

Die Bearbeitung von Gläsern ist für fokussierte, ultrakurz gepulste Laserstrahlung durch hinreichend große Intensitäten für Wellenlängen möglich, für die das Glas intrinsisch transparent ist. Durch nicht-lineare Ionisationsmechanismen wird eine Absorption der Laserstrahlung realisiert, sodass bei einer entsprechend großen Energiedeposition eine Materialmodifikation resultiert.

Im Rahmen dieser Dissertation werden Zusammenhänge der Energiedeposition von ultrakurz gepulster Laserstrahlung im Volumen von Gläsern mit der räumlichen und zeitlichen Intensitätsverteilung erarbeitet, um eine vergrößerte Energiedeposition bei einer maximalen räumlichen Lokalisierung zu realisieren.

Zunächst wird ein grundlegendes Verständnis des Zusammenhangs der zeitlichen Intensitätsverteilung mit den Ionisations- und Wechselwirkungsmechanismen erarbeitet. Dabei werden Intensitätsregime ermittelt, für die die Erzeugung einer freien Elektronendichte primär durch Photo- bzw. Avalanche-Ionisation stattfindet. Die Ionisationsmechanismen wirken sich maßgeblich auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung aus, die ein zentrales Maß für die Energiedeposition darstellt. Im nächsten Schritt wird die Energiedeposition im Glasvolumen für ein Gauß-Profil erfasst, indem die Dynamik einer erzeugten freien Elektronendichte zeitaufgelöst analysiert wird. Zur Quantifizierung der Energiedeposition werden die sogenannte Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition eingeführt. Die Amplitude entspricht dabei der räumlich integrierten freien Elektronendichte und die Lokalisierung der Ausdehnung der freien Elektronendichte in Bezug auf die räumliche Intensitätsverteilung. Eine Vergrößerung der Amplitude der Energiedeposition durch die Verwendung höherer Intensitäten der Laserstrahlung bedingt dabei für ein Gauß-Profil stets eine Verkleinerung der Lokalisierung. Für ein näherungsweise unabhängiges Einstellen von Amplitude und Lokalisierung wird durch räumliche Strahlformung ein Bessel-Profil erzeugt. In Abhängigkeit der Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung werden charakteristische Intensitätsregime der Energiedeposition identifiziert.

Durch ein Anpassen der Puls-Plasma-Wechselwirkung wird eine homogene Energiedeposition mit transversaler Ausdehnung im Bereich $1 \mu\text{m}$ und longitudinaler Ausdehnung im Bereich $700 \mu\text{m}$ demonstriert. Durch eine gezielt eingestellte homogene Energiedeposition wird ein Trennprozess für Gläser realisiert, mit dem Schnittgeschwindigkeiten in der Größenordnung 10 mm/s möglich sind.



**Energiedeposition von ultrakurz gepulster
Laserstrahlung in Gläsern**

**Energy Deposition of Ultrashort Pulsed Laser
Radiation in Glasses**

Von der Fakultät für Maschinenwesen
der Rheinisch-Westfälischen Technischen Hochschule Aachen
zur Erlangung des akademischen Grades eines
D o k t o r s d e r N a t u r w i s s e n s c h a f t e n
genehmigte Dissertation

vorgelegt von

Christian Kalupka

Berichter:

Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Reinhart Poprawe

Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Stefan Nolte

Tag der mündlichen Prüfung: 18. Februar 2019

Diese Dissertation ist auf den Internetseiten der Universitätsbibliothek online verfügbar.

ERGEBNISSE AUS DER LASERTECHNIK

Christian Kalupka

Energiedeposition von ultrakurz gepulster
Laserstrahlung in Gläsern

Bibliografische Information der Deutschen Nationalbibliothek

Die Deutsche Nationalbibliothek verzeichnet diese Publikation in der Deutschen Nationalbibliografie; detaillierte bibliografische Daten sind im Internet über <https://portal.dnb.de> abrufbar.

Christian Kalupka:

Energiedeposition von ultrakurz gepulster Laserstrahlung in Gläsern

1. Auflage, 2019

Gedruckt auf holz- und säurefreiem Papier, 100% chlorfrei gebleicht.

Apprimus Verlag, Aachen, 2019

Wissenschaftsverlag des Instituts für Industriekommunikation und Fachmedien
an der RWTH Aachen

Steinbachstr. 25, 52074 Aachen

Internet: www.apprimus-verlag.de, E-Mail: info@apprimus-verlag.de

Printed in Germany

ISBN 978-3-86359-713-9

D 82 (Diss. RWTH Aachen University, 2019)

Kurzfassung

Die Bearbeitung von Gläsern ist für die Verwendung fokussierter ultrakurz gepulster Laserstrahlung durch hinreichend große Intensitäten für Wellenlängen möglich, für die das Glas intrinsisch transparent ist. Durch nicht-lineare Ionisationsmechanismen wird eine Absorption der Laserstrahlung realisiert, sodass bei einer entsprechend großen Energiedeposition eine permanente Materialmodifikation resultiert. Die räumliche Energiedeposition der Laserstrahlung wird maßgeblich von nicht-linearen und linearen Wechselwirkungs- und Propagationseffekten beeinflusst, die Gegenstand aktueller Forschung sind.

