wird die eingangs parallele Komponente am PSTW transmittiert und an einer danach befindlichen $\lambda/4$ -Platte zirkular polarisiert. Anschließend wird die Strahlung über vier Umlenkspiegel, welche auf einer motorisierten x -Achse montiert sind, und über zwei statische Umlenkspiegel auf einen ebenfalls statischen Spiegel abgelenkt und an diesem senkrecht rückreflektiert. Daraufhin wird die $\lambda/4$ -Platte erneut durchstrahlt, wodurch die Pumpstrahlung nun senkrecht polarisiert ist und folglich am PSTW reflektiert und anschließend ebenfalls in das PPM eingekoppelt wird. Durch Bewegung der x -Achse kann somit die optische Weglänge zwischen den beiden erzeugten Teilstrahlpulsen relativ zueinander verändert werden, wodurch sich ein zeitlicher Versatz $0 \text{ fs} \leq t_{\text{delay}} \leq 8 \text{ ns}$ mit einer minimalen zeitlichen Auflösung von $t_{\text{delay, min}} \approx 66.67 \text{ fs}$, resultierend aus der Schrittweite $dx = 2.5 \mu\text{m}$ der Achse, ergibt.

4.1.3 Vorder- und rückseitige orts aufgelöste Pump-Probe Reflektometrie

Abbildung 4.6 zeigt den realen Laboraufbau des PPM. Die Probelerstrahlung wird über zwei Umlenkspiegel (1 - grün) in das Pump-Probe Reflektometer eingekoppelt und mittels einer Linse ($f = 150 \text{ mm}$, $\overline{24} = 190 \text{ mm}$) (2) fokussiert. Ein Strahlteiler (3) reflektiert 50% der Probelerstrahlung in Richtung eines Mikroskopobjektivs (5), während die restlichen 50% transmittiert und von einem Absorber (4) absorbiert werden. Die durch das Mikroskopobjektiv transmittierte Probelerstrahlung wird anschließend auf die Probenoberfläche fokussiert. Da die Probelerstrahlung durch die Linse (2) nicht kollimiert durch das Mikroskopobjektiv propagiert, liegt die Fokustaille der Probelerstrahlung unterhalb der Brennebene des Objektivs und damit unterhalb der Probenoberfläche, wie anhand des schematischen Strahlengangs in Abbildung 4.6 verdeutlicht ist. Anschließend wird die Probestrahlung an der Probenoberfläche (6) rückreflektiert, am Objektiv (20-fach, $NA = 0,4$) (5) fokussiert und am Strahlteiler (3) erneut in zwei 50%-ige Anteile aufgespalten, wobei ein Teil reflektiert und ein Teil transmittiert wird. Somit können etwa 25% der Probelerstrahlung für die Abbildung im PPM verwendet werden. Der transmittierte Teilstrahl wird folglich über einen Umlenkspiegel nach rechts auf die Tubuslinse ($f = 200 \text{ mm}$) (8) umgelenkt. An dieser Stelle wird die Strahlung wieder fokussiert und am rechten Spiegel (1) nach oben auf den CCD-Sensor (1280 x 1024 Pixel, Pixelgröße = $4.8 \mu\text{m}$, 10 bit) (9) umgelenkt. Da die Probestrahlung als Beleuch-

tungsquelle für den CCD-Sensor der Kamera (9) dient, ist zu beachten, dass der auf der Probenoberfläche auftreffende Strahldurchmesser größer als der Fokusdurchmesser ist und somit eine homogene Ausleuchtung des CCD-Sensors ermöglicht wird. Der Einsatz des keilförmigen Strahlteilers vermeidet Geisterbilder im Kamerabild, welche durch Reflexe an der Strahlteilerückseite auftreten würden.

Die kollimierte Pumpstrahlung, welche von rechts einfällt und linear polarisiert ist, wird mithilfe eines Spiegels (1 - rot) nach oben umgelenkt und durchstrahlt eine $\lambda/4$ -Verzögerungsplatte (10), welche so justiert wurde, dass die Pumpstrahlung anschließend zirkular polarisiert ist. Die Bestrahlung der Probe mit der Pumplaserstrahlung kann mithilfe eines Klappspiegelaufbaus von oben oder unten durchgeführt werden. Ein Umbau bedarf nur wenige Sekunden und ermöglicht somit ein flexibles und effizientes Arbeiten. Durch ein Umdrehen der Probe kann somit immer die Probenoberfläche mit der Pumpstrahlung bestrahlt werden, wobei die Probestrahlung hingegen im ersten Fall ebenfalls die Probenoberfläche, im zweiten die Probenrückseite bestrahlt. Wird die Pump- und Probestrahlung für PPR-Experimente von oben auf die Probe eingestrahlt, so wird in dieser Arbeit von der vorderseitigen PPR gesprochen, wie in Abbildung 4.4 schematisch dargestellt ist.

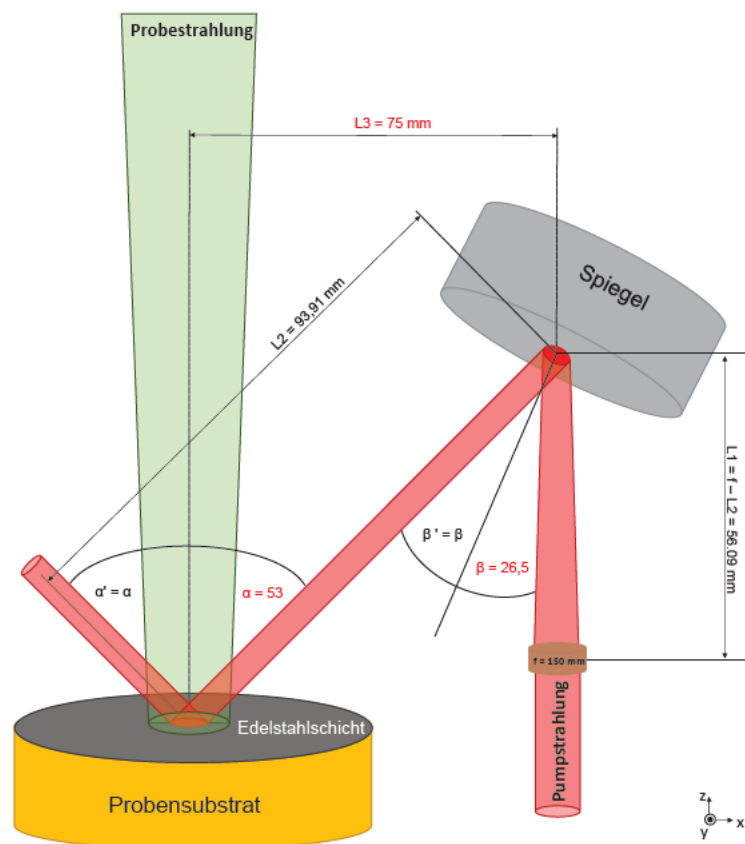


Abbildung 4.4: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur vorderseitigen Pump-Probe Reflektometrie

Hingegen, wenn die Pumpstrahlung von unten auf die Probenoberfläche und die Probestrahlung von oben auf die Probenrückseite eingestrahlt wird, wird nachfolgend von der rückseitigen PPR gesprochen, wie schematisch in Abbildung 4.5 dargestellt ist.

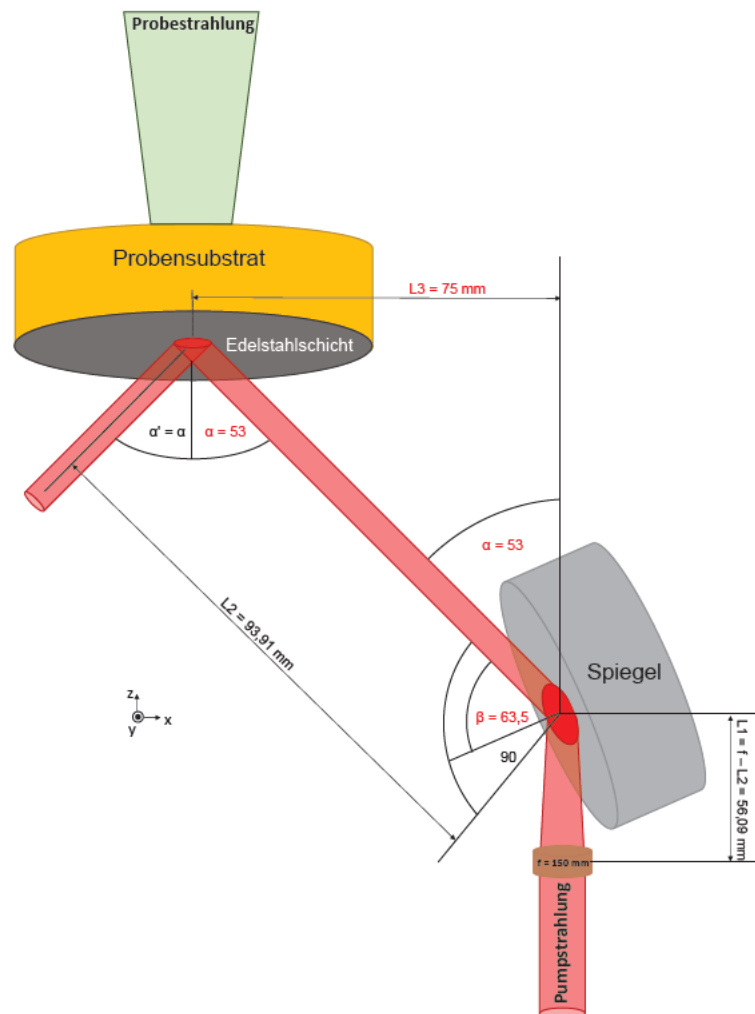


Abbildung 4.5: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur rückseitigen Pump-Probe Reflektometrie

Bei der Bestrahlung der Probe von unten durchstrahlt die Pumpstrahlung im Weiteren Verlauf, wie in der nachfolgenden Abbildung 4.6 dargestellt, eine Fokussierlinse ($f = 150 \text{ mm}$) (11) und gelangt zum darübergelegenen Spiegel (1 - rot), welcher die Pumpstrahlung auf die Probe unter einem Einfallswinkel zur Probenoberflächennormalen von 53° umlenkt. Bei Bestrahlung der Probe von oben kann (11 + 1) vom Magnethalter entfernt werden, wodurch somit die Pumpstrahlung (11 + 1) durchstrahlt und auf die Probenoberfläche, ebenfalls unter einem Einfallswinkel zur Probenoberflächennormalen von 53° , fokussiert wird. (11) muss so justiert sein, dass der Pumpstrahlfokus auf der Probenoberfläche liegt, wobei zudem durch Justage von (1 - rot) sich die räumlichen Intensitätsverteilungen von Pump- und Probestrahlung auf der Probenoberfläche überlagern müssen. Die z -Position unterschiedlich dicker Proben kann mithilfe der mechani-

schen z -Achse (14) so justiert werden, dass ein scharfes Bild entsteht und gleichzeitig der Pumpstrahlfokus weiterhin auf der Probenoberfläche liegt. Mit Hilfe des Probenhalters (6) lässt sich die Verkippung der x - y -Ebene entsprechend so einstellen, dass die Probenoberfläche parallel zu den Verfahrwegen der x - und y -Achse ist, damit das Bild beim Verfahren der Achsen nicht unscharf wird. Mithilfe des elektronisch ansteuerbaren x - y -Achssystems (12 + 13) kann die Probenoberfläche automatisiert, relativ zur einfallenden Pump- und Probestrahlung, positioniert werden.

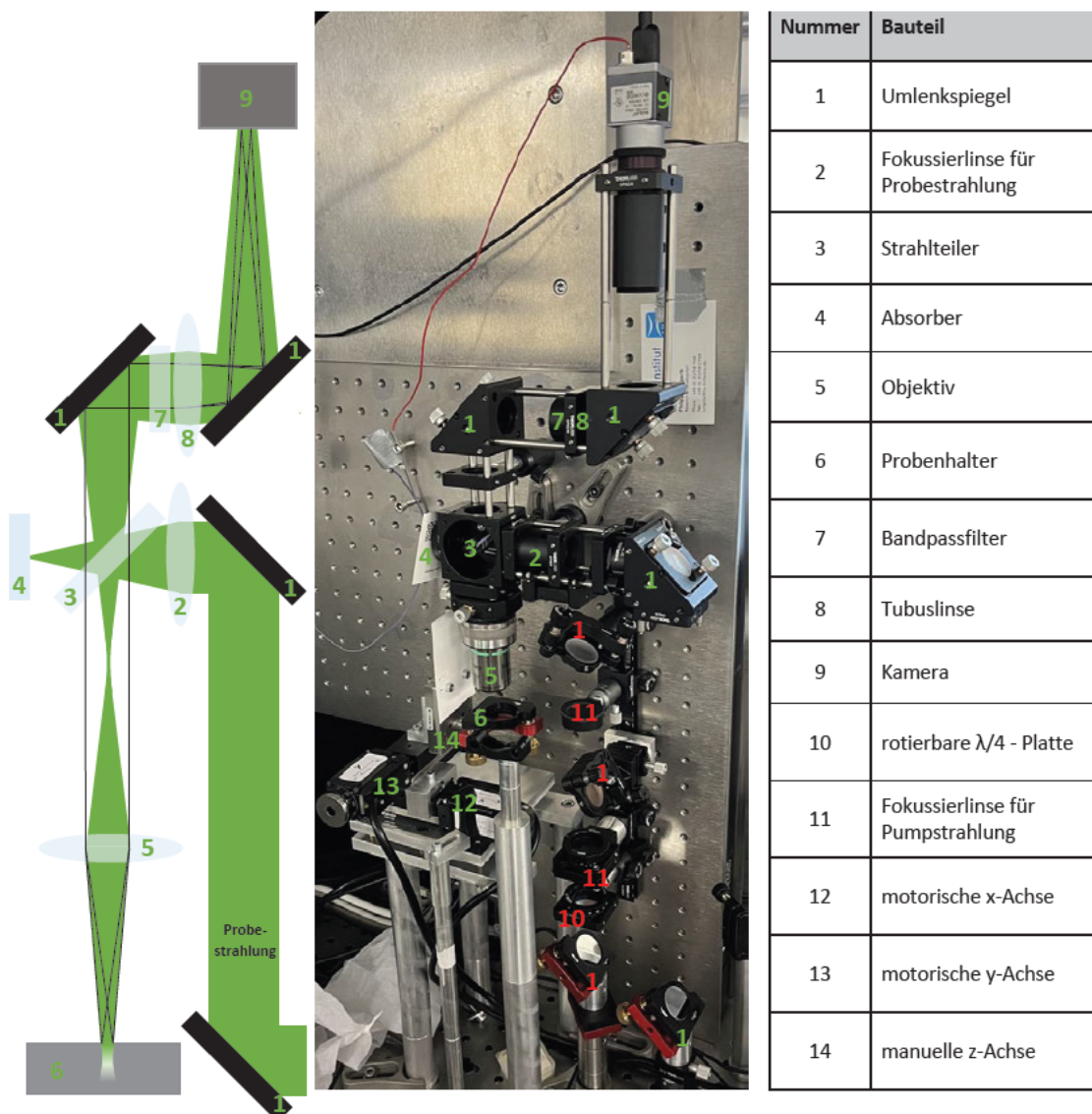


Abbildung 4.6: Schematische Darstellung des Strahlengangs der Probestrahlung im Pump-Probe Mikroskops (links), Abbildung des realen PPM (Mitte) sowie eine Tabelle zur Auflistung der Bauteile des PPM (rechts)

4.1.4 Beschreibung der Pump-Probe-Reflektometriemessung

Mithilfe des vorgestellten Versuchsaufbaus können die PPR-Messungen über einen Zeitbereich von $t_{\text{ges,max}} = 800 \mu\text{s}$ durchgeführt werden. Dafür wird im ersten Schritt eine Messung mit Teilaufbau A für eine hohe zeitliche Auflösung von $\Delta t = 50 \text{ fs}$ innerhalb des Zeitbereichs 0 bis 4 ns durchgeführt. Dabei wird die mechanische Verzögerungsstrecke angesteuert und somit bei jedem Messschritt die gewünschte Verzögerung zwischen Pump- und Probestrahlungspuls eingestellt. Da die PPR-Messungen oberhalb der materialspezifischen Schwellfluenz durchgeführt werden, induziert die einfallende Pumpstrahlung einen irreversiblen Schichtabtrag, weshalb zwischen den einzelnen Messschritten jeweils eine neue Position auf der Probenoberfläche angefahren werden muss. Anschließend wird im zweiten Schritt eine erneute Messung mit dem Teilaufbau B für eine zeitliche Auflösung von $\Delta t = 2.7 \text{ ns}$ innerhalb des Zeitbereichs 0 bis 800 μs durchgeführt. Der Umbau von Teilaufbau A zu B erfordert den Einsatz eines optischen Filters (OD 2.0) im PPM kurz vor der CCD-Kamera, damit die Kamera durch die Probestrahlung des Teilaufbau B nicht überbelichtet wird. Des Weiteren muss ein mittels Magnethalter befestigter Umlenkspiegel, welcher zur Einkopplung der Probestrahlung in das PPM dient, ausgetauscht werden. Die Komponenten lassen sich innerhalb weniger Sekunden austauschen und sind in Abbildung 4.2 in hellblau dargestellt. Eine detaillierte Beschreibung des Messvorgangs findet sich in der Literatur [32]. [1]

Mit der Pump-Probe Reflektometriemessung kann die relative Änderung des Reflexionsgrades mit

$$\frac{\Delta R}{R} = \frac{(R_i - b_i) - (R_0 - b_0)}{(R_0 - b_0)} \quad (4.1)$$

ermittelt werden. Hierzu werden, wie in Abbildung 4.7 dargestellt, Bilder von nur der Probestrahlung R_0 , der Pump- und Probestrahlung R_i , nur dem Hintergrundrauschen b_0 , und dem Hintergrundrauschen und der Pumpstreuung b_i mit der Kamera des PPM aufgenommen, nach Gleichung 4.1 miteinander verrechnet und dargestellt. [32]

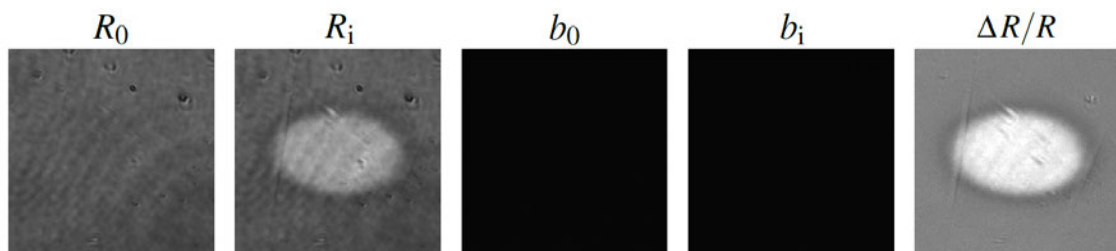


Abbildung 4.7: Bildaufnahmen einer Probenoberfläche von nur Probestrahlung R_0 , Pump- und Probestrahlung R_i , nur Hintergrundrauschen b_0 , Hintergrundrauschen und Pumpstreuung b_i und der berechneten relativen Änderung des Reflexionsgrades $\Delta R/R$

Alle zeitaufgelösten Messungen werden in Abhängigkeit von der zeitlichen Referenz t_0 dargestellt. Die zeitliche Referenz t_0 entspricht dabei dem Zeitpunkt, bei dem die zeit-

lichen Intensitätsmaxima von Pump- und Probestrahlungspuls gleichzeitig auf der Probenoberfläche auftreten [7]. [32]

Für eine erste Näherung wurde durch Anpassung des zeitlichen Offsets zwischen dem Pump- und Probestrahlungspuls t_0 an einer Siliziumprobe empirisch ermittelt und entspricht in guter Näherung dem Zeitpunkt, bei der eine erste Änderung von $\Delta R/R$ im Kamerabild detektiert werden konnte. Anschließend wurde eine PPR-Messung mit dem unverzögerten Pumpstrahlungsteilpuls durchgeführt und $\Delta R/R$ zeit- und orts aufgelöst bei $x = 0$, wie in der nachfolgenden Abbildung 4.8 (links) ersichtlich, dargestellt.

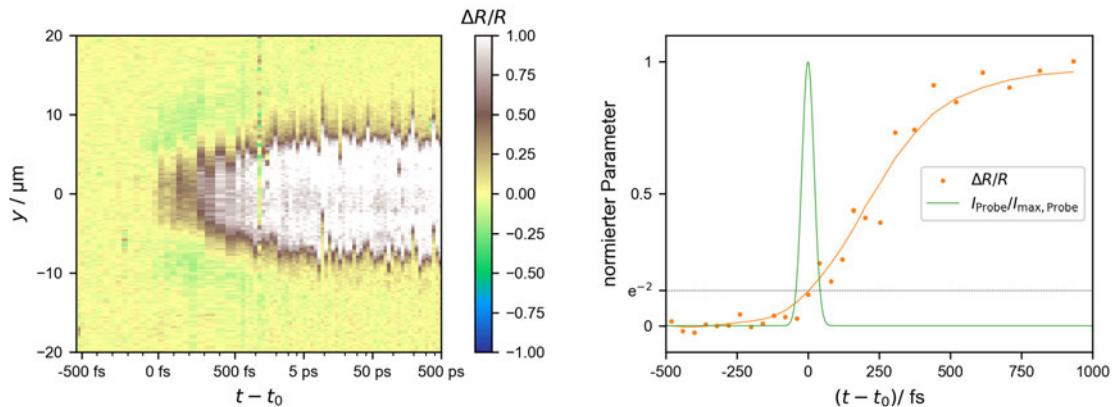


Abbildung 4.8: Bestimmung der zeitlichen Referenz t_0 an Silizium anhand der transienten relativen Änderung der Reflektivität

Anhand dieser Messergebnisse wurde $\Delta R/R(t)$ bei $x, y = 0$ normiert aufgetragen und der Zeitpunkt, zu dem $\Delta R/R$ auf e^{-2} angestiegen ist, als zeitliche Referenz t_0 definiert (siehe Abbildung 4.8 (rechts)).

Wie in Abbildung 4.9 ersichtlich, ergibt sich zwischen dem unverzögerten Teilpuls und dem verzögerten Teilpuls ein zeitlicher Offset von etwa 133 fs. Demnach weicht t_0 für den verzögerten Teilpuls um diesen Offset ab, was sich ebenfalls auf den Doppelpuls auswirkt. Dieser Offset entspricht der zweifachen minimalen zeitlichen Auflösung der Doppelpulsverzögerungsstrecke und lässt sich daher kaum genauer einstellen. Da mit den PPR-Messungen deutlich größere Zeitbereiche untersucht werden, ist dieser Fehler als gering zu bewerten, sollte jedoch beachtet und bei jeder Messung kontrolliert werden. Für die Pumpbestrahlung der Probe von unten wurde für die Ermittlung von t_0 eine mit der Schicht nach unten zeigende 20 nm dünne Goldschicht verwendet. Hierbei wurde die Änderung des Reflexionsgrades von der Rückseite detektiert, wie in Abbildung 4.9 (unten) dargestellt ist.

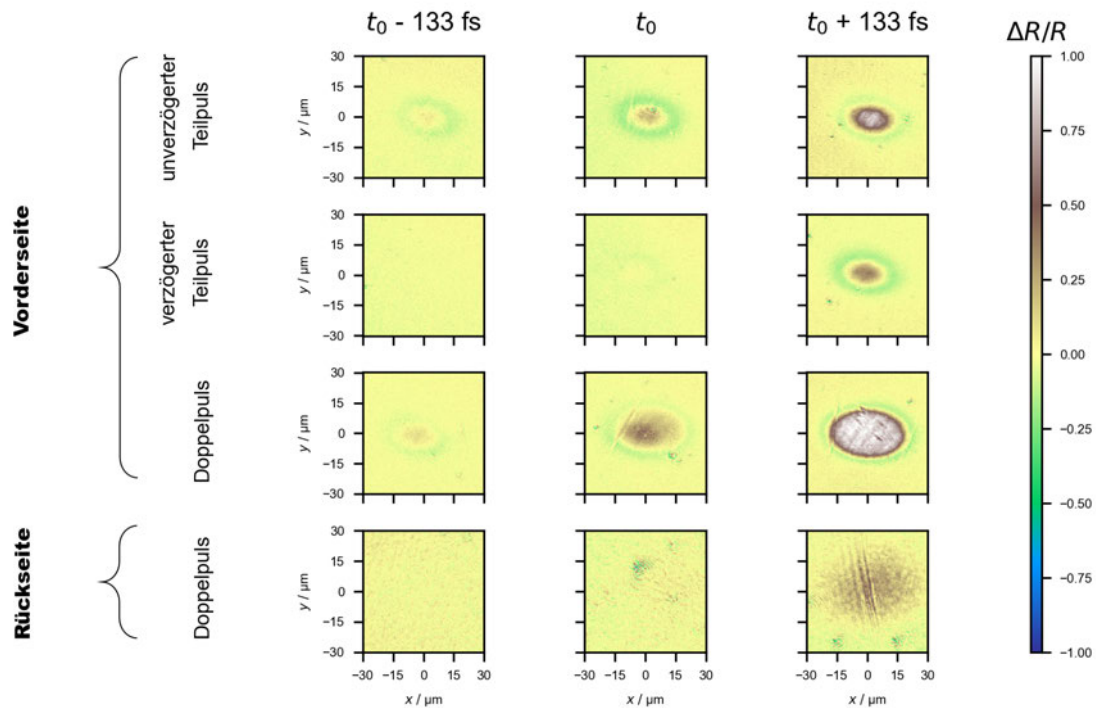


Abbildung 4.9: Darstellung des zeitlichen Offsets zwischen den Pumpstrahlungseinzelpulsen sowie von t_0 bei vorder- und rückseitiger PPR

Anhand einer exemplarischen Messung wird folglich die Vorgehensweise aufgezeigt, wie die Messergebnisse der PPR-Messungen ausgewertet werden. Die Datenauswertung erfolgt mithilfe eines eigens programmierten Quellcodes in der Programmiersprache Python, hauptsächlich unter Verwendung des Programmpaketes "Matplotlib". Die bei den PPR-Messungen für jeden Zeitschritt aufgenommenen Bilder weisen untereinander eine Verschiebung in der x - y -Position auf, ausgelöst durch Positionsschwankungen der Pumplaserstrahlung zwischen den einzelnen Pulsen. Um eine Vergleichbarkeit zu gewährleisten werden die einzelnen Bilder ausgerichtet. In der nachfolgenden Abbildung 4.10 wird aufgezeigt, wie die in Kapitel 5.2 verwendeten Abbildungen bzw. der zeitaufgelöste Verlauf von $\Delta R/R$ über y bei $x = 0$ entstehen. So wird jeweils die Messreihe, welche mit Teilaufbau A bzw. Teilaufbau B aufgenommen wurde, eingelesen und die einzelnen Bilder den jeweiligen relativen Zeitschritten t_1 bzw. t_2 zugeordnet. Ausgehend von der beschriebenen Ermittlung von t_0 an Silizium wird dementsprechend $t - t_0$ ermittelt und somit absolut den einzelnen Bildern zugeordnet. Demnach ist $\Delta R/R(x, y)$ in der Abbildung 4.10 a) dargestellt, wobei t_0 dem relativen Zeitschritt der Messung $t_1 = 600$ fs entspricht. $\Delta R/R(x, y)$ für den letzten Zeitschritt der Messung bei $t_1 = 3.3$ ns ist in Abbildung 4.10 b) dargestellt, in e) die über t_1 zeitaufgelöste Änderung von $\Delta R/R(t_1, y)$ bei $x = 0$ sowie in g) bei $x, y = 0$. Für den Teilaufbau B mit den relativen Zeitschritten t_2 ergibt sich die Darstellung analog. Um eine Darstellung der transienten relativen Reflexionsgradänderung zu erhalten, werden die beiden zeitaufgelösten Verläufe von $\Delta R/R(y)$ zu einem Verlauf $\Delta R/R(t - t_0, y)$ zusammengefügt. In diesem Fall wird $\Delta R/R$ für den relativen Zeitschritt $t_2 = 16.3$ ns mit dem Zeitschritt $t - t_0 = 3.3$ ns, dh. dem letzten Zeit-

schrift welcher mit Teilaufbau A aufgenommen wurde, gleichgesetzt. Somit können die beiden Messungen, wie durch die grünen Pfeile angedeutet ist, in Abbildung 4.10 i) zusammengesetzt werden. Der Verlauf von $\Delta R/R$ bei x und $y = 0$ ist in Abbildung 4.10 j) dargestellt.

