

BACHELORARBEIT

Herr Vincent Rupf

Einfluss der Pulswiederholfrequenz auf die Ablation von Dielektrika mittels ultrakurzer Laserpulse

Mittweida, November 2023

BACHELORARBEIT

Einfluss der Pulswiederholfrequenz auf die Ablation von Dielektrika mittels ultrakurzer Laserpulse

Autor: Vincent Rupf

Studiengang: Lasertechnik

Seminargruppe: LT20wL-B

Erstprüfer: Prof. Dr. rer. nat. Steffen Weißmantel

> Zweitprüfer: Manuel Pfeiffer, Dipl.-Ing. (FH)

> > Einreichung: Mittweida, 05.11.2023

Verteidigung/Bewertung: Mittweida, 2023

Faculty of Engineering Sciences

BACHELOR THESIS

Influence of the pulse repetition rate on the ablation of dielectrics by ultrashort laser pulses

> Author: Vincent Rupf

Course of Study: Laser Technology

> Seminar Group: LT20wL-B

First Examiner: Prof. Dr. rer. nat. Steffen Weißmantel

> Second Examiner: Manuel Pfeiffer, Dipl.-Ing. (FH)

> > Submission: Mittweida, 05.11.2023

Defense/Evaluation: Mittweida, 2023

Bibliografische Beschreibung

Rupf, Vincent:

Einfluss der Pulswiederholfrequenz auf die Ablation von Dielektrika mittels ultrakurzer Laserpulse. – 2023. – 48 S.

Mittweida, Hochschule Mittweida – University of Applied Sciences, Fakultät Ingenieurwissenschaften, Bachelorarbeit, 2023.

Referat

In dieser Arbeit wurde der Einfluss der Fluenz, der Pulsanzahl und der Pulswiederholfrequenz bei der Strukturierung von Dielektrika mittels ultrakurzer Laserpulse untersucht. Es stand dabei ein Lasersystem mit einer emittierten Wellenlänge im Infrarot-Bereich und einer Pulsdauer von 200 fs zur Verfügung, um die Abhängigkeiten der Ablationsdurchmesser, der Ablationstiefe und des Ablationsvolumens von der Pulswiederholfrequenzen im kHz-, MHzund GHz-Regime zu betrachten. Im Rahmen dieser Untersuchung wurde festgestellt, dass diese Größen, einschließlich der daraus ermittelten Ablationsschwellen und der Ablationsvolumina pro Laserpuls, von der Pulswiederholfrequenz abhängig sind. Dabei zeigte sich, dass die Ablationsschwellen mit steigender Pulsanzahl und zunehmender Pulswiederholfrequenz sinken. Zusätzlich konnten bei der Betrachtung der Ablationstiefen und -volumina im MHz- und GHZ-Regime Hinweise für Wechselwirkungen zwischen aufeinanderfolgenden Laserpulsen gefunden werden.

Inhaltsverzeichnis

Er	rgänzende Verzeichnisse	
Da	Danksagung	
1	1 Einleitung und Motivation	1
2	2 Stand der Technik	3
	2.1 Untersuchungen zur Ablation von Dielektrika mit ultrakurzen Laserpul	sen 3
	2.2 Untersuchungen zur Ablation von Dielektrika mit hochfrequenten Pul	sfolgen
	ultrakurzer Laserpulse	5
	2.3 Puls-zu-Puls Wechselwirkungen	7
	2.3.1 Abschirmmechanismen	7
	2.3.2 Wärmeakkumulation	8
	2.4 Zusammenfassung des Stand der Technik	
3	3 Zielstellung und Methodik	11
4	4 Grundlagen der Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit Dielektrik	ia 13
	4.1 Lineare und nichtlineare Anregungsprozesse	13
	4.1.1 Multiphotonen- und Tunnelionisation	13
	4.1.2 Analytische Beschreibung zur Abschätzung nichtlinearer Photoic	nisation 14
	4.1.3 Avalange Ionisation	15
	4.2 Ablation von Dielektrika mit ultrakurzen Laserpulsen	16
	4.3 Inkubationseffekt bei der Verwendung mehrerer Laserpulse und Mod	elle zur
	analytischen Beschreibung	17
5	5 Experimentelle Details	21
	5.1 Probenmaterial	21
	5.2 Versuchsaufbau	22
	5.3 Analysemethoden	25
6	6 Ergebnisse und Diskussionen	27
	6.1 Ermittelte Ablationsschwellen und Inkubationsfaktoren	27
	6.2 Gemessene Ablationstiefen	33
	6.3 Gemessene Ablationsvolumen und ermittelte Ablationsvolumina pro L	aserpuls 36

7	Zusammenfassung und Ausblick	45
8	Symbolverzeichnis	47
Sy	mbolverzeichnis	47
Aı	Anhang	
A	Leistungsmessung	49
В	Ablationsschwellen	51
С	Volumenvergleich D263T	57
D	Falschfarbbilder	58
Li	iteraturverzeichnis	

Ergänzende Verzeichnisse

Abbildungsverzeichnis

2.1	Ablatiertes Volumen pro Laserpuls in MHz- und GHz-Pulsfolgen in Abhängigkeit	
	von der Fluenz pro Laserpuls und von der Pulsdauer	6
2.2	Schema der Wärmeakkumulation	8
4.1	Schema der linearen und nichtlinearen Ionisationsmechanismen	14
4.2	Keldysh-Parameter in Abängigkeit von der Intensität	15
4.3	Kritische Elektronendichte in Abhängigkeit von der Wellenlänge	17
4.4	Model 1: Änderung der Ablationsschwelle als Funktion der Anzahl an Laserpulsen	
	aufgrund des Inkubationseffektes	18
4.5	Modell 2: Änderung der Ablationsschwelle in Abhängigkeit der Anzahl an Laser-	
	pulsen aufgrund des Inkubationseffektes	19
4.6	Modell 3: Änderung der Ablationsschwelle von Dielektrika in Abhängigkeit der	
	Anzahl an Laserpulsen aufgrund des Inkubationseffektes	20
5.1	Tranmissionsgrad T (%) in Abhängigkeit von links: Wellenlänge in nm und rechts:	
	der Photonenenergie in eV	22
5.2	Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus	23
5.3	Oszilloskop-Aufnahme einer MHz-Pulsfolge	24
5.4	Oszilloskop-Aufnahme einer GHz-Pulsfolge	24
5.5	Exemplarische Messung der Ablationsdurchmesser und Ablationstiefen	25
5.6	Exemplarische Darstellung der Volumenmessung	26
5.7	Schema zur Darstellung des Volumens pro Laserpuls	26
6.1	Exemplarische Darstellung der Durchmesserquadrate in Abhängigkeit von der	
	Fluenz	27
6.2	Ablationsschwellen von SiO ₂ und D263T in Abhängigkeit von der Pulsanzahl mit	
	verschiedenen Pulswiederholfrequenzen	28
6.3	Ablationsschwellen in Abhängigkeit von der Pulsanzahl von SiO ₂ mit einer Puls-	
	wiederholfrequenz von 1 kHz und den Modellen 1-3	29
6.4	Ablationsschwellen in Abhängigkeit von der Pulsanzahl von D263T mit einer	
	Pulswiederholfrequenz von 1 kHz und den Modellen 1-3	30

6.5	Falschfarbenbilder von zwei Kavität von D263T mit sechs Laserpulsen, unter-	
	schiedlichen Pulswiederholfrequenzen und einer geringen Fluenz	32
6.6	Falschfarbendarstellung der Ablationstiefen $z_{\rm M}$ von SiO ₂ mit Pulswiederholfre-	
	quenz im kHz-, MHz- und GHz-Regime	33
6.7	Falschfarbendarstellung der Ablationstiefen $z_{\mathbf{M}}$ von D263T mit Pulswiederhol-	
	frequenz im kHz-, MHz- und GHz-Regime	34
6.8	Falschfarbenbilder von zwei Kavität von SiO ₂ mit drei Laserpulsen, unterschied-	
	lichen Pulswiederholfrequenzen und einer Fluenz von 10 J/cm²	35
6.9	Falschfarbendarstellung der Ablationsvolumen von SiO ₂ mit Pulswiederholfre-	
	quenz im kHz-, MHz- und GHz-Regime	36
6.10) Falschfarbendarstellung der Ablationsvolumen von SiO ₂ mit Pulswiederholfre-	
	quenz im kHz-, MHz- und GHz-Regime	37
6.11	Schematische Darstellung der Materialansammlung (grau) und des Ablationsvo-	
	lumens (blau) einer Kavität	37
6.12	2 Ablationsvolumen V_{ges} von SiO ₂ in Abhängigkeit von der Fluenzen H_0 =5 J/cm ²	
	und $H_0=10$ J/cm ² bei verschiedenen Pulswiederholfrequenzen	38
6.13	Ablationsvolumen pro Laserpuls von SiO ₂ mit einer Pulswiederholfrequenz von	
	$f_{\rm int}$ =1 kHz	39
6.14	Ablationsvolumen pro Laserpuls von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz	
	von f_{int} =1 kHz	39
6.15	Ablationsvolumen pro Laserpuls von SiO ₂ mit einer Pulswiederholfrequenz von	
	<i>f</i> _{int} =65 MHz	40
6.16	Ablationsvolumen pro Laserpuls von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz	
	von <i>f</i> _{int} =65 MHz	41
6.17	Ablationsvolumen pro Laserpuls von SiO ₂ mit einer Pulswiederholfrequenz von	
	<i>f</i> _{int} =2,5 GHz	42
6.18	Ablationsvolumen pro Laserpuls von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz	
	von f_{int} =2,5 GHz	42
6.19	Falschfarbendarstellung verschiedener Kavitäten auf SiO ₂ und D263T	43
6.20) Auflichtmikroskop-Aufnahme einer Kavität mit Nanostrukturen	44
6.21	Schematische Darstellung der Puls-zu-Puls-Wechselwirkungen mit Pulswieder-	
	holfrequenzen im GHz-Bereich	44
P 1	Darstallung der Durchmesserguadrat in Abhängigkeit von der Eluenz-Rei der	
D.1	Ablation von Si Ω_{2} mit einer Pulswiederholfrequenz im kHz-Regime	51
R 2	Darstellung der Durchmesserquadrat in Abhängigkeit von der Eluenz. Bei der	51
ש.ב	Ablation von Si Ω_2 mit einer Pulswiederholfrequenz im MHz-Regime	52
ВЗ	Darstellung der Durchmesserquadrat in Abhängigkeit von der Eluenz. Rei der	52
0.0	Ablation von Si Ω_{2} mit einer Pulswiederholfrequenz im GHz-Regime	52
	Association von Sioz mit einer raiswiederhom equenz im Griz-Kegime.	55

B.4	Darstellung der Durchmesserquadrat in Abhängigkeit von der Fluenz. Bei der Ablation von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz im kHz-Regime	54
B.5	Darstellung der Durchmesserquadrat in Abhängigkeit von der Fluenz. Bei der Ablation von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz im MHz-Regime.	55
B.6	Darstellung der Durchmesserquadrat in Abhängigkeit von der Fluenz. Bei der Ablation von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz im GHz-Regime	56
C.1	Ablationsvolumen V_{ges} von D263T in Abhängigkeit von der Fluenzen H_0 =5 J/cm ² und H_0 =10 J/cm ² bei verschiedenen Pulswiederholfrequenzen	57
D.1	Falschfarbenbilder der erzeugten Kavitäten von SiO ₂ mit einem bis zehn La- serpulsen, einer Pulswiederholfrequenzen im kHz-Regime und verschiedenen Fluenzen	58
D.2	Falschfarbenbilder der erzeugten Kavitäten von SiO ₂ mit einem bis zehn La- serpulsen, einer Pulswiederholfrequenzen im MHz-Regime und verschiedenen	58
D.3	Falschfarbenbilder der erzeugten Kavitäten von SiO ₂ mit einem bis zehn La- serpulsen, einer Pulswiederholfrequenzen im GHz-Regime und verschiedenen	50
D.4	Fluenzen	59
D.5	Fluenzen	59
D.6	Fluenzen	60
	Fluenzen	60

Tabellenverzeichnis

5.1	Materialkennwerte von SiO $_2$ und D263T	22
5.2	Übersicht des untersuchten Parameterbereiches	24
6.1	Ermittelte Inkubationskoeffizienzen und Ablationsschwellfluenzen $H_{ ext{thr},\infty}$ für	
	für Modell 1 - 3 und Sättigungsfluenzen für Modell 2 und 3 von SiO_2 und D263T	31

Danksagung

Ich möchte mich herzlich bei Herrn Prof. Dr. rer. nat. Steffen Weißmantel für das spannende Thema meiner Bachelorarbeit und seine umfassende Unterstützung bedanken, die entscheidend zum Gelingen dieser Arbeit beigetragen haben.

Ebenso möchte ich Herrn Manuel Pfeiffer und Herrn Daniel Metzner für ihre tatkräftige Unterstützung und wertvollen Ratschläge danken. Ohne Ihre Hilfe wäre dieses Projekt nicht möglich gewesen.

Zudem möchte ich meinen Dank den Mitarbeitern des Laserinstituts der Hochschule Mittweida, dem Verein Laserinstitut Mittelsachsen e.V. und der Firma ACSYS Lasertechnik GmbH aussprechen. Ihre Unterstützung und Expertise waren von unschätzbarem Wert, und ich bin sehr dankbar für Ihre Hilfe bei der Fertigstellung meiner Bachelorarbeit.

1 Einleitung und Motivation

Der Einsatz des Lasers als berührungsloses Werkzeug hat sich in der Metallbearbeitung längst etabliert und ist aus modernen Produktionsanlagen nicht mehr wegzudenken. Eine ähnliche Entwicklung kann im Bereich der Bearbeitung von Dielektrika beobachtet werden, da auch hier die Laserstrahlung zunehmend an Bedeutung gewinnt. Das Anwendungsspektrum umfasst neben der Weiterentwicklung klassischer Anwendungen wie der Lasergravur auch die Entwicklung neuer Bearbeitungsverfahren. Ein Beispiel für alternative Verfahren ist die Glasbearbeitung mit Laserpulsen im grünen Spektralbereich und Pulsdauern im Nanosekundenbereich [1]. Hochpräzise Strukturen bis in den Mikrometerbereich sind jedoch aufgrund der hohen Wärmeeinbringung in das Material nicht realisierbar.

Dagegen können unerwünschte thermische Effekte mit Hilfe ultrakurzer Laserpulse, deren Pulsdauer im Piko- bis Femtosekundenbereich liegt, weitestgehend minimiert werden. Für die Mikrobearbeitung transparenter Materialien sind damit in Verbindung mit hohen Pulsspitzenleistungen sehr gute Voraussetzungen gegeben. Der Einsatz hochfrequenter Pulsfolgen ultrakurzer Laserpulse stellt eine weitere Innovation für die Bearbeitung von Dielektrika dar. Die in jüngster Zeit durchgeführten Untersuchungen haben bereits in ersten Ansätzen ein großes Potenzial im Hinblick auf eine deutliche Steigerung der Effizienz und Produktivität gezeigt [2]. Entsprechende Laserverfahren sind bereits in ausgewählten Anwendungen zur Glasbearbeitung im Einsatz, jedoch sind nach dem Stand der Technik noch keine ausreichenden Grundkenntnisse über die physikalischen Mechanismen bei der Bestrahlung von Dielektrika mit hochfrequenten Pulsfolgen ultrakurzer Laserpulse vorhanden.

Der Einsatz von Pulsfolgen mit Pulswiederholfrequenzen im kHz-, MHz- und GHz-Regime sowie einer Pulsdauer im Femtosekundenbereich bei einer emittierten Wellenlänge im nahen Infrarot steht im Mittelpunkt der nachfolgend beschriebenen Untersuchungen. Die Auswahl der untersuchten Parameter erfolgte speziell im Hinblick auf die Untersuchung von Kavitäten, die mit einer Pulsfolge erzeugt werden.

2 Stand der Technik

Gegenstand dieses Kapitels ist die Darstellung bisheriger Untersuchungen zur Ablation von Dielektrika mit ultrakurzen Laserpulsen. Zunächst werden Ergebnisse vorgestellt, bei denen Pulswiederholfrequenzen im kHz-Bereich verwendet wurden. Im Anschluss daran werden Untersuchungen zur Ablation von Dielektrika diskutiert, bei denen hochfrequente Pulsfolgen von ultrakurzen Laserpulsen zum Einsatz gekommen sind. Darüber hinaus wird eine Zusammenfassung bisheriger Untersuchungen zu Puls-zu-Puls-Effekten für die grundlegende Diskussion möglicher Wechselwirkungen zwischen einzelnen hochfrequenten Laserpulsen vorgelegt. Abschließend wird eine Zusammenfassung über den Stand der Technik und den sich daraus ergebenden Forschungsbedarf auf diesem Gebiet gegeben.

2.1 Untersuchungen zur Ablation von Dielektrika mit ultrakurzen Laserpulsen

Die Ablationsschwelle H_{thr} ist eine materialspezifische Kenngröße zur Beschreibung der minimal erforderlichen Energieflussdichte, im weiteren Fluenz H genannt, für einen Materialabtrag, d.h. einen für ultrakurze Laserpulse charakteristischen Materialabtrag durch Spallation oder Phasenexplosion¹. Im Gegensatz zu Metallen, in denen freie Elektronen für die lineare Absorption ultrakurzer Laserpulse im Leitungsband verfügbar sind, muss bei Dielektrika die laserinduzierte Anregung von Valenzbandelektronen in das Leitungsband berücksichtigt werden [3, 4]. In Kapitel 4 werden diese nichtlinearen Anregungsprozesse der Multiphotonen-, Tunnelelektron- und Avalanche-Ionisation näher beschrieben. Berechnungen ergaben, dass die Erzeugung freier Elektronen bei Pulsdauern < 100 fs hauptsächlich durch Tunnelionisation erfolgt. Bei Pulsdauern zwischen 100 fs und einigen Pikosekunden dominieren die Multiphotonenionisation und die Avalangeionisation [3, 5, 6]. Validiert wurden diese theoretischen Ergebnisse durch experimentelle Abtragsuntersuchungen und die damit verbundene Bestimmung der Ablationsschwellen von Dielektrika mittels einzelner ultrakurzer Laserpulse [7, 8].