Im Rahmen dieser Dissertation werden grundlegende Zusammenhänge der Energiedeposition von ultrakurz gepulster Laserstrahlung im Volumen von Gläsern mit der verwendeten räumlichen und zeitlichen Intensitätsverteilung erarbeitet, um eine Vergrößerung der Energiedeposition bei einer möglichst maximalen räumlichen Lokalisierung zu realisieren.

Zunächst wird ein grundlegendes Verständnis des Zusammenhangs der zeitlichen Intensitätsverteilung, die durch die Pulsdauer und die Spitzenintensität charakterisiert ist, mit den zugrundeliegenden Ionisations- und Wechselwirkungsmechanismen erarbeitet. Dabei werden in Abhängigkeit der Pulsdauer Intensitätsregime ermittelt, für die die Erzeugung einer freien Elektronendichte primär durch Photoionisation bzw. Avalanche-Ionisation stattfindet. Die Ionisationsmechanismen Photo- bzw. Avalanche-Ionisation wirken sich maßgeblich auf die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung aus, welche ein zentrales Maß für die Energiedeposition darstellt.

Im nächsten Schritt wird die räumliche Energiedeposition von ultrakurz gepulster Laserstrahlung im Volumen von Gläsern für die Verwendung eines räumlichen Gauß-Profiles erfasst, indem die Dynamik einer erzeugten freien Elektronendichte zeitaufgelöst analysiert wird. Zur Quantifizierung der Energiedeposition werden die sogenannte Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition eingeführt. Die Amplitude entspricht dabei der räumlich integrierten freien Elektronendichte und die Lokalisierung der Ausdehnung der ortsabhängigen freien Elektronendichte in Bezug auf die räumliche Intensitätsverteilung. Eine Vergrößerung der Amplitude der Energiedeposition durch die Verwendung höherer Intensitäten der Laserstrahlung bedingt dabei für ein Gauß-Profil aufgrund der Kaustik stets eine Verkleinerung der Lokalisierung der Energiedeposition.

Für ein näherungsweise unabhängiges Einstellen von Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition in Gläsern, wird durch räumliche Strahlformung ein sogenanntes nicht-beugendes Bessel-Profil erzeugt. Dabei werden in Abhängigkeit der Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung charakteristische Intensitätsregime der Energiedeposition identifiziert. Durch ein gezieltes Anpassen der Puls-Plasma-Wechselwirkung wird eine homogene Energiedeposition mit einer transversalen Ausdehnung im Bereich $\sim 1 \mu\text{m}$ und einer longitudinalen Ausdehnung im Bereich $\sim 700 \mu\text{m}$ demonstriert.

Abschließend wird auf Grundlage des erarbeiteten Prozessverständnisses durch eine gezielt eingestellte homogene räumliche Energiedeposition im Glasvolumen ein Trennprozess für Gläser realisiert, mit dem Schnittgeschwindigkeiten in der Größenordnung $\sim 10 \text{ mm/s}$ möglich sind.

Abstract

Processing glasses with laser radiation can be achieved by the application of high intensities for focused ultrashort pulsed laser radiation even for wavelengths for which the glass is intrinsically transparent. Absorption of the laser pulse is realized by nonlinear ionization mechanisms, which subsequently can lead to a permanent modification of the glass for a specific local energy deposition. The spatial distribution of the energy deposition is strongly influenced by nonlinear and linear interaction and propagation effects, which are subject of current research.

In this dissertation fundamental correlations of the energy deposition of ultrashort pulsed laser radiation with the spatial and temporal intensity distribution of the laser radiation are elaborated to increase the energy deposition while the spatial localization is as high as possible.

Initially, a fundamental understanding of the correlation of the temporal intensity distribution, which is characterized by the pulse duration and the peak intensity, with the underlying ionization and interaction processes is developed. In dependency on the used pulse duration, intensity regimes are identified for which a dense free electron density is mainly induced due to Photo and Avalanche ionization, respectively. The underlying ionization mechanisms Photo and Avalanche ionization have a direct impact on the pulse-plasma-interaction, which is a central measure of the energy deposition.

In the next step the spatial energy deposition of ultrashort pulsed laser radiation in the volume of glass is evaluated for the use of a Gaussian intensity profile by time-resolved investigations of the dynamics of the induced free electron density. To quantify the energy deposition, the amplitude and the localization of the energy deposition are introduced. The amplitude corresponds to the spatially integrated free electron density and the localization is correlated to the spatial dimension of the free electron density with regard to the spatial intensity distribution. An increase of the amplitude of the energy deposition by an increase of the applied intensity leads to a decrease of the localization due to the caustic of the Gaussian beam profile.