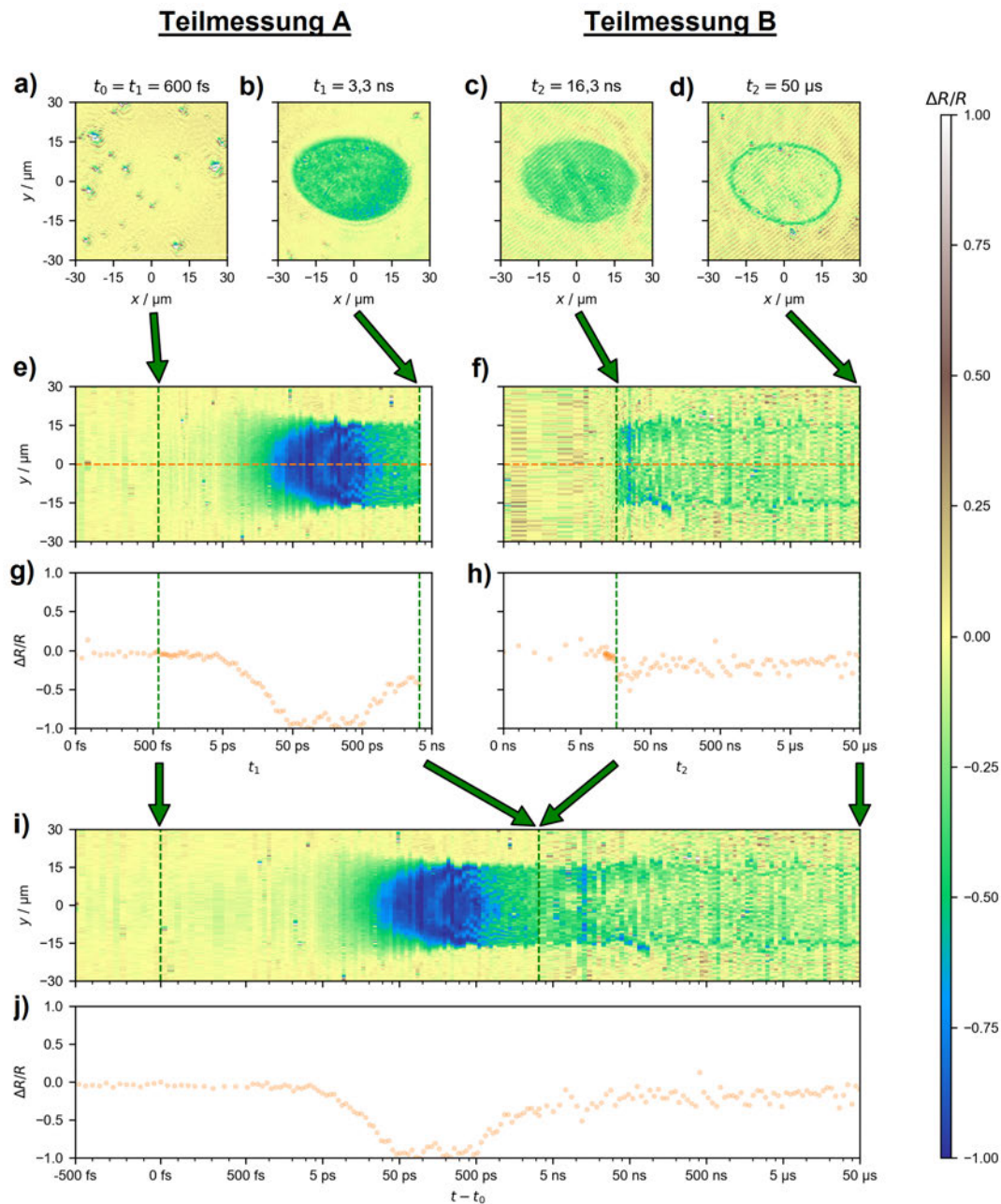


Abbildung 4.10: Beispiel für die schrittweise Erstellung der orts- und zeitaufgelösten relativen Reflexionsgradänderung infolge der PPR-Messung

4.2 Probencharakterisierung

Ein im Fahrzeugbau, in der Medizintechnik sowie in der Schmuckindustrie wegen seiner Korrosionsbeständigkeit häufig verwendeter Werkstoff ist Edelstahl, weshalb sich die Untersuchungen in dieser Arbeit ausschließlich mit diesem Material befassen.

Die für die Untersuchungen verwendete Probe besteht aus einem 1 mm dicken Glassubstrat und einer aufgetragenen 400 nm dünnen Edelstahlschicht, welche mit einer Magnetron-Sputteranlage hergestellt wurde. Der verwendete Edelstahl, auch als EN 1.4301 bezeichnet, besteht zu 69 % aus Eisen, 18,5 % aus Chrom und 9 % aus Nickel.

4.2.1 Thermophysikalische Parameter

Die Änderung der Elektronentemperatur hat, wie in Kapitel 3.2.1 beschrieben, einen Einfluss auf die thermophysikalischen Parameter und demnach auf die zeitabhängige Entwicklung von T_e und T_Ω . Ausgehend von der Literatur [22] wurden die temperaturabhängigen thermophysikalischen Parameter für eine ähnliche Edelstahllegierung (EN 1.4404), welche hauptsächlich zu 65,9 % aus Eisen, 16 % bis 18 % aus Chrom und 10,5 % bis 13 % aus Nickel besteht, berechnet und sind in Abbildung 4.11 dargestellt.

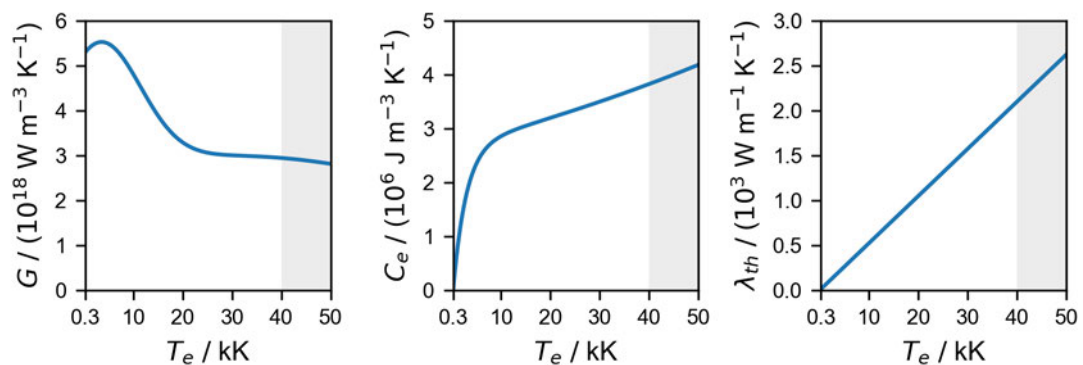


Abbildung 4.11: Darstellung der temperaturabhängigen thermophysikalischen Parameter ($C_{V,e}$, G , $\lambda_{th,e}$) von Edelstahl (EN 1.4404) in Abhängigkeit von T_e (weißer Bereich aus Literatur entnommen, grauer Bereich extrapoliert) [19]

Im Elektronentemperaturbereich zwischen Raumtemperatur und 3583 K steigt der Kopplungsfaktor G von $(5,3 \text{ auf } 5,5) \cdot 10^{18} \frac{\text{W}}{\text{m}^3 \cdot \text{K}}$ leicht an, sinkt bis 20 kK auf $3,3 \cdot 10^{18} \frac{\text{W}}{\text{m}^3 \cdot \text{K}}$ und verzeichnet bis 50 kK ausschließlich eine geringe Abnahme auf $2,8 \cdot 10^{18} \frac{\text{W}}{\text{m}^3 \cdot \text{K}}$. Die spezifische Wärmekapazität des Elektronensystems bei konstantem Volumen $C_{V,e}$ weist eine starke Zunahme im Elektronentemperaturbereich zwischen Raumtemperatur und 10 kK von $(0,05 \text{ auf } 2,9) \cdot 10^6 \frac{\text{J}}{\text{m}^3 \cdot \text{K}}$ auf und steigt anschließend bis 50 kK linear auf $4,2 \cdot 10^6 \frac{\text{J}}{\text{m}^3 \cdot \text{K}}$ weiter an. Hingegen die Wärmeleitfähigkeit $\lambda_{th,e}$ des Elektronensystems

zeigt eine lineare Abhängigkeit zur Elektronentemperatur und beträgt bei Raumtemperatur $0.08 \cdot 10^3 \frac{\text{W}}{\text{m} \cdot \text{K}}$, bei 50 kK bereits $2.6 \cdot 10^3 \frac{\text{W}}{\text{m} \cdot \text{K}}$. Die hier vorgestellten Werte für die thermophysikalischen Parameter sind die Grundlage für die in dieser Arbeit berechneten Elektronen- und Phonontemperaturen unter Anwendung des TTM.

4.2.2 Optische Eigenschaften

Wie bereits in Kapitel 3.2.1 beschrieben, können die temperaturabhängigen optischen Eigenschaften theoretisch *ab initio* berechnet werden, wie hier für Edelstahl (EN 1.4301) in Abbildung 4.12 dargestellt. Hierfür wurden die Simulationsergebnisse der optischen Eigenschaften bei einer Wellenlänge von 800 nm und 400 nm für die Legierungselemente Eisen, Chrom und Nickel aus der Literatur [23] entnommen, nach deren jeweiligen Anteilen zur Berechnung verwendet [19] und für die Wellenlänge 532 nm interpoliert.

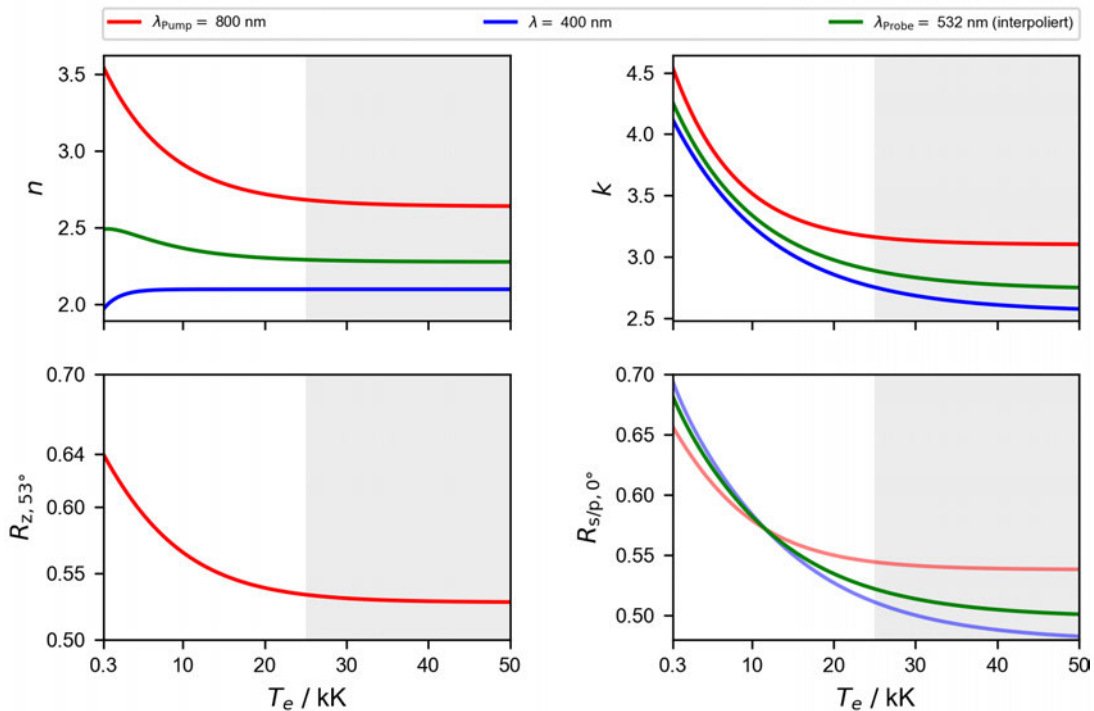


Abbildung 4.12: Darstellung der Brechzahl n , des Extinktionskoeffizienten k und des Reflexionsgrades $R_{z,53^\circ}$ sowie $R_{s/p,0^\circ}$ von Edelstahl (EN 1.4301) in Abhängigkeit von der Elektronentemperatur (weißer Bereich aus Literatur entnommen, grauer Bereich extrapoliert) [19]

Anhand der Ergebnisse ist ersichtlich, dass für die Wellenlänge der Pumpstrahlung $\lambda_{\text{pump}} = 800 \text{ nm}$ und Probestrahlung $\lambda_{\text{pump}} = 532 \text{ nm}$ im Elektronentemperaturbereich zwischen Raumtemperatur und 20 kK n , k , $R_{z,53^\circ}$ und $R_{s/p,0^\circ}$ stark sinken und anschließend bis 50 kK eine geringe Abnahme aufweisen.

Zur Ermittlung der spektralen Verläufe von n , k und R bei Raumtemperatur wurde die

400 nm dünne Edstahlschicht mittels Ellipsometrie (nanofilm_ep4, Accurion GmbH) unter dem Einfallswinkel $\Theta_0 = 50^\circ$ vermessen. Hierbei wurden die Ellipsometrieparameter Δ und Ψ von der Gerätesoftware ermittelt, wodurch sich schlussendlich n und k über

$$\rho = \frac{r_p}{r_s} = \tan \Psi e^{i\Delta} \quad \text{und} \quad (4.2)$$

$$\varepsilon_r = \tilde{n}_1^2 \cdot \sin^2 \theta_0 \cdot \left(1 + \left(\frac{1-\rho}{1+\rho} \right)^2 \cdot \tan^2 \theta_0 \right) \quad (4.3)$$

sowie Gleichung 3.10 ermitteln lassen, wobei ρ dem Verhältnis der Fresnelkoeffizienten paralleler r_p und senkrechter r_s Polarisation, ε_r der relativen Permittivität und θ_0 dem Einfallswinkel entspricht. Die Ergebnisse sind in Abbildung 4.13 dargestellt, wobei sich eine Erhöhung aller Parameter mit größer werdender Wellenlänge zeigt.

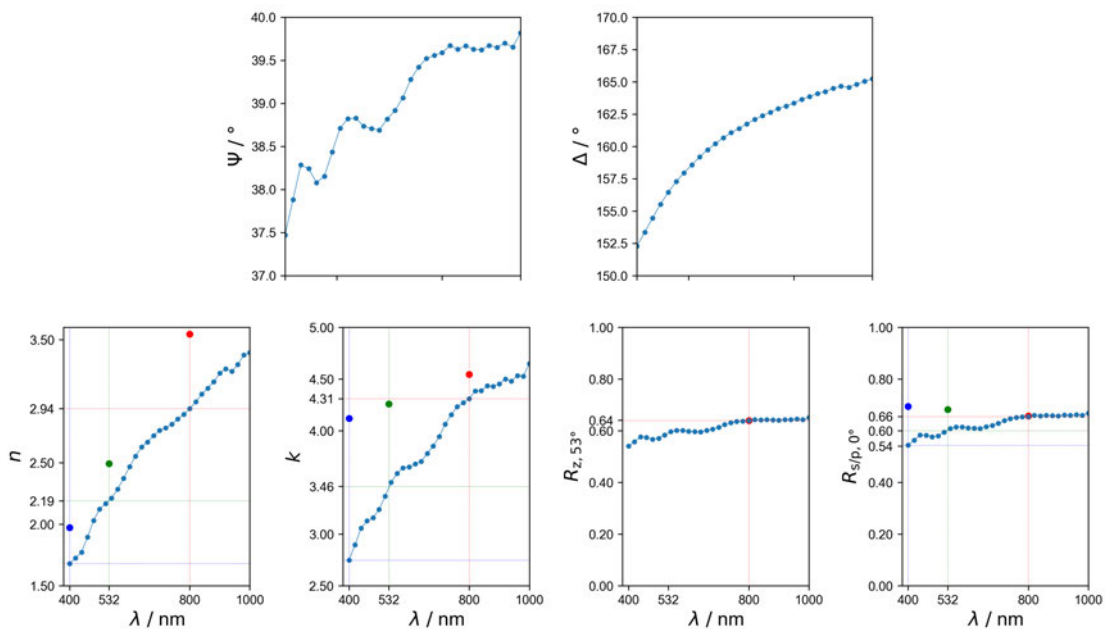


Abbildung 4.13: Darstellung der gemessenen (hellblau) Ellipsometrieparameter Ψ und Δ sowie der berechneten Brechzahl n , des Extinktionskoeffizienten k und Reflexionsgrades $R_{z,53^\circ}$ sowie $R_{s/p,0^\circ}$ der 400 nm dünnen Edstahlschicht (EN 1.4301) in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ (blaue, grüne und rote Punkte entsprechen den zugehörigen berechneten Werten entnommen aus Abbildung 4.12)

Für die Pumpstrahlungswellenlänge $\lambda_{\text{pump}} = 800 \text{ nm}$ zeigt sich eine ermittelte Brechzahl von $n = 2.94$, welche gegenüber der Ergebnisse aus Abbildung 4.12 ($n = 3.55$) um 21 % geringer ist. Der aus der Ellipsometriemessung ermittelte Extinktionskoeffizient beträgt $k = 4.31$, welcher hingegen dem Ergebnis aus Abbildung 4.12 ($k = 4.54$) nur um 5 % geringer ist. Gemäß der Beschreibung in Kapitel 3.2.1 ergibt sich der berechnete Reflexionsgrad bei einem Einfallswinkel der zirkular polarisierten Pumpstrahlung $\alpha = 53^\circ$ zu $R_{z,53^\circ} = 0.64$ und stimmt demnach mit dem Ergebnis aus Abbildung 4.12 ($R_{z,53^\circ} = 0.64$) überein. Der berechnete Reflexionsgrad der dünnen Edstahlschicht ergibt sich bei ei-

nem Einfallswinkel der linear polarisierten Probestrahlung $\alpha = 0^\circ$ zu $R_{s/p,0^\circ} = 0.6$ und ist um 12 % geringer als das Ergebnis aus Abbildung 4.12 ($R_{s/p,0^\circ} = 0.68$). Die hier dargestellte Abweichung von n und k resultiert möglicherweise daraus, dass die genaue Materialzusammensetzung der 400 nm dünnen Edelstahlschicht sich von der in der Literatur verwendeten Materialzusammensetzung unterscheidet. Im Falle der für dieses Experiment verwendeten Schicht ist ausschließlich bekannt, dass das Sputtermaterial, welches zur Herstellung der Schicht verwendet wurde, ein EN 1.4301 Edelstahl war. Eine ebenfalls mögliche Ursache sind Abweichungen bei den *ab initio* Berechnungen aus der Literatur [23].

4.3 Beschreibung der Messparameter

Die in Kapitel 4.2 beschriebene Probe wird mit Pumpstrahlungseinzelpulsen ($\lambda_{\text{Pump}} = 800 \text{ nm}$, $\tau_{\text{H}} = 40 \text{ fs}$) bei $H_{0,\text{Pump}} = 0.27 \text{ J/cm}^2$ (1.5-fache Schwellfluenz) und 0.54 J/cm^2 (3-fache Schwellfluenz) bzw. mit Pumpstrahlungsdoppelpulsen ($\lambda_{\text{Pump}} = 800 \text{ nm}$, $\tau_{\text{H}} = 40 \text{ fs}$) bei ausgewählten Doppelpuls-Zeitdelays ($t_{\text{delay}} = 0 \text{ fs}$; 200 ps; 400 ps; 800 ps; 1.2 ns; 2 ns; 3 ns; 6.25 ns) und $H_{0,\text{Pump}} = 0.27 \text{ J/cm}^2$ pro Puls (2·1.5-fache Schwellfluenz) unter einem Einfallswinkel von $\alpha = 53^\circ$ zur Probenoberflächennormalen bestrahlt. Die transienten optischen Eigenschaften des Probenmaterials werden mittels vorder- und rückseitiger PPR unter Verwendung der Probelaserstrahlung bei $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ in einem Zeitbereich von 0 bis 2.7 ns (Teilaufbau A) und 0 bis 50 μs (Teilaufbau B), bezogen auf den Zeitpunkt der Anregung, untersucht. Infolge des schrägen Einfalls der Pumpstrahlung ergibt sich eine elliptische Fläche der Laserstrahlung, welche mit der Probenoberfläche wechselwirkt. Diese elliptische Fläche weist eine kleine Halbachse in y-Richtung w_y , die dem tatsächlichen Fokusradius w_0 der zirkular polarisierten Pumpstrahlung entspricht, und die große Halbachse entlang der x-Richtung auf.

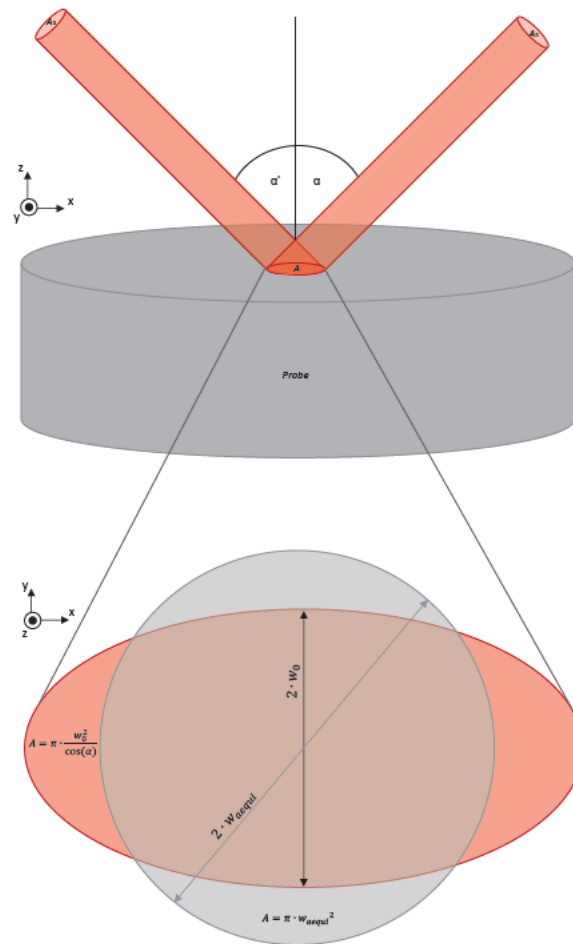


Abbildung 4.14: Darstellung der auf die Probenoberfläche einfallenden und reflektierenden Pumpstrahlungsfokustaille mit den zugehörigen Querschnittsflächen und einer vergrößerten Ansicht der wirkungsvollen elliptischen Fläche sowie einem dazu flächenäquivalenten Kreis (unten) [1]

Der Flächeninhalt A der Ellipse ergibt sich durch

$$A = \pi \cdot w_x \cdot w_y = \frac{\pi \cdot w_0^2}{\cos(\alpha)} = \frac{A_0}{\cos(\alpha)} \quad , \quad (4.4)$$

wobei $A_0 = \pi \cdot w_0^2$ der Querschnittsfläche der Fokustaille entspricht (siehe Abbildung 4.14). Durch Bestrahlung der Edelstahlschicht mit Einzel bzw. Doppelpulsen bei Pulsenergien im Bereich $1.4 \mu\text{J} \leq Q_{\text{Pump}} \leq 13 \mu\text{J}$ bilden sich unterschiedlich große ellipsenförmigen Ablationsstrukturen aus. Mithilfe von Laserscanning-Mikroskopie wird das Oberflächenprofil der Ablationsstruktur vermessen, wodurch anschließend mithilfe einer Berechnung in Python die Kontur der Ablationsstruktur erkannt, geglättet und daraus der Flächeninhalt A_{Abl} berechnet wird. Da die Fluenzverteilung der Pumpstrahlquerschnittsfläche senkrecht zur Ausbreitungsrichtung nicht gleich der auf der Probe wirksamen Fluenz ist, wird anschließend ausgehend von A_{Abl} jeweils der Kreisäquivalenzdurch-

messer D_K über

$$D_K = \sqrt{\frac{4 \cdot A_{\text{Abl}}}{\pi}} \quad (4.5)$$

berechnet. Mit der Methode von Liu [33] kann somit der Kreisäquivalenzfokusradius w_{aequi} durch

$$D_K^2 = -2 \cdot w_{\text{aequi}}^2 \cdot \ln\left(\frac{H_{\text{thr}}}{H_0}\right) \quad (4.6)$$

bestimmt werden, wobei H_0 die wirksame Spitzenfluenz ist. Der Fokusradius w_0 lässt sich anschließend analog zu w_{aequi} über

$$D^2 = -2 \cdot w_0^2 \cdot \ln\left(\frac{H_{\text{thr}}}{H_0}\right) \quad (4.7)$$

mit der y -Ausdehnung der ellipsenförmigen Ablationsstruktur

$$D = \sqrt{\frac{4 \cdot A_{\text{Abl}} \cdot \cos(\alpha)}{\pi}} = D_K \cdot \sqrt{\cos(\alpha)} \quad (4.8)$$

bestimmen. Die wirksame Spitzenfluenz H_0 auf der elliptischen Fläche sowie die materialspezifische Schwellfluenz H_{thr} wurden folglich unter Zuhilfenahme von w_{aequi} mit der Methode von Liu [33] über

$$H_0 = \frac{2 \cdot Q}{\pi \cdot w_{\text{aequi}}^2} \quad \text{und} \quad (4.9)$$

$$H_{\text{thr}} = \frac{2 \cdot Q_{\text{thr}}}{\pi \cdot w_{\text{aequi}}^2} \quad \text{berechnet.} \quad (4.10)$$

Die in diesem Abschnitt aufgeführten Zusammenhänge sind aus der Literatur [1] entnommen wurden.

4.4 Fehlerbetrachtung

Die Ermittlung der Strahlparameter, die Auswertung der fluenzabhängigen Abtragsuntersuchungen und PPR-Messungen sowie die jeweilige Interpretation der Ergebnisse im nachfolgenden Kapitel basiert auf durchgeführten Experimenten, welche verschiedenen Fehlerquellen unterliegen. Mögliche Fehlerquellen sind beispielsweise Pulsenergieschwankungen, Inhomogenitäten der Schichtdicke sowie systematische Fehler bei der Bestimmung des ellipsenförmigen Flächeninhaltes der Ablationsstrukt-

ren durch den Softwarealgorithmus oder bei der Pulsenergiebestimmung. Des Weiteren können Unreinheiten der bestrahlten Schicht und daraus resultierende Schwankungen im Absorptionsverhalten zu Schwankungen im Durchmesser der ablatierten Strukturen führen. Die verschiedenen Fehler werden in diesem Abschnitt vorgestellt und interpretiert.

Um eine Vergleichbarkeit der beiden Teilpulse (unverzögert und verzögert) für nachfolgende Untersuchungen zu ermöglichen, wurde die Pulsenergie der jeweiligen Teilpulse durch die Justage der $\lambda/2$ -Platte in der Doppelpulsverzögerungsstrecke einmalig bei der Einrichtung des Versuchsaufbaus zu gleichen Anteilen eingestellt. Um die Vergleichbarkeit zu überprüfen, wurde eine Messreihe bei 15 verschiedenen Pulsenergien für jeweils die beiden Teilpulse sowie den Doppelpuls mit einem Energiemesskopf (EnergyMax, Coherent Inc.) aufgezeichnet. Die Variation der Pulsenergie erfolgte in 0.5%-Schritten im Bereich 0.8% bis 7.8% durch einen externen Abschwächer im Pumpstrahlengang und entspricht der eingestellten absoluten Abschwächung der Pulsenergie. Um die Pulsenergieschwankungen der verwendeten Pumpstrahlungsquelle zu ermitteln, wurde die jeweilige Messung pro Abschwächung zwanzigmal wiederholt und jeweils der Mittelwert Q_{\emptyset} sowie die Standardabweichung Q_{σ} gebildet (siehe Abbildung 4.15 obere Zeile). Des Weiteren wurden die Messungen für den Versuchsaufbau "Pumpen von oben" und "Pumpen von unten" durchgeführt (siehe Abbildung 4.15 linke und rechte Spalte), um die Vergleichbarkeit der beiden Versuchsaufbauten zu untersuchen. Anhand der Messergebnisse in Abbildung 4.15 (obere Zeile) zeigt sich für alle Messreihen eine geringe Standardabweichung ($\lesssim 50$ nJ), was auf geringe Pulsenergieschwankungen der Laserquelle schließen lässt. Der Verlauf der mittleren Pulsenergie für den Doppelpuls stimmt mit denen der Teilpulse für beide Versuchsaufbauten gut überein. Für das "Pumpen von oben" zeigt sich eine hohe Übereinstimmung im Verlauf der gemessenen mittleren Pulsenergien Q_{\emptyset} zwischen dem unverzögerten und verzögerten Teilpuls. Bei den Messungen für das "Pumpen von unten" zeigt sich für Pulsenergien kleiner $7 \mu\text{J}$ ebenfalls eine hohe Übereinstimmung zwischen dem unverzögerten und verzögerten Teilpuls. Allerdings für Pulsenergien größer $7 \mu\text{J}$ weichen die Messwerte leicht voneinander ab.

In Abbildung 4.15 (untere Zeile) wurde jeweils der prozentuale Verlauf der Standardabweichung $\frac{Q_{\sigma}}{Q_{\emptyset}}$ dargestellt. Hierbei ist ersichtlich, dass $\frac{Q_{\sigma}}{Q_{\emptyset}}$ bei geringen Pulsenergien (Abschwächung $< 2.8\%$) am größten ist, wahrscheinlich dadurch ausgelöst, dass die gemessene Standardabweichung ($\lesssim 50$ nJ) unterhalb der Messgenauigkeit des Energiemesskopfes liegt. Für größere Pulsenergien (Abschwächung $> 2.8\%$) zeigt sich ein ähnlicher Verlauf der prozentualen Standardabweichung von $\frac{Q_{\sigma}}{Q_{\emptyset}} < 1\%$.