Ebenso wurden zahlreiche Pump/Probe-Untersuchungen durchgeführt, bei denen der erste Laserpuls mit der Materialoberfläche wechselwirkt und der zweite Laserpuls die Reflexionsänderung zeitaufgelöst misst. Daraus konnte die zeitliche Änderung der freien Elektronendichte

¹ Spallation ist ein thermomechanischer Mechanismus, bei dem Material durch stoßwelleninduzierte Dichteänderungen abgetragen wird. Die Phasenexplosion ist ein thermischer Mechanismus, bei dem sich das bestrahlte Material schnell erhitzt und Material nahe des thermodynamisch kritischen Punktes abträgt

bestimmt werden [9, 10]. Die empirisch ermittelten freien Elektronendichten wurden mit theoretisch berechneten Werten verglichen und funktionale Zusammenhänge zwischen den Laserparametern und der Elektronenanregung erarbeitet.

Ein weiterer Parameter zur Beschreibung der Ablation von Dielektrika ist die kritische freie Elektronendichte $n_{\rm krit}$ (ca. 10^{21} cm⁻³ für eine Wellenlänge von 1030 nm) [4, 7]. Eine Annäherung an diesen Wert hat einen starken Anstieg des Absorptionskoeffizienten zur Folge, wodurch die induzierte Ablationstiefe auf wenige Nanometer begrenzt wird. Im Bereich des Anregungsprozesses der Multiphotonenionisation ist die benötigte Intensität, um diese kritische freie Elektronendichte zu erreichen, verglichen mit der Tunnelionisation gering [6]. Eine wesentliche Erkenntnis aus den durchgeführten Untersuchungen sind die Folgen der Überschreitung der kritischen freien Elektronendichte. Sobald dieser Zustand während der Wechselwirkungszeit zwischen Laserpuls und Materialoberfläche eintritt, wird die Laserstrahlung nahezu vollständig reflektiert und trägt nicht mehr zur Ablation bei. Dies führt zu einer Limitierung des Abtrags bei Verwendung höherer Fluenzen bzw. Intensitäten [8].

Die Ablation hat eine Veränderung der Topographie in der Wechselwirkungszone durch den Materialabtrag zur Folge. Darüber hinaus kann es durch den Energieeintrag zu einer Änderung der Stöchiometrie des Materials kommen und es können sich Farbzentren ausbilden. Diese Änderungen beeinflussen die Ablationsschwelle nachfolgender Laserpulse und werden allgemein als Inkubationseffekt bezeichnet [11]. Der Inkubationsfaktor, der eine materialspezifische Kenngröße darstellt, definiert das Maß der Veränderung der Ablationsschwelle durch die Inkubation. Im Gegensatz zu Metallen, wo der Inkubationseffekt in zahlreichen Studien grundlegend untersucht wurde, ist er für Dielektrika nahezu unbekannt. In der Arbeit von Xu et al. [12] wurde der Inkubationseffekt bei Abtragsuntersuchungen an SiO₂ untersucht und festgestellt, dass die topographische Veränderung der dielektrischen Materialoberfläche einen wesentlich größeren Einfluss auf die Ablationsschwelle hat als bei Metallen.

Bei der Ablation von Festkörpern wird die absorbierte Energie zum Teil in kinetische Energie der abgetragenen Teilchen und zum Teil in Wärme im Bereich der Wechselwirkungszone umgewandelt. Diese Wärme wird innerhalb einer bestimmten Zeit in das Materialinnere abgeführt, abhängig von der Wärmeleitfähigkeit und der Wärmekapazität des bestrahlten Materials. Ist die Zeit zwischen zwei aufeinanderfolgenden Laserpulsen kleiner als die für die Wärmeabfuhr ins Materialinnere erforderliche Zeit, tritt der nächste Laserpuls in Wechselwirkung mit dem erwärmten Material. Daraus folgt, dass mit jedem weiteren Laserpuls die Temperatur in der Wechselwirkungszone durch laserinduzierten Wärmestau ansteigt. Aufgrund der generell geringen Wärmeleitfähigkeit von Dielektrika (im Bereich von 0,3 bis 6 W/mK) tritt eine Wärmeakkumulation bereits ab Pulswiederholfrequenzen > 100 kHz auf und beeinflusst durch zusätzliche thermische Elektronenanregung die Ablationsschwelle [13, 14].

2.2 Untersuchungen zur Ablation von Dielektrika mit hochfrequenten Pulsfolgen ultrakurzer Laserpulse

Die rasante Entwicklung von Ultrakurzpulslasern mit immer höheren Leistungen stellt die Forschung und Entwicklung vor neue Herausforderungen: Wie können diese hohen Leistungen effizient, produktiv und qualitativ hochwertig umgesetzt werden? Eine hierfür neu entwickelte Lasertechnologie ist der sogenannte Burst-Modus, bei dem die hohe Leistung und die damit verbundene hohe Energie eines einzelnen Laserpulses (Einzelpuls-Modus) in eine hochfrequente Pulsfolge von mindestens zwei bis zu einigen hundert Laserpulsen aufgeteilt wird. Ausgehend von den derzeit zur Verfügung stehenden Laserstrahlquellen, die zur Erzeugung des Burst-Modus in der Lage sind, haben sich zwei unterschiedliche Modi etabliert. Im so genannten MHz-Burst-Modus haben die Laserpulse innerhalb eines Bursts einen zeitlichen Abstand von einigen 10 bis wenigen 100 Nanosekunden. Dies entspricht einer Frequenz innerhalb einer Pulsfolge im MHz-Bereich. Im GHz-Burst-Modus beträgt der Zeitabstand der Laserpulse nur wenige 100 ps, entsprechend einer Frequenz im GHz-Bereich. Der Burst-Modus wird seit etwa zehn Jahren anwendungsorientiert vorwiegend an Metallen mit Fokus auf hohe Effizienzen, d.h. das Verhältnis von ablatiertem Volumen zur verwendeten Pulsenergie, und Oberflächenqualitäten erforscht [15]. Im Vergleich dazu sind Forschungsstand und Grundlagenwissen im Bereich der Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse in Pulsfolgen mit Dielektrika sehr begrenzt und auf wenige empirische Untersuchungen beschränkt:

- In der Studie von Hernandez-Rueda et al. [16] wurde Quarzglas (SiO₂) mit bis zu vier ultrakurzen Laserpulsen in einer Pulswiederholzeit im Bereich von 0,5 ps bis 2 ps ablatiert. Die Autoren konnten zeigen, dass die Energieverteilung und der zeitliche Abstand der Laserpulse in einer Pulsfolge die Ablationstiefen entscheidend beeinflussen. Ebenso konnte gezeigt werden, dass die Verteilung einer definierten hohen Energie auf eine bestimmte Anzahl von Laserpulsen in einer Pulsfolge zu einer Erhöhung des Effizienz im Vergleich zu Laserpulsen im Einzelpuls-Modus führt.
- Experimentelle Untersuchungen an SiO₂, Borosilicatglas und Saphirglas mit Pulsfolgen, bei denen die ultrakurzen Laserpulse einen zeitlichen Abstand von 1,4 ns bzw. 20 ns aufwiesen, wurden von Hendow et al. [17] durchgeführt. Basierend auf den Ergebnissen wurde gezeigt, dass die Verwendung von Pulsfolgen im untersuchten Parameterbereich die Ablationsschwelle der Materialien reduziert, verglichen mit Laserpulsen, die im Einzelpuls-Modus arbeiten. Weiterhin konnte gezeigt werden, dass bei einem zeitlichen

Abstand der Laserpulse von 1,4 ns der Materialabtrag effizienter ist als bei einem zeitlichen Abstand von 20 ns bzw. mit Laserpulsen im Einzelpuls-Modus bei ansonsten vergleichbaren Bearbeitungsparametern.

- In einer weiteren Studie wurde SiO₂ großflächig mit einer Vielzahl von Pulsfolgen und einem zeitlichen Abstand der Laserpulse von 460 ps abgetragen [18]. Im untersuchten Parameterbereich konnte eine Steigerung der Effizienz im Vergleich zu Laserpulsen im Einzelpuls-Modus festgestellt werden. Vergleichbare experimentelle Ergebnisse wurden in der Studie von Remund et al. [19] für den Abtrag von Saphirglas, Natronkalkglas und Zirkonoxid mit mehreren Pulsfolgen und einem zeitlichen Abstand der Laserpulse von 180 ps vorgestellt. Dabei konnte auch eine Effizienzsteigerung bei der Verwendung von Pulsfolgen nachgewiesen werden.
- Experimente zur Abtragung von hochreinem SiO₂ mit Pulsfolgen, bei denen die Laserpulse einen zeitlichen Abstand von 16 ns bzw. 400 ps aufwiesen, wurden von Metzner et al.
 [2] durchgeführt. Im Vergleich zu Laserpulsen im Einzelpuls-Modus konnten analog zu [17–19] höhere Abtragsraten mit Pulsfolgen erzielt werden. Eine neue Erkenntnis dieser Studie ist die Möglichkeit des Abtrags mit Fluenzen unterhalb der Ablationsschwelle der Materialien im Einzelpulsbetrieb (ca. 3 J/cm² bei einer Pulsdauer von 190 fs). In diesem Fall ist die Ablation von Material ab einer bestimmten Anzahl von Laserpulsen in einer Pulsfolge möglich. Wie in Abbildung 2.1 dargestellt, wurde bei einer Fluenz pro Laserpuls von 0,75 J/cm² mit vier bzw. fünf Laserpulsen in einer Pulsfolge Material ablatiert.



Abbildung 2.1: Ablatiertes Volumen pro Laserpuls V_{pulse} in MHz- und GHz-Pulsfolgen bei einer Fluenz von 0,75, 1,5 und 3,0 J/cm² und bei einer Pulsdauer τ_{H} von 190 fs sowie 1 ps. Wellenlänge 1030 nm.

2.3 Puls-zu-Puls Wechselwirkungen

2.3.1 Abschirmmechanismen

Erste Untersuchungen zur Wechselwirkung ultrakurzer Doppelpulse mit Metallen gehen auf die Zeit um die Jahrhundertwende zurück, als Untersuchungen mit ultrakurzen Doppelpulsen zur Verstärkung spektroskopischer Signale durchgeführt wurden [20–22]. Dabei wurde eine signifikante Signalverstärkung nachgewiesen. Ein besonderes Verhalten zeigte jedoch die Tiefe der erzeugten Kavitäten. Die gemessenen Ablationstiefen war nur so tief wie bei Verwendung eines Einzelpulses oder kaum tiefer. Dies ist nicht unbedingt naheliegend, da die doppelte Energie zur Erzeugung dieser Kavitäten verwendet wurde. Sowohl die Verstärkung des Effektsignals durch das bestrahlte Plasma als auch die Bildung von Kavitäten mit geringer Tiefe sind voneinander abhängig.

Zahlreiche experimentelle [23–29] und theoretische [30–34] Studien wurden seit der Veröffentlichung der ersten Beobachtungen zur Ablation von Metallen mit ultrakurzen Doppelpulsen durchgeführt. Um einen Überblick über die Auswirkungen von Puls-zu-Puls-Wechselwirkungen mit Pulswiederholfrequenzen im GHz-, MHz- und kHz-Bereich zu geben, werden die Ergebnisse in den folgenden Abschnitten zusammengefasst:

- Bei Pulswiederholfrequenzen im <u>GHz-Bereich</u> wechselwirkt der zweite Puls mit dem Plasma, das durch den ersten Laserpuls erzeugt wurde. Das Plasma und die ablatierten Partikel, die sich nach dem ersten Puls an der Oberfläche gebildet haben, werden aufgeheizt, was zu einem schnellen Anstieg der Temperatur führt. Letzteres ist ein wichtiger Effekt, der sich vorteilhaft auf die spektroskopische Signalstärke auswirkt und eine bessere Materialcharakterisierung aufgrund einer höheren Plasmatemperatur und damit eines ausgeprägteren Spektrums ermöglicht. In Abhängigkeit von der Fluenz hat nicht nur der zweite Puls eine Abschirmung zur Folge, sondern es kann auch zu einer erneuten Ablagerung des durch den ersten Puls abgetragenen Materials kommen. Dadurch kann das Ablationsvolumen eines Doppelpulses kleiner sein als das des Einzelpulses. Die so genannte Plasmaabschirmung ist somit abhängig von den Materialeigenschaften und den Laserparametern, wie z. B. der Fluenz oder der Pulsdauer.
- Bei Pulswiederholfrequenzen im <u>MHz-Bereich</u> ist die Abschirmung durch das Plasma weniger stark ausgeprägt, da die Dichte des Plasmas, das nach dem ersten Laserpuls induziert wird, mit zunehmendem zeitlichem Abstand zwischen den Laserpulsen abnimmt. Dennoch kann der zweite Laserpuls mit einer bestehenden Ablationswolke in Wechselwirkung treten, was zu einer Abschirmung der Strahlung und in Abhängigkeit von den Material- und Laserparametern zu einer Wiederablagerung der abgetragenen Partikel führt.

• Bei Pulswiederholfrequenzen im <u>kHz-Bereich</u> findet keine signifikante Wechselwirkung zwischen dem zweiten Laserpuls und der vom ersten Laserpuls induzierten Ablations-wolke mehr statt.

2.3.2 Wärmeakkumulation

Im Allgemeinen wird die optische Energie eines Laserpulses bei der Wechselwirkung mit einem Festkörper in Wärme umgewandelt. Der entstehende Temperaturgradient bewirkt einen Energietransport ins Materialinnere, bis die Ausgangstemperatur an der Materialoberfläche wieder erreicht ist. Die Zeit, die hierfür benötigt wird, hängt von der Wärmeleitfähigkeit des bestrahlten Materials ab. Sobald die Pulswiederholzeit kürzer ist als die Abkühlzeit der thermisch beeinflussten Zone ist, wechselwirkt der nachfolgende Laserpuls mit erwärmtem Material (Abbildung 2.2).



Abbildung 2.2: Schematische Darstellung der Akkumulation und Abgabe von Wärme bei Verwendung mehrerer Laserpulse (links ohne Wärmeakkumulation, rechts mit Wärmeakkumulation).

Dieser als Wärmeakkumulation bezeichnete Prozess ist der Vorgang bei der die Energiezufuhr durch nachfolgende Laserpulse gegenüber der Wärmeabfuhr durch die thermodynamischen Eigenschaften des bestrahlten Materials überwiegt und die Temperatur in diesem Bereich ansteigt. Im Gegensatz zu Metallen, bei denen aufgrund der hohen Wärmeleitfähigkeit eine Wärmeakkumulation erst bei Pulsfrequenzen oberhalb von einigen 100 kHz auftritt, ist bei Dielektrika wie z.B. SiO₂ oder Borosilikatglas infolge der wesentlich geringeren Wärmeleitfähigkeit eine Wärmeakkumulation bereits bei niedrigeren Pulsfrequenzen möglich.

In der Studie von Eaton et al. [35] zur Wärmeakkumulation in Borosilikatglas wurde eine signifikante Wärmeakkumulation ab einer Pulswiederholfrequenzen von 500 kHz bei einer Wellenlänge der Laserstrahlung von 1045 nm und einer Pulsdauer von 300 fs beobachtet. In einer weiteren Studie zur Ablationsschwelle von Schaffer et al. [36] wurden diese Erkenntnisse ebenso für eine Pulswiederholfrequenz von 25 MHz bestätigt. Die Bestrahlung von SiO₂ mit

emittierten Wellenlängen von ca. 500 nm bis 1000 nm und Pulsdauern im Femtosekundenbereich führte ebenfalls zu einer Wärmeakkumulation. In der Studie von Karimelahi et al. [37] trat dies ab einer Pulswiederholfrequenz von 400 kHz auf. In Shah et al. [38] wurde der Einfluss der Wärmeakkumulation auf die Qualität von laserinduzierten Wellenleitern erst ab 1 MHz beobachtet, allerdings wurden dafür Pulsenergien weniger Nanojoule verwendet und somit die Energiezufuhr minimiert. Analog zu Borosilikatglas wurde bei einer Pulswiederholfrequenz von 26 MHz ein deutlicher Einfluss der Wärmeakkumulation auf den Abtrag nachgewiesen [39].

Inwieweit die Wärmeakkumulation einen positiven oder negativen Einfluss hat, hängt von der Art der Anwendung ab. In der Studie von Herman et al. [40] wurde die Ablation von SiO₂ mit bis zu 430 ultrakurzen Laserpulsen bei einer emittierten Wellenlänge von 1045 nm und einer Pulswiederholfrequenz im Bereich von 1 Hz und 122 MHz untersucht. Bei niedrigen Pulswiederholfrequenzen wurden nach drei Pulsen Frakturen, Mikrorisse oder Oberflächenaufwölbungen im Randbereich erkennbar. Die Verwendung von hohen Pulswiederholfrequenzen führte dazu, dass sich durch Wärmeakkumulation die Duktilität um den ablatierten Bereich erhöhte und sich die durch den Ablationsdruck erzeugten Mikrorisse und andere Effekte verringerten. Somit entstehen weniger Frakturen, Risse oder Oberflächenaufwölbungen im Randgebiet und eine glatte Oberfläche innerhalb der Kavität. Ein hohes Maß an Wärmeakkumulation kann jedoch auch zu thermisch induzierten mechanischen Spannungen führen. Dies wurde in der Studie von Ji et al. [41] bei der Erzeugung von Mikro-Löchern in SiO₂ beobachtet und führte zu einer Rissbildung. Während der Wärmeakkumulation können nachfolgende Laserpulse die zusätzlich zur Verfügung stehende thermische Energie zur Ablation nutzen, wodurch der Ablationsdurchmesser deutlich größer werden kann. Jedoch ist eine thermisch induzierte Erhöhung der Abtragrate nur schwer zu kontrollieren und hat einen negativen Einfluss auf eine vordefinierte Ablationstiefe [41].

2.4 Zusammenfassung des Stand der Technik

Hinsichtlich experimenteller Untersuchungen zur Ablation von Dielektrika durch hochfrequente Pulsfolgen ultrakurzer Laserpulse liegen bisher nur wenige Studien vor. Der Schwerpunkt dieser Arbeiten lag auf den Effizienzen, die vornehmlich aus der Flächenbearbeitung durch eine Vielzahl von sich teilweise überlappenden Pulsfolgen ermittelt wurden. Der Einfluss von Pulsfolgeparametern (Pulszahl, Pulswiederholfrequenz innerhalb der Pulsfolge) auf die Ablation konnte nachgewiesen werden, jedoch nicht vertieft. Eine wesentlich fundiertere Aussage über die wirkenden Prozesse könnte grundsätzlich durch die Untersuchung des Ablationsvolumens, der Inkubationsfaktoren und resultierenden Topographie der mit einer Pulsfolge erzeugten Kavität getroffen werden.