For a nearly independent adjustment of amplitude and localization of the energy deposition in glasses, a non-diffracting Bessel beam profile is generated by spatial beam shaping. In dependency on the pulse-plasma-interaction, different intensity regimes are identified. By an precise adjustment of the pulse-plasma-interaction, a homogenous energy deposition is achieved with a transverse dimension $\sim 1 \mu\text{m}$ and a longitudinal dimension $\sim 700 \mu\text{m}$.

Finally, on the basis of the developed fundamental understanding, a cutting process for glasses is realized by a precisely controlled and homogenous energy deposition in the glass volume. With this process, cutting speeds in the order of $\sim 10 \text{mm/s}$ can be achieved.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	1
1.1	Zielsetzung	2
1.2	Vorgehensweise	3
2	Grundlagen und Stand der Forschung	5
2.1	Ionisationsmechanismen in Dielektrika	5
2.1.1	Photoionisation	6
2.1.2	Stoß- und Avalanche-Ionisation	8
2.2	Ionisations- und Relaxationsdynamik	11
2.2.1	Ratengleichung	11
2.2.2	Abhängigkeit von Pulsdauer und Intensität	14
2.3	Puls-Plasma-Wechselwirkung	15
2.4	Modifikationen und zugrundeliegende Mechanismen	18
2.4.1	Schmelzen und Verdampfen	18
2.4.2	Modifikationen im Volumen	18
2.4.3	Schwelle für die Erzeugung von Modifikationen	20
2.4.4	Abhängigkeit von Pulsdauer und Intensität	20
3	Quantifizierung der Puls-Plasma-Wechselwirkung	23
3.1	Experimentelle Messung der Transmission	24
3.1.1	Strahlquelle, Versuchsaufbau und Systemkomponenten	24
3.1.2	Experimentelles Vorgehen und Auswertungsmethoden	25
3.1.3	Ergebnisse	26
3.2	Simulation der Transmission der Laserstrahlung	29
3.2.1	Vorgehen und verwendete Parameter	29
3.2.2	Bestimmung der Absorptionstiefe	32
3.2.3	Erfassung der dominanten Photoionisationsmechanismen	33
3.2.4	Rolle der Avalanche-Ionisation	34
3.2.5	Gültigkeitsbereich elektronisches Modell	38
3.3	Zusammenfassung	39
4	Räumliche Energiedeposition im Glasvolumen mit einem Gauß-Profil	43
4.1	Experimentelle Methoden, Vorgehen und Auswertungsmethoden	44
4.1.1	Pump-Probe-Schattenfotografie	44
4.1.2	Vorgehen und Auswertungsmethoden	47
4.2	Energiedeposition mit minimaler Puls-Plasma-Wechselwirkung	49
4.2.1	Dynamik der Energiedeposition und Identifikation von Zeitregimen	49
4.2.2	Nicht-lineare Propagationseffekte: Entstehung von Filamenten	52
4.2.3	Intensitätsregime der räumlichen Energiedeposition	53
4.2.4	Amplitude und Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition	54
4.2.5	Zusammenfassung	57

4.3	Energiedeposition für eine Vergrößerung der Puls-Plasma-Wechselwirkung	58
4.3.1	Dynamik der Energiedeposition und Identifikation von Zeitregimen	58
4.3.2	Energiedeposition für eine Variation der Puls-Plasma-Wechselwirkung	61
4.3.3	Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition	62
4.3.4	Zusammenfassung	63
5	Räumliche Energiedeposition mit einem Bessel-Profil	65
5.1	Räumliche Strahlformung: Erzeugung eines Bessel-Profiles	66
5.1.1	Prinzip, charakteristische Eigenschaften und verwendetes Optiksistem	66
5.1.2	Charakterisierung des räumlichen Bessel-Profiles	68
5.1.3	Experimentelles Vorgehen	70
5.2	Energiedeposition mit minimaler Puls-Plasma-Wechselwirkung	71
5.2.1	Dynamik der Energiedeposition und Identifikation von Zeitskalen	71
5.2.2	Identifikation von Intensitätsregimen	73
5.2.3	Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition	75
5.3	Energiedeposition für Vergrößerung der Puls-Plasma-Wechselwirkung	77
5.3.1	Dynamik der Energiedeposition und charakteristische Zeitskalen	77
5.3.2	Identifikation von Intensitätsregimen	79
5.3.3	Quantifizierung der Plasmadefokussierung	80
5.3.4	Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition	86
5.4	Korrelation Energiedeposition und permanente Materialmodifikation	88
5.4.1	Konische Energiedeposition und Filamente: Farbzentren und Brechungsindexmodifikation	88
5.4.2	Plasmadefokussierung: Modifikation und Risse	89
5.4.3	Starke Puls-Plasma-Wechselwirkung: Punktförmige Modifikation	91
5.4.4	Zusammenfassung	92
6	Realisierung eines Trennprozesses für Gläser	95
6.1	Prinzip und prozessrelevante Parameter	96
6.1.1	Prinzip des Trennprozesses	96
6.1.2	Erfassung und Diskussion der prozessrelevanten Parameter	97
6.2	Verwendete Systemkomponenten und experimentelles Vorgehen	98
6.2.1	Laserstrahlquelle	98
6.2.2	Optiksistem und Charakterisierung des Bessel-Profiles	99
6.2.3	Prozessstrategie	100
6.3	Prozessfenster für die Erzeugung definierter Volumenmodifikationen	101
6.3.1	Einfluss der Positionierung des Bessel-Profiles auf die Modifikation	102
6.3.2	Einfluss Wärmeakkumulation: Wahl des zeitlichen Pulsabstands	103
6.3.3	Einfluss Inkubation: Wahl der Anzahl der Pulse	105
6.3.4	Ausprägung der Modifikation: Wahl der Pulsenergie	105
6.3.5	Zusammenfassung	107
6.4	Demonstration des Trennprozesses	108
7	Zusammenfassung und Ausblick	113
	Literaturverzeichnis	117