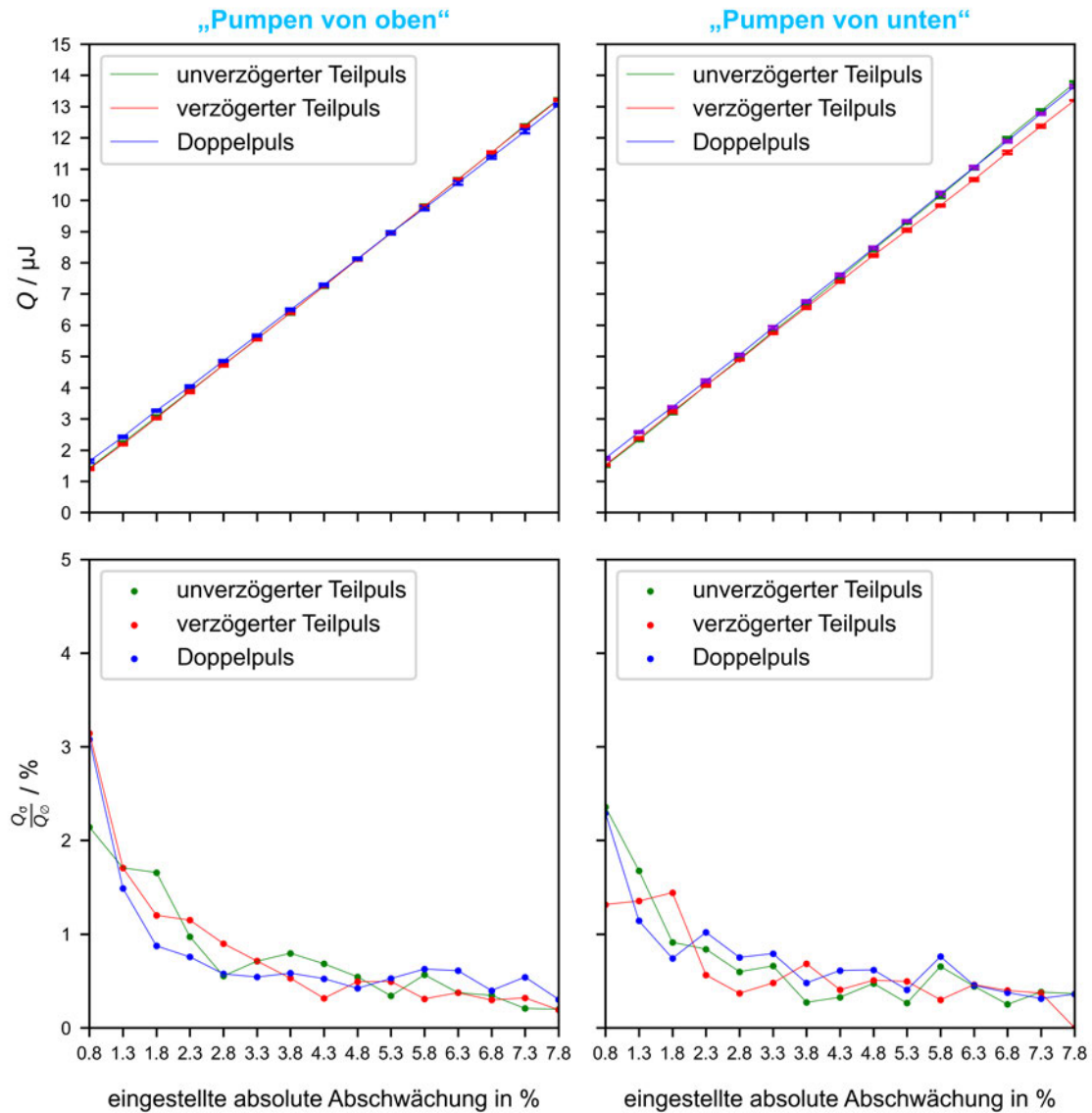


Abbildung 4.15: Vergleich der Pulsenergieschwankungen der Pumpstrahlungseinzel- und -doppelpulse im Bereich $1.4 \mu\text{J} \leq Q_{\text{Pump}} \leq 13 \mu\text{J}$

Des Weiteren sollte erwähnt werden, dass die Probenoberfläche teilweise durch abgelagerte Partikulate, Droplets und Staub kontaminiert ist und sich somit ein Einfluss auf die erzeugten Abtragsstrukturen ergibt, wie beispielhaft in Abbildung 4.16 (links und Mitte) dargestellt. Entscheidend ist hierbei, dass der zeitliche Anregungs- und Ablationsvorgang beeinträchtigt wird und es so unbewusst zu Fehlinterpretationen bei der Auswertung der $\Delta R/R$ -Messungen kommen kann. Ein zufälliger Fehler zeigt sich anhand Abbildung 4.16 (rechts), welcher die zufällige Abplatzung der Schicht bei der Doppelpulsbestrahlung, hier bei $t_{\text{delay}} = 400 \text{ ps}$ und einer wirksamen Fluenz von $H_0 = 0.52 \text{ J/cm}^2$, aufweist. Wahrscheinlich ist die Ursache hierfür eine mangelnde Haftfestigkeit der Schicht an der entsprechenden Stelle, bedingt durch den Beschichtungsprozess.

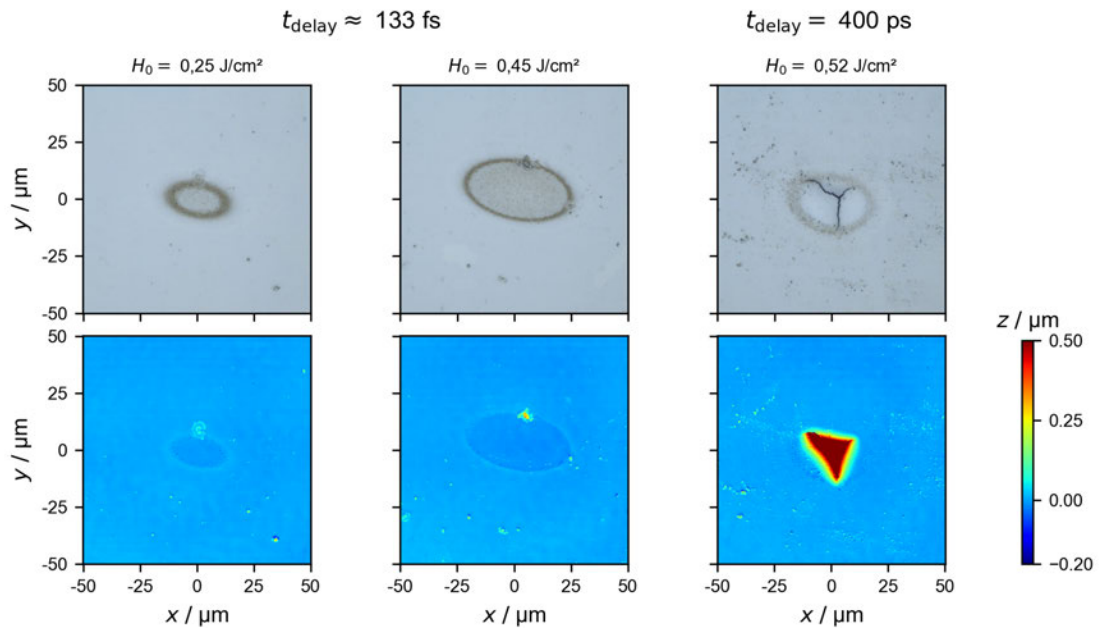


Abbildung 4.16: Beispielhafte Darstellung des Einflusses der Probenkontamination auf die erzeugten Abtragsstrukturen bei unterschiedlichen Fluenzen (links und Mitte) sowie Darstellung von Schichtabplatzungen durch die Einwirkung des Pumpstrahlungsdoppelpulses (rechts)

Eine weitere Fehlerquelle, welche besonders bei der Einrichtung, Durchführung und Auswertung der Messungen eine Rolle spielt, ist die Justage und Reproduzierbarkeit der räumlichen Überlagerung des unverzögerten und verzögerten Teilpulses auf der Probenoberfläche. Wenn die jeweiligen Intensitätsprofile nicht konzentrisch überlagert sind, so ändert sich die orts aufgelöste wirksame Fluenz und somit auch die Aussagekraft der Interpretation der Messergebnisse, wodurch beispielsweise die y -Ausdehnung der vermessenen Abtragsstruktur größer ist und folglich die Berechnung der Strahlparameter verfälscht wird. Wie bereits in der Literatur dargestellt [2], ändert sich in Abhängigkeit von t_{delay} die x - y -Position auf der Probenoberfläche, weshalb jeweils die x - y -Position des unverzögerten Teilpulses auf der Probenoberfläche, durch die Justage des entsprechenden Endspiegels in der Doppelpulsverzögerungsstrecke, nachgestellt werden muss. Dieser Vorgang ist aufgrund der zu hohen Gewindesteigung der Spiegeleinstellschraube ineffizient, weshalb ein Austausch des Endspiegelhalters dringend empfohlen wird. Eine weitere Fehlerquelle ist, dass die x - y -Ebene der Probenoberfläche, trotz Einrichtung, eine leichte Verkippung aufweist und somit bei der Durchführung einer Messreihe (Verfahrweg größer 1 mm) geringe Höhenunterschiede zwischen den Endpositionen der jeweiligen Richtung auftreten. Dadurch ergibt sich innerhalb einer Messreihe eine Veränderung der x - y -Positionen der jeweiligen Teilpuls-Fokustailen zueinander, weshalb eine anfangs eingerichtete räumliche Überlagerung im Laufe einer Messung dejustiert wird. Zur Nachvollziehbarkeit sind beispielhafte Doppelpulsabträge, welche bei den in Kapitel 7 durchgeführten Experimenten entstanden sind, in Abbildung 4.17 dargestellt.

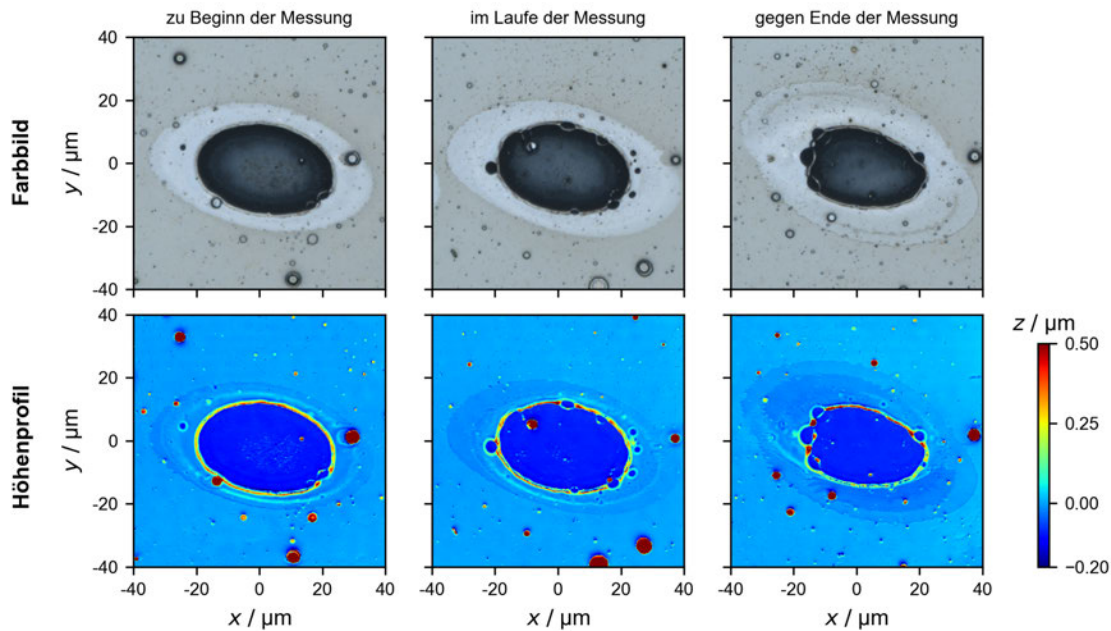
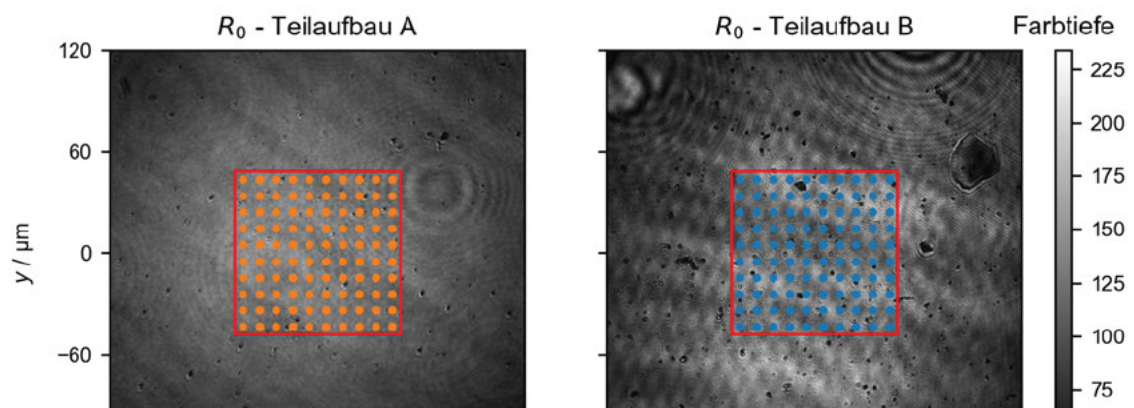


Abbildung 4.17: Beispielhafte Darstellung des Einflusses der Verkippung der Probenoberfläche auf die räumliche Überlagerung der Pumpstrahlungsteilpulse bei einer PPR-Messung anhand ausgewählter Abtragsstrukturen

Wie in den Messergebnissen der PPR-Messungen (siehe Kapitel 5.2) ersichtlich, ist die transiente relative Reflexionsgradänderung während des Zeitraums der Anregungsdynamik (fs bis ps Bereich) schwach, wodurch die zeitabhängige quantitative Bestimmung von $\Delta R/R$ nur schwer möglich ist. Ursache hierfür ist die verwendete Probestrahlungswellenlänge, bei welcher nur eine relativ geringe Änderung des Reflexionsgrades in Abhängigkeit von der Elektronentemperatur auftritt, wie in Abbildung 4.12 (unten rechts) ersichtlich wurde. Die Probestrahlungswellenlänge des Teilaufbaus A wurde jedoch deshalb so ausgewählt, damit diese der Wellenlänge der Probestrahlungsquelle $\lambda_{\text{Probe}} = 532 \text{ nm}$ des Teilaufbaus B entspricht.

Eine weitere relevante Fehlerquelle, welche bei der Auswertung der PPR-Messungen einen hohen Einfluss hat, ist das vorliegende Signalrauschverhältnis (SNR). Zur Ermittlung des SNR wurden mehrere bei der PPR aufgezeichnete Bilder der Probenoberfläche (R_0) herangezogen, wobei zwischen dem Teilaufbau A und B infolge der zwei verschiedenen Probestrahlungsquellen unterschieden wird (siehe Abbildung 4.18 obere Zeile) und die Probe ausschließlich mit der Probestrahlung bestrahlt wurde. Zur Ermittlung des SNR innerhalb einzelner PPR-Messungen, d.h. zwischen einzelnen Pixeln eines Bildes und somit bei einem Zeitschritt, wurde ein x -, y -Bereich im Zentrum des Bildes (400×400 Pixel) ausgewählt (roter Rahmen) und der Mittelwert sowie die Standardabweichung der Farbtiefe aller Pixel innerhalb dieses Bereiches gebildet. Dieser Vorgang wurde für zehn Bilder wiederholt. Der Mittelwert aus den zehn Mittelwerten entspricht dem Signaloffset off , welcher für die nachfolgende Berechnung des Eingangssignals benötigt wird. Zudem entspricht der Mittelwert aus den zehn Standardabweichungen dem mittleren Rauschen N .

Zur Bestimmung des Rauschens N zwischen den einzelnen PPR-Messungen, bzw. zwischen einzelnen Zeitschritten, wurde der bereits beschriebene rot umrahmte Pixelbereich für mehrere Zeitschritte, das heißt von mehreren Bildaufnahmen, herangezogen. Anschließend wurde für 100 Pixel innerhalb dieses Bereiches (orange bzw. blaue Punkte) die Farbtiefe pro Pixelwert bestimmt, der Vorgang für die zehn verschiedenen Bilder wiederholt und anschließend 100 Mittelwerte und Standardabweichungen über alle Bilder pro Pixel gebildet. Auch hier wurde danach der Mittelwert aus diesen 100 Mittelwerten und 100 Standardabweichungen ermittelt und somit der Signaloffset off bzw. das mittlere Rauschen N zwischen einzelnen PPR-Messungen berechnet. Die jeweils ermittelten Werte sind in der Tabelle (siehe Abbildung 4.18 unten) zusammengefasst.



	Teilaufbau A		Teilaufbau B	
	innerhalb einzelner PPR Messungen	zwischen einzelnen PPR Messungen	innerhalb einzelner PPR Messungen	zwischen einzelnen PPR Messungen
Signaloffset off	127,96	127,37	130,00	130,97
Rauschen N	17,00	14,17	21,27	11,31

Abbildung 4.18: Schematische Darstellung (obere Zeile) zur Berechnung des Signaloffsets off und des Rauschens N (Auflistung in Tabelle) innerhalb einzelner PPR-Messungen bzw. zwischen einzelnen PPR-Messungen anhand Teilaufbau A und Teilaufbau B

Als Eingangssignal $S(T_e)$ dient das Produkt aus dem Signaloffset off und dem Betrag der elektronentemperaturabhängigen relativen Änderung des Reflexionsvermögens $\frac{\Delta R_{s/p,0^\circ}(T_e)}{R_{s/p,0^\circ}(T_e)}$ (siehe Abbildung 4.19 oben), dessen Verlauf aus Abbildung 4.12 (unten

rechts) entnommen wurde. Demnach berechnet sich das Eingangssignal über

$$S(T_e) = \left| \frac{\Delta R_{s/p,0^\circ}(T_e)}{R_{s/p,0^\circ}(T_e)} \right| \cdot \text{off} \quad (4.11)$$

und folglich das SNR aus dem Verhältnis von S und N . Der Verlauf des SNR innerhalb einzelner PPR-Messungen (gestrichelte Linie) bzw. zwischen einzelnen PPR-Messungen (durchgezogene Linie) ist in Abhängigkeit von der Elektronentemperatur in der nachfolgenden Abbildung 4.19 (unten) für den Teilaufbau A (orange) und Teilaufbau B (blau) dargestellt. Anhand der Darstellung wird deutlich, dass die Erhöhung der Elektronentemperatur zwischen Raumtemperatur und etwa 25 kK die größte Änderung des SNR bewirkt. Im Vergleich zeigt sich, dass das SNR zwischen einzelnen PPR-Messungen größer ist als innerhalb einzelner PPR-Messungen. Demnach ist die Schwankung mit Teilaufbau B innerhalb einzelner PPR-Messungen am größten und zwischen einzelnen PPR-Messungen am kleinsten, wobei jeweils das berechnete Rauschen ursächlich ist.

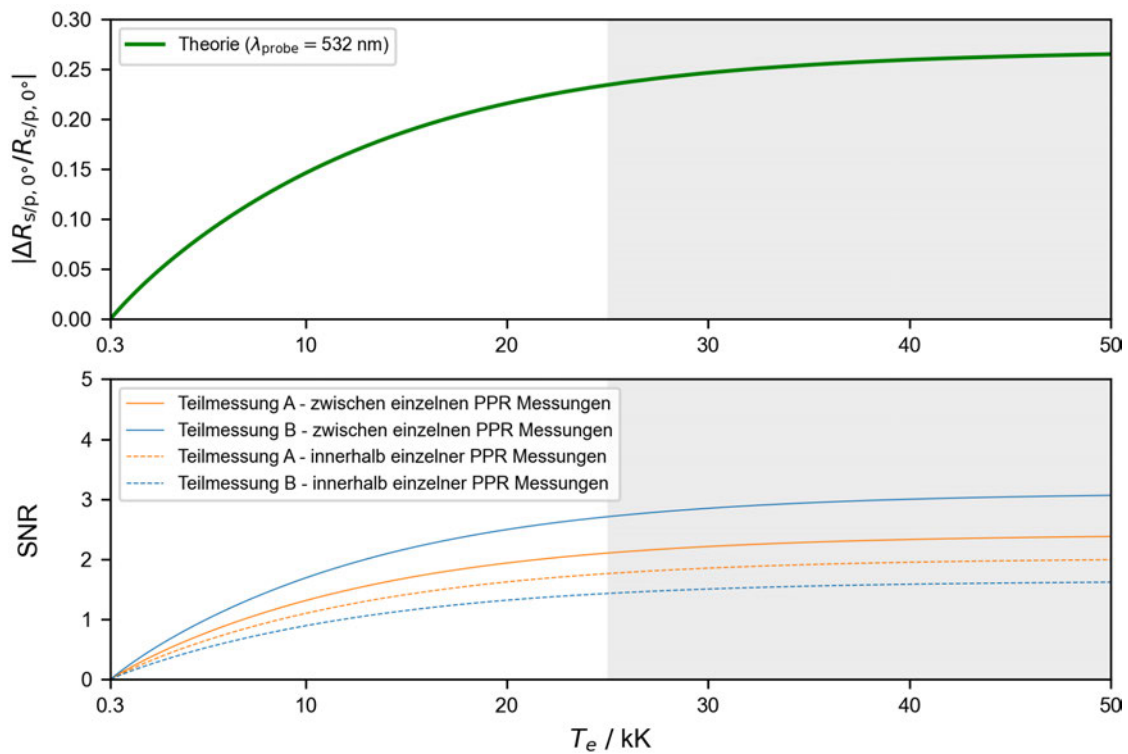


Abbildung 4.19: Elektronentemperaturabhängiger Verlauf des Betrages der relativen Änderung des Reflexionsvermögens $\frac{\Delta R_{s/p,0^\circ}(T_e)}{R_{s/p,0^\circ}(T_e)}$ einer mit der Probestrahlung bestrahlten dünnen Edelstahlschicht (oben) sowie Darstellung des berechneten Signal-Rausch-Verhältnisses (unten) innerhalb einzelner PPR-Messungen (gestrichelte Linie) bzw. zwischen einzelnen PPR-Messungen (durchgezogene Linie) in Abhängigkeit von der Elektronentemperatur für Teilaufbau A (orange) und Teilaufbau B (blau)

5 Experimentelle Ergebnisse und Diskussion

Die verwendete
nische im Expe

Parameter	Wert	Einheit
Substratmaterial	Glas	
Schichtmaterial	Edelstahl	
d_{Substrat}	1	mm
d_{Schicht}	400	nm
λ_{Probe}	532	nm
T_{Probe}	Teilaufbau A: 50 Teilaufbau B: 2.7	fs ns
λ_{Pump}	800	nm
T_{Pump}	40	fs

Tabelle 5.1: Zusammenfassung der angewendeten Messparameter

5.1 Fluenzabhängige Abtragsuntersuchungen

5.1.1 Einzelpulse

Zur Ermittlung des Fokusradius w_0 der Pumpstrahlung wurden fluenzabhängige Abtragsuntersuchungen an einer 400 nm dünnen Edelstahlschicht durchgeführt und der Strahlparameter, wie in Kapitel 4.3 beschrieben, bestimmt. Um die Vergleichbarkeit der beiden Teilpulse sowie Versuchsaufbauten "Pumpen von oben" und "Pumpen von unten" zu untersuchen bzw. sicherzustellen, wurden die fluenzabhängigen Abtragsuntersuchungen für die insgesamt vier Kombinationen durchgeführt und die Ergebnisse in Abbildung 5.1 zusammengefasst. Hierbei zeigt sich, dass der berechnete Fokusradius, unabhängig vom Versuchsaufbau, für den unverzögerten Teilpuls $\approx 4\%$ größer ist als für den verzögerten Teilpuls. Diese Abweichung resultiert möglicherweise aus unterschiedlichen Einflüssen für die beiden Teilpulse wie der Polarisation der Pumpstrahlung, dessen Fokuslage sowie Abbildungsfehlern, welche durch die optischen Bauelemente im jeweiligen Strahlengang verursacht werden oder durch systematische und zufällige Fehler bei der Messung und Auswertung. Des Weiteren ist ersichtlich, dass der berechnete Fokusradius, unabhängig vom Teilpuls, für den Versuchsaufbau "Pumpen von unten" $\approx 5\%$ größer ist als für den Versuchsaufbau "Pumpen von oben". Diese Abweichung ist zum einen auf Unterschiede in der Fokuslage zurückzuführen, verursacht dadurch,

dass die Fokussierung für das "Pumpen von unten" aufgrund einer fehlenden Kamera erschwert war und nur iterativ durchgeführt werden konnte. Zum anderen wurde der Einfallswinkel der Pumpstrahlung zur Probenoberflächennormalen für die jeweiligen Versuchsaufbauten von Hand eingerichtet und keine gradgenaue Überprüfung durchgeführt. Dennoch könnte der Reflexionsgrad der dünnen Edelmetallschicht [24] und folglich

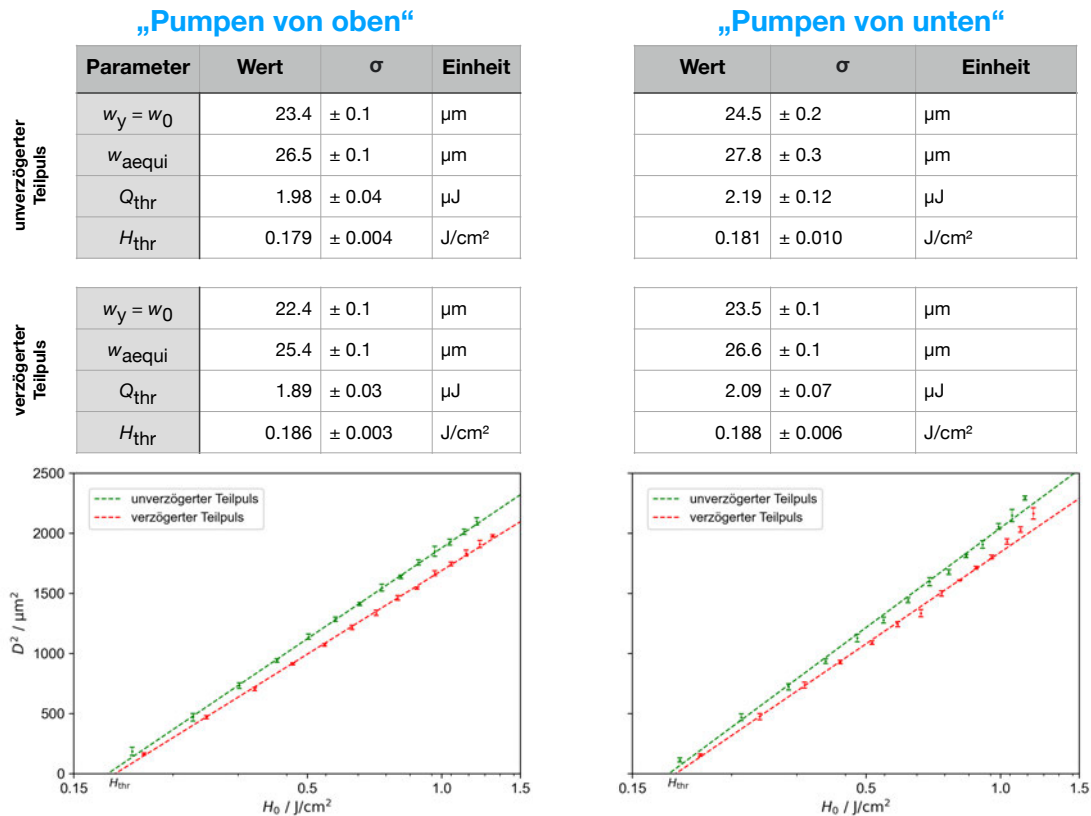


Abbildung 5.1: Tabellarische Zusammenfassung der Fokusradien w_0 , Kreisäquivalenzfokusradien w_{aequi} , Schwellenergie Q_{thr} und -fluenz H_{thr} des unverzögerten sowie verzögerten Teilpulses (oben bzw. Mitte), jeweils für die verschiedenen Pumpstrahlengänge (links bzw. rechts) mit den zugehörigen Liu Plots (unten)

Mithilfe der fluenzabhängigen Abtragsuntersuchungen lässt sich, wie ebenfalls in Kapitel 4.3 beschrieben, die materialspezifische Schwellenergie Q_{thr} bzw. Schwellfluenz H_{thr} der dünnen Edelmetallschicht ermitteln. Die Schwellfluenz zeigt für die verschiedenen Versuchsaufbauten keinen wesentlichen Unterschied, jedoch für die beiden Teilpulse. Für den verzögerten Teilpuls ergibt sich eine $\approx 4\%$ größere Schwellfluenz als für den unverzögerten Teilpuls. Möglicherweise ist die $\lambda/4$ -Platte im Pumpstrahlengang des Pump-Probe Mikroskops nicht optimal justiert, wodurch die Laserstrahlung der jeweiligen Teilpulse eine geringfügige elliptische Polarisierung anstatt der gewünschten zirkulären Polarisierung aufweist. Dadurch ergeben sich geringfügige Unterschiede im Reflexionsvermögen und somit auch für die Schwellfluenz. Insgesamt betrachtet sind die Abweichungen jedoch als gering einzustufen und eine Vergleichbarkeit der Teilpulse für die Doppelpulsexperimente ist gegeben.

5.1.2 Doppelpulse

Um den Einfluss des Doppelpuls-Zeitdelays auf die Abtragsseigenschaften untersuchen zu können, wurden die fluenzabhängigen Abtragsuntersuchungen bei neun verschiedenen Zeitdelays $t_{\text{delay}} \approx 133$ fs, $t_{\text{delay}} = (200, 400, 800, 1200, 2000, 3000, 6250)$ ps und $t_{\text{delay}} = 1$ s durchgeführt. Hierbei wurde die Pumpstrahlung ausschließlich von oben eingestrahlt und die Pulsenergie im Bereich $1.4 \mu\text{J} \leq Q_{\text{Pump}} \leq 13 \mu\text{J}$ variiert. Die Pulsenergie eines jeden Teilpulses wurde so gewählt, dass diese der halben Pulsenergie im Vergleich zu den Einzelpulsuntersuchungen (Kapitel 5.1.1) entspricht. Anhand der Ergebnisse zeigt sich ein Zusammenhang zwischen Doppelpuls-Zeitdelay und Parametern, wie der Schwellfluenz H_{thr} , des Abtragsdurchmessers in y -Richtung D sowie der Abtragstiefe z_{Abtrag} . Zur Nachvollziehbarkeit sind die entstandenen Abtragsstrukturen mit den zugehörigen Höhenprofilen entlang y bei $x = 0$ für verschiedene Spitzenfluenzen H_0 (von links nach rechts) und Doppelpuls-Zeitdelays t_{delay} (von oben nach unten) in Abbildung 5.2 und Abbildung 5.3 dargestellt.