3 Zielstellung und Methodik

Ausgehend von dem dargestellten Forschungsbedarf zur Ablation von Dielektrika mit hochfrequenten Pulsfolgen ultrakurzer Laserpulse ergeben sich folgende Fragestellungen:

- Wie verändert sich der Inkubationseffekt bei einer Variation der Pulswiederholfrequenz?
- Welchen Einfluss hat die Pulswiederholfrequenz in Kombination mit der Fluenz und Pulsdauer auf die Ablationstiefe und das Ablationsvolumen?
- Treten, wie im Stand der Technik beschrieben, auch bei der Ablation von Dielektrika mit Pulswiederholfrequenzen im MHz- bis GHz-Bereich Puls-zu-Puls-Wechselwirkungen auf?
- Welche Rolle spielt die Wärmeakkumulation hinsichtlich thermischer Effekte in Bezug auf eine Schmelz- und Rissbildung?

Nach den bereits vorgestellten Kapiteln 1 und 2, der Einleitung und dem Stand der Technik zur Ablation von Dielektrika mit hochfrequenten Pulsfolgen ultrakurzer Laserpulse, werden in diesem Kapitel 3 die Ziele dieser Arbeit auf Basis des Forschungsbedarfs definiert. Daran schließt sich in Kapitel 4 die Darstellung der grundlegenden Erkenntnisse über die Wechselwirkung von ultrakurzen Laserpulsen mit Dielektrika an. Für die Experimente wurde ein Laser mit einer emittierenden Wellenlänge im nahen Infrarotbereich (1030 nm) verwendet. Da die Photonenenergie in diesem Bereich ca. 1 eV beträgt und somit eine lineare Anregung von Valenzbandelektronen in das Leitungsband ausgeschlossen ist, wird im folgenden Kapitel speziell auf nichtlineare Anregungsprozesse eingegangen. Kapitel 5 charakterisiert die bestrahlten Dielektrika, beschreibt den Versuchsaufbau mit dem die Experimente durchgeführt wurden, und stellt die verwendeten Mess- und Analysemethoden vor. Die Ergebnisse dieser Arbeit sind in Kapitel 6 dargestellt. Die analysierten Ablationsdurchmesser, -tiefen, -volumina und -topographien sowie deren Diskussion für die mit Pulswiederholfrequenzen im kHz-Bereich erzeugten Kavitäten bilden als Vergleichswerte die Grundlage für die mit Pulswiederholfrequenzen im MHz- sowie im GHz-Bereich erzeugten Kavitäten. Abschließend fasst Kapitel 7 die wesentlichen Ergebnisse dieser Arbeit zusammen. Dabei werden die Zielsetzungen aus Kapitel 3 aufgegriffen und diskutiert. Darüber hinaus werden in diesem Kapitel als Ausblick sinnvolle weiterführende Untersuchungen vorgestellt, die auf den Erkenntnissen dieser Arbeit aufbauen.

4 Grundlagen der Wechselwirkung ultrakurzer Laserpulse mit Dielektrika

In diesem Kapitel werden die Grundlagen der Wechselwirkung von ultrakurzen Laserpulsen mit Dielektrika vermittelt. Dies dient dem Verständnis der physikalischen Vorgänge während der Bestrahlungszeit und als Diskussionsgrundlage für die Ergebnisse dieser Arbeit. Die Beschreibung der Ablation von Dielektrika mit ultrakurzen Laserpulsen beginnt mit linearen und nichtlinearen Anregungsprozessen von Elektronen. Eine analytische Beschreibung des Inkubationseffektes schließt das Kapitel ab.

4.1 Lineare und nichtlineare Anregungsprozesse

Die Anregung eines gebundenen Elektrons durch die Wechselwirkung mit einem Photon wird als photoelektrischer Effekt bezeichnet. In gasförmigen Medien können Atome oder Moleküle entweder angeregt werden, wenn die Energie des Photons $E_{\rm f}$ gleich dem Energieunterschied ΔE zwischen zwei Zuständen ist (Abbildung 4.1 a), oder sie können ionisiert werden, wenn $E_{\rm f}$ größer als das Ionisationspotential $E_{\rm ion}$ ist. Entsprechend können Elektronen im Festkörper vom Valenzband zum Leitungsband als Einzelphotonionisation angeregt werden, wenn $E_{\rm f} \geq E_{\rm gap}$ ist, oder sie können von der Materialoberfläche emittiert werden, wenn die Austrittsarbeit überschritten wird. In allen Fällen ist die kinetische Energie der angeregten Elektronen direkt proportional zur Frequenz f der elektrischen Strahlung, weshalb diese Anregungsprozesse lineare Photoionisation genannt werden. Die resultierende Anzahl der angeregten Elektronen hängt ebenfalls linear von der Intensität bzw. der Photonenmenge ab.

4.1.1 Multiphotonen- und Tunnelionisation

Durch die Verwendung hoher Intensitäten I von einigen TW/cm² ist neben der beschriebenen linearen Photoionisation auch eine nichtlineare Photoionisation möglich, bei der Elektronen angeregt werden können, obwohl die Photonenenergie $E_{\rm f}$ kleiner ist als die Energiedifferenz zwischen End- und Anfangszustand [42–44]. Als Antriebsmechanismen für die nichtlineare Photoionisation werden in der Literatur die Multiphotonenionisation (MPI) und die Tunnelionisation (TI) beschrieben [45–47]. MPI ergibt sich aus der nahezu gleichzeitigen Absorption von der Anzahl n an Photonen mit der Gesamtphotonenenergie $n E_{\rm f} \ge E_{\rm gap}$ (Abbildung 4.1 b). Im Falle der TI hat die Überlagerung des Bindungspotentials mit dem Potential des oszillierenden elektrischen Feldes der Strahlung eine bestimmte Wahrscheinlichkeit für das Tunneln des gebundenen Elektrons durch die Potentialwand zur Folge (Abbildung 4.1 c). Dabei erlaubt das oszillierende elektrische Feld dem Elektron aufgrund des wechselnden Vorzeichens der Beschleunigung nur innerhalb eines bestimmten Zeitintervalls zu tunneln. Die Wahrscheinlichkeit des Auftretens von MPI oder TI hängt somit wesentlich vom Verhältnis der Tunnelzeit zur Tunneldistanz bzw. der Tunnelkreisfrequenz ω_{tunnel} zur Kreisfrequenz ω des oszillierenden elektrischen Feldes ab. Dieser Zusammenhang wurde von L. V. Keldysh 1965 [46] durch den Keldysh-Parameter γ mit der folgenden Gleichung 4.1 beschrieben:

14



4.1.2 Analytische Beschreibung zur Abschätzung nichtlinearer Photoionisation

Anhand des Verhältnisses in Gleichung 4.1 leitete Keldysh einen analytischen Ausdruck zur Abschätzung der nichtlinearen Photoionisation bzw. Photoionisationsrate für gasförmige Medien sowie für kristalline Festkörper ab, die sowohl aus MPI als auch aus TI resultieren [46]. Auf diese Weise zeigte Keldysh, dass MPI und TI auf demselben physikalischen Prozess beruhen, da die Anfangs- und Endzustände der Elektronen bei MPI und TI gleich sind [46]. Der Keldysh-Parameter für nichtlineare Photoanregung in Festkörpern ist durch

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{m_{\rm red} E_{\rm gap}}{E_0^2}} \tag{4.2}$$

beschrieben [46], dessen Wert von der elektrischen Feldamplitude E_0 der elektrischen Strahlung, der reduzierten effektiven Masse m_{red} der angeregten Elektronen sowie der Bandlückenenergie E_{gap} des Materials abhängen. Die Berechnung des Keldysh-Parameters mit der Spitzenintensität I_0

$$E_0 = \sqrt{\frac{2I_0}{c_0 n \epsilon_0}} \tag{4.3}$$

erfolgt durch die Umrechnung in die elektrische Feldamplitude E_0 mit dem Brechungsindex n, der elektrischen Feldkonstante ϵ_0 und der Lichtgeschwindigkeit in Vakuum c_0 [3]. Da die Masse des zurückbleibenden Loches m_{loch} nur in bestimmten Fällen von kristallinem Material berechnet werden kann, wird in erster Näherung die reduzierte Masse mit

$$m_{\rm red} = \frac{1}{\left(\frac{1}{m_{\rm e}} + \frac{1}{m_{\rm e}}\right)} \approx 0,5 \, m_{\rm e}$$
 (4.4)

berechnet [48, 49]. Am Beispiel einer Bandlücke des Materials von 9 eV und einer Wellenlänge der Strahlung bei $\lambda = 1030$ nm mit $\omega = 2 \pi c_0 / \lambda$ wird in der nachfolgenden Abbildung 4.2 die Werte des Keldysh-Parameters in Abhängigkeit von der Intensität visualisiert. Für $\gamma \gg 1$ dominiert MPI gegenüber TI und für $\gamma \ll 1$ ist TI der dominierende Ionisationsmechanismus. Der Bereich $\gamma \approx 1$ beschreibt einen Koexistenzbereich, in dem MPI und TI in gleichem Maße auftreten können.



Abbildung 4.2: Keldysh-Parameter γ zur Abschätzung des dominierenden Ionisationsmechanismus in Abhängigkeit von der Spitzenintensität I_0 bei einer Bandlücke E_{gap} von 9 eV und einer Wellenlänge λ von 1030 nm.

4.1.3 Avalange Ionisation

Die nichtlineare Photoanregung in kristalliner und ungeordneter Materie ist bei der Bestrahlung von Festkörpern mit ultrakurz gepulster Laserstrahlung sehr ähnlich. In beiden Fällen liegt der Anfangszustand des anzuregenden Elektrons im Valenzband [50–52]. Nach der nichtlinearen Photoanregung nimmt das Elektron einen leeren Zustand im Leitungsband ein und oszilliert zusätzlich aufgrund der Beschleunigung im elektrischen Laserfeld. Aus der Überlagerung des Leitungsbandzustands und seiner Schwingungsenergie, auch ponderomotorisches Potential genannt, ergibt sich somit der Endzustand des Elektrons [50, 51]. Daher wird die Energie der Bandlücke des Materials

$$\tilde{E}_{gap} = E_{gap} + \frac{e^2 E_0^2}{4 m_{red} \omega^2}$$
(4.5)

mit der Amplitude E_0 und der Kreisfrequenz ω des elektrischen Feldes und der reduzierten effektiven Masse $m_{\rm red}$ ausgedrückt, die durch $1/m_{\rm red} = 1/m_{\rm e} + 1/m_{\rm loch}$ definiert ist und aus den effektiven Massen des angeregten Elektrons $m_{\rm e}$ und des verbleibenden Lochs $m_{\rm loch}$ resultiert. Sobald Elektronen Zustände im Leitungsband besetzen, werden sie von der Laserstrahlung durch lineare Photoanregung, auch inverse Bremsstrahlung genannt [53], weiter angeregt. Übersteigt die Energiedifferenz eines solchen zusätzlich angeregten Elektrons die Energie der erweiterten Bandlücke $\tilde{E}_{\rm gap}$, so kann durch eine Elektron-Elektron-Kollision ein weiteres Elektron aus dem Valenzband durch Stoßionisation in das Leitungsband angeregt werden. Ein solcher Elektrone. Die durch Stoßionisation angeregten Elektronen können auch durch lineare Absorption der Laserstrahlung Energie gewinnen und damit weitere Elektronen im Leitungsband vorhanden sind, führt dies zu einem schnellen Anstieg der Elektronendichte im Leitungsband, weshalb dieser Prozess auch als Avalangeionisation (AI) bezeichnet wird [50–52].

4.2 Ablation von Dielektrika mit ultrakurzen Laserpulsen

Die Bildung freier Elektronen bzw. eine freie Elektronendichte n_e ist notwendig, um die Absorption der Laserstrahlung und damit den Ablationsprozess des Dielektrikums zu initiieren. Dieser Prozess findet in einem Volumen statt, das in erster Linie durch die Dichteverteilung der freien Elektronen bestimmt wird, die ihrerseits durch nichtlineare Absorption mit dem Absorptionsbereich der Pulsenergie verbunden ist. Die Ablationsmechanismen sind jedoch komplex und umfassen nicht-thermische Prozesse wie die Coulomb-Explosion² und thermische Prozesse wie die Spallation bzw. Phasenexplosion. Daher sind für eine umfassende Betrachtung des Materialabtrags in Abhängigkeit von den Parametern der einfallenden Laserstrahlung komplexe molekulardynamische oder hydrodynamische Modelle erforderlich [54– 56] . Es wird daher allgemein davon ausgegangen, dass in Anlehnung an das Drude-Modell³ die kritische Elektronendichte [57–59]

$$n_{\rm e,krit} = \omega^2 \, \frac{m_{\rm red} \, \epsilon_0}{e} \tag{4.6}$$

als Ablationskriterium von Dielektrika verwendet werden kann, ohne dass ein Phasenumwandlungsprozess berücksichtigt wird. Wie in Abbildung 4.3 zu sehen ist, nimmt nach Gleichung 4.6 die kritische Elektronendichte der freien Elektronen zu, je kürzer die Wellenlänge der Laserstrahlung wird.

²Die Coulomb-Explosion ist ein nicht-thermischer Prozess, bei dem die Coulomb-Abstoßungskräfte zwischen den ionisierten Atomen zur Materialabtragung führen.

³Das Drude-Modell beschreibt den Ladungsträgertransport durch ein externes elektrisches Feld durch freie Elektronen in Festkörpern.



Abbildung 4.3: Kritische Elektronendichte $n_{\mathrm{e,krit}}$ in Abhängigkeit von der Wellenlänge λ

In der Drude-Theorie wird ebenfalls die Plasmakreisfrequenz [60, 61], gegeben durch

$$\omega_{\rm P} = \sqrt{\frac{e^2 \, n_{\rm e}}{\epsilon_0 \, m_{\rm red}}} \tag{4.7}$$

definiert, bei der die freie Elektronendichte n_e um eine mittlere Dichte oszilliert. Im Fall der kritischen Elektronendichte wird in Gleichung 4.7 durch $n_e = n_{e,krit}$ die Plasmakreisfrequenz der Leitungsband-Elektronen gleich der Laserkreisfrequenz ω . Das Material hat unter dieser Annahme einen transienten metallischen Charakter mit stark erhöhter Reflexion und Absorption. Die Ablation wird dann durch diesen plötzlichen Anstieg der Absorption ausgelöst [45, 62]. Basierend auf den in Kapitel 4.1.1 vorgestellten Ionisationsmechanismen zur Erzeugung freier Elektronen und dem in diesem Kapitel vorgestellten Kriterium zur Initiierung der Ablation von dielektrischem Material, lässt sich zusammenfassen, dass die Ablationsschwelle von der Intensität und von der Wellenlänge ultrakurz gepulster Laserstrahlung abhängt.

4.3 Inkubationseffekt bei der Verwendung mehrerer Laserpulse und Modelle zur analytischen Beschreibung

Die ersten Untersuchungen der Ablation mittels mehrerer kurzer Laserpulse sind auf den Anfang der 1980er Jahre zurückzuführen, als der Einfluss des Fokusdurchmessers bei einzelnen und mehreren kurzen Laserpulsen auf die Ablationsschwelle untersucht wurde [63]. Dabei wurde bei der Verwendung einer Vielzahl an Laserpulsen festgestellt, dass sich der Reflexionsgrad aufgrund einer laserinduzierten Beschädigung der verwendeten Metallspiegel veränderte. Dieser Effekt zeigt ein besonderes Verhalten bei Fluenzen unterhalb der Einzelpulsablationsschwelle auf, wodurch die Spiegeloberfläche bei der Bestrahlung mit mehreren Laserpulsen beschädigt wurde. Infolge der Beschädigung wird geschlussfolgert, dass sich die Ablationsschwelle bei einer Erhöhung der Anzahl an Laserpulsen reduziert [11]. Basierend auf diesen ersten Erkenntnissen wurden weitere Studien zum Einfluss multipler Laserpulse auf die Ablationsschwelle von unterschiedlichen Werkstoffen durchgeführt und verschiedene analytische Modelle entwickelt. In der Studie von Jee et al. [11] wurde die laserinduzierte Veränderung der Topographie von Metalloberflächen untersucht. Dabei wurde die Verringerung der Einzelpulsablationsschwelle bei Verwendung mehrerer geometrisch überlagerter Laserpulse als Inkubationseffekt beschrieben. Weiterhin wurde eine analytische Beschreibung des Inkubationseffektes in der Studie vorgestellt, welche im Rahmen dieser Arbeit als Modell 1 bezeichnet wird. Im Modell 1 wird ausschließlich die Änderung der Topographie durch die Ablation von Material berücksichtigt. Diese Änderung wirkt sich wiederum auf den Absorptionsgrad aus und erklärt somit den Einfluss mehrerer Laserpulse auf die Ablationsschwelle. Die theoretische Beschreibung von Modell 1 erfolgt durch eine Polynomfunktion, gegeben durch:

$$H_{\text{thr.N}} = H_{\text{thr.1}} \cdot N^{(S-1)},\tag{4.8}$$

wobei $H_{\text{thr},1}$ die Einzelpulsablationsschwelle, N die Anzahl der Laserpulse und $H_{\text{thr},N}$ die dazugehörige Ablationsschwelle ist. Der Inkubationsfaktor S ist ein Maß für die Stärke der Reduzierung der Ablationsschwelle. Bei S>1 erhöht sich die Ablationsschwelle, bei S=1 ist sie unabhängig von der Pulsanzahl und bei S<1 reduziert sich die Ablationsschwelle mit zunehmender Pulsanzahl [11] (Abbildung 4.4).



Abbildung 4.4: Model 1: Änderung der Ablationsschwelle als Funktion der Anzahl an Laserpulsen aufgrund des Inkubationseffektes. Beispielhaft für eine Einzelpuls-Ablationsschwelle von 1,0 J/cm² und einem Inkubationsfaktor von S = 1 (schwarze Linie) sowie S = 0,5 (rote Linie).