Symbolverzeichnis	129
A Anhang	133
A.1 Ergänzende Beschreibung der Photoionisationsmechanismen	133
A.2 Verwendetes Glas	133
A.3 Literaturwerte für die Elektronstoßzeit	134
A.4 Literaturwerte für die Rekombination	135
A.5 Lasersystem Libra	135
A.6 Bestimmung Fokusradius für Messungen der Transmission	135
A.7 Messung transmittierte Energie mithilfe der Ulbrichtkugel	136
A.8 Ermittlung Bandlücke	137
A.9 Literaturwerte für die effektive Elektronenmasse	138
A.10 Literaturwerte für die Valenzbandelektronendichte	138
A.11 Bestimmung der Absorptionstiefe	138
A.12 Erzeugung eines Luftplasmas	140
A.13 Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition für ein Gauß-Profil . . .	140

1 Einleitung

Im Zeitalter der Digitalisierung halten spätestens seit der Kommerzialisierung des Smartphones Gläser in allen Lebensbereichen wachsenden Einzug. Neben dem Smartphone-Markt im Privatbereich werden Gläser im industriellen Sektor beispielsweise als Isolierungsmaterial für komplexe Chipsysteme, integrierte Strahlführungskomponenten und im Bereich der Medizintechnik eingesetzt. Dabei wächst die Notwendigkeit der Verwendung von hoch präzisen und effektiven Bearbeitungsverfahren zur Verkleinerung von einzubringenden Strukturgrößen, die für spezifische Anwendungen realisiert werden müssen. Als Beispiel bieten lithografische Verfahren prinzipiell die Möglichkeit Strukturgrößen im Bereich von wenigen Nanometern herzustellen, sind allerdings komplex sowie zeit- und kostenintensiv.

Die Verwendung von ultrakurz gepulster Laserstrahlung mit einer Pulsdauer kleiner als zehn Pikosekunden stellt hierbei prinzipiell eine Möglichkeit zur kontaktlosen und flexiblen Bearbeitungstechnologie für Gläser dar, mit der Strukturgrößen im Mikrometerbereich erzielt werden können. Durch die lokalen großen Intensitäten fokussierter ultrakurz gepulster Laserstrahlung kann über nicht-lineare Ionisations- und Absorptionsprozesse eine Materialmodifikation sowie ein Abtrag von Glas realisiert werden, die für die verwendete Wellenlänge der Laserstrahlung typischerweise transparent sind. Je nach Wahl der Fokussierung der Laserstrahlung werden die notwendigen Intensitäten ausschließlich im Fokusbereich erreicht, sodass eine selektive Modifikation des Glasvolumens ermöglicht wird.

Durch die großen Intensitäten treten nicht-lineare Ionisations- und Absorptionsprozesse sowie Propagationsphänomene der Laserstrahlung auf, deren Zusammenspiel und Abhängigkeit von den Material- und Prozessparametern Gegenstand aktueller Forschung sind. So können je nach Fokussierungsbedingungen aufgrund von nicht-linearer Selbstfokussierung hinreichend große Intensitäten auch außerhalb des Fokusbereichs erreicht werden, sodass eine Änderung der räumlichen Absorption der Laserstrahlung und damit der Energiedeposition resultiert. Durch die Erzeugung von freien Elektronen auf einer Zeitskala, die der Pulsdauer der Laserstrahlung entspricht, werden die optischen Eigenschaften des Glases transient verändert und eine dynamische Wechselwirkung mit der Laserstrahlung resultiert. Neben den materialspezifischen Eigenschaften wie Brechungsindex und Bandlücke hat die zeitliche Intensitätsverteilung der Laserstrahlung, die durch die Spitzenintensität und die Pulsdauer charakterisiert ist, einen signifikanten Einfluss auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung.