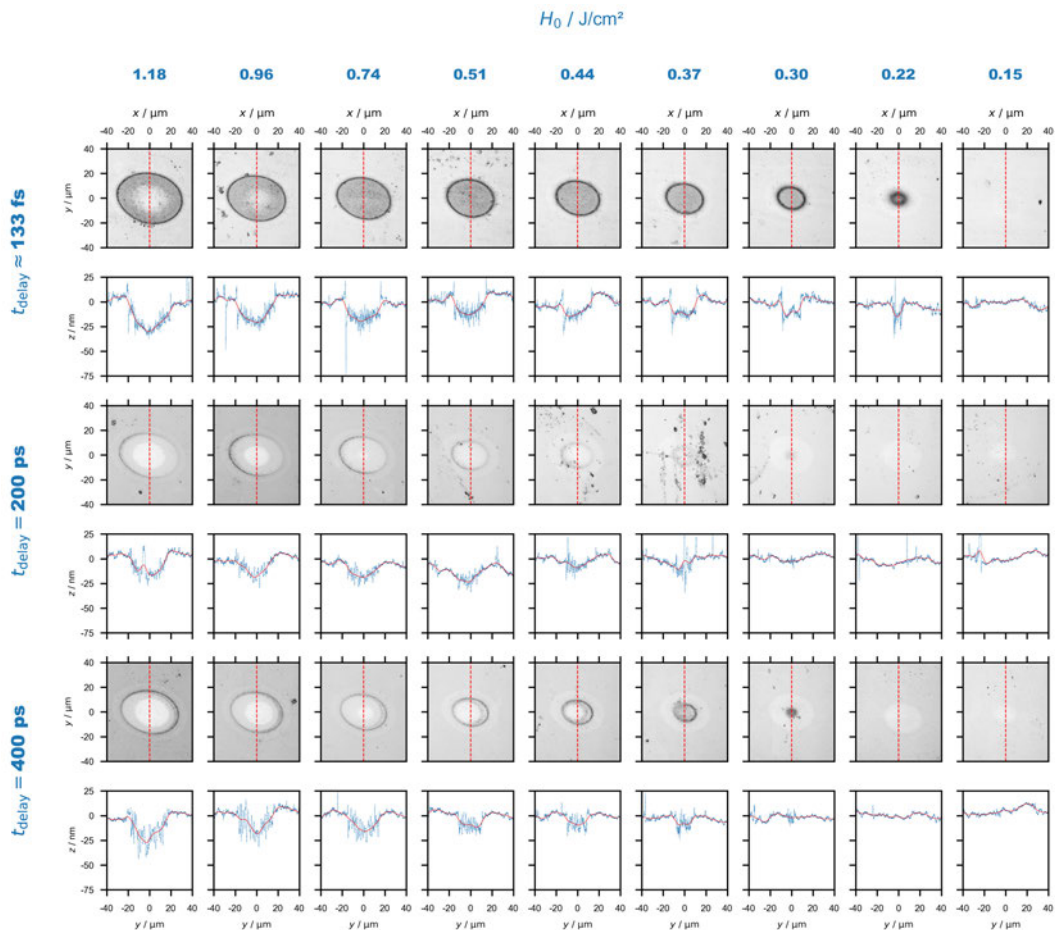


Abbildung 5.2: Darstellung der fluenzabhängigen Abtragsstrukturen mit den zugehörigen Höhenprofilen entlang y bei $x = 0$ für verschiedene Spitzenfluenzen H_0 und Doppelpuls-Zeitdelays $t_{\text{delay}} \approx 133$ fs sowie $t_{\text{delay}} = (200, 400)$ ps

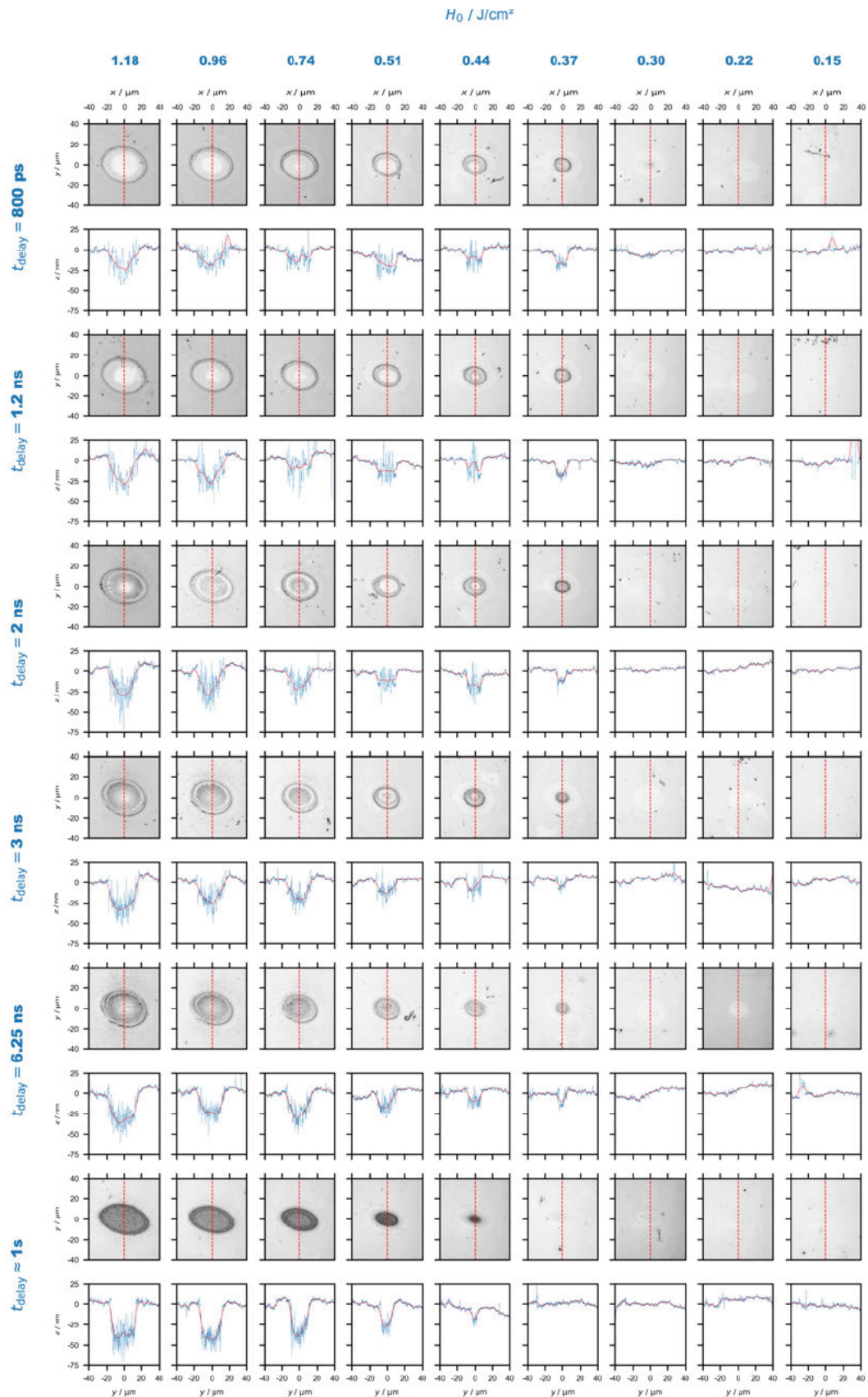


Abbildung 5.3: Darstellung der fluenzabhängigen Abtragsstrukturen mit den zugehörigen Höhenprofilen entlang y bei $x = 0$ für verschiedene Spitzenfluenzen H_0 und Doppelpuls-Zeitdelays im Bereich $800 \text{ ps} \leq t_{\text{delay}} \leq 1 \text{ s}$

Wie bereits im vorherigen Kapitel, wurden die Abtragsdurchmesser in y -Richtung D entsprechend der Beschreibung aus Kapitel 4.3 ermittelt. Hierbei gilt jedoch zu beachten, dass der Kreisäquivalenzfokusradius des unverzögerten Teilpulses ($w_{\text{aequi}} = 26.52 \mu\text{m}$) für die Berechnungen verwendet wurde und somit die Grundlage für die berechnete wirksame Spitzenfluenz H_0 ist. Die bei den fluenzabhängigen Abtragsuntersuchungen entstandenen y -Ausdehnungen der ellipsenförmigen Abtragsstrukturen D sind für die jeweiligen Doppelpuls-Zeitdelays als D^2 in Abhängigkeit von H_0 in Abbildung 5.4 aufgetragen.

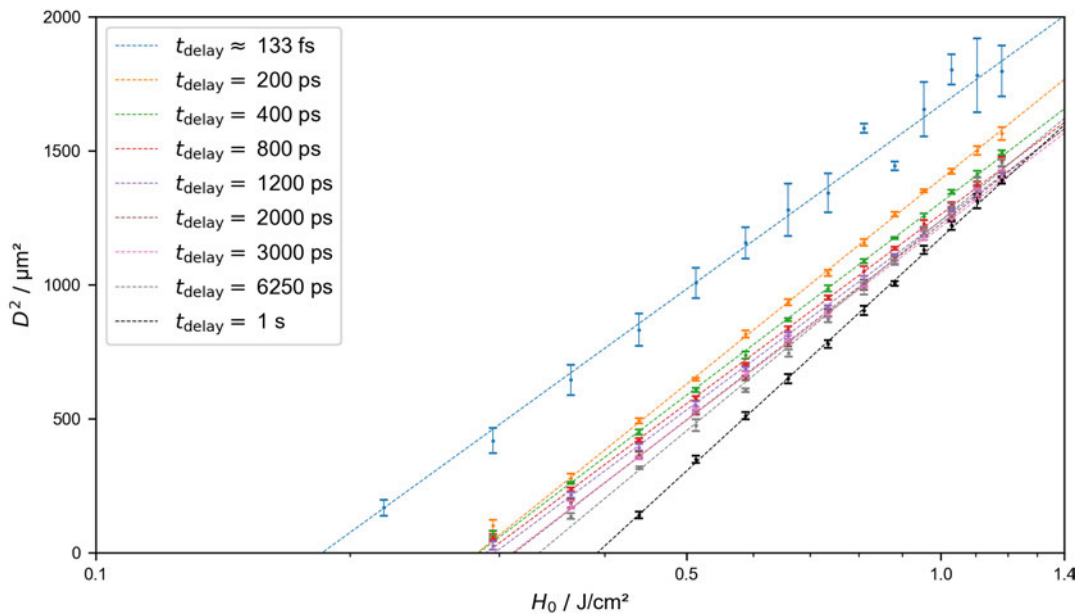


Abbildung 5.4: Liu Plot an einer dünnen Edelmetallschicht bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays

Anhand der Abbildung 5.4 ist zu erkennen, dass D^2 bei $t_{\text{delay}} \approx 133 \text{ fs}$ für alle Fluenzen am größten ist und mit steigendem Doppelpuls-Zeitdelay tendenziell eine Verkleinerung von D^2 und somit auch der y -Ausdehnungen der ellipsenförmigen Abtragsstrukturen D einhergeht. Ausgehend von den Liu Plots für die einzelnen Doppelpuls-Zeitdelays ergibt sich aus dem Anstieg der jeweiligen Gerade der Wirkradius w_{wirk} , welcher sich, wie in Abbildung 5.5 (oben) ersichtlich, tendenziell mit steigendem t_{delay} erhöht. Damit einhergehend zeigt sich ein Zusammenhang zwischen Doppelpuls-Zeitdelay und notwendiger Fluenz zur Erzeugung eines Materialabtrags. Die Abhängigkeit ist in Abbildung 5.5 (unten) aufgeführt. Die geringste Schwellfluenz von $H_{\text{thr}} = 0.19 \text{ J/cm}^2$ tritt auf, wenn beide Teilpulse nahezu gleichzeitig ($t_{\text{delay}} \approx 133 \text{ fs}$) auf die Probenoberfläche auftreffen. Anhand der Ergebnisse ist ersichtlich, dass bei der Delayzeit $t_{\text{delay}} = 200 \text{ ps}$ H_{thr} auf 0.28 J/cm^2 ansteigt. Für höhere Delayzeiten bis etwa $t_{\text{delay}} = 2 \text{ ns}$ zeigt sich folglich ein weiterer Anstieg mit steigender Delayzeit auf 0.31 J/cm^2 . Hingegen im Bereich $2 \text{ ns} \leq t_{\text{delay}} \leq 3 \text{ ns}$ bleibt H_{thr} unverändert und verzeichnet für größere Delayzeiten bis $t_{\text{delay}} = 1 \text{ s}$ eine weitere Erhöhung auf 0.39 J/cm^2 .

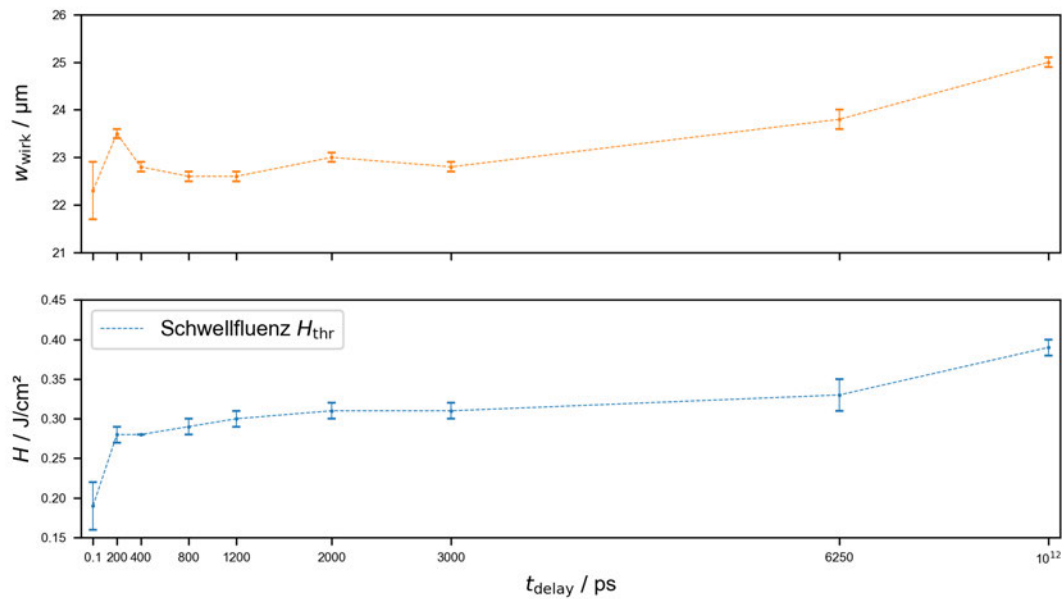


Abbildung 5.5: Darstellung des Wirkradius (oben) sowie der Schwellfluenz (unten) bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays

Somit lässt sich prinzipiell zusammenfassen, dass in Bezug auf die Ergebnisse in Kapitel 5.1 die Schwellfluenz mit einer Erhöhung von t_{delay} ebenfalls ansteigt. Die Ursachen für dieses Verhalten lassen sich auf zeitabhängige Änderungen der thermophysikalischen und optischen Parameter sowie Wechselwirkungen des verzögerten Teilpulses mit durch den unverzögerten Teilpuls ablatiertem Material zurückführen. Um diese Zusammenhänge grundlegender beschreiben zu können, werden die Anregungs- und Ablationsvorgänge mithilfe von PPR-Messungen in Kapitel 5.2.2 näher untersucht.

Die bei den fluenzabhängigen Abtragsuntersuchungen entstandenen Abtragsstrukturen zeigen für die verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays sowohl optisch als auch im Höhenprofil entlang y bei $x = 0$ Unterschiede auf, weshalb im nachfolgenden die entstandenen Abtragstiefen näher betrachtet werden. Hierfür ist die Abtragstiefe für verschiedene wirksame Spitzenfluenszen H_0 in Abhängigkeit vom Doppelpuls-Zeitdelay in Abbildung 5.6 dargestellt.

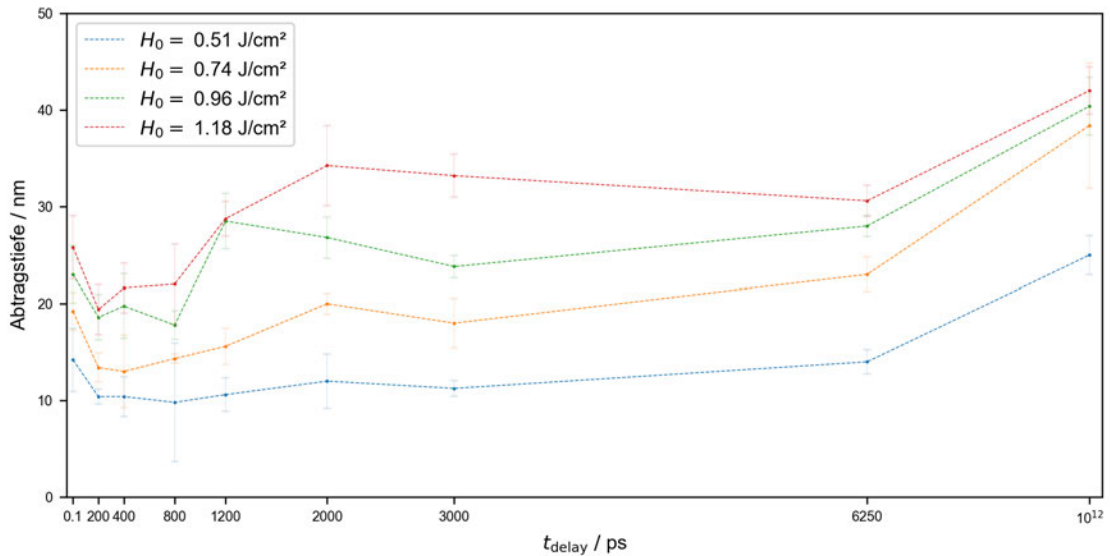


Abbildung 5.6: Darstellung der Abtragstiefe in Abhängigkeit vom Doppelpuls-Zeitdelays bei ausgewählten Spitzenfluenzen

Anhand der Ergebnisse in Abbildung 5.6 wird deutlich, dass unabhängig von t_{delay} die Abtragstiefe mit steigender Fluenz zunimmt. Grund hierfür ist, dass mehr Energie pro Fläche im Material deponiert wird, somit die Elektronentemperatur und folglich auch die Phonontemperatur an der Oberfläche größer werden. Demnach steigt infolge von Wärmeleitung die Phonontemperatur in Abhängigkeit von der Zeit über die Schichtdicke an, weshalb bei höheren Fluenzen mehr Material aufgeschmolzen und ablatiert wird. Somit erreicht das Material auch in der Tiefe höhere Phonontemperaturen, wie in Abbildung 5.7 für die ausgewählten Fluenzen zu sehen ist.

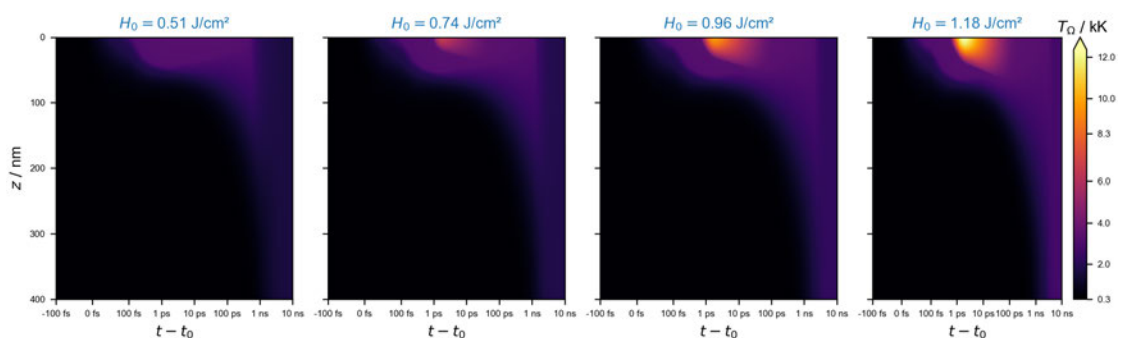


Abbildung 5.7: Simulation der orts- und zeitaufgelösten Änderung der Phonontemperatur bei verschiedenen wirksamen Spitzenfluenzen

Die Abbildung 5.7 zeigt die mithilfe des TTM simulierte orts- und zeitaufgelöste Änderung der Phonontemperatur T_{Ω} entlang der Schichtdicke z . Unter Berücksichtigung, dass ab einer Phonontemperatur von $0.9 \cdot T_c = 8325 \text{ K}$ Phasenexplosion einsetzt, müsste sich entsprechend der Simulation bei der für die Experimente verwendeten Fluenz von $H_0 = 0.96 \text{ J/cm}^2$ dieser Mechanismus an der Oberfläche ausbilden,

da dabei die maximale Phononentemperatur $T_{\Omega} = 9.6 \text{ kK}$ beträgt. Vergleicht man in diesem Zusammenhang die Farbbilder bei den entsprechenden Spitzenfluenzen für $t_{\text{delay}} \approx 133 \text{ fs}$ aus Abbildung 5.2 (zum Vergleich dargestellt in Abbildung 5.8), so wird deutlich, dass sich im Inneren der Abtragsstruktur eine hellere kreisförmige Fläche darstellt, wobei diese für die nächstkleinere Fluenz nicht erkennbar ist, hingegen für die nächstgrößere im Durchmesser ansteigt. Möglicherweise wurde dieser Bereich durch die Phasenexplosion ausgebildet, hingegen der übrige umliegende Bereich infolge geringerer Phononentemperaturen durch Spallation.

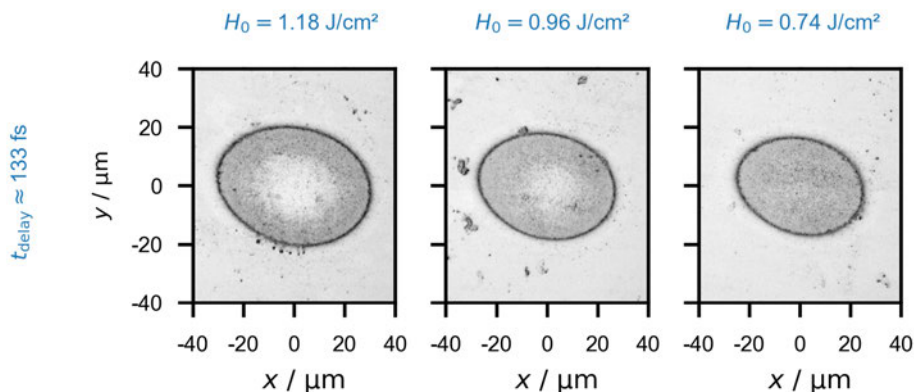


Abbildung 5.8: Darstellung ausgewählter fluenzabhängiger Abtragsstrukturen bei $t_{\text{delay}} \approx 133 \text{ fs}$

In Abbildung 5.6 ist ebenfalls ersichtlich, dass unabhängig von H_0 die Abtragstiefe im Bereich $200 \text{ ps} \leq t_{\text{delay}} \leq 400 \text{ ps}$ gegenüber $t_{\text{delay}} \approx 133 \text{ fs}$ abnimmt. Die Ursache dafür ist wahrscheinlich die teilweise Abschirmung des zweiten Laserpulses von der durch den ersten Teilpuls ablatierten Schicht. Anschließend zeigt sich eine Zunahme der Abtragstiefe für größere Doppelpuls-Zeitdelays bis $t_{\text{delay}} = 2 \text{ ns}$, wobei die Abtragstiefe für größere Fluenzen stärker zunimmt. Bei höheren Fluenzen werden entsprechend mehr Teilchen ablatiert, zudem ist deren Ausbreitungsgeschwindigkeit in z -Richtung größer. Da sich die ablatierten Teilchen mit der Zeit in z - sowie x - und y -Richtung ausbreiten, sinkt die Dichte der Ablationswolke, wodurch die Abschirmung des zweiten Teilpulses ebenfalls abnimmt und folglich die Abtragstiefe zunimmt [12]. Im Bereich $2 \text{ ns} \leq t_{\text{delay}} \leq 6.25 \text{ ns}$ lässt sich keine wesentliche Änderung der Abtragstiefe erkennen, wobei für $t_{\text{delay}} = 1 \text{ s}$ die Abtragstiefe noch einmal ansteigt. Es lässt sich festhalten, dass die hier aufgeführten Abhängigkeiten in der Literatur [12, 13] ebenfalls beobachtet werden konnten. Um die Ursachen für den von t_{delay} abhängigen Verlauf der Abtragstiefe einschätzen zu können, werden im nachfolgenden Kapitel PPR-Messungen durchgeführt und der Zusammenhang mit der Abtragstiefe erneut diskutiert.

5.2 Vorder- und rückseitige Pump-Probe Reflektometrie

Um die im vorherigen Kapitel aufgezeigten Zusammenhänge zwischen dem Doppelpuls-Zeitdelay und Parametern wie dem Abtragsdurchmesser in y -Richtung sowie der Abtragstiefe grundlegender zu untersuchen, wurden vorder- und rückseitige orts- und zeitaufgelöste PPR-Messungen durchgeführt, wobei die Ergebnisse in diesem Kapitel dargestellt und diskutiert werden.

5.2.1 Einzelpulse

Die vorderseitigen PPR-Messungen wurden jeweils für die beiden Teilpulse bei einer wirksamen Spitzenfluens von $H_0 = 1.5 \cdot H_{\text{thr}} = 0.27 \text{ J/cm}^2$ sowie $H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}} = 0.54 \text{ J/cm}^2$ durchgeführt und dienen als Referenzmessung für die Doppelpulsexperimente sowie zum Vergleich der Teilpulse untereinander. Die bei den Experimenten entstandenen Abtragsstrukturen sind in Abbildung 5.9 und Abbildung 5.10 als Farbbild und Höhenprofil für die genannten Kombinationen dargestellt.

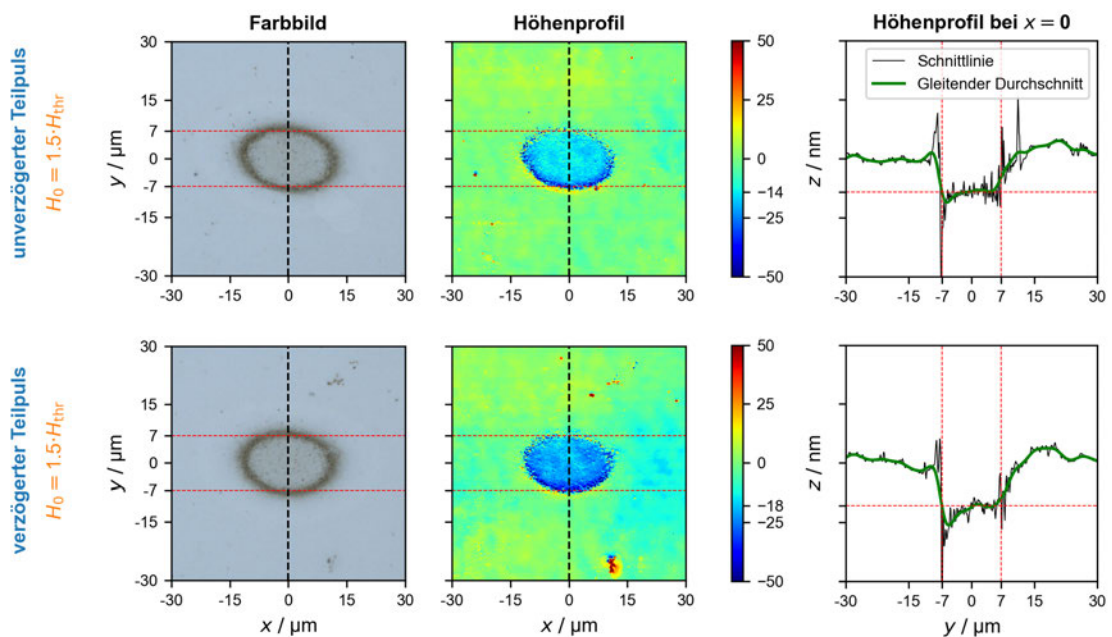


Abbildung 5.9: Vergleich der Abtragsstrukturen der jeweiligen Teilpulse (unverzögert und verzögert) bei der wirksamen Spitzenfluens von $1.5 \cdot H_{\text{thr}}$ anhand des Farbbildes (links), Höhenprofils (Mitte) sowie Höhenprofils entlang y bei $x = 0$ (rechts)

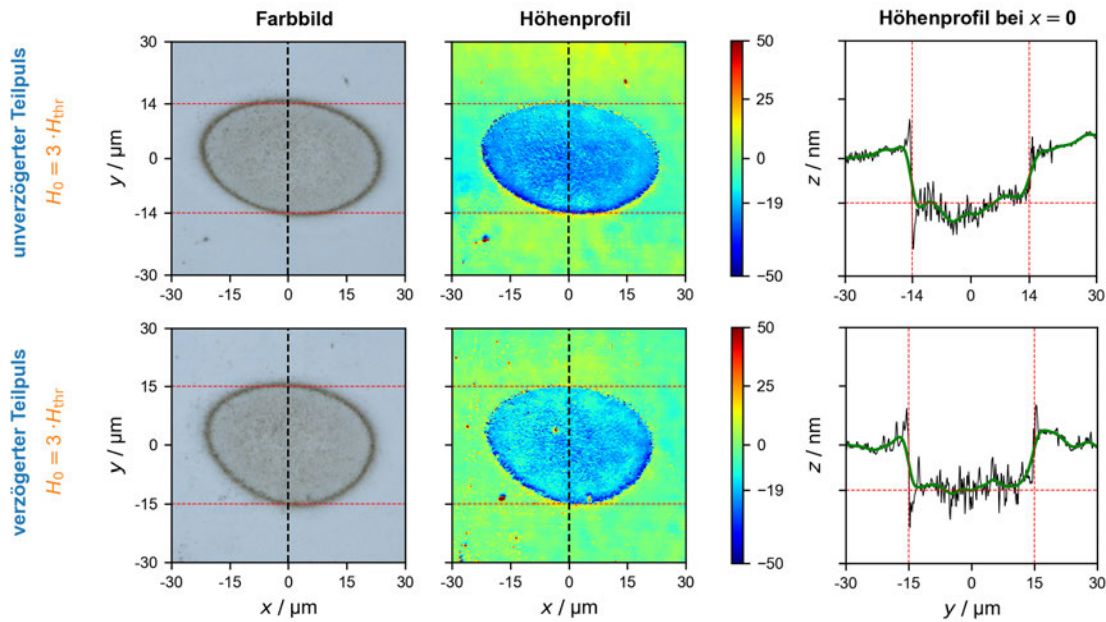


Abbildung 5.10: Vergleich der Abtragsstrukturen der jeweiligen Teilpulse (unverzögert und verzögert) bei der wirksamen Spitzenfluenz von $3 \cdot H_{\text{thr}}$ anhand des Farbbildes (links), Höhenprofils (Mitte) sowie Höhenprofils entlang y bei $x = 0$ (rechts)

Die Abtragsstrukturen des unverzögerten und verzögerten Teilpulses weisen bei jeweils der gleichen Spitzenfluenz eine hohe Übereinstimmung für die y -Ausdehnung und die durchschnittliche Abtragstiefe auf. Bezogen auf die doppelte Spitzenfluenz, unabhängig vom Teilpuls, hat sich die y -Ausdehnung ebenfalls verdoppelt, hingegen die absolute mittlere Abtragstiefe ist von $16 \mu\text{m}$ auf $19 \mu\text{m}$ angestiegen.