In einer weiteren experimentellen Studie wurde der Einfluss der Wärmeakkumulation auf die Inkubation von Edelstahl untersucht [64]. Dabei wurde eine Sättigung der Multipulsablationsschwelle ab einer materialspezifischen Anzahl von Laserpulsen beobachtet. Dieses Ergebnis steht im Widerspruch mit dem Modell 1 von Jee et al. [11], bei dem die Ablationsschwelle bei einer sehr hohen bis unendlichen Anzahl an Laserpulsen gegen null tendiert (Abbildung 4.4). Aus diesem Grund wurde das Modell 1 um die konstante Ablationsschwelle $H_{\text{thr},\infty}$ erweitert. Die daraus resultierende Ablationsschwelle H_{thr} in Abhängigkeit von der Anzahl an Laserpulsen N wird mit:

$$H_{\text{thr},N} = H_{\text{thr},\infty} + (H_{\text{thr},1} - H_{\text{thr},\infty}) \cdot N^{(S-1)}$$
(4.9)

beschrieben. Das Modell ermöglicht einerseits die Berücksichtigung der Sättigung des Inkubationseffektes und andererseits die Bestimmung der Multipulsablationsschwelle (Abbildung 4.5). Letzteres ist für Laseranwendungen wie z.B. das Laserschneiden oder -mikrostrukturieren von besonderer Bedeutung, da eine Vielzahl an Laserpulsen verwendet wird [64].



Abbildung 4.5: Model 2: Änderung der Ablationsschwelle in Abhängigkeit der Anzahl an Laserpulsen aufgrund des Inkubationseffektes unter Berücksichtigung der Sättigung des Effektes bei hoher Pulsanzahl. Beispielhaft für eine Einzelpuls-Ablationsschwelle von 1,0 J/cm2 und einem Inkubationsfaktor von S=0,5.

Das Modell 1 und erweiterte Modell 2 von Di Niso et al. [64] ist konsistent mit den experimentellen Untersuchungen von Metallen. In der Studie von Ashkenasi et al. [65] wurde bei der Ermittlung der Ablationsschwellen von Dielektrika nachgewiesen, dass die empirisch ermittelten Werte von SiO₂ nicht an die Theorie aus Model 1 und 2 angeglichen werden können. Die Autoren erklären die Abweichung damit, dass der Inkubationseffekt in den dielektrischen Materialien im Wesentlichen zusätzlich zu einer Änderung der Topographie durch die Ansammlung von laserinduzierten Defektstellen verursacht wird. Wenn ein Dielektrikum mit einem Laserpuls und einer Fluenz unterhalb der Einzelpulsablationsschwelle bestrahlt wird, relaxieren die durch den Laserpuls angeregten freien Ladungsträger und erzeugen Defektstellen in Form von Farbzentren oder Frenkel-Paaren⁴ [65]. Durch diese Gitterdefekte werden Zwischenniveaus in der Bandlücke erzeugt. Diese neuen Niveaus stellen zusätzliche Anregungszustände für die Ladungsträger aus dem Valenzband dar und begünstigen eine zusätzliche Absorption der Laserstrahlung nachfolgender Laserpulse bei einer Fluenz unterhalb der Einzelpulsablationsschwelle. Dieser Prozess wird häufig als Metallisierung bezeichnet, da er das Auffüllen der dielektrischen Bandlücke mit Energiezuständen bewirkt, was zu einer metallähnlichen elektronischen Bandstruktur führt. Die Defektdichte erhöht sich bis zum Erreichen eines Minimalwertes, der zu einer Sättigung des Inkubationseffektes führt. Dementsprechend wird die Ablationsschwelle für Laserpulse mit der Anzahl N kleiner, bis eine konstante Multipulsablationsschwelle $H_{\text{thr},\infty}$ erreicht ist. Die experimentelle Untersuchung zeigt unter Berücksichtigung der Gitterdefekte

$$H_{\text{thr,N}} = H_{\text{thr,}\infty} + (H_{\text{thr,}1} - H_{\text{thr,}\infty}) \cdot e^{(-k(N-1))}$$
(4.10)

einen exponentiellen Zusammenhang (Abbildung 4.6). Dabei ist k analog zu S der Inkubationskoeffizient für Dielektrika. Je größer k desto weniger Laserpulse werden benötigt, um eine konstante Multipulsablationsschwelle zu erreichen [65].



Abbildung 4.6: Modell 3: Änderung der Ablationsschwelle von Dielektrika in Abhängigkeit der Laserpulsanzahl N unter Berücksichtigung der Sättigung des Inkubationeffektes. Beispielhaft für eine Einzelpulsablationsschwelle von 1,0 J/cm² und einem Inkubationsfaktor von k=0,5.

Die Verringerung der Ablationsschwelle durch die Änderung der Topographie wird in allen Modellen berücksichtigt und mit der Sättigung des Inkubationseffekts, sowie der Bildung von Gitterdefekten in Dielektrika erweitert. In Anlehnung an den aktuellen Stand der Technik ist jedoch anzumerken, dass keines der vorgestellten Modelle den Einfluss der Pulswiederholfrequenz auf den Inkubationseffekt berücksichtigt.

⁴Frenkel-Paare sind Punktfehler in Kristallgittern, welche dadurch entstehen, dass ein Ion oder Atom seinen regulären Gitterplatz verlässt und auf eine normalerweise nicht besetzte Position im Kristallgitter wandert [66]. Dadurch entsteht jeweils eine Leerstelle und ein Zwischengitteratom, zwischen denen eine Wechselwirkung besteht.
5 Experimentelle Details

In diesem Kapitel werden sowohl die Material- und die Prozessparameter protokolliert als auch die Vorgehensweise der Datenanalyse erläutert. Zunächst wird das verwendete Probenmaterial charakterisiert. Anschließend wird der Versuchsaufbau und die Versuchsdurchführung beschrieben. Abschließend werden die verwendeten Messgeräte und Analysemethoden erläutert. Dieser detaillierte Einblick in die Vorgehensweise und Methodik ist essenziell, um gültige, zuverlässige und reproduzierbare Ergebnisse sicherzustellen.

5.1 Probenmaterial

Im Rahmen dieser Arbeit wurde amorphes SiO₂ (7980 KrF HPFS von Corning) mit einer Probendicke von 1,6 mm und Borosilikatglas (D263T) mit einer Dicke von 0,5 mm untersucht. Die Materialkennwerte der Proben werden im Folgenden beschrieben und in der Tabelle 5.1 festgehalten.

- Das verwendete SiO₂, Corning 7980 "high purity fused silica", besitzt eine KrF-Klassifizierung. Daraus folgt, dass der Anteil von Metallverunreinigungen kleiner als 500 ppb (Anteile pro Milliarde) ist und der Anteil an Hydroxygruppen-Verunreinigungen zwischen 800 ppm (Anteile pro Million) und 1000 ppm liegt. Aufgrund dieser hohen Reinheit ist ein Transmissionsgrad von 99,9 % bis in den UVC-Bereich (200 nm - 280 nm) gewährleistet. Deshalb kommt hochreines SiO₂ häufig für optische Komponenten zur Anwendung. Zusätzlich besitzt es eine hohe Erweichungstemperatur⁵ (1585°C) eine geringe Wärmeleitfähigkeit und spezifische Wärmekapazität im Vergleich zu anderen Dielektrika und Metallen [67].
- D263T besteht zum Großteil aus SiO₂ und weiteren Metalloxiden. Durch diese Metalloxide wird Borosilikatglas im Vergleich zu reinem SiO₂ widerstandsfähiger, robuster, stoßfester, bruchsicherer, schnittfest und kratzfest. Aus diesen Gründen wird es häufig als hochwertiges Displayglas, Wafer oder in anderen Dünnglasanwendungen verwendet. Die zusätzlichen Metalloxide erhöhen jedoch die Wellenlänge, bis zu der Borosilikatglas einen hohen Transmissionsgrad besitzt, in den UVA-Bereich (315 nm 400 nm). Die Wärmeleitfähigkeit und die spezifische Wärmekapazität sind vergleichbar niedrig mit denen von SiO₂. Die Erweichungstemperatur von D263T liegt bei 736 °C und ist somit deutlich geringer als die von SiO₂ [68].

⁵Ab der Erweichungstemperatur besitzen die Materialien eine Viskosität ($10^7, 6$ dPa \cdot s) die ausreicht, um sie zu verformen.

Material	SiO ₂	D263T	
Dicke in mm	1,6	0,55	
Bandlücke in eV	9	3,54 eV - 4,07 eV	
Dichte in g/cm ³	2,20	2,51	
Wärmeleitfähigkeit in W/(mK)	1,38	1,06	
spezifische Wärmekapazität in J/(gK)	0,770	0,82	
Erweichungstemperatur in °C	1585	736	

Tabelle 5.1: Materialkennwerte von SiO₂ und D263T

Die Bandlücke von D263T wurde mittels UV-VIS Spektroskopie in einem Wellenlängenbereich von 200 nm bis 800 nm in 5 nm Schritten gemessen. Die Transmissionsgrade werden in Abbildung 5.1 in Abhängigkeit von der Wellenlänge in nm und der Photonenenergie in eV dargestellt. Die Bandlücke $E_{\rm B}$ wird mit der Gleichung

$$E_{\rm B} = h \cdot \frac{c_0}{\lambda} \tag{5.1}$$

aus der verwendeten Wellenlänge der Laserstrahlung λ , der Planck-Konstante h und der Vakuumlichtgeschwindigkeit c_0 berechnet. Somit liegt die Bandlücke von D263T in einem Wellenlängenbereich von 305 nm bis 350 nm, was einem Energiebereich von 3,54 eV bis 4,07 eV entspricht. Bei der Bandlücke von SiO₂ werden, wegen einer Beschränkung des Spektrometers auf eine maximale Photonenenergie von 6,2 eV, die Literaturwerte verwendend (Tabelle 5.1).



Abbildung 5.1: Tranmissionsgrad T (%) in Abhängigkeit von links: Wellenlänge in nm und rechts: der Photonenenergie in eV für die Ermittlung der Bandlücke von D263T.

5.2 Versuchsaufbau

Die durchgeführten Experimente wurden mit dem Festkörperlaser "Carbide CB3-80, Light Conversion" der Firma ACSYS Lasertechnik GmbH durchgeführt. Der CB3-80 ist in der Lage ultrakurze Laserpulse im Bereich von 200 fs bis 10 ps bei einer Wellenlänge von 1030 nm zu emittieren. Darüber hinaus kann der verwendete Laser Pulsfolgen mit einer Pulswiederholfrequenz $f_{\rm int}$ innerhalb einer Pulsfolge von 65 MHz sowie 2,5 GHz mit bis zu zehn Laserpulsen pro Pulsfolge erzeugen.

Die Strahlführung erfolgte, schematisch dargestellt in Abbildung 5.2, durch einen Strahlaufweiter (Jenoptik) und dielektrischer Ablenkspiegel zu einem Galvanometer-Scanner (Scanlab Excelliscan 14). Der Laserpuls wird weiter über eine f-Theta-Linse mit einer Brennweite von 163 mm auf der Probenoberfläche mit einem Strahltaillienradius w_0 , vermessen mit Primes Microspot Monitor, von 15,7 µm fokussiert.



Abbildung 5.2: Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus. Innerhalb eines Strahlenschutzgehäuses wurde die emittierte Laserstrahlung mittels Ablenkspiegel zur Scannereinheit geführt, die eine Ablenkung des fokussierten Laserstrahls auf der Probenoberfläche mit einer geometrischen Separierung der erzeugten Kavitäten von 100 µm ermöglichte.

Im untersuchten Parameterbereich wurde neben der Grundwellenlänge von 1030 nm die kürzeste zur Verfügung stehende Pulsdauer $\tau_{\rm H}$ mit 200 fs genutzt. Die Spitzenfluenz H_0 , gegeben mit

$$H_0 = \left[\frac{2Q}{\pi w_0^2} = \frac{2P_{\rm av}}{f \pi w_0^2}\right] \text{J/cm}^2$$
(5.2)

wurde aus der direkt messbaren Laserleistung $P_{\rm av}$, dem quadrierten Strahltaillienradius w_0^2 und der Pulswiederholfrequenz f bestimmt (Anhang Tabelle A.1). Durch eine Leistungsregulierung wurde ein Spitzenfluenzbereich von 1 J/cm² bis 10 J/cm² gewählt. In dieser Arbeit sollen Effekte wie z.B. die Wärmeakkumulation auf die Ablation untersucht werden. Um bei der Nutzung konventioneller Einzelpulse im Vergleich zu MHz- und GHz-Pulsfolgen Akkumulationseffekte zu vermeiden, wurde bei kHz-Pulsfolgen eine Pulsfolgenwiederholfrequenz $f_{\rm int}$ von 1 kHz (kHz-Regime) verwendet. Für die MHz- und GHz-Pulsfolgen wurde die vom Laser bereitgestellten Pulswiederholfrequenzen innerhalb der Pulsfolge von 65 MHz (MHz-Regime) und 2,5 GHz (GHz-Regime) genutzt. Die Anzahl an Laserpulsen pro Pulsfolge wurde von eins bis zehn variiert. Mit den vorgestellten Parametersätzen wurden mit einzelnen Pulsfolgen Kavitäten erzeugt. Um diese separat zu untersuchen, wurde ein geometrischer Pulsfolgenund Linienabstand von 100 µm verwendet. Die Pulsfolgen mit Pulswiederholfrequenzen im MHz- und GHz-Bereich werden exemplarisch für sieben Laserpulse in Abbildung 5.3 und 5.4 dargestellt. In den Abbildungen ist erkennbar, dass der letzte Laserpuls der Pulsfolge mehr



Abbildung 5.3: Oszilloskop-Aufnahme einer MHz-Pulsfolge bestehend aus sieben Laserpulsen



Abbildung 5.4: Oszilloskop-Aufnahme einer GHz-Pulsfolge bestehend aus sieben Laserpulsen

Energie besitzt. Um eine wiederholbare und reproduzierbare Energieverteilung der Pulsfolgen zu gewährleisten, muss bei der Emission einer Pulsfolge der letzte Laserpuls die restliche Energie des Verstärkers aufnehmen, wodurch dessen Pulsenergie größer ausfällt.

Tabelle 5.2: Übersicht des untersuchten Parameterbereiches mit der Wellenlänge λ , der Pulsdauer $\tau_{\rm H}$, der Pulsanzahl pro Pulsfolge N, der Spitzenfluenz H_0 und der Pulswiederholfrequenz innerhalb einer Pulsfolge $f_{\rm int}$

λ in nm	$ au_{ m H}$ in fs	N	H_0 in J/cm 2	f_{int}
1030	200	1 bis 10	1 bis 10	1 kHz, 65 MHz, 2,5 GHz

5.3 Analysemethoden

Messungen hinsichtlich der Durchmesser der erzeugten Kavitäten erfolgte mittels konfokaler Laserscanning-Mikroskopie (Olympus Lext OLS4100) und einem Auflichtmikroskop (Keyence VH-Z500). Die Messung erfolgt, wie in der Abbildung 5.5a dargestellt, über die Falschfarben-Darstellung der Höhe bis zum äußersten ablatierten Bereich. Bei dem von Liu [69] vorgestelltem Verfahren werden die Durchmesser über die Gleichung

$$D^{2} = 2 \cdot w_{0}^{2} \cdot \ln(\frac{H_{0}}{H_{\text{thr}}})$$
(5.3)

beschrieben. Dabei ist das Durchmesserquadrat D^2 abhängig von der verwendeten Fluenz H_0 . Des Weiteren ist w_0 der Fokusradius und H_{thr} die Ablationsschwelle. Die Ablationsschwelle beschreibt die minimale Fluenz, die zur Ablation von Material erforderlich ist. Die Durchmesserquadrate D^2 wurden halblogarithmisch als Funktion der Spitzenfluenz H_0 dargestellt (Anhang Abbildung B.1 - B.6). Durch eine Regressionsfunktion erfolgte die Approximation zum Schnittpunkt der Abszissenachse, bei der D^2 =0 ist. Dieser Schnittpunkt repräsentiert die Ablationsschwelle des jeweiligen Parametersatzes.



Abbildung 5.5: Exemplarische Messung der (a) Ablationsdurchmesser und (b) Ablationstiefen aus den Daten des konfokalen Laserscanning-Mikroskops

Die Ablationstiefe wird in der Mitte der Kavität von der Materialoberfläche bis zum Boden der Kavität bestimmt (Abbildung 5.5b). Dabei werden die zwei Bezugspunkte über mehrere Messwerte, in Form eines ausgewählten Bereichs, gemittelt. Die Messung der Volumina erfolgte ebenfalls mit dem dreidimensionalen Bild des konfokalen Laserscanning-Mikroskops. Ausgehend von der unbestrahlten Materialoberfläche, die als Referenzebene dient, wurden die Volumina der erzeugten Kavitäten gemessen (Abbildung 5.6).



Abbildung 5.6: Exemplarische Darstellung der Volumenmessung aus den Daten des konfokalen Laserscanning-Mikroskops

Dabei wird darauf geachtet, dass die Volumina der Kavitäten bis zum äußersten ablatierten Bereich gemessen werden. Durch die Messung des Ablationsvolumen V in Abhängigkeit von der Anzahl an Laserpulsen N ist es möglich, mithilfe der Gleichung

$$V_{\rm Puls, N} = V_{\rm N} - V_{\rm N-1}$$
 (5.4)

das Volumen pro Laserpuls V_{Puls} zu bestimmen. Dabei bildet sich dies aus der Differenz des Ablationsvolumen bei N und N-1 Laserpulsen (Abbildung 5.7). Das konfokale Laserscanning-



Abbildung 5.7: Schema zur Darstellung des Volumens pro Laserpuls. Dabei wird exemplarisch das Ablationsvolumen bei $V_{\text{ges}}(N=2)$ von $V_{\text{ges}}(N=3)$ abgezogen, wodurch das Ablationsvolumen $V_{\text{Puls}}(N=3)$ des dritten Laserpulses bestimmt wird.

Mikroskop erzeugt ein dreidimensionales Bild der Probenoberfläche. Die Kavitäten werden mittels einer Falschfarben-Darstellung, wobei jeder Höhenkoordinate einer Farbe zugeordnet wird, mit der Analysesoftware des konfokalen Laserscanning-Mikroskopes dargestellt (Anhang Abbildung D.1-D.6). Über diese Darstellung erfolgt zudem eine qualitative Auswertung in Bezug auf die Rissbildung, Oberfläche und Form der Kavitäten.