Neben der zeitlichen Intensitätsverteilung ist die Energiedeposition im Volumen von Gläsern mit der räumlichen Intensitätsverteilung korreliert. Für die Verwendung eines konventionellen Gauß-Profiles ist die Energiedeposition direkt mit der Kaustik der Laserstrahlung verknüpft. Beispielsweise kann je nach Fokussierung und Intensität eine Absorption der Laserstrahlung räumlich vor dem Fokusbereich erzielt werden, sodass im Fokusbereich die Intensität zu klein für eine hinreichende Energiedeposition ist. Für eine

Vergrößerung der Intensität können weitere Effekte wie beispielsweise die Entstehung von Filamenten oder eine Verstärkung von Abschirmungseffekten auftreten. Ein unabhängiges Einstellen der Energiedeposition und deren räumliche Lokalisierung ist für ein konventionelles Gauß-Profil folglich nicht möglich.

1.1 Zielsetzung

Für eine kontrollierte Erzeugung von präzisen Modifikationen in der Größenordnung von wenigen Mikrometern im Volumen von Gläsern, muss die Abhängigkeit der Energiedeposition der Laserstrahlung im Medium von den Prozessparametern umfassend verstanden sein und beherrscht werden können. Durch eine effiziente und hoch lokalisierte Energiedeposition können dabei neue Anwendungsfelder der Mikrostrukturierung von Gläsern mittels ultrakurz gepulster Laserstrahlung adressiert werden. Das zentrale Ziel dieser Arbeit ist die Vergrößerung der Energiedeposition im Volumen von Glas bei einer möglichst maximalen räumlichen Lokalisierung, siehe Abb. 1.1. Die Energiedeposition ist direkt mit der laserinduzierten freien Elektronendichte im Glas korreliert, die experimentell mithilfe von in-situ Diagnostik ermittelt werden kann. Aufgrund dessen wird im Rahmen dieser Arbeit die freie Elektronendichte als zentraler Messwert herangezogen. Zum einen korrespondiert dabei die über das Glasvolumen integrierte freie Elektronendichte zur insgesamt deponierten Energie, die im Verlauf dieser Arbeit als Amplitude der Energiedeposition bezeichnet wird. Zum anderen entspricht die Ausdehnung der ortsabhängigen freien Elektronendichte in Bezug zur räumlichen Intensitätsverteilung der sogenannten Lokalisierung der Energiedeposition. Zur Adaption der Energiedeposition soll mithilfe von räumlicher Strahlformung ein sogenanntes nicht-beugendes Bessel-Profil erzeugt werden, für das die longitudinale Ausdehnung der Intensitätsverteilung unabhängig von der transversalen Ausdehnung eingestellt werden kann. Aufgrund dessen besteht mit einem Bessel-Profil im Vergleich zu einem konventionellen Gauß-Profil prinzipiell die Möglichkeit einer flexiblen, kontrollierbaren Energiedeposition, welche als ein Schwerpunkt in dieser Arbeit evaluiert werden soll.

Für eine Kontrolle der Energiedeposition im Volumen von Gläsern spielt die Wechselwirkung zwischen Laserstrahlung und der erzeugten transienten freien Elektronendichte eine zentrale Rolle. Aufgrund dessen soll zunächst ein fundamentales Verständnis der Ionisations- und Absorptionsprozesse sowie der Puls-Plasma-Wechselwirkung erarbeitet werden. Zur Erlangung des Verständnisses sollen drei zentrale Forschungsfragen beantwortet werden:

- Was sind die dominanten Ionisationsmechanismen in Gläsern in Abhängigkeit der verwendeten Pulsdauer und Intensität der Laserstrahlung?
- Wie wirken sich die Ionisationsmechanismen auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung aus?
- Welchen Einfluss hat die Puls-Plasma-Wechselwirkung auf die räumliche Energiedeposition?

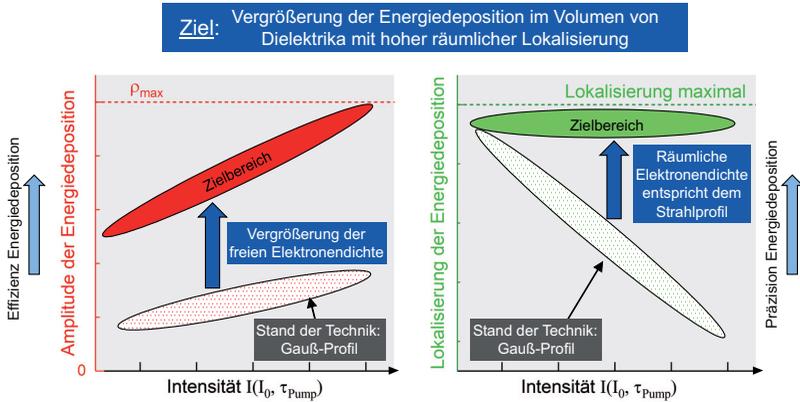


Abbildung 1.1 – Schematische Darstellung der Zielsetzung in Bezug zum Stand der Technik für die Energiedeposition im Volumen von Gläsern. Zur Quantifizierung der Energiedeposition werden die Größen Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition im Rahmen dieser Arbeit eingeführt, die zum einen mit der räumlich integrierten freien Elektronendichte und zum anderen der ortsabhängigen Ausdehnung der freien Elektronendichte in Bezug zur Intensitätsverteilung verknüpft sind.