Damit der orts- und zeitaufgelöste Verlauf der relativen Änderung des Reflexionsgrades $\Delta R/R$ für die beiden Teilpulse übersichtlich miteinander verglichen werden kann, ist $\Delta R/R$ über y bei $x = 0$ in Abbildung 5.11, jeweils für die wirksamen Spitzenfluenzen $H_0 = 1.5 \cdot H_{\text{thr}} = 0.27 \text{ J/cm}^2$ und $H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}} = 0.54 \text{ J/cm}^2$, dargestellt. Die Verringerung von $\Delta R/R$ auf etwa -0.1 beginnt in etwa bei $t - t_0 \approx -250 \text{ fs}$ und stimmt damit mit der Bestimmung der zeitlichen Referenz t_0 (siehe Abbildung 4.8) gut überein. Für den verzögerten Teilpuls wurde die zeitliche Referenz in Bezug auf den unverzögerten Teilpuls in der Darstellung angepasst. Anhand der Ergebnisse ist zu erkennen, dass $\Delta R/R(y, t)$ für die jeweiligen Teilpulse bei jeweils gleicher Spitzenfluenz nahezu identisch ist.

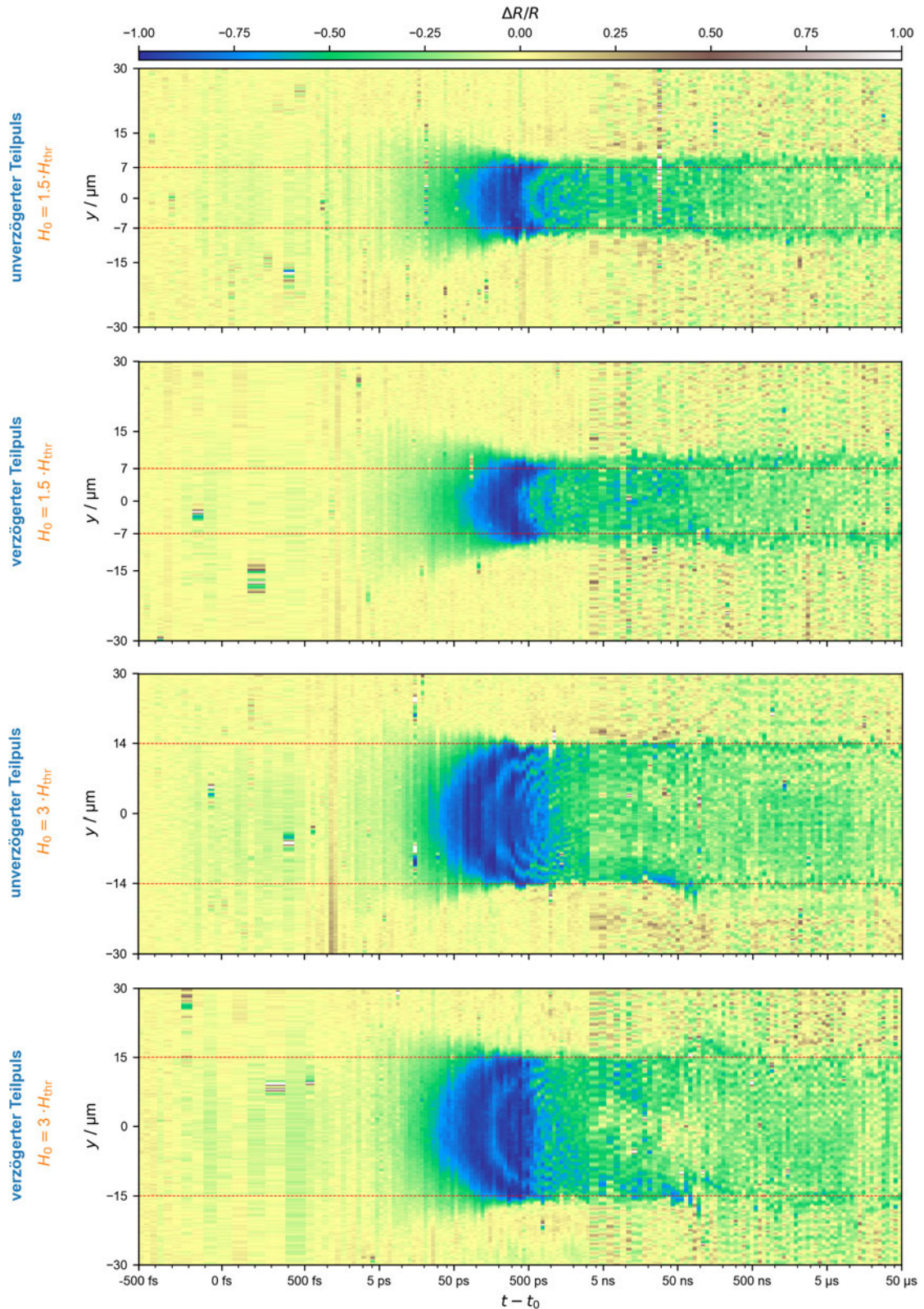


Abbildung 5.11: Vergleich der PPR-Messungen der jeweiligen Teilpulse (unverzögert und verzögert) bei zwei verschiedenen wirksamen Spitzenfluenzen von $1.5 \cdot H_{\text{thr}}$ (oben) und $3 \cdot H_{\text{thr}}$ (unten) anhand von $\Delta R/R(y, t)$ (rot gestrichelte Linie entspricht der y -Ausdehnung der jeweiligen Abtragsstruktur aus Abbildung 5.9 bzw. Abbildung 5.10)

Ein Unterschied ist für beide Fluenzen im Zeitbereich $300 \text{ ps} \lesssim t - t_0 \lesssim 500 \text{ ps}$ erkennbar. Die periodische Änderung von $\Delta R/R$, welche für die Ausbildung von Newton-Ringen charakteristisch ist [29], scheint für den unverzögerten Teilpuls stärker ausgeprägt. Zur Nachvollziehbarkeit sind die orts aufgelösten Änderungen von $\Delta R/R$ für beide Teilpulse ($H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}}$) in Abbildung 5.12 bei drei verschiedenen Zeitschritten dargestellt.

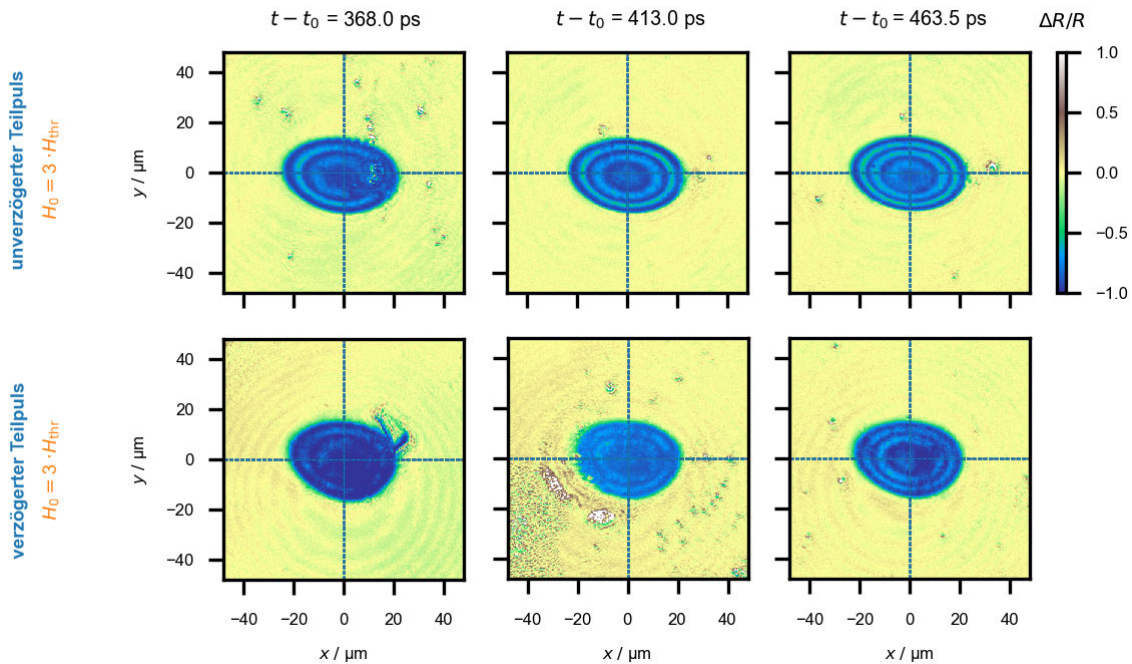


Abbildung 5.12: Vergleich der sich ausbildenden Newton-Ringe anhand $\Delta R/R(x,y)$ bei ausgewählten Zeitschritten, infolge der jeweiligen Pumpstrahlungsteilpulse (unverzögert und verzögert) bei der wirksamen Spitzenfluenz $3 \cdot H_{\text{thr}}$

Hierbei wird deutlich, dass sich die Newton-Ringe bei beiden Versuchen ausbilden, sich jedoch die Änderung von $\Delta R/R$ im Falle des verzögerten Teilpulses von der des unverzögerten Teilpulses unterscheidet. Es scheint, als wären Verunreinigungen der Probenoberfläche bei den Messungen mit dem verzögerten Teilpuls bei den dargestellten Zeitpunkten ausschlaggebend dafür, dass die Newton-Ringe ein geringeres Erscheinungsbild haben und dementsprechend die Unterschiede im $\Delta R/R(y,t)$ -Verlauf bei den genannten Zeiten in Abbildung 5.11 verursachen.

Allgemein betrachtet ist bei allen PPR-Messungen in Abbildung 5.11 ab etwa $t - t_0 = 4 \text{ ps}$ ein Sinken von $\Delta R/R$ ersichtlich, wobei die y -Ausdehnung des $\Delta R/R$ -veränderlichen Bereiches bis $t - t_0 \approx 1 \text{ ns}$ sinkt, folglich bis $t - t_0 \rightarrow \infty$ gleich bleibt und mit der y -Ausdehnung der jeweiligen Abtragsstruktur (rot gestrichelte Linie) übereinstimmt. Des Weiteren unterscheidet sich das zeitabhängige Sinken von $\Delta R/R$ in Abhängigkeit von der wirksamen Spitzenfluenz, wobei dieser Vergleich am Ende dieses Kapitels anhand einer eindimensionalen Darstellung ($\Delta R/R(t)$ für $x, y = 0$) beschrieben wird. Da ab etwa $t - t_0 \approx 500 \text{ ns}$ $\Delta R/R$ keine sichtbare Änderung mehr aufweist, müsste der Ablationsvorgang beendet sein, wobei der genaue Zeitpunkt aufgrund des geringen

Signal-Rausch-Verhältnisses nicht genau bestimmbar ist.

Insgesamt kann zusammengefasst werden, dass die Abtragsstrukturen sowie die Verläufe von $\Delta R/R(y,t)$ für die beiden Teilpulse eine hohe Übereinstimmung aufweisen und somit eine Vergleichbarkeit für die Doppelpulsexperimente gegeben ist.

Da die jeweiligen Pump-Probe Reflektometriemessungen sowohl bei Verwendung des unverzögerten als auch bei Verwendung des verzögerten Pumpimpulses ähnlich zueinander sind, wurden die rückseitigen PPR-Messungen nur für den unverzögerten Teilpuls bei einer wirksamen Spitzenfluenzen von $H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}} = 0.54 \text{ J/cm}^2$ sowie $H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}} = 2.16 \text{ J/cm}^2$ durchgeführt. Mit Hilfe der rückseitigen PPR-Messungen soll sowohl die Simulation validiert als auch das Verhalten von Stoßwellen experimentell beobachtet werden. In der nachfolgenden Abbildung 5.13 ist die entstandene Abtragsstruktur als Farbbild (oben links), Höhenprofil (oben Mitte) sowie Höhenprofil entlang y bei $x = 0$ (oben rechts) dargestellt. Die y -Ausdehnung der Abtragsstruktur ist der Abtragsstruktur, welche bei der vorderseitigen PPR entstanden ist (siehe Abbildung 5.10), ähnlich. Lediglich die absolute mittlere Abtragstiefe von $15 \mu\text{m}$ ist um $4 \mu\text{m}$ kleiner, wobei diese Schwankung im Bereich der Standardabweichung liegt (siehe Abbildung 5.6). Demnach zeigt sich anhand der entstandenen Abtragsstruktur eine hohe Vergleichbarkeit zwischen dem "Pumpen von oben" und "Pumpen von unten" infolge der Einzelpulsbestrahlung.

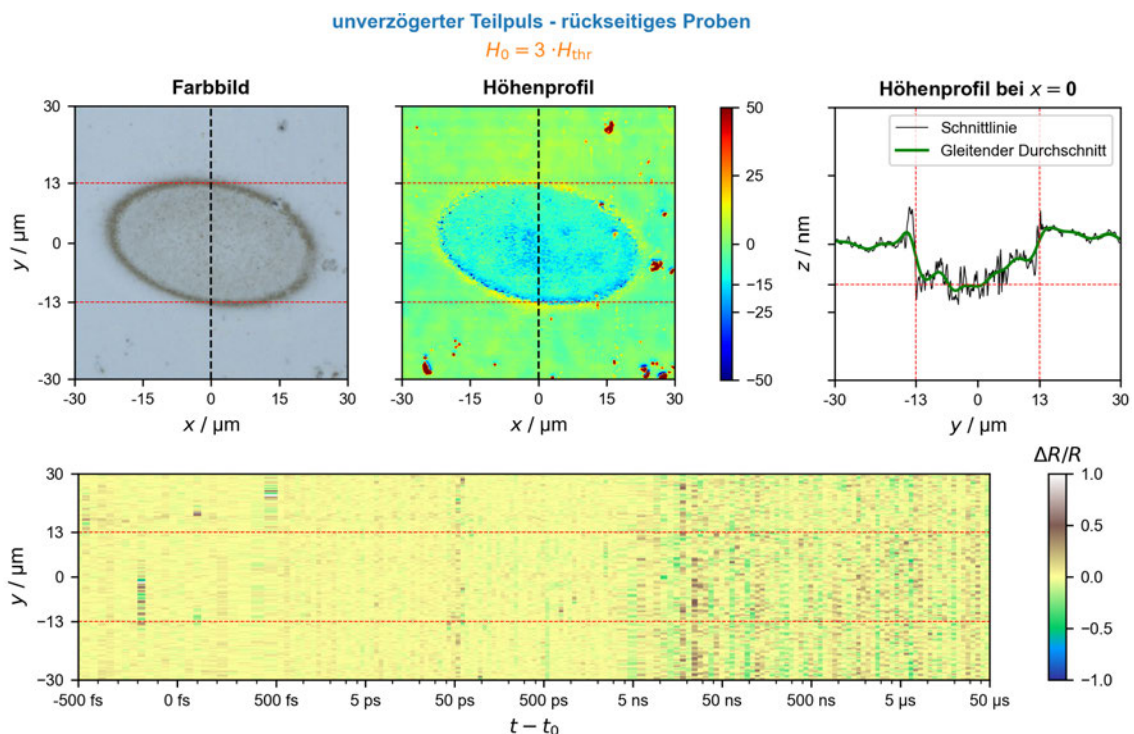


Abbildung 5.13: Darstellung der bei der rückseitigen PPR-Messung entstandenen Abtragsstruktur (oben) sowie von $\Delta R/R(y,t)$ (unten) des unverzögerten Teilpulses bei der wirksamen Spitzenfluenz von $H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}}$ infolge der rückseitigen Probebestrahlung

Anhand der in Abbildung 5.13 dargestellten Ergebnisse der durchgeführten PPR-Messung zeigt sich keine erkennbare transiente relative Änderung des Reflexionsgrades. Ursache hierfür ist mit hoher Wahrscheinlichkeit die angewendete Spitzenfluenz von $H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}} = 0.54 \text{ J/cm}^2$, welche wie in der nachfolgenden Abbildung 5.14 ersichtlich, ausgehend von der TTM-Simulation, nur einen Anstieg der Elektronentemperatur auf maximal 1.7 kK bei $t - t_0 \approx 5 \text{ ns}$ an der Schichtrückseite verursacht. Diese Temperaturänderung entspricht einer theoretischen Änderung der transienten relativen Reflektivität zu $\Delta R/R = -0.03$. Somit ergibt sich ein Eingangssignal $S(T_e = 1.7 \text{ kK}) \approx 3.93$ und bildet mit dem Rauschen $N = 11.31$ ein SNR von ≈ 0.35 aus. Die sich in der Messung möglicherweise ergebende Änderung von $\Delta R/R$ kann demzufolge in Abbildung 5.13 aufgrund des SNR nicht dargestellt werden.

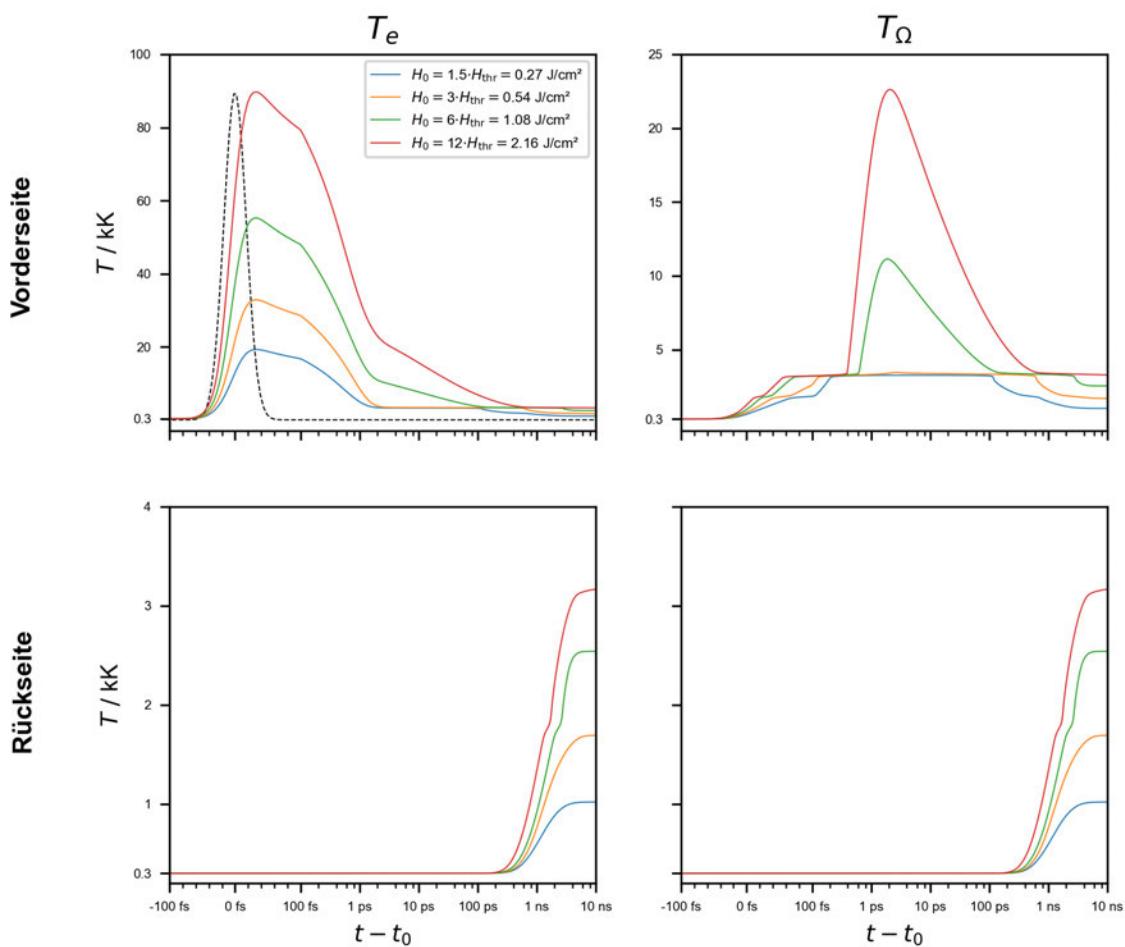


Abbildung 5.14: Darstellung des simulierten zeitlichen Elektronen- und Phononentemperaturverlaufs an der Schichtvorder- und -rückseite infolge der Einzelpulsbestrahlung bei verschiedenen wirksamen Spitzenfluenzen

Ausgehend von dem berechneten Verlauf der Elektronentemperatur zeigt sich für eine 12-fache Spitzenfluenz eine maximale Elektronentemperatur an der Schichtrückseite von $\approx 3.2 \text{ kK}$ bei $t - t_0 \approx 8.5 \text{ ns}$, wobei diese gegenüber der 3-fachen Schwellfluenz etwa doppelt so hoch ist. Anhand des Temperaturverlaufes ist ebenfalls ersichtlich, dass

die Temperatur bereits nach 200 ps -und damit etwa 200 ps eher als bei der 3-fachen Schwellfluenz- ansteigt und der Anstieg steiler ist. Auf dieser Grundlage wurde die PPR-Messung bei $H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}} = 2.16 \text{ J/cm}^2$ wiederholt und die entstandene Abtragsstruktur sowie die transiente relative Änderung des Reflexionsgrades während und nach der Bestrahlung in Abbildung 5.16 dargestellt. Die y -Ausdehnung der entstandenen Abtragsstruktur gegenüber der 3-fachen Schwellfluenz hat sich nahezu verdoppelt, die entstandene Abtragstiefe ebenfalls. Anhand des Höhenprofils bei $x = 0$ zeigt sich eine keilförmig ausgebildete Form der Abtragsstruktur. Ursache hierfür könnte die Phasenexplosion sein, welche infolge der aufgebrauchten Verdampfungsenthalpie entstanden ist und sich nur in dem x -, y -Bereich ausbildet, wo diese Bedingung erfüllt ist. Ausgehend von der TTM-Simulation in Abbildung 5.14 würde die Phasenexplosion ab einer wirksamen Fluenz von 0.54 J/cm^2 einsetzen. Die wirksame Fluenz H ergibt sich für eine gaußförmige Intensitätsverteilung in Abhängigkeit der y -Koordinate mit der wirksamen Spitzenfluenz H_0 und dem Fokusradius in y -Richtung w_y über

$$H(y) = H_0 \cdot e^{-2 \cdot \frac{y^2}{w_y^2}} \quad (5.1)$$

In der nachfolgenden Abbildung 5.15 ist der theoretische Verlauf von $H(y)$ für verschiedene Spitzenfluenzen (1.5-, 3- und 12-fache Schwellfluenz) aufgetragen.

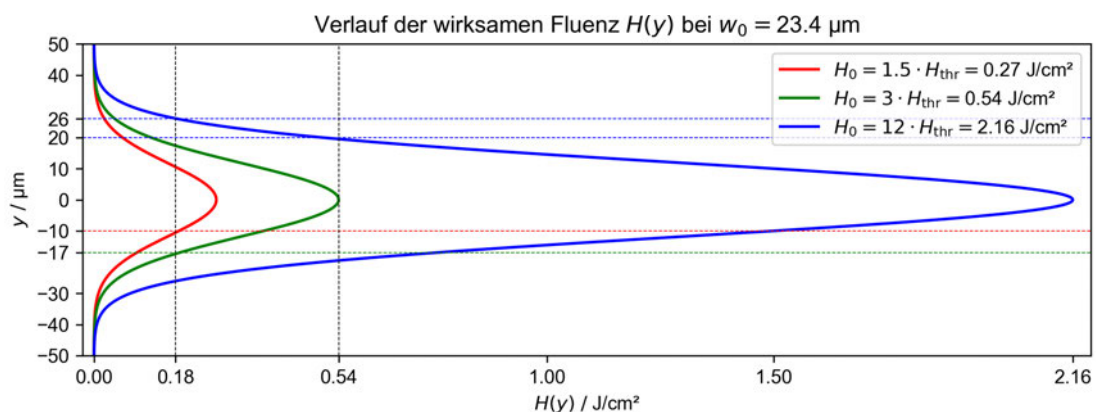


Abbildung 5.15: Theoretischer Verlauf der wirksamen Fluenz $H(y)$ für verschiedene wirksame Spitzenfluenzen H_0 in Abhängigkeit von der y -Koordinate

Betrachtet man den theoretischen Verlauf der wirksamen Fluenz (siehe Abbildung 5.15) in Abhängigkeit von der y -Koordinate unter Anwendung des in Kapitel 5.1.1 errechneten Fokusradius in y -Richtung $w_y = w_0 = 23.4 \mu\text{m}$, so wird für die blaue Kurve ($H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}} = 2.16 \text{ J/cm}^2$) deutlich, dass bei einer wirksamen Fluenz von $H(y) = 0.54 \text{ J/cm}^2$ $|y| = 20 \mu\text{m}$ beträgt. Somit würde entsprechend der Annahme des TTM das Material im Bereich $|y| < 20 \mu\text{m}$ infolge der Phasenexplosion ablatiert werden. Hingegen bei einer wirksamen Fluenz von $H_{\text{thr}} = 0.18 \text{ J/cm}^2$ beträgt $|y| = 26 \mu\text{m}$, was der Schwelle für die Materialablation durch Spallation entsprechen würde. Demnach würde das Material im y -Bereich $20 \mu\text{m} < |y| < 26 \mu\text{m}$ rein durch Spallation ablatiert.

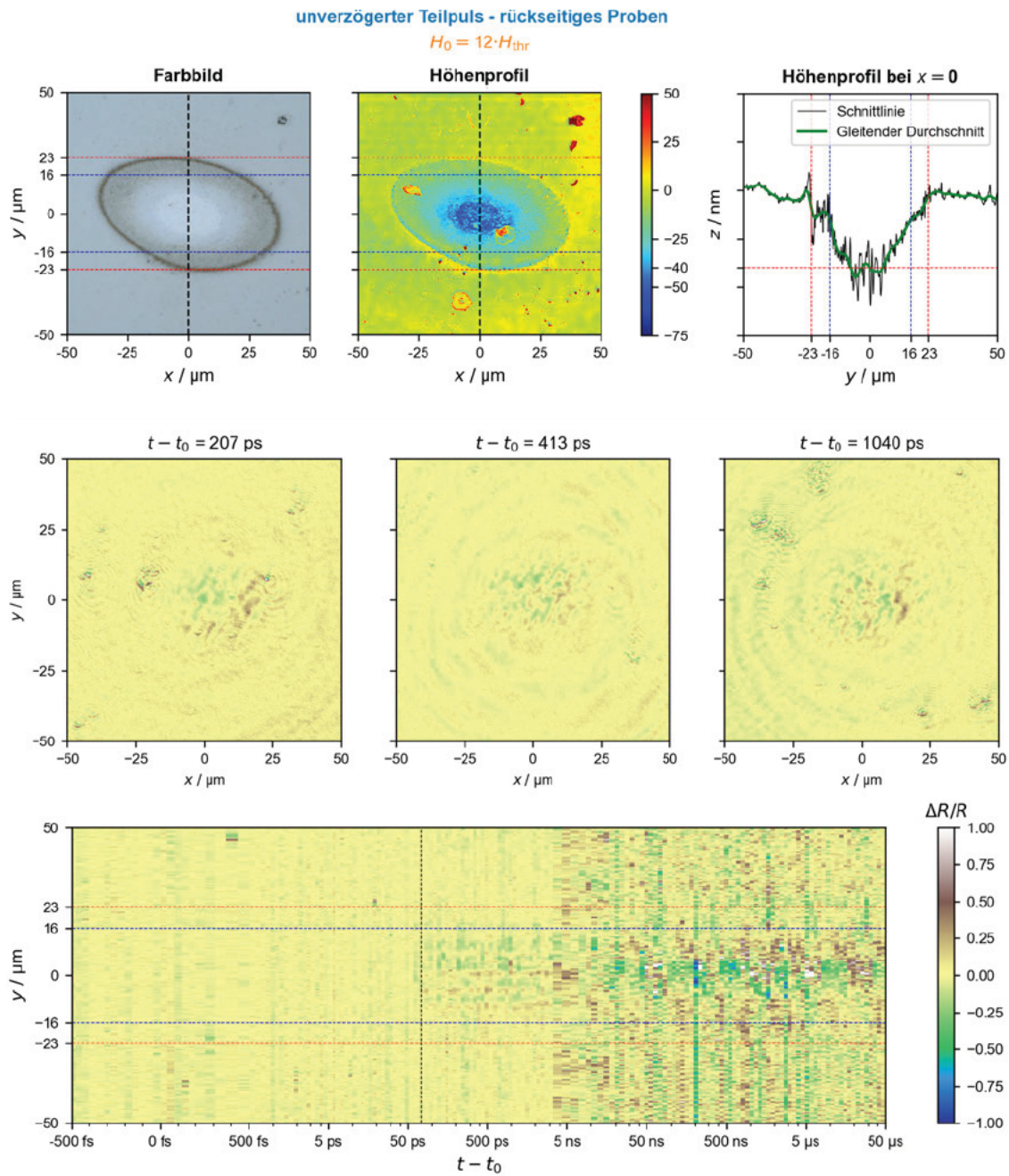


Abbildung 5.16: Darstellung der bei der rückseitigen PPR-Messung entstandenen Abtragsstruktur (obere Zeile) sowie von $\Delta R/R$ bei ausgewählten Zeitschritten (mittlere Zeile) und $\Delta R/R(y,t)$ (unten) des unverzögerten Teilpulses bei der wirksamen Spitzenfluenz von $H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}}$ infolge der rückseitigen Probebestrahlung

Hingegen bei Betrachtung der entstandenen Abtragsstruktur der PPR-Messung in Abbildung 5.16 (obere Zeile) zeigt sich anhand des Farbbildes im Bereich $|y| < 16 \mu\text{m}$ (blau gestrichelte Linie) eine hellere Farbgebung sowie anhand des Höhenprofils ein tieferer Abtrag gegenüber dem umliegenden Bereich $16 \mu\text{m} < |y| < 23 \mu\text{m}$, was auf die Phasenexplosion zurückgeführt werden könnte. Die y -Abmessung des durch Spallation ablatierten Materials ist in der Darstellung durch eine rot gestrichelte Linie verdeutlicht und beträgt $|y| = 23 \mu\text{m}$. Demnach wurde das Material im Experiment im y -Bereich $16 \mu\text{m} < |y| < 23 \mu\text{m}$ rein durch Spallation ablatiert. Der Vergleich der experimentellen y -Koordinaten für das Phasenexplosions- und Spallationsgebiet mit den theoretisch berechneten y -Werten zeigt eine qualitative Übereinstimmung, hingegen die y -Ausdehnungen weisen quantitative Unterschiede auf. Die quantitative Abweichung ergibt sich aus dem berechneten Verlauf von $H(y)$ und kommt entsprechend Gleichung 5.1 durch die Einflussparameter H_0 und w_0 zustande.