6 Ergebnisse und Diskussionen

In diesem Kapitel erfolgt die Analyse und Diskussion der experimentellen Resultate. Im ersten Abschnitt werden die Ablationsschwellen und deren Abhängigkeit von der Laserpulsanzahl und der Pulswiederholfrequenz diskutiert. Anschließend werden die Ablationstiefen betrachtet. Zum Schluss wird das ablatierte Volumen sowie die daraus ermittelten Volumina pro Laserpuls untersucht, um mögliche Rückschlüsse auf die wirkenden Mechanismen ziehen zu können. Zudem findet in diesem Abschnitt eine qualitative Auswertung der Kavitäten statt.

6.1 Ermittelte Ablationsschwellen und Inkubationsfaktoren

Für die Bestimmung der Einzel- und Multipulsablationsschwellen wurden Kavitäten mit verschiedenen Fluenzen erzeugt (Tabelle 5.2), vermessen und mit dem Verfahren aus Kapitel 5.3 von Liu [69] ausgewertet. Die Bestimmung der Ablationsschwelle erfolgt mit Hilfe von mindestens vier Durchmesserwerten pro Parametersatz, wobei jeder Durchmesser aus den Werten von fünf Kavitäten mit gleichen Ablationskonfigurationen gemittelt wurde (Abbildung 6.1).



Abbildung 6.1: Durchmesserquadrat D^2 in Abhängigkeit von der Fluenz H_0 für die Ermittlung der Ablationsschwelle. Beispielhaft für SiO₂ bei einer Pulswiederholfrequenz von f_{int} = 65 MHz und einer Pulsanzahl von N = 10.

Die weiteren Graphen zur Bestimmung der Ablationsschwelle werden im Anhang in Abbildung B.1 - B.6 festgehalten. Die aus diesen Graphen ermittelten Ablationsschwellen sind in Abhängigkeit von der Pulsanzahl N und den verschiedenen Pulswiederholfrequenzbreichen für SiO₂ und D263T in der folgenden Abbildung 6.2 dargestellt.



Abbildung 6.2: Ablationsschwellen von SiO₂ (links) und D263T (rechts) in Abhängigkeit von der Pulsanzahl N mit verschiedenen Pulswiederholfrequenzen f_{int} (1 kHz, 65 MHz und 2,5 GHz).

Unabhängig von der verwendeten Pulswiederholfrequenz und der Art des untersuchten Dielektrika konnte grundsätzlich festgestellt werden, dass eine Verringerung der ermittelten Ablationsschwellen mit zunehmender Pulsanzahl stattfindet. Bei Pulswiederholfrequenzen im kHz- und MHz-Bereich und einer Pulsanzahl von sechs Laserpulsen bleibt die Ablationsschwelle nahezu konstant bei einem niedrigen Niveau. Für SiO₂ nähern sich diese Ablationsschwellen im kHz-Regime einen Wert von 3,5 J/cm² und im MHz-Regime einen Wert von 2 J/cm² an. Bei D263T liegen die Werte für die Annäherung im kHz-Regime bei 3 J/cm² und im MHz-Regime bei 1,8 J/cm². Im Vergleich dazu konnte im GHz-Regime für beide Materialien keine Sättigung der Verringerung der Ablationsschwelle im untersuchten Parameterbereich festgestellt werden. Die Verringerung der Ablationsschwellen gegenüber der Einzelpulsablationsschwelle ist mit höheren Pulswiederholfrequenzen stärker ausgeprägt. Bei einer Pulswiederholfrequenz im kHz-Regime wird die Ablationsschwelle bei beiden Materialien und zehn Laserpulsen im Vergleich zur Einzelpulsablationsschwelle um ca. 20% reduziert. Beim Vergleich der Ablationsschwellen der beiden Materialien fällt auf, dass die Ablationsschwellen von D263T kleiner sind als die von SiO₂. D263T hat Aufgrund der zusätzlichen Metalloxide eine kleinere Bandlücke, wodurch weniger Photonen für die Anregung eines Elektrons in das Leitungsband benötigt werden. Daraus folgt, dass die kritische Elektronendichte bei niedrigeren Fluenzen erreicht wird und das Material eher ablatiert werden kann. Die Verringerung der Ablationsschwelle kann dabei grundsätzlich auf die in Kapitel 4.3 beschriebenen Inkubationseffekte zurück geführt werden. Ausgehend davon wird die Abnahme der Ablationsschwelle bei einer Pulswiederholfrequenz von 1 kHz durch eine Änderung der Topographie und die Ansammlung von Gitterdefekten, wie Frenkel-Paaren, ausgelöst. Die Topographieänderung führt zu einer Erhöhung des Absorptionsgrades, wodurch die Ablationsschwelle verringert wird, da mehr Energie der Laserstrahlung absorbiert werden kann. Durch die Gitterdefekte entstehen zusätzliche Anregungszustände innerhalb der Bandlücke, welche die Anregung der Ladungsträger in das Leitungsband erleichtern. Dies ist mit einem Anstieg des Absorptionsgrad gleichzusetzen, welcher dazu führt, dass die kritische

lücke, welche die Anregung der Ladungsträger in das Leitungsband erleichtern. Dies ist mit einem Anstieg des Absorptionsgrad gleichzusetzen, welcher dazu führt, dass die kritische Elektronendichte (Kapitel 4.2) bei niedrigeren Fluenzen erreicht und die Ablationsschwelle somit reduziert werden kann. Mit Zunahme der Defektdichte stagniert die Verringerung der Ablationsschwelle und der Inkubationseffekt wird ab ca. 6 J/cm² gesättigt. Die Analyse der Verringerung der ermittelten Ablationsschwellen zur Darstellung der Auswirkungen der beschriebenen Inkubationseffekte mit zunehmender Pulsanzahl erfolgte unter Hilfenahme der drei recherchierten analytischen Modellen von Lee et al. [63](Model 1), Di Niso et al. [64] (Model 2) und Ashkenasi et al. [1] (Model 3) in den folgenden Abbildungen für SiO₂ (Abbildung 6.3) und D263T (Abbildung 6.4).



Abbildung 6.3: Ablationsschwellen in Abhängigkeit von der Pulsanzahl N von SiO₂ mit einer Pulswiederholfrequenz von f_{int} =1 kHz und den daraus ermittelten Modellen von Lee et al. [63](Model 1), Di Niso et al. [64] (Model 2) und Ashkenasi et al. [1] (Model 3).



Abbildung 6.4: Ablationsschwellen in Abhängigkeit von der Pulsanzahl N von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz von f_{int} =1 kHz und den daraus ermittelten Modellen von Lee et al. [63](Model 1), Di Niso et al. [64] (Model 2) und Ashkenasi et al. [1] (Model 3).

Für die Bestimmung der Eignung eines Modells zur Beschreibung der Messwerte wird auf das Bestimmtheitsmaß R gemäß der Gleichung

$$R^{2} = 1 - \frac{\sum (H_{\text{thr}} - H_{\text{thr, Modell}})^{2}}{\sum (H_{\text{thr}} - \bar{H}_{\text{thr}})^{2}}$$
(6.1)

zurückgegriffen. $H_{\text{thr, Modell}}$ ist die theoretische Ablationsschwelle die mit dem jeweiligen Modell berechnet wird und \bar{H}_{thr} das arithmetische Mittel der experimentellen Ablationsschwellen. Sowohl die Abbildung als auch das Bestimmtheitsmaß (Modell 1 und 2: R²(SiO₂)=0,89, R²(D263T)=0,92) verdeutlichen, dass die Modelle 1 und 2 nicht mit den Messwerten übereinstimmen, da diese Modelle die Bildung von Defektstellen in Dielektrika nicht berücksichtigen. Außerdem zeigen beide Modelle im untersuchten Parameterbereich keinen Unterschied im theoretischen Verlauf, da der Unterschied zwischen diesen Modellen in der Berücksichtigung der Sättigung des Inkubationseffektes von Metallen liegt. Somit tritt ein Unterschied erst bei einer Vielzahl (ca. 100) von Laserpulsen auf. Im Gegensatz dazu konnte für beide Dielektrika und das Modell 3 eine hohe Übereinstimmung von 98% festgestellt werden, da nur das Modell 3 die Bildung von Gitterdefekte in Dielektrika und somit die Entstehung von Zwischenniveaus in der Bandlücke berücksichtigt [1] (siehe Kapitel 4.3). Nachfolgend werden die mittels der theoretischen Modelle erhaltenen Kenngrößen zur Charakterisierung der Inkubation tabellarisch dargestellt.

Anhand der Inkubationskoeffizienten (Tabelle 6.1) wird ersichtlich, dass die Inkubation bei SiO₂ stärker zu einer Verringerung der Ablationsschwelle beiträgt im Vergleich zu D263T. Diese Tendenzen sind in Abbildung 6.2 anhand der Messwerte erkennbar. Außerdem wird durch die Modellanalyse ersichtlich, dass die Sättigung des Inkubationseffektes für SiO₂ bei höheren Fluenzwerten $H_{\text{thr},\infty,3}$ im Vergleich zu D263T stattfindet.

	SiO2	D263T
$S_{ m Modell\ 1}$	0,85	0,90
$S_{ m Modell\ 2}$	0,85	0,90
$k_{ m Modell\ 3}$	0,65	0,61
$H_{\mathrm{thr},\infty,2}$ in J/cm²	0,014	0,007
$H_{ m thr,\infty,3}$ in J/cm ²	3,398	3,066

Tabelle 6.1: Ermittelte Inkubationskoeffizienzen und Ablationsschwellfluenzen $H_{thr,\infty}$ für für Modell 1 - 3 und Sättigungsfluenzen für Modell 2 und 3 von SiO₂ und D263T

Bei der Pulswiederholfrequenz im MHz-Regime wird die Ablationsschwelle ebenso mit steigender Pulsanzahl reduziert (Abbildung 6.2). Im Vergleich zum kHz-Regime ist die Verringerung der Ablationsschwelle im MHz-Regime deutlich stärker ausgeprägt, ähnlich den ermittelten Ablationsschwellen von Metzner et al. [2] und Hendow et al. [17] bei der Untersuchung von SiO₂ mit Pulswiederholfrequenzen im MHz- und GHz-Regime. Die Ablationsschwellen beider Materialien wird bis unter 2 J/cm² verringert. Eine Begründung für diesen Effekt könnte die in Kapitel 2.3.2 erläuterte Wärmeakkumulation sein. Sie tritt auf, wenn die Wärmezufuhr durch die Laserpulse größer als die Wärmeabfuhr/-Verteilung durch thermische Diffusion ist, wodurch sich Wärme im Wechselwirkungsbereich akkumuliert. Diese ist grundsätzlich abhängig von der verwendeten Pulswiederholfrequenz und der Pulsenergie. Die Wärmeakkumulation tritt bei SiO₂ ab einer Frequenz von ca. 400 kHz [37] und bei D263T ab 500 kHz [35] auf. Daraus folgt, dass die Wärmeakkumulation im Bereich der Wechselwirkung bei den verwendeten 65 MHz ebenfalls in den untersuchten Materialien auftritt. Das kann dazu führen, dass bei der Bestrahlung unterhalb der kHz-Ablationsschwelle die ersten Laserpulse das Material erwärmen bis zu dem Laserpuls, bei dem genug Energie im Wechselwirkungsbereich vorhanden ist, um es zu ablatieren. Der Inkubationseffekt ist Aufgrund der Wärmeakkumulation stärker ausgeprägt, was zu niedrigeren Ablationsschwellen im Vergleich zu den kHz-Ablationssschwellen führt. Eine analytische Beschreibung mithilfe der Modelle 1 bis 3 kann nicht durchgeführt werden, da die Wärmeakkumulation in diesen Modellen nicht berücksichtigt wird. Wie in der Abbildung 6.2 zu sehen, stagniert die Abnahme der Ablationsschwelle ab fünf Laserpulsen bei SiO₂ und D263T. Es wird hierbei die Annahme getroffen, dass ab einer Fluenz H_0 von ca. 2 J/cm² (Q=7,7 µJ) die Energiezufuhr pro Pulswiederholzeit t_{int} =16 ns durch die Laserpulse geringer ist, als die Energieabfuhr aus dem Wechselwirkungsbereich durch Wärmeleitung. Infolgedessen tritt keine bzw. ungenügend Wärmeakkumulation auf und die Ablationsschwelle sinkt nicht weiter unter diese Fluenz. Da die Wärmeleitfähigkeit beider Dielektrika vergleichbar klein ist, liegt die Sättigung bei vergleichbaren Fluenzwerten.

Bei einer Pulswiederholfrequenz im GHz-Regime nimmt die Ablationsschwelle mit steigender Pulsanzahl ebensfalls ab (Abbildung 6.2). Im Vergleich zu den anderen Messergebnissen sind die Ablationsschwellen deutlich kleiner als im kHz-Regime und vergleichbar mit denen im MHz-Regime. Die Ablationsschwellen im GHz-Regime von SiO₂ sind bei drei bis fünf Laserpulsen höher und tendieren ab sechs Laserpulsen zu niedrigeren Werten. Bei D263T liegen alle Ablationschwellen tendenziell über denen des MHz-Regimes. Als möglichen Grundmechanismus für die starke Verringerung der Ablationsschwellen mit zunehmender Pulsanzahl kann bei 2,5 GHz ebenfalls die Wärmeakkumulation zur Erklärung heran gezogen werden. Durch den noch kürzeren zeitlichen Abstand (t_{int} =400 ps) zwischen den einzelnen Laserpulsen in einer Pulsfolge kann auch noch bei geringeren Fluenzen, im Vergleich zu den ermittelten MHz-Ablationsschwellen, ein Materialabtrag erfolgen. Im untersuchten Parameterbereich konnte für die verwendeten 2,5 GHz noch keine Sättigung der Ablationsschwelle festgestellt werden. Die höheren Ablationsschwellen für geringe Pulsanzahlen können durch die Entstehung von Plasma und dessen Wechselwirkung mit dem nachfolgenden Laserpulse svom Material ab. Ebenfalls ist es möglich, dass durch die Wechselwirkung mit dem Plasma nachfolgende Laserpulse in Abhängigkeit von der Fluenz zu erneuten Ablagerungen von dem bereits ablatierten Material führen können. Diese Effekte sind ebenfalls Anhand der Veränderungen in der Form der Kavitäten erkennbar. Hierzu sind in Abbildung 6.5 vertretungsweise die



Abbildung 6.5: Falschfarbenbilder von zwei Kavitäten von D263T mit 6 Laserpulsen, unterschiedlichen Pulswiederholfrequenzen f_{int} (links 65 MHz und rechts 2,5 GHz) und einer Fluenz von 3 J/cm². In der Farbskala stellt rot den höchsten und schwarz den niedrigsten Höhenwert da.

aufgenommenen Kavitäten von D263T bei 65 MHz und 2,5 GHz mit sechs Laserpulsen und einer Fluenz von 3 J/cm² gegenübergestellt. Bei diesem Vergleich ist zu erkennen, dass es bei der Verwendung von 2,5 GHz zu einer Ringbildung kommt. Die Anzahl der Ringe ist dabei von der Fluenz und der Pulsanzahl abhängig. Auf die Prozesse der Abschirmung wird genauer in Kapitel 6.3 eingegangen. Eine analytische Beschreibung mithilfe der Modelle 1 bis 3 kann, wie im MHz-Regime, nicht durchgeführt werden, da die Wärmeakkumulation in diesen Modellen nicht berücksichtigt wird.

6.2 Gemessene Ablationstiefen

Die Ablationstiefe in der Mitte der Kavität wurden mithilfe der in Kapitel 5.3 vorgestellten Methode gemessen und über fünf Messwerte pro Parametersatz gemittelt. Die Darstellung dieser gemittelten Werte erfolgt in Abhängigkeit von der Fluenz sowie von der Pulsanzahl und von der Pulswiederholfrequenz der Pulsfolge in der Abbildung 6.6 für SiO₂ und in Abbildung 6.7 für D263T.



Abbildung 6.6: Falschfarbendarstellung der Ablationstiefen z_M von SiO₂ mit Pulswiederholfrequenz f_{int} im kHz-, MHz- und GHz-Regime in Abhängigkeit von der Pulsanzahl N der Pulsfolge und der Fluenz H_0 . Zudem werden die Ablationstiefen innerhalb des dazugehörigen Felder festgehalten.



Abbildung 6.7: Falschfarbendarstellung der Ablationstiefen z_M von D263T mit Pulswiederholfrequenz f_{int} im kHz-, MHz- und GHz-Regime in Abhängigkeit von der Pulsanzahl N der Pulsfolge und der Fluenz H_0 . Zudem werden die Ablationstiefen innerhalb des dazugehörigen Felder festgehalten.

In den Abbildungen wird zudem der konkrete Wert für die Ablationstiefen in µm dokumentiert. Bei beiden Dielektrika und den verschiedenen Pulswiederholfrequenzen nimmt die Ablationstiefe mit zunehmender Pulsanzahl und Fluenz zu. Ausnahmen hierfür sind einige Parametersätze mit Pulswiederholfrequenzen im MHz- und GHz-Regime bei denen die Ablationstiefe teilweise gleich bleibt oder abnimmt. Zudem beeinflusst der zeitliche Abstand zwischen den Laserpulsen einer Pulsfolge die Ablationstiefe, ähnlich den Ergebnissen von Hernandez-Rueda et al. [16]. Dabei nimmt die Ablationstiefe im untersuchten Parameterbereich bei kürzeren Pulsabständen ab. Ein Grund dafür sind die unterschiedlichen Formen der Kavitäten. Im kHz- und MHz-Regime ist die maximale Tiefe im untersuchten Parameterbereich immer in der Mitte der Kavität, jedoch ist dies im GHz-Regime nicht überall gegeben (Abbildung 6.8).



Abbildung 6.8: Falschfarbenbilder von zwei Kavitäten von D263T mit drei Laserpulsen, unterschiedlichen Pulswiederholfrequenzen f_{int} (links 65 MHz und rechts 2,5 GHz) und einer Fluenz von 10 J/cm². In der Farbskala stellt rot den höchsten und schwarz den niedrigsten Höhenwert da.