1.2 Vorgehensweise

Der Aufbau dieser Arbeit sowie die Vorgehensweise sind in Abb. 1.2 schematisch dargestellt. In Kapitel 2 wird der Stand der Forschung der Wechselwirkung ultrakurz gepulster Laserstrahlung mit transparenten Dielektrika dargestellt. Dabei werden zunächst die fundamentalen Ionisationsprozesse vorgestellt und der aktuelle Stand der Forschung zur Rolle und Einfluss der Ionisationsmechanismen auf die Wechselwirkung mit der Laserstrahlung diskutiert. Anschließend werden eine Beschreibung der Ionisationsdynamik von Elektronen in Dielektrika sowie eine Modellvorstellung für die Wechselwirkung von Laserstrahlung mit der angeregten freien Elektronendichte vorgestellt. Daraufhin werden die dominanten Schädigungsmechanismen und -phänomene für die Bearbeitung von Dielektrika mittels ultrakurz gepulster Laserstrahlung diskutiert. In Kapitel 2 wird insgesamt insbesondere die Abhängigkeit der vorgestellten Prozesse und Phänomene von der Wahl der Intensität und der Pulsdauer evaluiert.

Auf Grundlage des Stands der Forschung wird in Kapitel 3 mithilfe von experimentellen Messungen und Simulationen die Puls-Plasma-Wechselwirkung quantifiziert, indem die zugrundeliegenden Ionisations- und Wechselwirkungsmechanismen in Abhängigkeit der Prozessparameter identifiziert werden.

In Kapitel 4 wird die räumliche Energiedeposition von fokussierter ultrakurz gepulster Laserstrahlung im Glasvolumen für die Verwendung eines räumlichen Gauß-Profiles analysiert. Dazu werden zeitaufgelöste Messungen mit Auflösung < 100 fs auf einer Pikosekundenzeitskala durchgeführt. Insbesondere soll ein Verständnis für die Energiedeposition in Abhängigkeit der Prozessparameter bzw. der in Kapitel 3 quantifizierten Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung entwickelt werden. Dadurch soll für die verwendete Strahl-

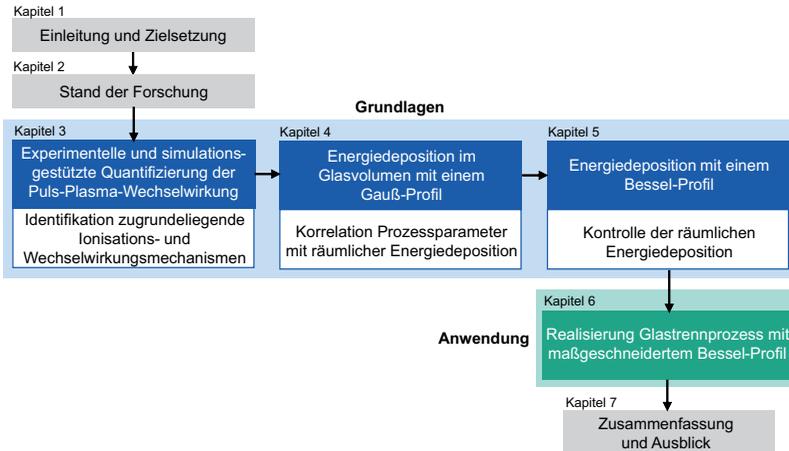


Abbildung 1.2 – Schematische Darstellung des Aufbaus und der Vorgehensweise der Arbeit.

form eines Gauß-Profiles die Möglichkeit einer effizienten und lokalisierten Energiedeposition durch Einstellen der Puls-Plasma-Wechselwirkung evaluiert werden.

In Kapitel 5 wird die räumliche Energiedeposition durch Anpassung der räumlichen Strahlform für die Verwendung eines Bessel-Profiles analysiert. In Abhängigkeit der verwendeten Prozessparameter bzw. Puls-Plasma-Wechselwirkung wird dabei die Effizienz sowie Lokalisierung der Energiedeposition in Hinblick auf eine möglichst umfassende Kontrolle der räumlichen Energiedeposition durch gezieltes Einstellen der Prozessparameter untersucht.

Aufbauend auf den gewonnenen Ergebnissen aus den Kapiteln 3 bis 5 wird in Kapitel 6 ein Gastrennprozess für die Verwendung eines maßgeschneiderten Bessel-Profiles realisiert. Dabei wird insbesondere eine Prozesslandkarte für die auftretenden Wechselwirkungseffekten und Modifikationen in Abhängigkeit der verwendeten Prozessparameter erarbeitet und der Gastrennprozess demonstriert.

Abschließend wird in Kapitel 7 die zentralen Ergebnisse dieser Arbeit zusammengefasst sowie ein Ausblick auf weitere mögliche grundlagen- und anwendungsorientierte Fragestellungen gegeben.