Anhand von Abbildung 5.16 (unten) zeigt sich für die rückseitige PPR-Messung eine Änderung von $\Delta R/R$ ab etwa $t - t_0 \approx 75 \text{ ps}$ (vertikale schwarz gestrichelte Linie), wobei die Änderung je nach Position positiv oder negativ ist. Anhand der mittleren Zeile wird bei verschiedenen ausgewählten Zeitschritten deutlich, dass diese positive und negative Schwankung von $\Delta R/R$ auch orts aufgelöst auftritt. Zudem sind Beugungsringe erkennbar, welche möglicherweise auf eine Materialausdehnung oder allgemeine Topologieänderungen durch das aufgeheizte Material hindeuten könnten. Infolge des vorherrschenden SNR wird die Interpretation jedoch erschwert. Die y -Ausdehnung des $\Delta R/R$ -veränderlichen Bereiches in Abbildung 5.16 (unten) ist kleiner, als die der Abtragsstruktur (rot gestrichelte Linie) und stimmt mit der y -Ausdehnung des vermutlich durch Phasenexplosion ablatierten Bereiches (blau gestrichelte Linie) deutlich besser überein. Die Ursache hierfür ist der Temperaturverlauf über x , y und z und demzufolge die zeitabhängige vorherrschende Temperatur an der Schichtrückseite sowie die damit einhergehende Änderung der optischen Eigenschaften, welche eine Änderung von $\Delta R/R$ verursacht. Diese Vermutung wird durch die Gegenüberstellung des theoretisch berechneten mit dem gemessenen Verlauf von $\Delta R/R$ anhand der PPR-Messung an der Schichtvorderseite verstärkt (siehe nachfolgende Abbildung 5.17 unten).

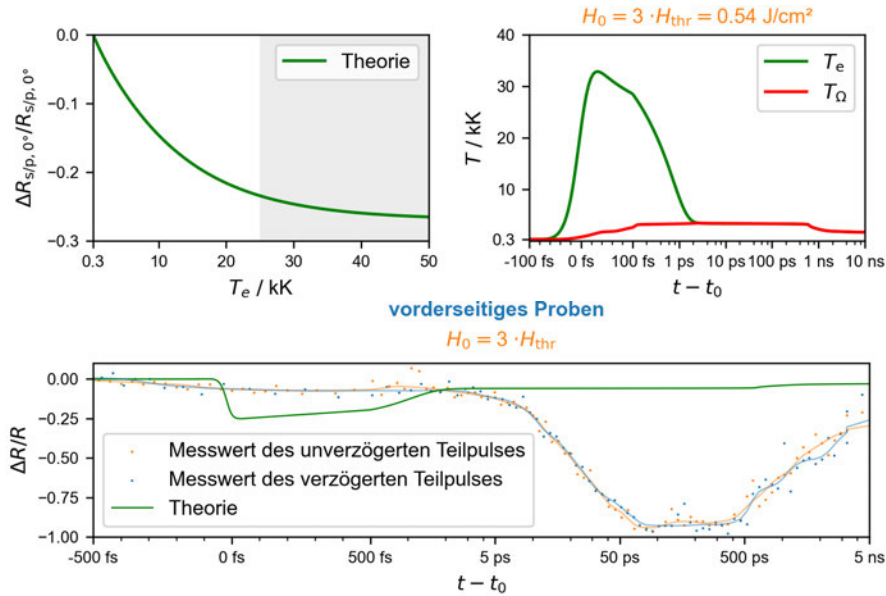


Abbildung 5.17: Darstellung der theoretisch berechneten Änderung von $\Delta R/R$ auf Grundlage des in Abbildung 4.12 berechneten temperaturabhängigen Reflexionsgrades mit $\lambda_{\text{probe}} = 532$ nm (oben links), der mithilfe des TTM berechneten zeitabhängigen Elektronen- und Phononentemperatur an der Schichtvorderseite (oben rechts) sowie der daraus resultierenden theoretischen Änderung von $\Delta R/R$ im Vergleich zum Messwert der entsprechenden vorderseitigen PPR-Messung des unverzögerten und verzögerten Teilpulses bei der wirksamen Spitzenfluenz von $H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}}$ (unten)

Für die beiden Teilpulse ergibt sich eine Verringerung von $\Delta R/R$ ab $t - t_0 \approx -300$ fs, wobei infolge des SNR eine Ungenauigkeit bei der genauen Bestimmung des Anfangszeitpunktes für eine Änderung von $\Delta R/R$ vorherrscht. Die gemessene Verringerung bei $t - t_0 \approx 0$ fs auf $\Delta R/R(x, y = 0) \approx -0,07$ ist gegenüber der theoretisch berechneten Verringerung auf $\Delta R/R(x, y = 0) \approx -0,25$ deutlich kleiner. Möglicherweise könnten diese Abweichungen bei der Berechnung des theoretischen Verlaufs von $\Delta R/R(T_e)$ zustande kommen, beispielsweise ausgelöst durch Fehler der verwendeten temperaturabhängigen thermophysikalischen und optischen Parameter. Zudem könnte das SNR der Messung ebenfalls zu Abweichungen von $\Delta R/R$ beitragen. Betrachtet man die theoretische Änderung der Elektronentemperatur in Abbildung 5.17 (oben rechts) bei $t - t_0 \approx 0$ fs auf $T_e = 32,8$ kK, so ergibt sich $\Delta R_{s/p,0^\circ}/R_{s/p,0^\circ} = -0,25$. Demnach beträgt das theoretische Eingangssignal $S(T_e = 32,8 \text{ kK}) \approx 31,92$ und bildet mit dem Rauschen $N = 17$ ein SNR von $\approx 1,88$.

Prinzipiell lässt sich jedoch sagen, dass das Sinken von $\Delta R/R$ die Annahme, dass eine Änderung von $\Delta R/R$ durch eine Änderung der Elektronentemperatur ausgelöst wird, bestärkt. Ab $t - t_0 \approx 1,5$ ps ergeben sich deutliche Unterschiede, da infolge der Elektronen-Phononen-Kopplung das Material erhitzt und spallatiert wird, wodurch die Änderung der optischen Eigenschaften an der Schichtoberfläche ab diesem Zeitpunkt nicht mehr vorrangig von der Elektronentemperatur abhängig ist.

Auf dieser Grundlage müsste bei den rückseitigen PPR-Messungen mit $H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}}$

ausgehend vom Elektronentemperaturverlauf an der Schichtrückseite (siehe Abbildung 5.18 oben rechts) den Berechnungen zufolge $\Delta R/R$ ab $t - t_0 \approx 500$ ps eine negative Änderung erfahren (siehe Abbildung 5.18 unten). Da jedoch eine erste Änderung von $\Delta R/R$ bereits ab ≈ 75 ps (schwarz gestrichelte Linie) einsetzt, ergibt sich keine Übereinstimmung zum theoretisch berechneten Verlauf (grüne durchgezogene Linie).

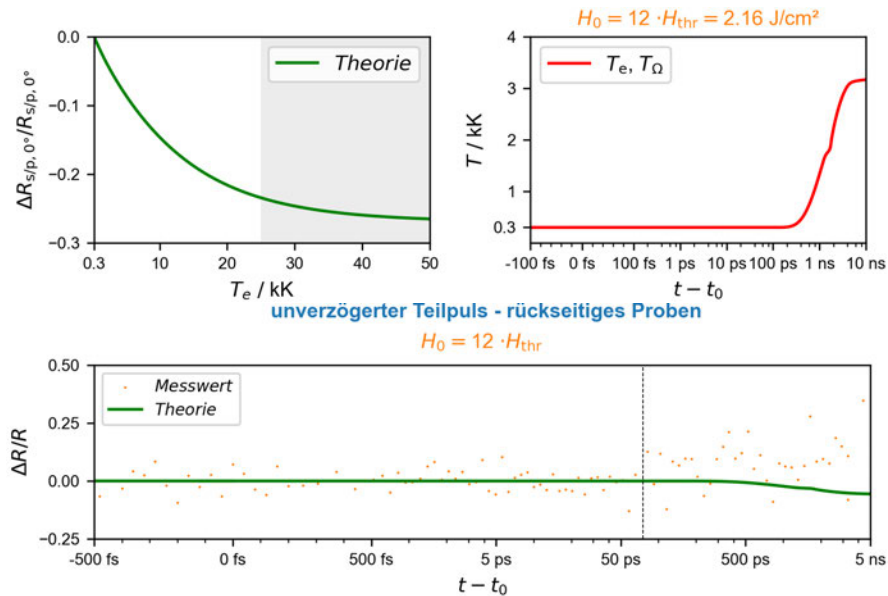


Abbildung 5.18: Darstellung der theoretisch berechneten Änderung von $\Delta R/R$ auf Grundlage des in Abbildung 4.12 berechneten temperaturabhängigen Reflexionsgrades mit $\lambda_{probe} = 532$ nm (oben links), der mithilfe des TTM berechneten zeitabhängigen Elektronen- und Phononentemperatur an der Schichtrückseite (oben rechts) sowie der daraus resultierenden theoretischen Änderung von $\Delta R/R$ im Vergleich zum Messwert der entsprechenden rückseitigen PPR-Messung des unverzögerten Teilpulses bei der wirksamen Spitzenfluenz von $H_0 = 12 \cdot H_{thr}$ (unten)

Möglicherweise könnten die Abweichungen durch die Berechnung mittels des TTM entstanden sein, beispielsweise ausgelöst durch Fehler der verwendeten temperaturabhängigen thermophysikalischen und optischen Parameter, durch Berechnungsfehler oder durch den im Modell nicht berücksichtigten Energieverlust infolge der Materialablation. Jedoch ebenfalls denkbar wäre, dass die Änderung von $\Delta R/R$ nicht nur von der Änderung der Elektronentemperatur abhängt, sondern auch abhängig von Dichteänderungen aufgrund der in der Schicht propagierenden Stoßwelle ist. Ausgehend von der Schallgeschwindigkeit in Edelstahl $v_{Schall,RT} \approx 5700$ m/s [35] müsste die Stoßwelle nach 70 ps an der Schichtrückseite ankommen und würde mit dem zeitlichen Beginn der Änderung von $\Delta R/R$ (ab $t - t_0 \approx 75$ ps) eine wesentlich bessere Übereinstimmung als bei der Abschätzung über die Wärmeleitung darstellen.

Zusammenfassend sind die in diesem Kapitel dargestellten Änderungen von $\Delta R/R$ in der nachfolgenden Abbildung 5.19 bei x und $y = 0$ zum Vergleich untereinander als geglättete Kurven aufgeführt. Die vorderseitigen PPR-Messungen bei jeweils der gleichen Spitzenfluenz weisen einen ähnlichen Verlauf auf. Die Verläufe für die zwei Spitzenfluenzen zeigen im Vergleich untereinander, dass der qualitative Verlauf ähnlich ist, jedoch das Absinken von $\Delta R/R$ auf ein Minimum für die höhere Spitzenfluenz etwa 150 ps schneller abläuft. Dies lässt sich darauf zurückführen, dass die Temperatur bei höheren Fluenzen schneller ansteigt, folglich das Material zeitiger ablatiert wird und demzufolge $\Delta R/R$ schneller sinkt. Hingegen die anschließende Erhöhung von $\Delta R/R$ setzt für den Fall der höheren Spitzenfluenz etwa 200 ps später ein, was wahrscheinlich darauf zurückzuführen ist, dass insgesamt mehr Material ablatiert wird und somit die Verdünnung des ablatierten Materials später einsetzt, weshalb der Anstieg von $\Delta R/R$ ebenfalls später beginnt. Für die rückseitige PPR-Messung bei $12 \cdot H_{\text{thr}}$ wurden aufgrund der hohen Streuung nur die ungeglätteten Messwerte angegeben, wobei sich daraus keine klarer Trend von $\Delta R/R$ ergibt.

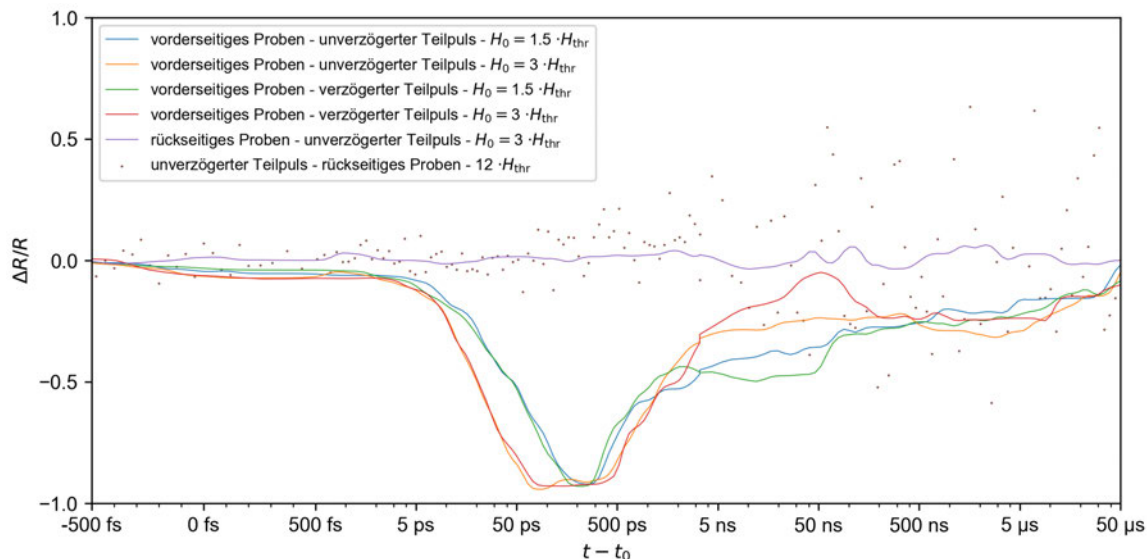


Abbildung 5.19: Vergleich der zeitabhängigen Änderungen von $\Delta R/R$ bei x und $y = 0$ infolge von vorder- und rückseitiger PPR der beiden Teilpulse bei verschiedenen wirk-samen Spitzenfluenzen

5.2.2 Doppelpulse

In diesem Kapitel werden vorder- und rückseitige PPR-Messungen bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays dargestellt und beschrieben. Hierfür wurde für jeden Teilpuls die 1.5-fache Schwellfluenz angewendet und t_{delay} zwischen den beiden Teilpulsen, bei $t_{\text{delay}} = (400, 2000, 6250) \text{ ps}$ und $t_{\text{delay}} = 1 \text{ s}$, variiert. Zum Vergleich dient die Einzelpuls PPR-Messung des unverzögerten Teilpulses bei der 1.5-fachen Schwellfluenz. Da die Doppelpulsmessung bei $t_{\text{delay}} \approx 133 \text{ fs}$ dem nahezu gleichzeitigen Einstrahlen der beiden Teilpulse auf die Probenoberfläche entspricht und die entstandene Abtragsstruktur sowie $\Delta R/R(t)$ den Ergebnissen der Einzelpulsmessung bei der 3-fachen Schwellfluenz ähnlich ist, wird die Doppelpuls-PPR-Messung bei $t_{\text{delay}} \approx 133 \text{ fs}$ ebenfalls für den Vergleich herangezogen.

Die bei den jeweiligen Doppelpuls-PPR-Messungen entstandenen Abtragsstrukturen sind in Abbildung 5.21 für die verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays aufgeführt. Um die entstandenen Höhenprofile entlang y bei $x = 0$ übersichtlich miteinander vergleichen zu können, sind die gleitenden Durchschnitte für die verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays in der nachfolgenden Abbildung 5.20 dargestellt. Prinzipiell ist ersichtlich, dass das Höhenprofil mit steigendem Doppelpuls-Zeitdelay schmaler und tiefer wird und zudem von einem kastenförmigen zu einem keilförmigen Querschnitt übergeht.

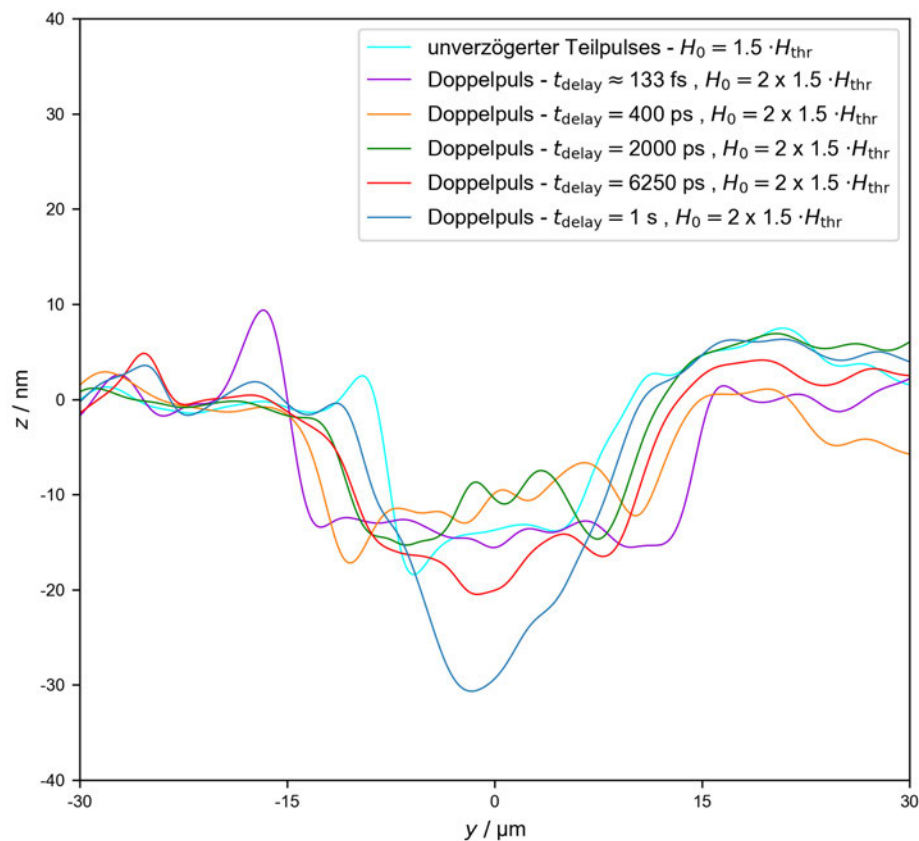


Abbildung 5.20: Darstellung der Höhenprofile entlang y bei $x = 0$ der entstandenen Abtragsstrukturen aus Abbildung 5.21 bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays

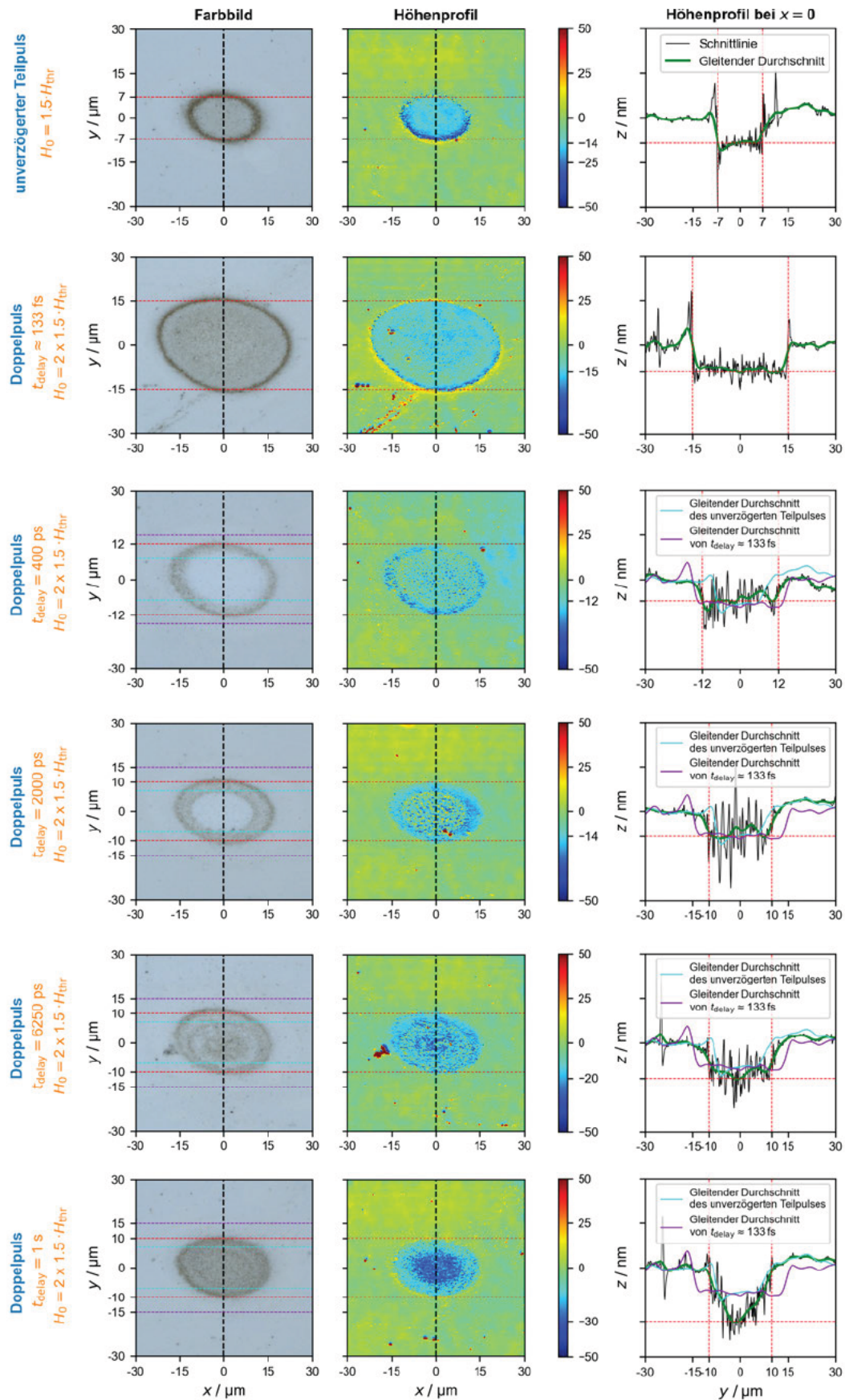


Abbildung 5.21: Vergleich der bei den PPR-Messungen entstandenen Abtragsstrukturen bei unterschiedlichen Doppelpuls-Zeitdelays

Die entstandene Abtragsstruktur bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps in Abbildung 5.21 weist einen einige Mikrometer schmalen Ring am Rand der Struktur auf, welcher einen um einige Mikrometer tieferen Abtrag als die restliche Struktur verzeichnet. Im direkten Vergleich zu den Abtragsstrukturen des unverzögerten Teilpulses und Doppelpulses ($t_{\text{delay}} \approx 133$ fs) sind keine Übereinstimmungen zu erkennen, zudem ist die Oberflächenrauigkeit größer. Hingegen für $t_{\text{delay}} = 2000$ ps wird deutlich, dass der schmale Ring mit etwas tieferem Abtrag breiter wird und der innen liegende Bereich in seiner y -Ausdehnung mit der des Einzelpulsabtrags (cyan gestrichelte Linie) übereinstimmt. Jedoch ist auch zu erkennen, dass die Oberflächenrauigkeit größer ist als bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps. Bei Betrachtung der Abtragsstruktur bei $t_{\text{delay}} = 6250$ ps wird deutlich, dass die y -Ausdehnung im Vergleich zu $t_{\text{delay}} = 2000$ ps unverändert, hingegen die Oberflächenrauigkeit etwas geringer und die Abtragstiefe etwas größer ist. Zudem lässt sich im Inneren der Struktur eine elliptische Struktur erkennen, welche mit der y -Ausdehnung des Einzelpulses (cyan gestrichelte Linie) relativ gut übereinstimmt, jedoch eine wesentlich höhere Rauheit aufweist. Die bei den Experimenten mit $t_{\text{delay}} = 1$ s entstandene keilförmige Abtragsstruktur weist die größte Abtragstiefe auf, welche im Vergleich zum Einzelpuls und Doppelpuls ($t_{\text{delay}} \approx 133$ fs) doppelt so groß ist. Die y -Ausdehnung verhält sich wie bei $t_{\text{delay}} = 2000$ ps und $t_{\text{delay}} = 6250$ ps und ist demnach größer im Vergleich zum Einzelpuls bei 1.5-facher Schwellfluenz und kleiner im Vergleich zum Doppelpuls ($t_{\text{delay}} \approx 133$ fs) bei 2×1.5 -facher Schwellfluenz. Somit lässt sich anhand der Höhenprofile zusammenfassen, dass die Abtragstopologie im Querschnitt mit steigendem Doppelpuls-Zeitdelay von kastenförmig zu keilförmig übergeht, die räumliche Ausdehnung abnimmt und die Abtragstiefe zunimmt. Diese Erkenntnisse stimmen mit denen aus Kapitel 5.1.2 überein.

Mithilfe der nachfolgend aufgeführten Ergebnisse zu den vorderseitigen PPR-Messungen (analog zu den vorher gezeigten Abtragsstrukturen) sollen die Einflüsse des Doppelpuls-Zeitdelays auf das Ablationsverhalten der dünnen Edelstahlschicht beschrieben werden. Hierfür sind die Ergebnisse in der nachfolgenden Abbildung 5.22 zusammengefasst, wobei die über x und y orts aufgelöste Änderung von $\Delta R/R$ bei ausgewählten Zeitschritten, für den unverzögerten Teilpuls bei 1.5-facher Schwellfluenz sowie den Doppelpuls bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays und 2×1.5 -facher Schwellfluenz, dargestellt ist. Für $t_{\text{delay}} = 1$ s wurde für die Darstellung von $\Delta R/R$ ein zusätzlicher Offset von einer Sekunde gewählt. Demzufolge beziehen sich die hier aufgeführten Ergebnisse auf den zweiten Teilpuls, weshalb die Messreihe (von oben nach unten) den Titel $t - t_0 - 1$ s trägt. Für den Zeitschritt $t - t_0 = 0$ ps ist ausschließlich bei $t_{\text{delay}} = 1$ s eine eindeutige Änderung von $\Delta R/R$ zu erkennen, ausgelöst durch die vom ersten Teilpuls verursachte Abtragsstruktur und die damit einhergehende Änderung der optischen Eigenschaften. Die Messreihe links (Einzelpuls) ist analog zu den Ergebnissen des vorherigen Kapitels und dient nur zum Vergleich, da der Einzelpuls Teil eines jeden Doppelpulses ist.

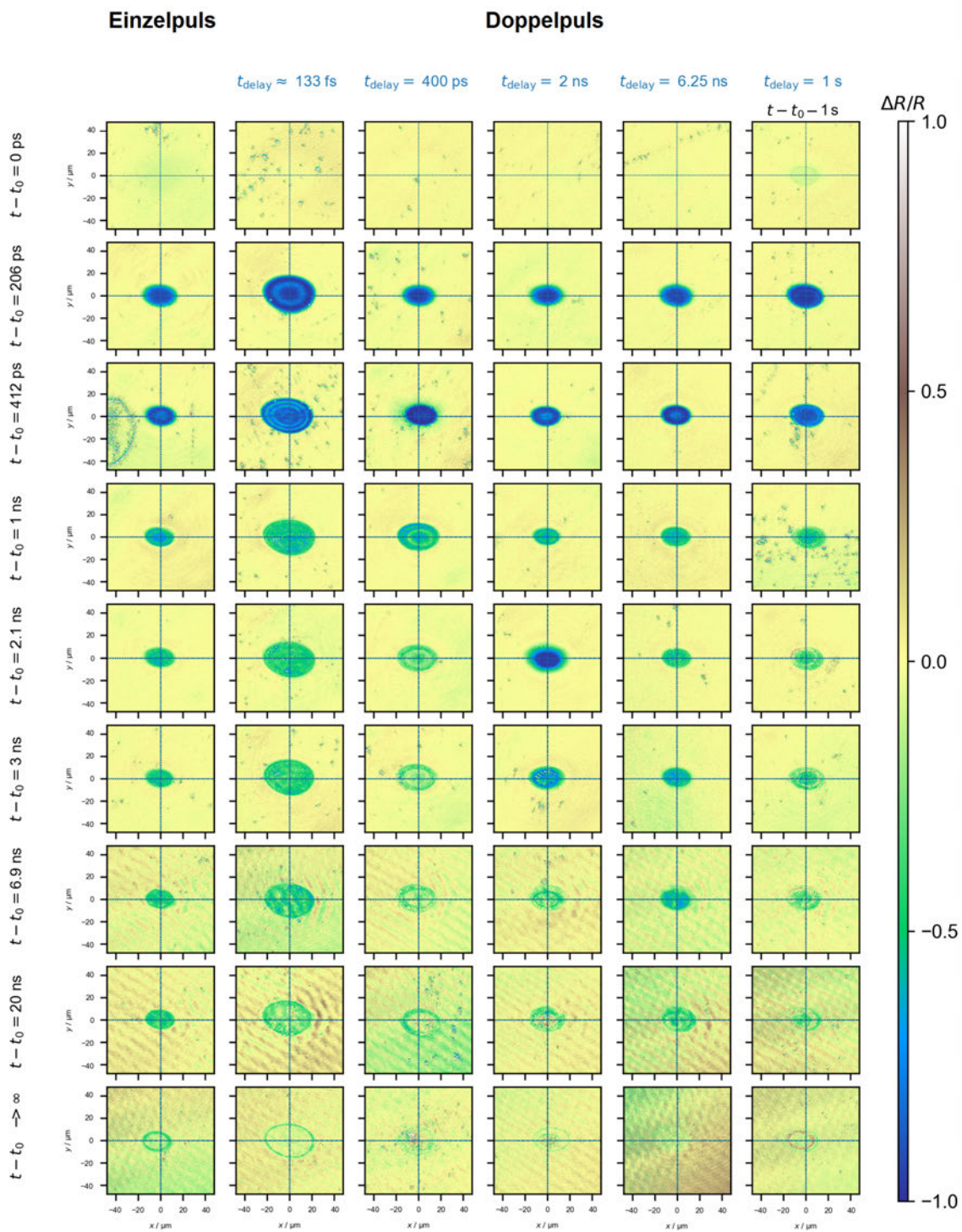


Abbildung 5.22: Darstellung von $\Delta R/R(x, y)$ bei ausgewählten Zeitschritten für den unverzögerten Teilpuls sowie den Doppelpuls bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays

Die negativen Änderungen bei $t - t_0 = 206$ ps für den Doppelpuls bei $t_{\text{delay}} = (400, 2000, 6250)$ ps sowie für den Einzelpuls sind identisch, da zu diesem Zeitpunkt jeweils nur der unverzögerte Teilpuls eingestrahlt wurde. Die negative Änderung von $\Delta R/R$ ergibt sich infolge der Materialablation [1], wobei dessen zeitlicher Verlauf abhängig von der wirksamen Spitzenfluenz ist. Die Doppelpulsbestrahlung ($t_{\text{delay}} \approx 133$ fs) zum gleichen Zeitpunkt $t - t_0 = 206$ ps zeigt bereits einen Newton-Ring, was auf die Spallation der Schicht schließen lässt. Hingegen die negative Änderung von $\Delta R/R$ für $t_{\text{delay}} = 1$ s zu diesem Zeitpunkt erscheint stärker als beim Einzelpuls, zudem sind keine Newton-Ringe zu erkennen. Möglicherweise ist die durch den ersten Teilpuls entstandene Abtragsstruktur dafür verantwortlich, dass das dünne homogene ablatierte Scheibchen in diesem Fall zeitig zerfällt und damit die Ausbildung von Newton-Ringen verhindert wird.