Durch diesen Unterschied sind die Ablationstiefen im GHz-Regime, aufgrund der Messung in der Mitte der Kavität, vergleichsweise kleiner. Die maximalen Ablationstiefen sind generell kleiner als die der im kHz- und MHz-Regime gemessenen Werte. Eine mögliche Erklärung für die kleineren Ablationstiefen innerhalb der MHz- und GHz-Regime und zwischen den Regimen kann eine Abschirmung der Materialoberfläche im MHz-Regime durch eine Ablationswolke oder im GHz-Regime durch das entstandene Plasma sein (Kapitel 2.3.1). Eine genauere Untersuchung dieser Phänomene wird im Kapitel 6.3 anhand des Ablationsvolumen pro Laserpuls durchgeführt. Bei D263T sind die Ablationstiefen größer als die von SiO₂, außer bei hohen Pulsanzahlen und Fluenzen. Eine mögliche Erklärung für die größeren Ablationstiefen ist, dass D263T durch die kleinere Bandlückenenergie schneller die kritische Elektronendichte erreicht, ab der das Material mehr Laserstrahlung absorbiert und dadurch mehr Material ablatiert werden kann. Die kleineren Ablationstiefen von D263T bei hohen Pulsanzahlen und Fluenzen können durch den in Kapitel 6.1 ermittelten Inkubationsfaktor erklärt werden. Hierbei ist der Inkubationseffekt stärker bei der Ablation von SiO₂ ausgeprägt, wodurch dieser Effekt bei hohen Pulsanzahlen und Fluenzen gegenüber der kleineren Bandlückenenergie überwiegt.

6.3 Gemessene Ablationsvolumen und ermittelte Ablationsvolumina pro Laserpuls

Die Untersuchung des Einflusses der Pulswiederholfrequenz, der Pulsanzahl und der Fluenz auf das Ablationsvolumen, sowie die Untersuchung der daraus ermittelten Volumina pro Laserpuls erfolgte über die Messungen der Volumina der erzeugten Kavitäten mit den unterschiedlichen Parametersätzen (Kapitel 5, Tabelle 5.2). Dabei wurden jeweils mindestens fünf Ablationsvolumen pro Ablationskonfiguration gemittelt. Die Ablationsvolumina in Abhängigkeit von der Pulsanzahl und der Fluenz für SiO₂ wird in Abbildung 6.9 und für D263T in 6.10 mittels einer Falschfarbendarstellung der gemittelten Messwert dargestellt.



Abbildung 6.9: Falschfarbendarstellung der Ablationsvolumen V_{ges} von SiO₂ mit Pulswiederholfrequenz f_{int} im kHz-, MHz- und GHz-Regime in Abhängigkeit von der Pulsanzahl N der Pulsfolge und der Fluenz H_0 Ein graues Feld kennzeichnet hierbei ein effektive Volumina von Null.



Abbildung 6.10: Falschfarbendarstellung der Ablationsvolumen V_{ges} von SiO₂ mit Pulswiederholfrequenz f_{int} im kHz-, MHz- und GHz-Regime in Abhängigkeit von der Pulsanzahl N der Pulsfolge und der Fluenz H_0 . Ein graues Feld kennzeichnet hierbei ein effektive Volumina von Null.

Die im Kapitel 6.1 ermittelten kHz-, MHz- und GHz-Ablationsschwellen stimmen, bis auf einige Ausnahmen, mit den Fluenzen der kleinst möglichen gemessenen Ablationsvolumen überein. Diese Ausnahmen treten bei beiden Dielektrika im kHz-Regime bei einer Fluenz von 4 J/cm² und bei SiO₂ im MHz-Regime bei einer Fluenz von 2 J/cm² und 5 Laserpulsen auf, da sich aufgrund der Wechselwirkung des Dielektrikums mit den Laserpulsen teilweise Material am Rand der Kavität ansammelt (Abbildung 6.11).



Abbildung 6.11: Schematische zweidimensionale Darstellung der Materialansammlung (grau) und des Ablationsvolumens (blau) einer Kavität

Diese Materialansammlungen zählen nicht zu dem Ablationsvolumen, da nur eine Umlagerung von Material stattfindet. Deswegen werden, wenn diese Volumen verhältnismäßig groß (ca. 10 % des Ablationsvolumen) gegenüber dem abgetragenem Volumen sind, die Differenz beider für die weitere Auswertung verwendet. Für den Fall, dass die Differenz aus ablatiertem und angesammelten Volumen gleich null ist, wird dieses grau in den Abbildungen 6.9 und 6.10 dargestellt. Zum Beispiel wurde bei SiO₂ im kHz-Regime, vier Laserpulsen, einer Fluenz von 4J/cm² ein ablatiertes und aufgewölbtes Volumen von jeweils 0,5 µm³ bestimmt.

Die Ablationsvolumina beider Dielektrika bei der Verwendung von Pulsfolgen mit einer Pulswiederholfrequenz im kHz-Regime nehmen bei höherer Pulsanzahlen und größeren Fluenzen zu, da hierbei mehr Energie in das Material eingebracht und somit grundsätzlich mehr Material ablatiert werden kann. Bei den MHz und GHz-Regimen ist diese Tendenz ebenfalls steigend, jedoch stagniert das Ablationsvolumen in Abhängigkeit von der Pulsanzahl und Fluenz oder nimmt im Fall eines Parametersatzes im MHz- und mehreren im GHz-Regimes aufgrund der Puls-zu-Puls-Wechselwirkungen (Kapitel 2.3.1) wieder ab. Bei 3 J/cm² ist im MHz-Regime zum Beispiel eine Abnahme des Ablationsvolumen zwischen den Pulsfolgen mit sechs und sieben Laserpulsen erkennbar. Eine mögliche Erklärung für diese Abnahme ist eine Wechselwirkung zwischen dem siebten Laserpuls und einer Ablationswolke, wodurch das Material erneut in der Kavität abgelagert wird. Auf diese Effekte wird genauer in den folgenden Abschnitten bei der Analyse der Ablationsvolumen pro Laserpuls eingegangen. Zum Vergleich der



Abbildung 6.12: Verleich er Ablationsvolumen V_{ges} von SiO₂ bei verschiedenen Pulswiederholfrequenzen (kHz-, MHz- und GHz-Regime) in Abhängigkeit von der Pulsanzahl bei Fluenzen von H_0 =5 J/cm² und H_0 =10 J/cm².

Ablationsvolumen bei verschiedenen Pulswiederholfrequenzen werden in Abbildung 6.12 diese bei 5 J/cm² und 10 J/cm² im kHz-,MHz- und GHz-Regime für SiO₂ und im Anhang in Abbildung C.1 für D263T dargestellt. Im Vergleich zu den anderen Pulswiederholfrequenzen sind die Kavitäten im kHz-Regime bei beiden Dielektrika hinsichtlich der ablatierten Volumina

vorherrschend, wenn Fluenzen von 8 J/cm² oder mehr verwendet werden. Bei niedrigeren Fluenzen sind höhere Pulswiederholfrequenzen im MHz- und GHz-Regime für die Erzeugung größerer Ablationsvolumina geeignet (Abbildung 6.12).

Die Auswertung und Interpretation der Messwerte wird mit der Darstellung des Ablationsvolumina pro Laserpuls in Abhängigkeit von der Pulsanzahl und bei verschiedenen Fluenzen fortgeführt, da die Effekte anhand dieser Darstellung eindeutiger erkennbar sind. Die Bestimmung der Volumen pro Laserpuls erfolgt, wie in Kapitel 5.3 beschrieben, über die Gleichung 5.4 und wird in den Abbildungen 6.13, 6.15 und 6.17 für SiO₂ und in den Abbildung 6.14, 6.16 und 6.18 für D263T im Bereich von 5 J/cm² bis 10 J/cm² dargestellt.



Abbildung 6.13: Ablationsvolumen pro Laserpuls V_{Puls} von SiO₂ mit einer Pulswiederholfrequenz von f_{int} =1 kHz und Fluenzen H_0 von 5 J/cm² bis 10 J/cm²



Abbildung 6.14: Ablationsvolumen pro Laserpuls V_{Puls} von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz von f_{int} =1 kHz und Fluenzen H_0 von 5 J/cm² bis 10 J/cm²

Bei beiden Dielektrika und einer Pulswiederholfrequenz im kHz-Regime zeigt sich in den Abbildungen 6.13 und 6.14, dass das Ablationsvolumen der einzelnen Laserpulse zunimmt, je mehr Laserpulse zuvor mit dem Material interagiert haben. Bei der Wechselwirkung mit den Laserpulsen verändert sich einerseits die Topographie der Oberfläche und andererseits bilden sich Gitterdefekte die zu Zwischenniveaus innerhalb der Bandlücke führen. Durch diese zwei Effekte erhöht sich, wie in Kapitel 4.3 erklärt, der Absorptionsgrad und infolgedessen das Ablationsvolumen des jeweils nachfolgenden Laserpulses. Der Absorptionsgrad ist dabei von der Defektdichte und Topographie von der Pulsanzahl abhängig. Durch den höheren Absorptionsgrad können somit bei einer weiteren Interaktion mehr Gitterfehler entstehen, wodurch die Zunahme des Ablationsvolumen pro Laserpuls begründet werden kann. Eine Ausnahme bildet SiO₂ bei einer Fluenz von 5 J/cm², wobei das Ablationsvolumen pro Laserpuls nahezu konstant bleibt. Hierbei wird angenommen, dass nicht genug Energie in das Material eingebracht werden kann, um den Absorptionsgrad so zu erhöhen, dass die folgenden Laserpulse mehr Material ablatieren können. Des Weiteren kann angenommen werden, dass die Erzeugung von Gitterdefekten bei Fluenzen nahe der Multipulsablationsschwelle nicht konstant repetitiv ist, was zu den verhältnismäßig großen Fehlern führt.



Abbildung 6.15: Ablationsvolumen pro Laserpuls V_{Puls} von SiO₂ mit einer Pulswiederholfrequenz von f_{int} =65 MHz und Fluenzen H_0 von 5 J/cm² bis 10 J/cm²



Abbildung 6.16: Ablationsvolumen pro Laserpuls V_{Puls} von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz von f_{int} =65 MHz und Fluenzen H_0 von 5J/cm² bis 10J/cm²

Die Ablationsvolumen pro Laserpuls beider Dielektrika (Abbildung 6.15 und 6.16) bei einer Pulswiederholfrequenz im MHz-Regime steigt mit zunehmender Pulsanzahl an, jedoch ist dieser Anstiegt nicht gleichmäßig, wodurch mehrere Maxima pro verwendeter Fluenz entstehen können. Zum Beispiel bei SiO₂ und 10 J/cm² ablatiert der dritte Laserpuls mit 95 µm³ am meisten Material (Abbildung 6.15). Nach einem solchen Maxima sinkt das Ablationsvolumen pro Laserpuls meist auf ein lokales Minimum ab. Das entspricht bei 8 J/cm² und 10 J/cm² ca. der Hälfte des Ablationsvolumen pro Laserpuls des vorangegangenen Maximas und bei 5 J/cm² und 6 J/cm² wird von dem folgendem Laserpuls annähern 0 µm³ ablatiert (SiO₂). Eine mögliche Erklärung für die schlagartige Verringerung des Ablationsvolumen pro Laserpuls nach einem Maximum ist die Abschirmung des nachfolgenden Laserpulses durch eine Ablationswolke, welche aus ablatierten Partikeln besteht. Dies ähnelt der Abschirmung durch Puls-zu-Puls Wechselwirkungen bei Metallen (siehe Kapitel 2.3.1). Bei der Ablation von Material entsteht daraus eine Wolke, deren Dichte und Ausbreitung abhängig vom Ablationsvolumen ist. Diese Ablationswolke interagiert, durch die geringe Zeit t_{int} =16 ns zwischen den Laserpulsen, mit dem nachfolgendem Laserpuls und absorbiert teilweise dessen Energie. Wie stark die Ablationswolke die Laserstrahlung absorbiert, ist abhängig von der Dichte dieser und der verwendeten Pulsenergie.

Die Ablationsvolumina des GHz-Regimes unterscheidet sich von den kHz- und MHz-Regimen aufgrund des häufigeren Auftretens von negativen Ablationsvolumen⁶ pro Laserpuls und wird in der Abbildung 6.17 bei 5 J/cm² bis 10 J/cm² festgehalten.

⁶Bei einem negativem Ablationsvolumen wird ablatiertes Material in der Kavität abgelagert.



Abbildung 6.17: Ablationsvolumen pro Laserpuls V_{Puls} von SiO₂ mit einer Pulswiederholfrequenz von f_{int} =2,5 GHz und Fluenzen H_0 von 5 J/cm² bis 10 J/cm²



Abbildung 6.18: Ablationsvolumen pro Laserpuls V_{Puls} von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz von f_{int} =2,5 GHz und Fluenzen H_0 von 5J/cm² bis 10J/cm²

Das Ablationsvolumen pro Laserpuls steigt bei 10J/cm² zuerst mit dem zweiten Laserpuls auf ein maximalen Wert ($V_{Puls=2,SiO_2}$ =20 µm³) an und fällt darauf beim vierten Laserpuls auf ein Minimum ($V_{Puls=4,SiO_2}$ =-8,9 µm³) ab. Wie in Abbildung 6.18 zu sehen liegt bei D263T das Maximum ($V_{Puls=1,D263T}$ =42,7 µm³) bei dem ersten Laserpuls und das Minimum ($V_{Puls=3,D263T}$ =-31,7 µm³) bei dem dritten Laserpuls. Danach bleibt das Ablationsvolumen bei SiO₂ annähernd konstant zwischen 0 µm³ bis 10 µm³ und bei D263T zwischen -5 µm³ bis 10 µm³. Diese Minima können über die Abschirmung und erneute Ablagerung von Material durch die Wechselwirkung mit dem entstandenen Plasma und den ablatierten Partikeln erklärt werden und sind vergleichbar mit dem Mechanismus zur Abschirmung und erneute Ablagerung durch Puls-zu-Puls Wechselwirkungen bei Metallen (Kapitel 2.3.1). Bei der Wechselwirkung zwischen dem Laserpuls und dem Dielektrika entsteht nach wenigen Pikosekunden ein Plasma. Dieses Plasma kann Teile der Laserstrahlung absorbieren und heizt sich dabei auf. Wenn die Dichte des Plasmas einen bestimmten Wert erreicht, kann das Absorptionsverhalten dazu führen, dass das Ablationsvolumen eines Laserpulses kleiner ist als das des vorherigen oder dass Teile des bereits ablatierten Materials erneut in die Kavität abgelagert werden. Bei niedrigeren Fluenzen kommt es zu einer Verschiebung der lokalen Maxima und der lokalen Minima zu späteren Laserpulsen. Der Zustand bei dem das Plasma für eine erneute Ablagerung von Material sorgt, wird bei niedrigeren Fluenzen ebenfalls erst nach mehreren Laserpulsen erreicht. Eine Ursache hierfür könnte ein Unterschied in der Dichte des jeweiligen Plasmas sein. Bei niedrigen Fluenzen wird die erforderliche Plasmadichte, ab der eine erneute Ablagerung das Material erfolgt, erst nach einer bestimmten Pulsanzahl erreicht.

Die qualitative Auswertung der Kaviäten erfolgt über visuelle Aufnahmen des Auflichtmikroskops und die Falschfarbendarstellungen des konfokalen Laserscanning Mikroskops (Abbildung D.1 - D.6 im Anhang).



Abbildung 6.19: Falschfarbendarstellung von Kavitäten auf SiO₂ und D263T bei sieben Laserpulsen, H_0 =10 J/cm², Pulswiederholfrequenz f_{int} im kHz-, MHz- und GHz-Regime. In der Farbskala stellt rot den höchsten und schwarz den niedrigsten Höhenwert da. Die die Höhenwerte der verschiedenen Kavitäten sind unterschiedlich Skaliert und nicht untereinander vergleichbar.

Bei der Strukturierung von SiO₂ mit Pulsfolgen, die eine Pulswiederholungsrate im kHz-Bereich besitzen, bilden sich am Rand der Kavität Frakturen⁷ und es lagert sich Material außerhalb der Kavität ab (Abbildung 6.19). Bei 65 MHz ist eine deutlich glattere Kavität ohne Frakturen erkennbar, ähnlich den Ergebnissen von Herman et al. [40]. Eine mögliche Erklärung für die

⁷Unter Frakturen werden in diesem Zusammenhang Risse und die Rückstände von abgeplatztem Material zusammengefasst.

Abwesenheit von Frakturen und Rissen, bietet die Betrachtung der Wärme um die Kavität. In den Bereichen in denen sich die Wärme ansammelt steigt die Duktilität an, was zu einer Verringerung von Frakturen und Rissen führt, die bei hohen Fluenzen durch den Ablationsdruck entstehen. Zudem sind bei Pulsfolgen im MHz-Regime mit vier bis sechs Laserpulsen und einer Fluenz von 5 J/cm² bis 8 J/cm² teilweise selbstorganisierende Nanostrukturen am Boden der Kavität erkennbar (Abbildung 6.20).



Abbildung 6.20: Auflichtmikroskop-Aufnahme einer SiO₂-Kavität mit selbstorganisierenden Nanostrukturen bei vier Laserpulsen und H_0 =8 J/cm²

Mit Pulswiederholfrequenzen im GHz-Regime sind ebenfalls keine Risse erkennbar (Abbildung 6.19). Auffällig sind jedoch die unregelmäßigen Strukturen innerhalb der Kavität und die Ringe die sich um die Kavität bilden (Abbildung 6.19). Eine Erklärung für diese gibt die in Kapitel 2.3.1 beschriebenen Puls-zu-Puls Wechselwirkungen. Bei dieser wird ein Laserpuls durch das Plasma teilweise abgeschirmt und nur an den Rändern des Plasmas wird genug Energie aufgrund der geringen Plasmadichte im Material eingebracht, um neues Material zu ablatieren. Dieser Vorgang wird Schematisch in Abbildung 6.21 dargestellt.



Abbildung 6.21: Schematische Darstellung der Puls-zu-Puls-Wechselwirkungen mit Pulswiederholfrequenzen im GHz-Bereich. Hierbei schirmt das Plasma (blau) die Kavität von der Laserstrahlung (rot) ab und nur an den Rändern kann Material ablatiert werden (grau).

Bei D263T besitzen die Kavitäten ähnliche qualitative Eigenschaften im Vergleich zu SiO₂. Die Metalloxide in D263T erhöhen die Duktilität von D263T im Vergleich zu SiO₂. Infolgedessen ist D263T deutlich weniger anfällig für Frakturen- bzw. Rissebildung und es erfolgt eine verstärkte Ablagerung von Material am Rand der Kavität. (Abbildung 6.19).