2 Grundlagen und Stand der Forschung

In diesem Kapitel werden die Grundlagen zum Verständnis und der Kontrolle der Energiedeposition von ultrakurz gepulster Laserstrahlung in Dielektrika sowie der Stand der Forschung zu den zugrundeliegenden Mechanismen und Prozessen dargestellt. Dazu werden in Abschnitt 2.1 die relevanten Ionisationsmechanismen Photoionisation sowie Stoß- und Avalanche-Ionisation vorgestellt und deren mathematische Beschreibungen auf Basis bestehender Modelle aus dem Stand der Forschung präsentiert. In Abschnitt 2.2 wird die Dynamik der Ionisationsmechanismen und die Relaxation einer freien Elektronendichte in Form einer Ratengleichung formuliert und die Abhängigkeit der Dynamik von den Prozessparametern Pulsdauer und Intensität diskutiert. Auf Grundlage der Ionisations- und Relaxationsdynamiken wird in Abschnitt 2.3 die Puls-Plasma-Wechselwirkung beschrieben. In Abschnitt 2.4 wird auf die infolge der Energiedeposition induzierten Modifikationsprozesse für Dielektrika eingegangen und insbesondere deren ursächliche Mechanismen diskutiert sowie der Stand der Forschung zur Abhängigkeit der Modifikationen von der Pulsdauer und Intensität dargestellt.

2.1 Ionisationsmechanismen in Dielektrika

Für die Erzeugung einer Materialmodifikation muss im Allgemeinen eine hinreichend große Energie der Laserstrahlung von den Elektronen des Materials absorbiert werden, die anschließend beispielsweise an das Phononensystem über Elektron-Phonon-Stöße transferiert werden kann [1]. Dielektrika sind charakterisiert durch ein unbesetztes Leitungsband und einer energetischen Bandlücke im Bereich $E_{\text{Gap}} \sim 3 \text{ eV}$ oder größer zwischen Valenz- und Leitungsband, wobei die Fermienergie zwischen Valenzbandmaximum und Leitungsbandminimum liegt. Aufgrund dessen ist eine lineare Absorption von Photonen in einem Wellenlängenbereich $\lambda > 400 \text{ nm}$ und eine daraus resultierende Erzeugung einer hinreichend großen freien Elektronendichte nicht möglich, da die Photonenenergie $E_\gamma = hc_0/\lambda$ kleiner als die Bandlücke E_{Gap} ist. Eine Ionisierung der Valenzelektronen ist für Intensitäten in der Größenordnung $I_0 > 10^{13} \text{ W/cm}^2$ durch nicht-lineare Absorptionsprozesse möglich [2]. Die Intensitäten können durch Fokussierung von ultrakurz gepulster Laserstrahlung erreicht werden. Für zeitlich gaußförmige Laserpulse, die typischerweise durch modengekoppelte Lasersysteme emittiert werden, ist die zeitliche Intensitätsverteilung durch Gleichung 2.1 beschrieben.

$$I(t) = I_0 \exp\left(-4 \ln(2) \frac{t^2}{\tau_{\text{Pump}}^2}\right) = \frac{0,94 \cdot E_P}{\pi w_0^2 \tau_{\text{Pump}}} \exp\left(-4 \ln(2) \frac{t^2}{\tau_{\text{Pump}}^2}\right) \quad (2.1)$$

Hierbei bezeichnet I_0 die Spitzenintensität, E_P die Pulsenergie, w_0 der transversale Radius der Laserstrahlung und τ_{Pump} die Pulsdauer der Laserstrahlung. Somit ist die zeitliche Intensitätsverteilung insbesondere durch die Spitzenintensität I_0 und der Pulsdauer τ_{Pump} charakterisiert, die immer als Kombination betrachtet werden müssen. In diesem Kapitel wird gezeigt, dass beispielsweise die dominanten Ionisationsprozesse für eine konstante Intensität aber für unterschiedliche Pulsdauern (beispielsweise 100 fs und 1 ps) unterschiedlich sind, da eine bestimmende physikalische Größe die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung ist, welche sowohl durch die Spitzenintensität als auch durch die Pulsdauer eingestellt werden kann.

2.1.1 Photoionisation

Als Photoionisation (PI) wird die direkte Ionisierung von Valenzelektronen durch die Wirkung intensiver Laserstrahlung bezeichnet. Ein Ionisationsmechanismus ist die Multiphotonenionisation (MPI), die durch eine nahezu simultane Absorption mehrerer Photonen γ durch ein Valenzelektron beschreibt, siehe Abb. 2.1 (a). Damit der Prozess stattfinden kann, müssen mindestens so viele Photonen N_γ absorbiert werden, dass die Summe der Photonenenergien $N_\gamma \hbar \omega$ größer oder gleich der energetischen Bandlücke E_{Gap} ist. [2, 3]