Der dargestellte Zeitschritt $t - t_0 = 412$ ps stellt den Zeitpunkt dar, wo der zweite Teilpuls für $t_{\text{delay}} = 400$ ps bereits eingestrahlt wurde. Gegenüber den anderen Änderungen, wo jeweils erst der erste Teilpuls eingestrahlt wurde, ergibt sich eine deutlich stärkere Abnahme von $\Delta R/R$ auf -1 , wobei der einige Mikrometer schmale unscharfe Randbereich bei $10 \mu\text{m} \lesssim |y| \lesssim 12 \mu\text{m}$ nur eine Änderung auf etwa -0.25 erfährt. Da bei $t_{\text{delay}} = 133$ fs zum Zeitschritt $t - t_0 = 412$ ps noch Newton-Ringe zu erkennen sind, müsste bei allen Doppelpuls-Zeitdelays außer $t_{\text{delay}} = 1$ s die ablatierte Schicht noch homogen geschlossen sein. Demzufolge würde der zweite eingestrahelte Teilpuls bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps in die sich abhebende spallatierte Schicht einstrahlen, diese infolge der Strahlungsabsorption weiter erwärmen, deformieren und möglicherweise zerstören [36]. Demnach würde die eingestrahelte Probestrahlung an dem zerstörten ablatierten Scheibchen verstärkt gestreut, was das Sinken von $\Delta R/R$ auf -1 erklären könnte. Ausgehend von dieser Beschreibung würde die Strahlungsenergie des zweiten Teilpulses hauptsächlich von der ablatierten Schicht absorbiert werden und weniger zur darunter liegenden Schicht auf dem Substrat gelangen, was die Beschaffenheit und unterschiedlichen Abtragstiefen der entstandenen Abtragsstruktur (siehe Abbildung 5.21 Zeile bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps) erklären würde. Hingegen der umliegende Randbereich bei $10 \mu\text{m} \lesssim |y| \lesssim 12 \mu\text{m}$, welcher nur eine Änderung von $\Delta R/R$ auf ≈ -0.25 erfährt, spiegelt sich in der Abtragsstruktur als stärker abgetragener Ring wider und würde auf eine schwache Abschirmung hindeuten.

Um die transiente relative Reflexionsgradänderung in Abhängigkeit vom Doppelpuls-Zeitdelay besser zu verdeutlichen, wurde $\Delta R/R$ entlang y bei $x = 0$ für die bereits in Abbildung 5.22 aufgezeigten Messreihen in der nachfolgenden Abbildung 5.23 untereinander dargestellt. In Abbildung 5.23 entsprechen die schwarz gestrichelten vertikalen Linien jeweils der zeitlichen Referenz, wo der zweite Teilpuls auf die Probe eingestrahlt wurde, hingegen die rot gestrichelten horizontalen Linien entsprechen der y -Ausdehnung der jeweiligen Abtragsstruktur aus Abbildung 5.21. Für die Messreihe bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps ist der soeben erwähnte umliegende Randbereich bei $10 \mu\text{m} \lesssim |y| \lesssim 12 \mu\text{m}$, welcher nur eine Änderung von $\Delta R/R$ auf ≈ -0.25 erfährt ab $t - t_0 \approx 410$ ps ersichtlich. Diese Änderung von $\Delta R/R$ verhält sich analog zur anfänglichen Abnahme ab $t - t_0 \approx 10$ ps, welche infolge der Bestrahlung mit dem ersten

Teilpuls entstanden ist und durch die beginnende Spallation der Schicht ausgelöst wurde. Demzufolge wird die erwähnte Verringerung von $\Delta R/R$ ab ≈ 410 ps durch den zweiten Teilpuls ausgelöst und sorgt für die Spallation von Material. In den darauf folgenden Zeitschritten zeigt sich eine Zunahme von $\Delta R/R$, was für die weitere Expansion und Dichteabnahme der spallierten Schicht spricht. Anhand der PPR-Messung in Abbildung 5.23 zeigt sich ab etwa 10 ns keine maßgebliche Änderung mehr von $\Delta R/R$, weshalb somit der Ablationsvorgang beendet sein müsste.

Bei Betrachtung der Änderungen von $\Delta R/R$ für die Messreihe bei $t_{\text{delay}} = 2000$ ps wird deutlich, dass diese bis zum Zeitschritt $t - t_0 = 2.012$ ns denen des Einzelpulses nahezu identisch sind. Anschließend können Unterschiede infolge des zweiten einfallenden Teilpulses beobachtet werden. An dieser Stelle muss erwähnt werden, dass die PPR-Messung mit Teilaufbau A nach Einstrahlung des zweiten Teilpulses um 12 ps zu spät gestartet wurde und demnach die Bilder für den Zeitraum $2 \text{ ns} \leq t - t_0 \leq 2.012 \text{ ns}$ fehlen. Da dieser Fehler erst gegen Ende der Anfertigung dieser Arbeit bemerkt wurde, und die verbleibende Zeit nicht ausreichte, fand keine Ergänzung der Daten statt. Entsprechend der Änderung von $\Delta R/R$ bei $t - t_0 = 2.012$ ns auf -1 wird davon ausgegangen, dass $\Delta R/R$ wie bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps direkt nach Einfallen des zweiten Teilpulses (verdeutlicht durch schwarze vertikale gestrichelte Linie), infolge der Wechselwirkung mit der ablatierten Schicht, sinkt. Diese Annahme wird in Bezug auf die Messung des unverzögerten Teilpulses verstärkt, da zum Zeitpunkt $t - t_0 = 2$ ns $\Delta R/R \approx -0.5$ beträgt, das ablatierte Scheibchen somit immer noch existiert und entsprechend Abbildung 5.23 erst ab etwa 500 ns zerfällt. Demzufolge müsste der verzögerte Teilpuls bei $t_{\text{delay}} = 2000$ ps in das sich abhebende Scheibchen einstrahlen, wobei die Stärke der Abschirmung gegenüber derer bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps, infolge der geringeren Dichte der spallierten Schicht, schwächer sein müsste. Diese Vermutung würde mit der entstandenen Abtragsstruktur in Abbildung 5.21 übereinstimmen, wo die innere elliptische Fläche mit $|y| < 7 \mu\text{m}$ eine um etwa drei Mikrometer kleinere y -Ausdehnung aufweist, als die bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps. Zudem ist die Oberflächenrauigkeit dieser elliptischen Fläche größer, als die bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps. Ausgehend von der Annahme, dass die Dichte des Scheibchens sinkt, würde in diesem Fall punktuell mehr Strahlungsenergie in Richtung Probenoberfläche transmittiert und folglich punktuell mehr Material ablatiert werden. Daraus könnte eine Erhöhung der Rauheit resultieren.

Die durchgeführte Messung bei $t_{\text{delay}} = 6250$ ps bildet bis zum Zeitpunkt, wo der verzögerte Teilpuls eingestrahlt wird, die Messung des Einzelpulses wider. Da der Messbereich des Teilaufbaus A nur bis 4 ns reicht, wurde die infolge der Bestrahlung mit dem verzögerten Teilpuls entstandene Änderung von $\Delta R/R$ mit dem Teilaufbau B aufgelöst. Da jedoch dessen zeitliche Auflösung nur 2.7 ns beträgt, haben die PPR-Messergebnisse nur eine geringe Aussagekraft, hinzu kommt das geringe SNR, welches die Interpretierbarkeit der Änderungen von $\Delta R/R$ erschwert. Allerdings lässt sich deuten, dass ab etwa $t - t_0 \approx 50$ ns keine Änderung mehr von $\Delta R/R$ ersichtlich ist und demnach der Ablationsvorgang beendet sein müsste. Somit wäre der Ablationsvorgang gegenüber der Einzelpulsbestrahlung etwa 450 ns früher beendet, hingegen der Doppelpulsbestrahlung bei $t_{\text{delay}} = (400, 2000)$ ps um etwa 40 ns später.

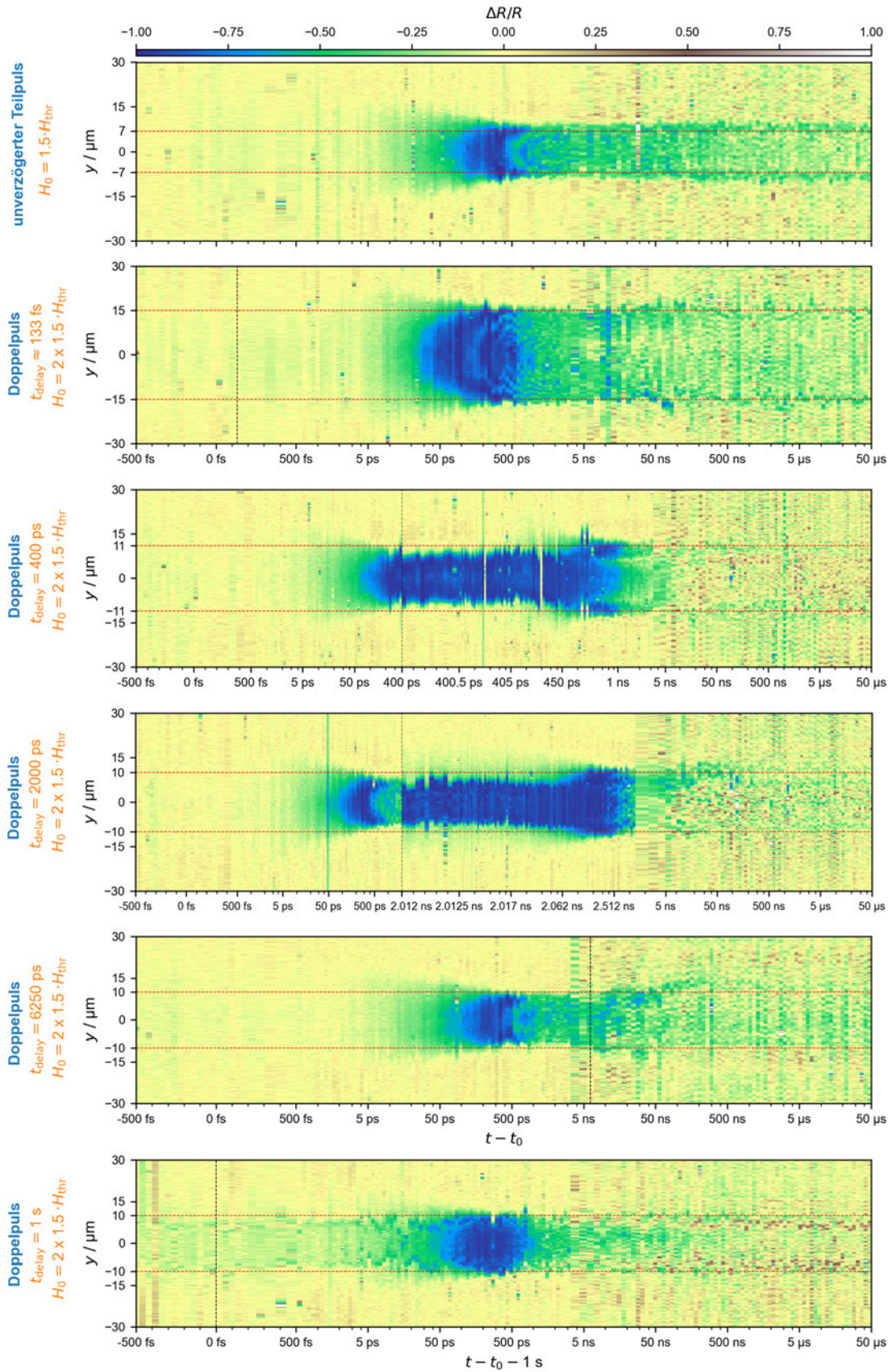


Abbildung 5.23: Vergleich der vorderseitigen PPR-Messergebnisse anhand $\Delta R/R(y,t)$ infolge der Doppelpulsbestrahlung ($H_0 = 1.5 \cdot H_{\text{thr}}$ pro Teilpuls) bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays

Für die Messreihe in Abbildung 5.23 bei $t_{\text{delay}} = 1$ s wird deutlich, dass im Randbereich bei $|y| \approx 10 \mu\text{m}$ ab etwa 5 ns keine wesentliche Änderung mehr von $\Delta R/R$ zu erkennen ist, hingegen im Zentrum bei $|y| \lesssim 5 \mu\text{m}$ erst ab etwa 500 ns. Ursache hierfür ist die Ablation des Material aus der Tiefe im Zentrum, welches bis zur vollständigen Expansion, infolge seines Volumens, deutlich länger benötigt, als das Material des Randbereiches. Bei erneuter Betrachtung der entstandenen keilförmigen Abtragsstruktur (siehe Abbildung 5.21 untere Zeile) wird deutlich, dass der zweite Teilpuls hauptsächlich im Zentrum Material aus der Tiefe ablatiert hat. Die hohe Abtragstiefe bei $t_{\text{delay}} = 1$ s ist möglicherweise auf eine stärkere Absorption des zweiten Teilpulses an der durch den ersten Teilpuls erzeugten Abtragsstruktur und auf die damit einhergehende Änderung der optischen Eigenschaften und Abtragstopologie zurückzuführen.

Um weitere Information über das Anregungs- und Ablationsverhalten der dünnen Schicht zu erhalten, wurden rückseitige PPR-Messungen durchgeführt. Hierfür wurde im ersten Schritt die gleiche Spitzenfluenz pro Teilpuls ($H_0 = 1.5 \cdot H_{\text{thr}}$) wie bei den analogen vorderseitigen PPR-Messungen gewählt, um eine Vergleichbarkeit zu gewährleisten. Die entstandene Abtragsstruktur sowie die PPR-Messergebnisse sind in der nachfolgenden Abbildung 5.24 dargestellt.

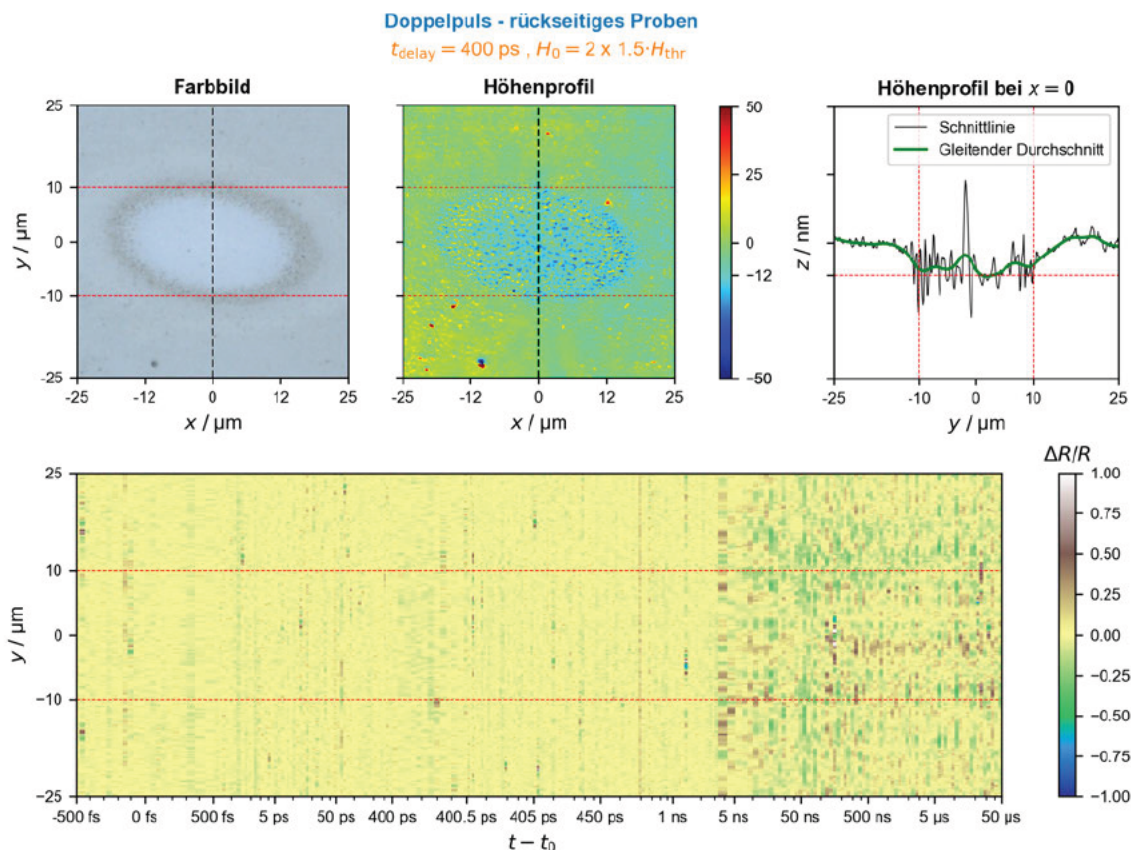


Abbildung 5.24: Darstellung der bei der rückseitigen PPR-Messung entstandenen Abtragsstruktur (oben) sowie von $\Delta R/R(y,t)$ (unten) infolge der Doppelpulsbestrahlung bei $t_{\text{delay}} = 400 \text{ ps}$ und einer wirksamen Spitzenfluenz von $H_0 = 2 \times 1.5 \cdot H_{\text{thr}}$ und rückseitiger Probebestrahlung

Die entstandene Abtragsstruktur stimmt mit der bei der vorderseitigen PPR-Messung entstandenen Abtragsstruktur bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps in Abbildung 5.21 gut überein. Mittels der rückseitigen PPR-Messung ist jedoch ähnlich wie bei der rückseitigen Einzelpuls-messung in Abbildung 5.13 keine Änderung von $\Delta R/R(y,t)$ im betrachteten Zeitbereich detektierbar. Betrachtet man in der nachfolgenden Abbildung 5.25 den zeitlichen Verlauf der simulierten Elektronen- und Phonontemperatur an der Schichtrückseite für die angewendete Spitzenfluenz, so wird deutlich, dass diese sich nahezu gleich verhält, wie für die Einzelpulsbestrahlung bei $H_0 = 3 \cdot H_{\text{thr}}$ (Abbildung 5.14). Demnach ergibt sich hierfür eine Übereinstimmung weshalb im nächsten Schritt die Messung bei einer höheren Spitzenfluenz von $H_0 = 2 \times 6 \cdot H_{\text{thr}}$ analog zur Einzelpulsmessung in Abbildung 5.16 wiederholt wurde.

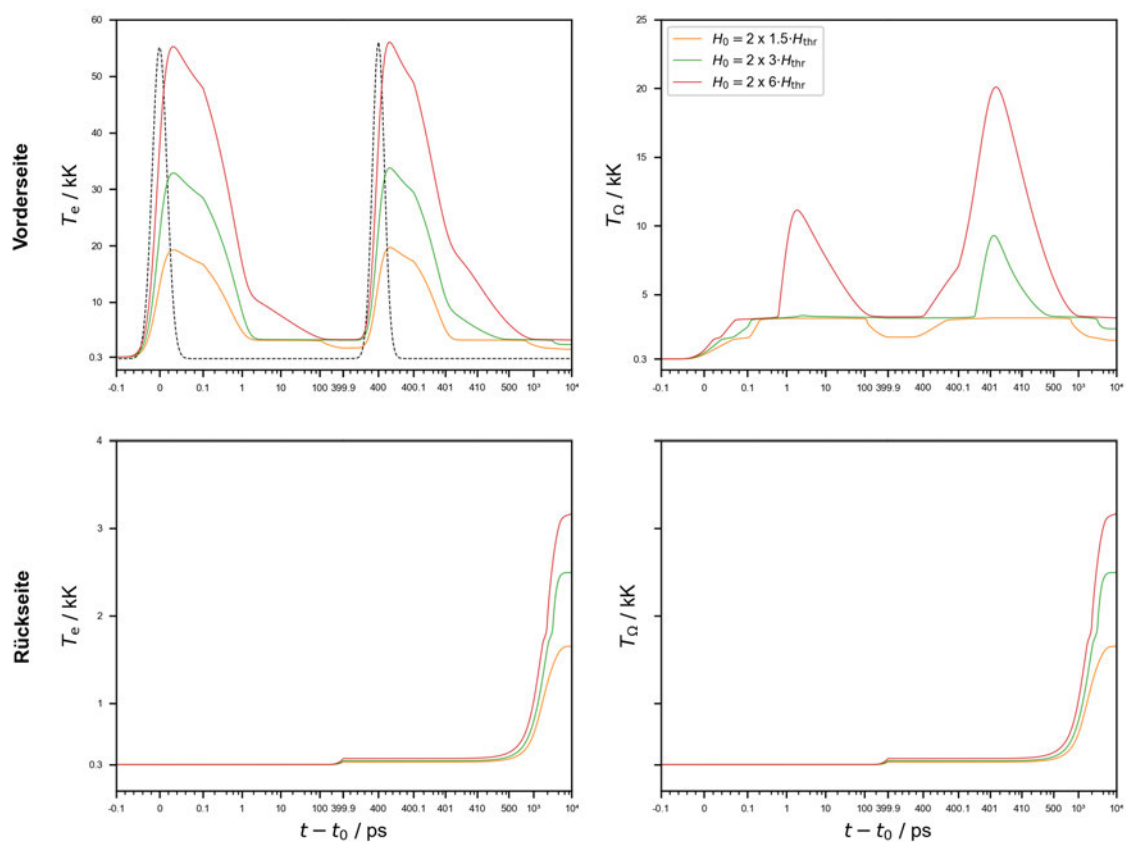


Abbildung 5.25: Darstellung des simulierten zeitlichen Elektronen- und Phonontemperaturverlaufs an der Schichtvorder- und -rückseite infolge der Doppelpulsbestrahlung mit $t_{\text{delay}} = 400$ ps bei verschiedenen wirksamen Spitzenfluenzen

Um die Vergleichbarkeit zur Einzelpulsmessung bei $H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}}$ zu gewährleisten, wurde für die rückseitige Doppelpuls-PPR-Messung die 6-fache Schwellfluenz pro Teilpuls angewendet. Die entstandene Abtragsstruktur sowie die Änderung von $\Delta R/R(y,t)$ ist in der nachfolgenden Abbildung 5.26 dargestellt.

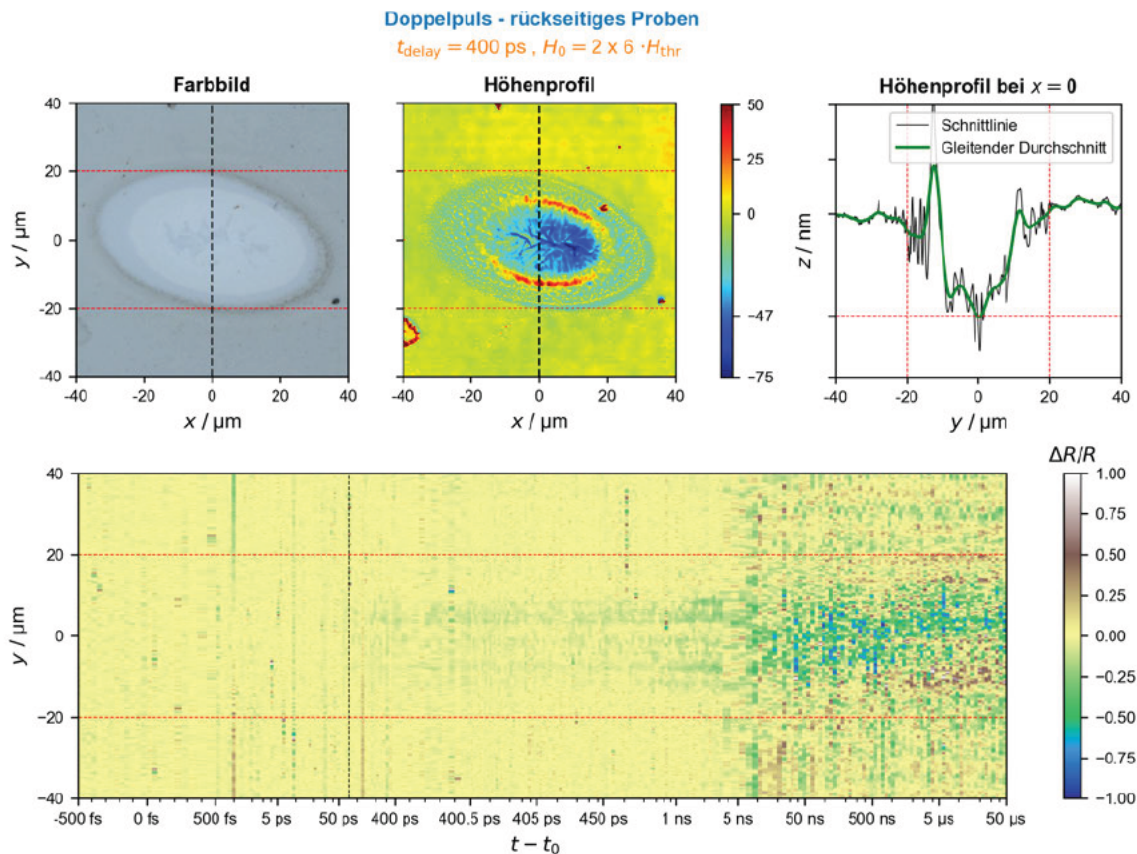


Abbildung 5.26: Darstellung der bei der rückseitigen PPR-Messung entstandenen Abtragsstruktur (oben) sowie von $\Delta R/R(y,t)$ (unten) infolge der Doppelpulsbestrahlung bei $t_{\text{delay}} = 400 \text{ ps}$ und einer wirksamen Spitzenfluenz von $H_0 = 2 \times 6 \cdot H_{\text{thr}}$ und rückseitiger Probebestrahlung

Anhand der Abtragsstruktur wird deutlich, dass die y -Ausdehnung gegenüber der bei der Einzelpulsbestrahlung (siehe Abbildung 5.16 obere Zeile, $|y| = 23 \mu\text{m}$) etwas geringer ist, hingegen die Abtragtiefe sich ähnlich verhält. Das Höhenprofil entlang x und y weist eine Rissbildung der Schicht im Inneren der Abtragsstruktur auf. Bei der Einzelpulsbestrahlung hingegen konnte dies nicht beobachtet werden. Des Weiteren zeigt das Höhenprofil im Inneren der Abtragsstruktur bei etwa $|y| \approx 10 \mu\text{m}$ einen elliptischen Ring mit einer Breite weniger Mikrometer, welcher einen Materialaufwurf von mehreren Nanometern aufweist. Dies könnte möglicherweise durch das Erstarren von Schmelze entstanden sein, dadurch ausgelöst, dass das im Zentrum der Struktur durch Phasenexplosion ablatierte Material die umliegende Schmelze deformiert hat. Um weitere Informationen über den Ablauf der Ablationsdynamik zu erhalten, wäre es notwendig eine vorderseitige PPR-Messung bei dieser wirksamen Spitzenfluenz durchzuführen. Da jedoch die hauptsächliche Intension dieser Messung darin lag Veränderungen im Reflexionsvermögen auf der Schichtrückseite zu untersuchen, wurde keine weitere vorderseite PPR-Messung durchgeführt.

Der Verlauf von $\Delta R/R(y,t)$ in Abbildung 5.26 weist eine Änderung ab etwa $t - t_0 \approx 75 \text{ ps}$ auf, was mit der Einzelpulsmessung überein stimmt, wobei jedoch die Änderung von $\Delta R/R$ bis etwa 1 ns geringer erscheint. Dies lässt sich damit begründen, dass erst

ab $t - t_0 \approx 400$ ps der verzögerte Teilpuls eingestrahlt wurde, somit pro Teilpuls nur die halbe Fluenz eingebracht wurde und die durch den jeweiligen Teilpuls ausgelöste Stoßwelle eine geringere Änderung von $\Delta R/R$ im Vergleich zur Einzelpulsbestrahlung mit $H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}}$ bewirkt. Die Verringerung von $\Delta R/R$ ab etwa 1 ns könnte entsprechend der Simulationsergebnisse in Abbildung 5.25 auf den steilen Anstieg der Elektronen- und Phononentemperatur zu diesen Zeiten an der Schichtrückseite zurückgeführt werden. Zwar müsste dieser Einfluss laut der Berechnung ebenso für die Einzelpulsbestrahlung bei $H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}}$ gelten, jedoch ist womöglich der Einfluss des SNR bei derjenigen Messung zu groß gewesen, als dass man die Änderung hätte erkennen können.

Zusammenfassend sind die in diesem Kapitel dargestellten Änderungen von $\Delta R/R$ in der nachfolgenden Abbildung 5.27 bei x und $y = 0$ zum Vergleich untereinander als geglättete Kurven aufgeführt.