7 Zusammenfassung und Ausblick

In dieser Arbeit wurde die Ablation von SiO₂ und D263T unter Variation der Fluenz, der Pulsanzahl und der Pulswiederholfrequenz quantitativ in Form der Ablationsdurchmesser, -tiefen und -volumen und qualitativ in Form von grafischen Aufnahmen untersucht. Dafür wurde der "Carbide CB3-80, Light Conversion" mit einer emittierten Wellenlänge von 1030 nm verwendet. Die verwendeten Pulsfolgen bestanden aus einem bis zehn Laserpulsen mit einer Pulswiederholfrequenz von 1 kHz, 65 MHz und 2,5 GHz.

Die Einzel- und Multipuls-Ablationsschwellen wurden aus den Ablationsdurchmessern in Abhängigkeit von der Pulsanzahl und der Pulswiederholfrequenz ermittelt. Es wurde festgestellt, dass die MHz- und GHz-Ablationschwelle von SiO₂ und D263T geringer sind, als die kHz-Ablationsschwellen. Diese Verringerung der Ablationsschwelle kann mit der Wärmeakkumulation erklärt werden. Aufgrund der geringen Pulsabstände wird die Temperatur in der Einflusszone erhöht bis sich genug Energie im Material angesammelt hat, um das Material unterhalb der kHz-Ablationsschwellen zu ablatieren. Im kHz-Regime konnten die ermittelten Ablationsschwellen mit einer erheblichen Übereinstimmung an das Modell 3 von Ashkenasi et al. [1] angeglichen werden. Der daraus ermittelte Inkubationskoeffizienten beträgt 0,65 für SiO₂ und 0,61 für D263T. Da die Ablationsschwellen im MHz- und GHz-Regime niedriger sind, deutet dies darauf hin, dass der Inkubationseffekt stärker ausgeprägt ist. Allerdings ist die Bestimmung eines Inkubationskoeffizienten aufgrund der Tatsache, dass das Modell keine Abhängigkeit von der Pulswiederholfrequenz berücksichtigt, nicht möglich. Daher eröffnet sich die Notwendigkeit weiterer Forschung und Entwicklung eines Inkubationsmodells für Dielektrika, die die Abhängigkeit von der Pulswiederholfrequenz angemessen berücksichtigen.

Bei der Untersuchung der Ablationstiefen in der Mitte der Kavität in Abhängigkeit der Fluenz, Pulsanzahl und Pulswiederholfrequenz wurde festgestellt, dass die maximale Tiefe im Parameterbereich mit steigender Pulswiederholfrequenz abnimmt. Die kleineren Ablationstiefen im MHz-Regime sind hierbei auf die Abschirmung der Materialoberfläche durch eine Ablationswolke und im GHz-Regime auf ein Plasma zurückzuführen. Ausnahmen hiervon sind die Ablationstiefen ab einer Fluenz von H_0 <5 J/cm² oder einer Pulsanzahl N<3 im MHz-Regime und ab einer Fluenz von H_0 <4 J/cm² im GHz-Regime. Bei diesen Parametern sind die Ablationstiefen im MHz- und GHz-Regime größer als im kHz-Regime. Dies kann mit der Wärmeakkumulation erklären werden, die bewirkt, dass die Ablation von Material bereits bei geringeren Fluenzen und Pulsanzahlen beginnt. Dadurch kann bei gleichen Parametern im MHz- und GHz-Regime eine größere Tiefe gemessen werden als im kHz-Regime. Die Ablationstiefen bieten zudem eine Grundlage für zukünftige 3D-Strukturierungen, da die ablatierte Tiefe essentiell für die Maßhaltigkeit bzw. die korrekten Dimensionen der Struktur ist.

Bei der Variation der Pulswiederholfrequenz konnte eine deutliche Beeinflussung auf das resultierende Ablationsvolumens festgestellt werden. Im kHz-Regime nimmt das Ablationsvolumen im untersuchten Parameterbereich mit steigender Fluenz und Pulsanzahl kontinuierlich zu, was ab 8 J/cm² zu größeren Volumina im Vergleich zu den MHz- und GHz-Ablationsvolumen führt. Die ablatierten Volumina sind im MHz-Regime bei einer Fluenz von 10 J/cm² und zwei bis sechs Laserpulsen im Vergleich zu den Ablationsvolumina im kHz- und GHz-Bereich dominanter. Bei Fluenzen, die kleiner oder gleich der kHz-Ablationsschwelle sind, übertreffen zudem die Ablationsvolumina im GHz-Regime diejenigen des kHz-Regimes. Wobei diese Effekte, wie bei den Ablationstiefen auf die Wärmeakkumulation und die Abschirmung zurückgeführt werden können.

Dieses Verhalten wurde weiterhin über die Ablationsvolumen pro Laserpuls untersucht. Bei den daraus resultierenden Verläufen über die Pulsfolge sind Maxima und unmittelbar darauf folgende Minima zu erkennen, welche auf Puls-zu-Puls-Wechselwirkungen hinweisen. In diesem Zusammenhang führt die Wechselwirkung zwischen dem Laserpuls und dem Material zur Bildung eines entsprechend dichten Plasmas mit ablatierten Partikeln, die die Oberfläche abschirmen oder durch Wechselwirkung mit einem nachfolgenden Laserpuls zu einer erneuten Ablagerung von Material führen können. Diese Erkenntnisse legen nahe, dass eine detaillierte Untersuchung der Ausbreitung der Ablationswolke und des Plasmas, zum Beispiel unter Vakuumbedingungen, erforderlich ist, um ein besseres Verständnis dieser Wechselwirkungen zu erlangen.

Aus der qualitativen Untersuchung der Kavitäten hat sich ergeben, dass sich die Wärmeakkumualtion des MHz- und GHz-Regimes im Vergleich zum kHz-Regime positiv auf die Qualität ausgewirkt. In diesem Zusammenhang wird das Material aufgrund der gesteigerten Temperatur duktiler, wodurch weniger Frakturen und eine glattere Kavität entstehen. Die positiven Auswirkungen der Wärmeakkumulation im MHz- und GHz-Regime auf die Qualität der Kavitäten sind besonders bemerkenswert und können zukünftig bei der Herstellung von 3D-Mikrostrukturen Anwendung finden. Zusätzlich zu der besseren Qualität entstanden im MHz-Regime am Boden der Kavität teilweise selbstorganisierende Nanostrukturen, welche weitere Möglichkeiten für die Nanostrukturierungen von Dielektrika eröffnet.

8 Symbolverzeichnis

Griechische Symbole

Symbol	Einheit	Bedeutung
γ		Keldysh-Parameter
λ	m	Wellenlänge der Laserstrahlung
ϵ_0	As/Vm	Elektrische Feldkonstante mit 8,85×10 ⁻¹² As/Vm
$ au_{ m H}$	S	Pulsdauer
ω	Hz	Kreisfrequenz der Laserstrahlung
$\omega_{ m P}$	Hz	Plasmakreisfrequenz
ω_{tunnel}	Hz	Tunnelkreisfrequenz

Römische Symbole

Symbol	Einheit	Bedeutung
c_0	m/s	Lichtgeschwindigkeit in Vakuum mit 3,0×10 ⁸ m/s
d	m	Ablationsdurchmesser
e	As	Elementarladung mit 1,60×10 ⁻¹⁹ As
E	V/m	Elektrische Feldstärke
E_0	V/m	Amplitude der elektrischen Feldstärke
$E_{\mathbf{f}}$	eV	Photonenergie
E_{gap}	eV	Bandlücke des Dielektrikums
$ ilde{E}_{ extsf{gap}}$	eV	Effektive Bandlücke des Dielektrikums
f	Hz	Frequenz der Laserstrahlung
$f_{ m int}$	Hz	Pulswiederholfrequenz innerhalb einer Pulsfolge
f	Hz	Pulswiederholfrequenz zur Berechnung der Spitzenfluenz
		H_0
H	J/m ²	Fluenz
H_0	J/m ²	Spitzenfluenz
H_{thr}	J/m ²	Ablationsschwelle
Ι	W/m ²	Intensität
I_0	W/m ²	Spitzenintensität
m_{e}	kg	Elektronenmasse mit 9,11×10 ⁻³¹ kg
$m_{ m loch}$	kg	Masse des zurückgebliebenen Loches nach der Anregung
		eines Elektrons in das Leitungsband
$m_{\rm red}$	kg	Reduzierte effektive Elektronenmasse
n		Brechungsindex
ne	1/cm ³	Elektronendichte
$n_{\rm e,krit}$	1/cm ³	Kritische Elektronendichte
N		Anzahl an Laserpulsen
P_{av}	W	Mittlere Laserleistung zur Berechnung der Spitzenfluenz H_0
S		Inkubationsfaktor
$V_{\sf ges}$	m ³	Gesamtes Ablationsvolumen
V_{Puls}	m ³	Ablationsvolumen eines Laserpulses
w_0	m	Strahltaillienradius zur Berechnung von der Spitzenfluenz
		H_0
$z_{\mathbf{M}}$	μm	Ablationstiefe in der Mitte der Kavität

Anhang A: Leistungsmessung

Tabelle A.1: Verwendete durchschnittliche Leistungen bei 100/1000 kHz Pulswiederholfrequenz und daraus berechnete Pulsenergien und Fluenzen

f_{Laser} in kHz	Leistung in %	durchschnittliche Leistung in W	Pulsenergie in µJ	Fluenz in J/cm ²
	51,6	38,7	387,2	100
	46,1	34,8	348,5	90
	40,6	31,0	309,7	80
	36,2	27,9	278,8	72
	31,8	24,8	247,8	64
	29,7	23,2	232,3	60
	27,5	21,7	216,8	56
	26,4	20,9	209,1	54
	24,2	19,4	193,6	50
	23,1	18,6	185,8	48
	21,4	17,4	174,2	45
	19,8	16,3	162,6	42
1000	18,7	15,5	154,9	40
	16,5	13,9	139,4	36
	16,0	13,6	135,5	35
	14,3	12,4	123,9	32
	13,2	11,6	116,2	30
	12,1	10,8	108,4	28
	11,6	10,5	104,5	27
	10,5	9,7	96,8	25
	9,9	9,3	92,9	24
	8,3	8,1	81,3	21
	7,7	7,7	77,4	20
	6,6	7,0	69,7	18
	86,4	61,9	61,9	16
	80,6	58,1	58,1	15
	74,9	54,2	54,2	14
100	63,3	46,5	46,5	12
	51,8	38,7	38,7	10
	46,1	34,8	34,8	9
	40,3	31,0	31,0	8
	34,6	27,1	27,1	7
	28,8	23,2	23,2	6
	23,1	19,4	19,4	5
	17,3	15,5	15,5	4
	11,6	11,6	11,6	3
	5,8	7,7	7,7	2
	2,0	3,9	3,9	1





Abbildung B.1: Durchmesserquadrat D^2 in Abhängigkeit von der Fluenz H_0 für die Ermittlung der Ablationsschwelle. Bei der Ablation von SiO₂ mit einer Pulswiederholfrequenz im kHz-Regime.



Abbildung B.2: Durchmesserquadrat D^2 in Abhängigkeit von der Fluenz H_0 für die Ermittlung der Ablationsschwelle. Bei der Ablation von SiO₂ mit einer Pulswiederholfrequenz im MHz-Regime.



Abbildung B.3: Durchmesserquadrat D^2 in Abhängigkeit von der Fluenz H_0 für die Ermittlung der Ablationsschwelle. Bei der Ablation von SiO₂ mit einer Pulswiederholfrequenz im GHz-Regime.



Abbildung B.4: Durchmesserquadrat D^2 in Abhängigkeit von der Fluenz H_0 für die Ermittlung der Ablationsschwelle. Bei der Ablation von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz im kHz-Regime.



Abbildung B.5: Durchmesserquadrat D^2 in Abhängigkeit von der Fluenz H_0 für die Ermittlung der Ablationsschwelle. Bei der Ablation von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz im MHz-Regime.



Abbildung B.6: Durchmesserquadrat D^2 in Abhängigkeit von der Fluenz H_0 für die Ermittlung der Ablationsschwelle. Bei der Ablation von D263T mit einer Pulswiederholfrequenz im GHz-Regime.
Anhang C: Volumenvergleich D263T



Abbildung C.1: Verleich der Ablationsvolumen V_{ges} von D263T bei verschiedenen Pulswiederholfrequenzen (kHz-, MHz- und GHz-Regime) in Abhängigkeit von der Pulsanzahl bei Fluenzen von H_0 =5 J/cm² und H_0 =10 J/cm².





Abbildung D.1: Falschfarbenbilder der erzeugten Kavitäten von SiO₂ mit einem bis zehn Laserpulsen, einer Pulswiederholfrequenzen im kHz-Regime und einer Fluenz von 5 J/cm² bis 10 J/cm². In der Farbskala stellt rot den höchsten und schwarz den niedrigsten Höhenwert da. Gleiche Farbskalierungen bei gleicher Pulsanzahl von Ereignissen pro Kavität.



Abbildung D.2: Falschfarbenbilder der erzeugten Kavitäten von SiO₂ mit einem bis zehn Laserpulsen, einer Pulswiederholfrequenzen im MHz-Regime und einer Fluenz von 2 J/cm² bis 10 J/cm². In der Farbskala stellt rot den höchsten und schwarz den niedrigsten Höhenwert da. Gleiche Farbskalierungen bei gleicher Pulsanzahl von Ereignissen pro Kavität.



Abbildung D.3: Falschfarbenbilder der erzeugten Kavitäten von SiO₂ mit einem bis zehn Laserpulsen, einer Pulswiederholfrequenzen im GHz-Regime und einer Fluenz von 2 J/cm² bis 10 J/cm². In der Farbskala stellt rot den höchsten und schwarz den niedrigsten Höhenwert da. Gleiche Farbskalierungen bei gleicher Pulsanzahl von Ereignissen pro Kavität.

	N=1	N=2	N=3	N=4	N=5	N=6	N=7	N=8	N=9	N=10	
10 J/cm ²	•	•			•		•		۲	۲	
8 J/cm ²	•	•	•	•	•	•	•		۹	•	
6 J/cm ²	•	•		۲		•		•	•	٠	
5 J/cm ²	•	•	۲	۲	•	٠	•	٠	•	•	
4 J/cm ²			0	0	0	0	0	0	ó	40µm	

Abbildung D.4: Falschfarbenbilder der erzeugten Kavitäten von D263T mit einem bis zehn Laserpulsen, einer Pulswiederholfrequenzen im kHz-Regime und einer Fluenz von 4J/cm² bis 10J/cm². In der Farbskala stellt rot den höchsten und schwarz den niedrigsten Höhenwert da. Gleiche Farbskalierungen bei gleicher Pulsanzahl von Ereignissen pro Kavität.

	N=1	N=2	N=3	N=4	N=5	N=6	N=7	N=8	N=9	N=10	
10 J/cm ²	•	۲		•	•		•	•	•	•	
8 J/cm ²	•	•	•	•	•	•	•	•	•	•	
6 J/cm ²	•	•	•	•	•		•	•	•	•	
5 J/cm ²	•	۲	•			•	•		•	•	
4 J/cm ²			•	۲		. •			•	•	
3 J/cm ²				•		•	•	•	•		
2 J/cm ²					•		•	•	٠		

Abbildung D.5: Falschfarbenbilder der erzeugten Kavitäten von D263T mit einem bis zehn Laserpulsen, einer Pulswiederholfrequenzen im MHz-Regime und einer Fluenz von 2 J/cm² bis 10 J/cm². In der Farbskala stellt rot den höchsten und schwarz den niedrigsten Höhenwert da. Gleiche Farbskalierungen bei gleicher Pulsanzahl von Ereignissen pro Kavität.

	N=1	N=2	N=3	N=4	N=5	N=6	N=7	N=8	N=9	N=10	
10 J/cm ²	•	0	۲		0	0	۲		•	۲	
8 J/cm ²	•	~0	0		0	0	0	۲	۲	۲	
6 J/cm ²	•	0	۲	0		۲	۲	•	•	٠	
5 J/cm ²	•	۲	0	0	۲	۲	•	۲	•	٠	
4 J/cm ²		۲	•	۲		•	۲	۲	۲	۲	
3 J/cm ²			6	•	۲		•	•	۲	۵	
2 J/cm ²										40µт	

Abbildung D.6: Falschfarbenbilder der erzeugten Kavitäten von D263T mit einem bis zehn Laserpulsen, einer Pulswiederholfrequenzen im GHz-Regime und einer Fluenz von 2J/cm² bis 10J/cm². In der Farbskala stellt rot den höchsten und schwarz den niedrigsten Höhenwert da. Gleiche Farbskalierungen bei gleicher Pulsanzahl von Ereignissen pro Kavität.

Literaturverzeichnis

- [1] D. Ashkenasi, T. Kaszemeikat, N. Mueller, A. Lemke und H. J. Eichler, "Machining of glass and quartz using nanosecond and picosecond laser pulses", in *Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing (LAMOM) XVII*, SPIE, Bd. 8243, 2012, S. 120–126. DOI: 10.1117/12.907740.
- [2] D. Metzner, P. Lickschat, C. Kreisel, T. Lampke und S. Weißmantel, "Study on laser ablation of glass using MHz-to-GHz burst pulses", *Applied Physics A*, Jg. 128, Nr. 8, S. 637, 2022. DOI: 10.1007/s00339-022-05776-7.
- B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore und M. D. Perry, "Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics", *Phys. Rev. B*, Jg. 53, S. 1749–1761, 4 1996. DOI: 10.1103/PhysRevB.53.1749.
- B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore und M. D. Perry, "Laser-Induced Damage in Dielectrics with Nanosecond to Subpicosecond Pulses", *Phys. Rev. Lett.*, Jg. 74, S. 2248–2251, 12 1995. DOI: 10.1103/PhysRevLett.74.2248.
- [5] X. Liu, D. Du und G. Mourou, "Laser ablation and micromachining with ultrashort laser pulses", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Jg. 33, Nr. 10, S. 1706–1716, 1997. DOI: 10.1109/3.631270.
- [6] L. Jiang und H.-L. Tsai, "Plasma modeling for ultrashort pulse laser ablation of dielectrics", Journal of Applied Physics, Jg. 100, Nr. 2, 2006. DOI: 10.1063/1.2216882.
- [7] D. Giguère et al., "Laser ablation threshold dependence on pulse duration for fused silica and corneal tissues: experiments and modeling", J. Opt. Soc. Am. A, Jg. 24, Nr. 6, S. 1562–1568, 2007. DOI: 10.1364/J0SAA.24.001562.
- [8] O. Utéza et al., "Control of material removal of fused silica with single pulses of few optical cycles to sub-picosecond duration", *Applied Physics A*, Jg. 105, S. 131–141, 2011. DOI: 10.1007/s00339-011-6469-y.
- [9] N. Sanner, M. Lebugle, N. Varkentina, M. Sentis und O. Utéza, "Optimizing energy absorption for ultrashort pulse laser ablation of fused silica", in 2016 4th International Conference on Photonics, Optics and Laser Technology (PHOTOPTICS), IEEE, 2016, S. 1–5.
- [10] M. Lebugle, N. Sanner, N. Varkentina, M. Sentis und O. Utéza, "Dynamics of femtosecond laser absorption of fused silica in the ablation regime", *Journal of Applied Physics*, Jg. 116, Nr. 6, 2014. DOI: 10.1063/1.4892158.
- [11] Y. Jee, M. F. Becker und R. M. Walser, "Laser-induced damage on single-crystal metal surfaces", J. Opt. Soc. Am. B, Jg. 5, Nr. 3, S. 648–659, 1988. DOI: 10.1364/J0SAB.5. 000648.