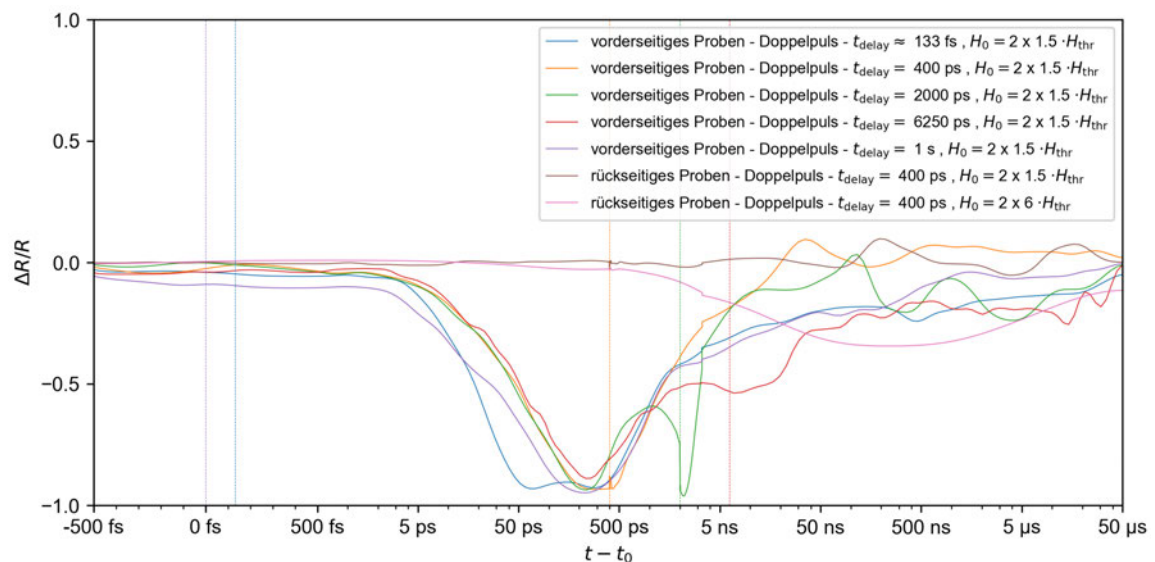


Abbildung 5.27: Vergleich der zeitabhängigen Änderungen von $\Delta R/R$ bei x und $y = 0$ infolge von vorder- und rückseitiger PPR des Doppelpulses bei verschiedenen Doppelpuls-Zeitdelays und wirksamen Spitzenfluenzen

Hierbei zeigt sich für alle vorderseitigen Untersuchungen eine minimale Abnahme von $\Delta R/R$ auf etwa -0.15 bis etwa $t - t_0 \approx 2$ ps, was auf die Elektronentemperaturerhöhung und die damit einhergehende Abnahme von $\Delta R/R$, wie bereits für den Einzelpuls im vorherigen Kapitel berechnet wurde (siehe Abbildung 5.17), zurückzuführen ist. Die etwas stärkere Abnahme von $\Delta R/R$ für $t_{\text{delay}} = 1$ s in diesem Zeitbereich ist auf die durch den ersten Teilpuls entstandene Abtragsstruktur zurückzuführen. Hingegen für die rückseitigen PPR-Messergebnisse zeigt sich in diesem Zeitbereich noch keine Änderung. In den nachfolgenden Pikosekunden ist ein Sinken von $\Delta R/R$ auf etwa -0.9 für alle vorderseitigen PPR-Messungen ersichtlich, ausgelöst durch die ungerichtete Reflexion der Probestrahlung an der sich ablösenden spallatierten Schicht. Zudem erge-

ben sich in den nachfolgenden Zeitschritten (außer bei $t_{\text{delay}} = 400$ ps und $t_{\text{delay}} = 1$ s) Newton-Ringe infolge konstruktiver und destruktiver Interferenz der an den jeweiligen Grenzschichten reflektierten Probestrahlung, wie bereits in den zeit- und orts aufgelösten Darstellungen in diesem Kapitel näher erläutert wurde. Der Verlauf der Abnahme von $\Delta R/R$ im Zeitbereich 2 ps $\lesssim t - t_0 \lesssim 200$ ps stimmt für die vorderseitigen PPR-Messungen bei $t_{\text{delay}} = (400, 2000, 6250)$ ps gut überein, hingegen für $t_{\text{delay}} \approx 133$ fs zeigt sich ein deutlich schnelleres Sinken von $\Delta R/R$ und ein Erreichen des Minimums bereits bei 50 ps. Dies lässt sich darauf zurückführen, dass aus zeitlicher Sicht die gesamte Fluenz eher in das Material eingebracht wurde, die Temperatur somit zeitiger ansteigt und folglich das Material früher ablatiert wird, was zu einem schnelleren Sinken von $\Delta R/R$ führt. Für $t_{\text{delay}} = 400$ ps ist ersichtlich, dass der zweite Teilpuls zu den Zeiten eingestrahlt wird, wo $\Delta R/R$ gerade beginnen würde, anzusteigen. Das Ansteigen wird jedoch um weitere etwa 100 ps verzögert, ausgelöst durch den zweiten Teilpuls. Ebenfalls lässt sich beobachten, dass der Anstieg auf $\Delta R/R \approx 0$ gegenüber den anderen Messungen deutlich schneller abläuft (ebenfalls ersichtlich in Abbildung 5.23) und demnach bereits ab $t - t_0 \approx 10$ ns der Ablationsvorgang beendet sein müsste. Ursache hierfür ist wahrscheinlich die starke Abschirmung des zweiten Teilpulses durch die ablatierte Schicht. Der Verlauf von $\Delta R/R$ bei $t_{\text{delay}} = 2000$ ps zeigt ab etwa 300 ps, dass $\Delta R/R$ bis ≈ 1 ns auf etwa -0.6 angestiegen ist, anschließend, verursacht durch den zweiten Teilpuls, erneut auf etwa -0.9 absinkt und erst 500 ps später ansteigt. Im Zeitbereich 3.3 ns bis 50 μ s, welcher mittels Teilaufbau B gemessen wurde, zeigt sich eine hohe Schwankung von $\Delta R/R$, verursacht durch das vorliegende SNR, was die Interpretierbarkeit erschwert. Abschließend lässt sich sagen, dass die rückseitigen PPR-Messungen für $H_0 = 2 \times 1.5 \cdot H_{\text{thr}}$ keine wesentliche Änderung von $\Delta R/R$ aufweisen, hingegen für $H_0 = 2 \times 6 \cdot H_{\text{thr}}$ ein geringfügiges Sinken ab etwa 75 ps zu erkennen ist, was auf das Auftreffen der von der Vorderseite infolge der Pumpbestrahlung ausgelösten Stoßwelle zurückzuführen ist. Ab etwa 1 ns zeigt sich ein weiteres deutlich stärkeres Absinken von $\Delta R/R$, verursacht durch den Anstieg der Elektronentemperatur an der Schichtrückseite. Das danach folgende weitere Absinken von $\Delta R/R$ würde aus zeitlicher Sicht für die Materialablation, die Entstehung der Abtragsstruktur und die damit einhergehende Änderung der optischen Eigenschaften sprechen. Die Tatsache, dass $\Delta R/R$ für $t - t_0 \rightarrow \infty$ mit etwa -0.15 unverändert bleibt und somit von der entstandenen Abtragsstruktur ausgelöst wird, bestärkt diese Vermutung.

6 Zusammenfassung

Mithilfe fluenzabhängiger Abtragsuntersuchungen an einer 400 nm dünnen Edeltstahlschicht, infolge einer Doppelpulsbestrahlung, konnten Einflüsse des Doppelpuls-Zeitdelays auf die materialspezifische Schwellfluenz sowie die x -, y -Ausdehnung und Abtragstiefe der entstandenen Abtragsstruktur ermittelt werden. So zeigte sich die größte x -, y -Ausdehnung, wenn beide Teilpulse gleichzeitig auf das Material einstrahlen, da die Schwellfluenz hierbei am geringsten ist. Mit steigendem Doppelpuls-Zeitdelay ergibt sich tendenziell eine Verringerung der y -Ausdehnung der Abtragsstruktur, ausgelöst dadurch, dass ein Anstieg der Schwellfluenz beobachtet werden konnte. Der vom Doppelpuls-Zeitdelay abhängige Verlauf der Abtragstiefe der Abtragsstrukturen weist für $t_{\text{delay}} = (200 \text{ bis } 800) \text{ ps}$ die geringsten Werte auf, hingegen die größten für $t_{\text{delay}} = 1 \text{ s}$. Diese ermittelten Zusammenhänge stimmen mit den Erkenntnissen aus der Literatur [12, 13] überein.

Um die Ursachen für die entstandenen Ergebnisse grundlegender zu untersuchen, wurden im weiteren Verlauf dieser Arbeit vorder- und rückseitige Pump-Probe-Reflektometrie (PPR) Messungen durchgeführt. Hierbei konnte festgestellt werden, dass die erwähnte Abnahme der Abtragstiefe für Doppelpuls-Zeitdelays von mehreren hundert Pikosekunden dadurch zustande kommt, dass die Strahlungsenergie des zweiten eingestrahnten Laserpulses von der ablatierten Schicht abgeschirmt wird. Hingegen für größere Doppelpuls-Zeitdelays von mehreren Nanosekunden sinkt dieser Einfluss, wahrscheinlich infolge der sich reduzierenden Dichte der ablatierten Schicht, weshalb die Abtragstiefe folglich ansteigt. Tiefen- und zeitaufgelöste Zwei-Temperatur-Modell Simulationen bei x und $y = 0$ wurden zur Interpretation und Diskussion der entstandenen Messergebnisse angewendet. So wurde im Vergleich mit den rückseitigen PPR-Messergebnissen deutlich, dass eine anfängliche Reduzierung der transienten relativen Reflexionsgradänderung höchstwahrscheinlich durch das Auftreffen einer von der Vorderseite in Richtung Schichtrückseite propagierenden Stoßwelle ausgelöst wurde. Hingegen der eher geringe Anstieg der Elektronentemperatur an der Schichtrückseite wird erst ab etwa 1 ns ersichtlich und hat einen größeren Einfluss auf die Änderung der optischen Eigenschaften. Die rückseitigen PPR-Messungen zeigten ausschließlich bei deutlich höheren angewendeten Spitzenfluenzen von $H_0 = 12 \cdot H_{\text{thr}} = 2.16 \text{ J/cm}^2$ Änderungen von $\Delta R/R$ auf.

7 Ausblick

Um in Zukunft aussagekräftigere Ergebnisse bei rückseitigen PPR-Messungen erhalten zu können, wird die Verwendung dünnerer Schichten empfohlen, damit die Untersuchungen weiterhin bei niedrigen und mittleren Fluenzen durchgeführt werden können. Ebenso wäre es sinnvoll, TTM- bzw. HDTTM-Simulationen vor der Durchführung von vorder- und rückseitigen PPR-Messungen bzw. vor der Auswahl der Messparameter durchzuführen, um den zeitlichen Aufwand sowie den Erfolg der Experimente zu optimieren.

Um den Einfluss des Doppelpuls-Zeitdelays auf die Ablationsmechanismen Spallation und Phasenexplosion zu untersuchen, könnten in Zukunft beispielsweise dünnere Edelstahlschichten und höhere Spitzenfluenzen angewendet werden. Ein Beispiel zeigt die nachfolgende Abbildung 7.1, welche die infolge von vorder- und rückseitigen PPR-Messungen entstandenen Abtragsstrukturen darstellt. Hierbei wurde eine mittels Laserpulsabscheidung hergestellte 100 nm dünne Edelstahlschicht (EN 1.4301) mit einem Pumpstrahlungseinzelpuls bei $H_0 = 13.6 \cdot H_{\text{thr}} = 1.5 \text{ J/cm}^2$ bzw. mit Pumpstrahlungsdoppelpulsen bei $H_0 = 2 \times 6.8 \cdot H_{\text{thr}}$ und $t_{\text{delay}} = 400 \text{ ps}$ bestrahlt. Die restlichen Messparameter sind analog zu den Experimenten in dieser Arbeit. Anhand der Ergebnisse wird deutlich, dass das entstandene Strong-Regime im Inneren der Abtragsstruktur bei der Bestrahlung mit dem Doppelpuls deutlich größer ist und die Schicht über diesen gesamten Bereich komplett abgetragen wurde. Die Ursachen hierfür können möglicherweise anhand der vorder- und rückseitigen PPR-Messergebnisse, welche in der nachfolgenden Abbildung 7.2 gegenübergestellt sind, begründet werden.

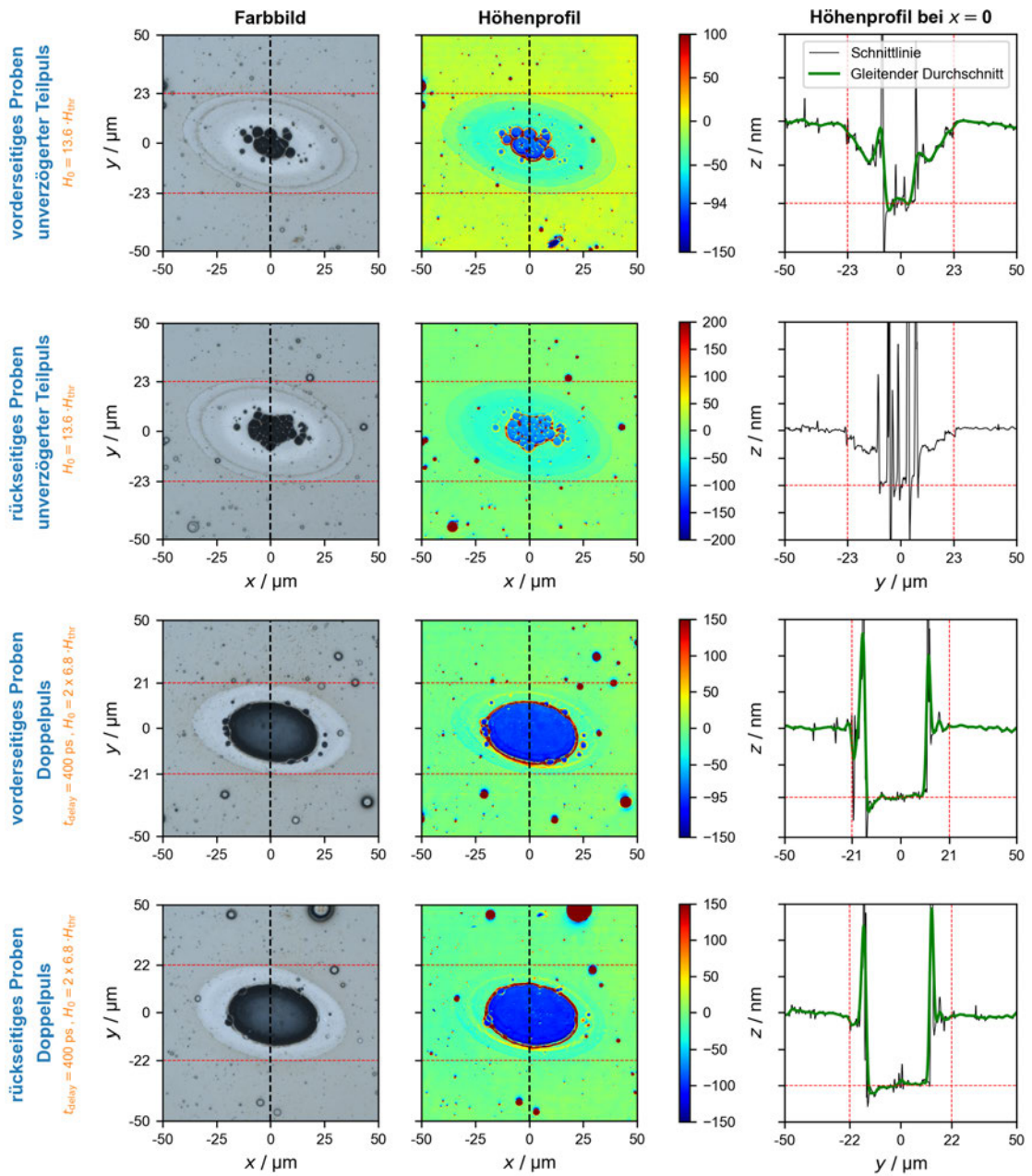


Abbildung 7.1: Vergleich der bei den vorder- und rückseitigen PPR-Messungen entstandenen Abtragsstrukturen infolge von Einzel- bzw. Doppelpulsbestrahlung bei gleicher wirksamer Spitzenfluenz

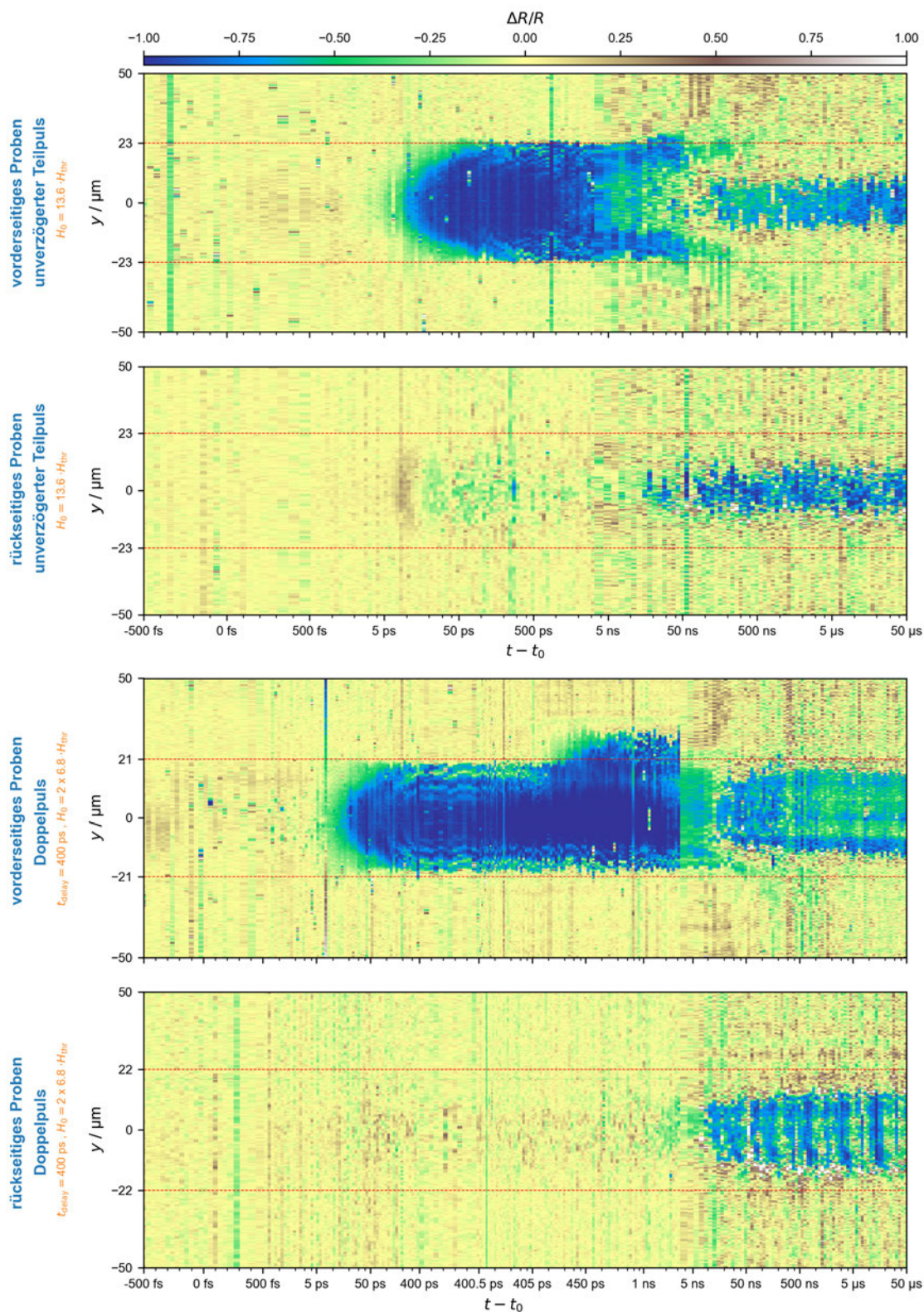


Abbildung 7.2: Vergleich der transienten relativen Reflexionsgradänderung bei vorder- und rückseitiger PPR infolge von Einzel- bzw. Doppelpulsbestrahlung bei gleicher wirksamer Spitzenfluenz

Da das hier aufgezeigte Experiment nur ein Beispiel liefern soll, wie zukünftig weitere Untersuchungen aussehen könnten, wird auf die Auswertung der Ergebnisse sowie auf weitere TTM-Simulationen verzichtet. Für zukünftige Experimente wird des Weiteren empfohlen, den hochaufgelösten Messbereich von Teilaufbau A so zu erweitern, dass alle zu untersuchenden Doppelpuls-Zeitdelays mit der minimalen zeitlichen Auflösung des Teilaufbaus A, zum Zeitpunkt des Einstrahlens des zweiten Teilpulses, aufgelöst werden können. Nur so lassen sich die auftretenden Mechanismen mithilfe der PPR grundlegend untersuchen.

Ebenfalls interessant wären Untersuchungen zum Einfluss des räumlichen Doppelpulsüberlapps sowie des Einflusses zeitlicher Pulsformung auf die Ablationsmechanismen.

Literaturverzeichnis

- [1] Max Ernstberger. *Orts- und zeitaufgelöste Messung der transienten optischen Eigenschaften dünner Schichten mittels Pump-Probe Reflektometrie über zehn Größenordnungen*. FuE II, Mittweida, 2022.
- [2] Nick Börnert. *Aufbau und Validierung einer Doppelpulsverzögerungsstrecke*. FuE II, Mittweida, 2022.
- [3] Peter Lickschat, Daniel Metzner, and Steffen Weißmantel. Manufacturing of high quality 3d microstructures in stainless steel with ultrashort laser pulses using different burst modes. *Journal of Laser Applications*, 33(4):042002, 2021.
- [4] Christian Kreisel, Tommy Knebel, Ronny Menzel, Daniel Metzner, and Peter Lickschat. *Qualitätsoptimierter Hochrateabtrag von Werkzeugstahl und Hartmetall mittels ultrakurzer Laserpulse im Burstbetrieb*. 12. Mittweidaer Lasertagung, Mittweida, 2021.
- [5] Peter Lickschat, Daniel Metzner, and Steffen Weißmantel. Burst mode ablation of stainless steel with tunable ultrashort laser pulses. *Journal of Laser Applications*, 33(2):022005, 2021.
- [6] D. Metzner, P. Lickschat, and S. Weißmantel. Optimization of the ablation process using ultrashort pulsed laser radiation in different burst modes. *Journal of Laser Applications*, 33(1):012057, 2021.
- [7] Theo Pflug, Markus Olbrich, Jan Winter, Jörg Schille, Udo Löschner, Heinz Huber, and Alexander Horn. Fluence-Dependent Transient Reflectance of Stainless Steel Investigated by Ultrafast Imaging Pump–Probe Reflectometry. *The Journal of Physical Chemistry C*, 125(31):17363–17371, 2021.
- [8] Jan Winter, Stephan Rapp, Maximilian Spellauge, Constanze Eulenkamp, Michael Schmidt, and Heinz P. Huber. Ultrafast pump-probe ellipsometry and microscopy reveal the surface dynamics of femtosecond laser ablation of aluminium and stainless steel. *Applied Surface Science*, 511:145514, 2020.
- [9] Irene Carrasco-Garcia, José M. Vadillo, and J. Javier Laserna. Visualization of surface transformations during laser ablation of solids by femtosecond pump–probe time-resolved microscopy. *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, 113:30–36, 2015.
- [10] Matthias Domke, Stephan Rapp, Michael Schmidt, and Heinz P. Huber. Ul-

- trafast pump-probe microscopy with high temporal dynamic range. *Optics express*, 20(9):10330–10338, 2012.
- [11] M. Olbrich, T. Pflug, C. Wüstefeld, M. Motylenko, S. Sandfeld, D. Rafaja, and A. Horn. Hydrodynamic modeling and time-resolved imaging reflectometry of the ultrafast laser-induced ablation of a thin gold film. *Optics and Lasers in Engineering*, 129:106067, 2020.
- [12] Joerg Schille, Lutz Schneider, Sebastian Kraft, Lars Hartwig, and Udo Loeschner. Experimental study on double-pulse laser ablation of steel upon multiple parallel-polarized ultrashort-pulse irradiations. *Applied Physics A Materials Science & Processing*, 122(7):847, 2016.
- [13] M. E. Povarnitsyn, T. E. Itina, K. V. Khishchenko, and P. R. Levashov. Suppression of ablation in femtosecond double-pulse experiments. *Physical review letters*, 103(19):195002, 2009.
- [14] Udo Löschner. *Erzeugung ultrakurzer Laserpulse*. Vorlesungsreihe im Studiengang: Master of Science - Lasertechnik, Hochschule Mittweida, 2021.
- [15] Alexander Horn. *The Physics of Laser Radiation–Matter Interaction: Fundamentals, and Selected Applications in Metrology*. Springer International Publishing, Cham, 2022.
- [16] E. G. Gamaly and A. V. Rode. Physics of ultra-short laser interaction with matter: From phonon excitation to ultimate transformations. *Progress in Quantum Electronics*, 37(5):215–323, 2013.
- [17] Alexander Horn. *Physik der Laserstrahlung Materie Wechselwirkung*. Vorlesungsreihe im Studiengang: Master of Science - Lasertechnik, Hochschule Mittweida, 2021.
- [18] S. S. Wellershoff. *Untersuchungen zur Energierelaxationsdynamik in Metallen nach Anregung mit ultrakurzen Pulsen*. Dissertation, Freie Universität Berlin, Berlin, 2000.
- [19] Theo Pflug, Markus Olbrich, Jan Winter, Jörg Schille, Udo Löschner, Heinz Huber, and Alexander Horn. The Fluence-Dependent Transient Reflectance of Stainless Steel Investigated by Ultrafast Imaging Pump-Probe Reflectometry: Supporting information. 2021.
- [20] E. P. Silaeva, E. Bevilion, R. Stoian, and J. P. Colombier. Ultrafast electron dynamics and orbital-dependent thermalization in photoexcited metals. *Physical Review B*, 98(9):776, 2018.

- [21] Jan Winter, Jürgen Sotrop, Stephan Borek, Heinz P. Huber, and Jan Minár. Temperature dependent determination of electron heat capacity and electron-phonon factor for $Fe_{0,72}Cr_{0,18}Ni_{0,1}$. *Physical Review B*, 93(16):203, 2016.
- [22] E. Bévillon, J. P. Colombier, B. Dutta, and R. Stoian. Ab Initio Nonequilibrium Thermodynamic and Transport Properties of Ultrafast Laser Irradiated 316L Stainless Steel. *The Journal of Physical Chemistry C*, 119(21):11438–11446, 2015.
- [23] Emile Bévillon, Razvan Stoian, and Jean-Philippe Colombier. Nonequilibrium optical properties of transition metals upon ultrafast electron heating. *Journal of physics. Condensed matter : an Institute of Physics journal*, 2018.
- [24] Theo Pflug. *Untersuchungen zur ultraschnellen Ellipsometrie von Laserprozessen*. Masterarbeit, Mittweida, 2017.
- [25] Theo Pflug. *Strong field excitation of electrons into localized states of fused silica: Techn. Universität Chemnitz*. Dissertation, Chemnitz, 2021.
- [26] Linus Herrich-Schäffer. *Erstellung und Implementierung eines gekoppelten Modells für Advektions- und Diffusionsprozesse*. Fachartikel, Mittweida, 2022.
- [27] Markus Olbrich, Theo Pflug, Philipp Lungwitz, and Alexander Horn. Modellierung und zeitaufgelöste Messung des Abtrages von Goldschichten unterschiedlicher Schichtdicke. In Hochschule Mittweida, editor, *11. Mittweidaer Lasertagung*, pages 45–49, Mittweida, 2019.
- [28] Florian Lull. *Untersuchungen zum vorderseitigen Anregungs- und Abtragsverhalten dünner Goldschichten*. FuE II, Mittweida, 2019.
- [29] Fabian Stefan Meyer. *Transient effects during laser processing of silicon for photovoltaic applications: Albert-Ludwigs-Universität Freiburg im Breisgau*. Dissertation, Freiburg im Breisgau, 2021.
- [30] Jan Winter, Maximilian Spellauge, Jens Hermann, Constanze Eulenkamp, Heinz P. Huber, and Michael Schmidt. Ultrashort single-pulse laser ablation of stainless steel, aluminium, copper and its dependence on the pulse duration. *Optics Express*, 29(10):14561–14581, 2021.
- [31] T. Pflug, J. Wang, M. Olbrich, M. Frank, and A. Horn. Case study on the dynamics of ultrafast laser heating and ablation of gold thin films by ultrafast pump-probe reflectometry and ellipsometry. *Applied Physics A*, 124(2):17572–17579, 2018.
- [32] Max Ernstberger. *Konzeptionierung und Validierung eines Pump-Probe Aufbaus*

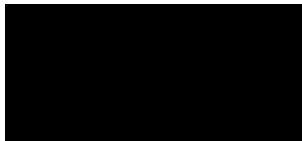
zur Messung der transienten optischen Eigenschaften von Gold im Nanosekundenbereich. FuE I, Mittweida, 2022.

- [33] J. M. Liu. Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes. *Optics Letters*, 7(5):196–198, 1982.
- [34] P. Johnson and R. Christy. Optical constants of transition metals: Ti, V, Cr, Mn, Fe, Co, Ni, and Pd. *Physical Review B*, 9(12):5056–5070, 1974.
- [35] D. S. Kupperman and K. J. Reimann. Effect of shear-wave polarization on defect detection in stainless steel weld metal. *Ultrasonics*, 16(1):21–27, 1978.
- [36] Daniel J. Förster, Sebastian Faas, Stefan Gröninger, Franziska Bauer, Andreas Michalowski, Rudolf Weber, and Thomas Graf. Shielding effects and re-deposition of material during processing of metals with bursts of ultra-short laser pulses. *Applied Surface Science*, 2018.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich meine Arbeit selbstständig verfasst, keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel benutzt und die Arbeit noch nicht anderweitig für Prüfungszwecke vorgelegt habe.

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



Mittweida, 27. Februar 2023