- [12] S. zhen Xu, C. zhen Yao, W. Liao, X. dong Yuan, T. Wang und X. tao Zu, "Experimental study on 800nm femtosecond laser ablation of fused silica in air and vacuum", Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms, Jg. 385, S. 46–50, 2016, ISSN: 0168-583X. DOI: 10.1016/j.nimb.2016.06.016.
- [13] S. Karimelahi, L. Abolghasemi und P. R. Herman, "Rapid micromachining of high aspect ratio holes in fused silica glass by high repetition rate picosecond laser", *Applied Physics A*, Jg. 114, S. 91–111, 2014. DOI: 10.1007/s00339-013-8155-8.
- [14] X. Jia und X. Zhao, "Thermal accumulation at kilohertz repetition rates inside fused silica under ultrafast laser irradiation", *Opt. Lett.*, Jg. 45, Nr. 13, S. 3390–3393, 2020. DOI: 10.1364/0L.396360.
- [15] D. J. Förster, B. Jäggi, A. Michalowski und B. Neuenschwander, "Review on experimental and theoretical investigations of ultra-short pulsed laser ablation of metals with burst pulses", *Materials*, Jg. 14, Nr. 12, S. 3331, 2021. DOI: 10.3390/ma14123331.
- [16] J. Hernandez-Rueda, J. Siegel, M. Galvan-Sosa, A. R. de la Cruz und J. Solis, "Surface structuring of fused silica with asymmetric femtosecond laser pulse bursts", J. Opt. Soc. Am. B, Jg. 30, Nr. 5, S. 1352–1356, 2013. DOI: 10.1364/J0SAB.30.001352.
- S. Hendow, H. Takahashi, M. Yamaguchi und J. Xu, "Enhanced ablation using GHz-pulsed fs laser", in *Laser-based Micro-and Nanoprocessing XIV*, SPIE, Bd. 11268, 2020, S. 41–50.
 DOI: 10.1117/12.2542582.
- [18] S. Schwarz, S. Rung, C. Esen und R. Hellmann, "Enhanced ablation efficiency using GHz bursts in micromachining fused silica", *Optics Letters*, Jg. 46, Nr. 2, S. 282–285, 2021. DOI: 10.1364/0L.415959.
- [19] S. M. Remund, M. Gafner, M. V. Chaja, A. Urniezius, S. Butkus und B. Neuenschwander, "Milling applications with GHz burst: Investigations concerning the removal rate and machining quality", *Procedia CIRP*, Jg. 94, S. 850–855, 2020. DOI: 10.1016/j.procir. 2020.09.111.
- [20] L. St-Onge, M. Sabsabi und P. Cielo, "Analysis of solids using laser-induced plasma spectroscopy in double-pulse mode", *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, Jg. 53, Nr. 3, S. 407–415, 1998, ISSN: 0584-8547. DOI: 10.1016/S0584-8547(98)00080-9.
- [21] S. S. Mao, X. Mao, R. Greif und R. E. Russo, "Influence of preformed shock wave on the development of picosecond laser ablation plasma", *Journal of Applied Physics*, Jg. 89, Nr. 7, S. 4096–4098, 2001. DOI: 10.1063/1.1351870.
- [22] M. Corsi et al., "Three-dimensional analysis of laser induced plasmas in single and double pulse configuration", *Spectrochimica Acta Part B: Atomic Spectroscopy*, Jg. 59, Nr. 5, S. 723–735, 2004. DOI: 10.1016/j.sab.2004.02.001.

- [23] A. Semerok und C. Dutouquet, "Ultrashort double pulse laser ablation of metals", Thin Solid Films, Jg. 453-454, S. 501–505, 2004, Proceedings of Symposium H on Photonic Processing of Surfaces, Thin Films and Devices, of the E-MRS 2003 Spring Conference. DOI: 10.1016/j.tsf.2003.11.115.
- [24] T. Donnelly, J. G. Lunney, S. Amoruso, R. Bruzzese, X. Wang und X. Ni, "Double pulse ultrafast laser ablation of nickel in vacuum", *Journal of Applied Physics*, Jg. 106, Nr. 1, S. 013 304, 2009. DOI: 10.1063/1.3159010.
- [25] B. Neuenschwander, T. Kramer, B Lauer und B Jaeggi, "Burst mode with ps-and fspulses: Influence on the removal rate, surface quality, and heat accumulation", in *Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing (LAMOM) XX*, SPIE, Bd. 9350, 2015, S. 79–92. DOI: 10.1117/12.2076455.
- [26] B. Jäggi, D. J. Förster, R. Weber und B. Neuenschwander, "Residual heat during laser ablation of metals with bursts of ultra-short pulses", *Advanced Optical Technologies*, Jg. 7, Nr. 3, S. 175–182, 2018. DOI: 10.1515/aot-2018-0003.
- [27] D. J. Förster et al., "Shielding effects and re-deposition of material during processing of metals with bursts of ultra-short laser pulses", *Applied Surface Science*, Jg. 440, S. 926– 931, 2018. DOI: 10.1016/j.apsusc.2018.01.297.
- [28] J. König, S. Nolte und A. Tünnermann, "Plasma evolution during metal ablation with ultrashort laser pulses", Opt. Express, Jg. 13, Nr. 26, S. 10597–10607, 2005. DOI: 10. 1364/0PEX.13.010597.
- [29] B. Neuenschwander, B. Jaeggi, M. Schmid und G. Hennig, "Surface Structuring with Ultra-short Laser Pulses: Basics, Limitations and Needs for High Throughput", *Physics Procedia*, Jg. 56, S. 1047–1058, 2014, 8th International Conference on Laser Assisted Net Shape Engineering LANE 2014. DOI: 10.1016/j.phpro.2014.08.017.
- [30] C.-W. Cheng und J.-K. Chen, "Drilling of Copper Using a Dual-Pulse Femtosecond Laser", *Technologies*, Jg. 4, Nr. 1, 2016. DOI: 10.3390/technologies4010007.
- [31] G. D. Förster und L. J. Lewis, "Numerical study of double-pulse laser ablation of Al", *Phys. Rev. B*, Jg. 97, S. 224301, 22 2018. DOI: 10.1103/PhysRevB.97.224301.
- [32] J. Roth, A. Krauß, J. Lotze und H.-R. Trebin, "Simulation of laser ablation in aluminum: the effectivity of double pulses", *Applied Physics A*, Jg. 117, S. 2207–2216, 2014. DOI: 10.1007/s00339-014-8647-1.
- [33] M. E. Povarnitsyn, T. E. Itina, P. R. Levashov und K. V. Khishchenko, "Simulation of ultrashort double-pulse laser ablation", *Applied Surface Science*, Jg. 257, Nr. 12, S. 5168–5171, 2011, E-MRS 2010 Spring Meeting Symposium R. "Laser Processing and Diagnostics for Micro and Nano Applications". DOI: 10.1016/j.apsusc.2010.11.158.

- [34] S. I. Kudryashov et al., "Dynamic all-optical control in ultrashort double-pulse laser ablation", *Applied Surface Science*, Jg. 537, S. 147 940, 2021, ISSN: 0169-4332. DOI: 10. 1016/j.apsusc.2020.147940.
- [35] S. M. Eaton et al., "Transition from thermal diffusion to heat accumulation in high repetition rate femtosecond laser writing of buried optical waveguides", *Opt. Express*, Jg. 16, Nr. 13, S. 9443–9458, Juni 2008, ISSN: 1094-4087. DOI: 10.1364/0E.16.009443.
- [36] C. B. Schaffer, J. F. García und E. Mazur, "Bulk heating of transparent materials using a high-repetition-rate femtosecond laser", *Appl. Phys. A*, Jg. 76, Nr. 3, S. 351–354, März 2003, ISSN: 1432-0630. DOI: 10.1007/s00339-002-1819-4.
- [37] S. Karimelahi, L. Abolghasemi und P. R. Herman, "Rapid micromachining of high aspect ratio holes in fused silica glass by high repetition rate picosecond laser", *Appl. Phys. A*, Jg. 114, Nr. 1, S. 91–111, Jan. 2014, ISSN: 1432-0630. DOI: 10.1007/s00339-013-8155-8.
- [38] L. Shah, A. Y. Arai, S. M. Eaton und P. R. Herman, "Waveguide writing in fused silica with a femtosecond fiber laser at 522 nm and 1 MHz repetition rate", *Opt. Express*, Jg. 13, Nr. 6, S. 1999–2006, März 2005, ISSN: 1094-4087. DOI: 10.1364/0PEX.13.001999.
- [39] R. Osellame et al., "Optical properties of waveguides written by a 26 MHz stretched cavity Ti:sapphire femtosecond oscillator", *Opt. Express*, Jg. 13, Nr. 2, S. 612–620, Jan. 2005, ISSN: 1094-4087. DOI: 10.1364/OPEX.13.000612.
- P. R. Herman, A. Oettl, K. P. Chen und R. S. Marjoribanks, "Laser micromachining of transparent fused silica with 1-ps pulses and pulse trains", in *Proceedings Volume 3616, Commercial and Biomedical Applications of Ultrafast Lasers*, Bd. 3616, SPIE, Juni 1999, S. 148–155. DOI: 10.1117/12.351828.
- [41] L. Ji, Y. Hu, J. Li, W. Wang und Y. Jiang, "High-precision micro-through-hole array in quartz glass machined by infrared picosecond laser", *Appl. Phys. A*, Jg. 121, Nr. 3, S. 1163–1169, Nov. 2015, ISSN: 1432-0630. DOI: 10.1007/s00339-015-9482-8.
- [42] I. D. Abella, "Optical Double-Photon Absorption in Cesium Vapor", *Phys. Rev. Lett.*, Jg. 9, S. 453–455, 11 1962. DOI: 10.1103/PhysRevLett.9.453.
- [43] W. Kaiser und C. G. B. Garrett, "TWO-PHOTON EXCITATION IN CaF₂:Eu₂₊", DOI: 10 . 1103/PhysRevLett.7.229.
- [44] P. A. Franken, A. E. Hill, C. W. Peters und G. Weinreich, "Generation of Optical Harmonics", *Phys. Rev. Lett.*, Jg. 7, S. 118–119, 4 1961. DOI: 10.1103/PhysRevLett.7.118.
- P. Balling und J. Schou, "Femtosecond-laser ablation dynamics of dielectrics: basics and applications for thin films", *Reports on progress in physics*, Jg. 76, Nr. 3, S. 036 502, 2013.
 DOI: 10.1088/0034-4885/76/3/036502.
- [46] L. Keldysh et al., "Ionization in the field of a strong electromagnetic wave", *Sov. Phys. JETP*, Jg. 20, Nr. 5, S. 1307–1314, 1965.

- [47] P. Kennedy, "A first-order model for computation of laser-induced breakdown thresholds in ocular and aqueous media. I. Theory", *IEEE Journal of Quantum Electronics*, Jg. 31, Nr. 12, S. 2241–2249, 1995. DOI: 10.1109/3.477753.
- [48] B. Chimier et al., "Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime", *Phys. Rev. B*, Jg. 84, S. 094104, 9 2011. DOI: 10.1103/PhysRevB.84.094104.
- [49] B. H. Christensen und P. Balling, "Modeling ultrashort-pulse laser ablation of dielectric materials", *Phys. Rev. B*, Jg. 79, S. 155 424, 15 2009. DOI: 10.1103/PhysRevB.79.155424.
- [50] A. Vogel und B. A. Rockwell, "Roles of Tunneling, Multiphoton Ionization, and Cascade Ionization for Femtosecond Optical Breakdown in Aqueous Media", 2009. Adresse: https://api.semanticscholar.org/CorpusID:91421864.
- [51] A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek und G. Simon, "Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses", *Phys. Rev. B*, Jg. 61, S. 11 437–11 450, 17 2000. DOI: 10.1103/PhysRevB.61.11437.
- [52] B. Rethfeld, "Unified Model for the Free-Electron Avalanche in Laser-Irradiated Dielectrics", *Phys. Rev. Lett.*, Jg. 92, S. 187 401, 18 2004. DOI: 10.1103/PhysRevLett.92. 187401.
- [53] C. Jungreuthmayer, M. Geissler, J. Zanghellini und T. Brabec, "Microscopic Analysis of Large-Cluster Explosion in Intense Laser Fields", *Phys. Rev. Lett.*, Jg. 92, S. 133401, 13 2004. DOI: 10.1103/PhysRevLett.92.133401.
- [54] D. S. Ivanov und L. V. Zhigilei, "Combined atomistic-continuum modeling of short-pulse laser melting and disintegration of metal films", *Phys. Rev. B*, Jg. 68, S. 064 114, 6 2003.
 DOI: 10.1103/PhysRevB.68.064114.
- [55] A. Luches und A. P. Caricato, "Fundamentals and Applications of MAPLE", in Laser-Surface Interactions for New Materials Production: Tailoring Structure and Properties, A. Miotello und P. M. Ossi, Hrsg. Berlin, Heidelberg: Springer Berlin Heidelberg, 2010, S. 203–233. DOI: 10.1007/978-3-642-03307-0_9.
- [56] M. Povarnitsyn und N. Andreev, "A wide-range model for simulation of aluminum plasma produced by femtosecond laser pulses", in *Journal of Physics: Conference Series*, IOP Publishing, Bd. 774, 2016, S. 012 105. DOI: 10.1088/1742-6596/774/1/012105.
- [57] H. Wang und H. Shen, "A prediction model for ablation fluence threshold in femtosecond laser processing of fused silica", *Journal of Micro-and Nano-Manufacturing*, Jg. 5, Nr. 3, S. 031 006, 2017. DOI: 10.1115/1.4036890.
- [58] S. Guizard, A. Semerok, J. Gaudin, M. Hashida, P. Martin und F. Quéré, "Femtosecond laser ablation of transparent dielectrics: measurement and modelisation of crater profiles", *Applied Surface Science*, Jg. 186, Nr. 1, S. 364–368, 2002, PROCEEDINGS OF THE EUROPEAN MATERIALS RESEARCH SOCIETY 2001-SYMPOSIUM L "PHOTON-INDUCED SURFACE PROCESSING", ISSN: 0169-4332. DOI: 10.1016/S0169-4332(01)00681-X.

- [59] B. Rethfeld et al., "Mikroskopische Prozesse bei der Wechselwirkung von Festkörpern mit Laserpulsen im Subpikosekundenbereich", Diss., Technische Universität Braunschweig Braunschweig, Germany, 1999.
- [60] H. Fujiwara, *Spectroscopic ellipsometry: principles and applications*. John Wiley & Sons, 2007, ISBN: 978-0-470-06018-6.
- [61] A. D. Rakić, A. B. Djurišić, J. M. Elazar und M. L. Majewski, "Optical properties of metallic films for vertical-cavity optoelectronic devices", *Appl. Opt.*, Jg. 37, Nr. 22, S. 5271–5283, 1998. DOI: 10.1364/A0.37.005271.
- [62] W. Rudolph, L. Emmert, D Nguyen, C Karras, Z Sun und R Weber, "Subpicosecond laser breakdown in optical thin films", in *Pacific Rim Laser Damage 2011: Optical Materials for High Power Lasers*, SPIE, Bd. 8206, 2012, S. 63–70. DOI: 10.1117/12.911285.
- [63] C. S. Lee, N. Koumvakalis und M. Bass, "Spot-size dependence of laser-induced damage to diamond-turned Cu mirrors", *Appl. Phys. Lett.*, Jg. 41, Nr. 7, S. 625–627, Okt. 1982, ISSN: 0003-6951. DOI: 10.1063/1.93629.
- [64] F. Di Niso, C. Gaudiuso, T. Sibillano, F. P. Mezzapesa, A. Ancona und P. M. Lugarà, "Role of heat accumulation on the incubation effect in multi-shot laser ablation of stainless steel at high repetition rates", *Opt. Express*, Jg. 22, Nr. 10, S. 12200–12210, Mai 2014, ISSN: 1094-4087. DOI: 10.1364/0E.22.012200.
- [65] D. Ashkenasi, M. Lorenz, R. Stoian und A. Rosenfeld, "Surface damage threshold and structuring of dielectrics using femtosecond laser pulses: the role of incubation", *Appl. Surf. Sci.*, Jg. 150, Nr. 1, S. 101–106, Aug. 1999, ISSN: 0169-4332. DOI: 10.1016/S0169-4332(99)00228-7.
- [66] J. Frenkel, "Über die Wärmebewegung in festen und flüssigen Körpern", Z. Phys., Jg. 35,
 Nr. 8, S. 652–669, Aug. 1926. DOI: 10.1007/BF01379812.
- [67] Corning 7980 high purity fused silica, [Online; accessed 20. Sep. 2023], Sep. 2023. Adresse: https://www.corning.com/media/worldwide/csm/documents/HPFS_Product_ Brochure_All_Grades_2015_07_21.pdf.
- [68] SCHOTT D 263® downloads, [Online; accessed 20. Sep. 2023], Sep. 2023. Adresse: https: //www.schott.com/en-id/products/d-263-p1000318/downloads.
- [69] J.-M. Liu, "Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes", Optics letters, Jg. 7, Nr. 5, S. 196–198, 1982. DOI: 10.1364/0L.7.000196.