Neben der MPI kann für große Intensitäten die sogenannte Tunnelionisation (TI) von Valenzelektronen auftreten. Durch die große elektrische Feldstärke der Laserstrahlung tritt eine Verzerrung des elektrischen Potentials der Atome auf, was schematisch in Abb. 2.1 (b) dargestellt ist. Dadurch vergrößert sich für ein Valenzelektron die Wahrscheinlichkeit, die Potentialbarriere durch den quantenmechanischen Tunneleffekt zu überwinden. [3]

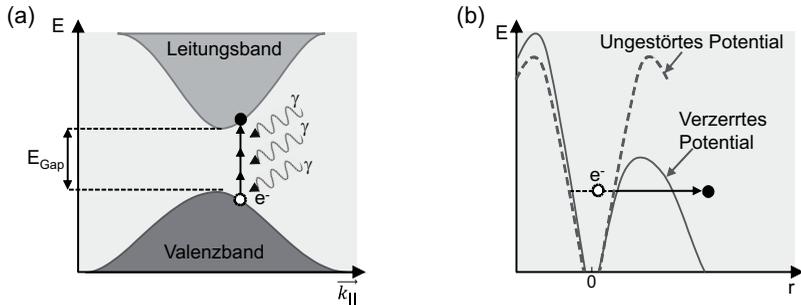


Abbildung 2.1 – Schematische Darstellung der nicht-linearen Photoionisationsmechanismen in Dielektrika. (a) Multiphotonenabsorption durch ein Valenzelektron, hier exemplarisch eine Absorption von drei Photonen. (b) Tunnelionisation durch die Verzerrung des atomaren Potentials, welche eine größere Tunnelwahrscheinlichkeit für die Ionisierung eines Valenzelektrons bewirkt. Nachempfunden aus [2].

Eine mathematische Beschreibung der Photoionisationsmechanismen MPI und TI ist mithilfe der von Keldysh entwickelten theoretischen Formulierung für die Photoionisationsrate σ_{PI} möglich [4]. Die Änderung der Elektronendichte im Leitungsband $d\rho/dt$ mit der Photoionisationsrate σ_{PI} wird mit von Gleichung 2.2 berechnet.

$$\begin{aligned} \left. \frac{d\rho}{dt} \right|_{PI} \equiv \sigma_{PI} = & \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{\sqrt{1 + \gamma_K^2} m_e \omega}{\gamma_K \hbar} \right)^{3/2} \cdot Q(\gamma_K, E_{\text{Gap}}^{\text{eff}}) \\ & \cdot \exp \left(-\pi N_\gamma^{\text{eff}} \left[\left\{ K \left(\frac{\gamma_K^2}{1 + \gamma_K^2} \right) - J \left(\frac{\gamma_K^2}{1 + \gamma_K^2} \right) \right\} / J \left(\frac{1}{1 + \gamma_K^2} \right) \right] \right) \end{aligned} \quad (2.2)$$

Hierbei bezeichnet ω die Kreisfrequenz der Laserstrahlung, m_e die Elektronenmasse, \hbar das reduzierte Planck'sche Wirkungsquantum, γ_K der sogenannte Keldysh-Parameter, $E_{\text{Gap}}^{\text{eff}}$ die effektive elektronische Bandlücke für das durch die intensive Laserstrahlung verzerrte Atompotential (siehe Gleichung A.1 im Anhang), N_γ^{eff} die notwendige Anzahl an Photonen für eine Ionisierung der Valenzelektronen durch MPI für die effektive Bandlücke $E_{\text{Gap}}^{\text{eff}}$, sowie Q , K und J jeweils Terme, die im Anhang in den Gleichungen A.2 und A.3 beschrieben sind. Die zeitabhängige Intensität $I(t)$ der Laserstrahlung ist explizit im Keldysh-Parameter γ_K enthalten, der mithilfe von Gleichung berechnet wird.

$$\gamma_K = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{c_0 \epsilon_0 n_0 m^* E_{\text{Gap}}}{I(t)}} \quad (2.3)$$

Dabei ist e die Elementarladung, c_0 die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum, ϵ_0 die Dielektrizitätskonstante des Vakuums, n_0 der lineare Brechungsindex des Dielektrikums und m^* die effektive Masse des erzeugten Elektron-Loch-Paares. Somit sind materialspezifische Eigenschaften im Keldysh-Parameter γ_K berücksichtigt. In der Literatur wird eine Einteilung der dominanten Photoionisationsmechanismen häufig anhand des Werts des Keldysh-Parameters vorgenommen [5]. Demnach tragen für $\gamma_K \ll 1$ sowohl TI als auch MPI zur Photoionisationsrate bei, während für $\gamma_K \gg 1$ TI eine untergeordnete Rolle spielt und die Photoionisationsrate in erster Linie durch MPI gegeben ist. Für letzteren Fall kann die Photoionisationsrate σ_{PI} mit einer Näherung nach Kennedy [6] approximiert werden, die ausschließlich MPI berücksichtigt und mit Gleichung 2.4 beschrieben wird.

$$\sigma_{MPI} = \frac{2\omega}{9\pi} \left(\frac{m_e \omega}{\hbar} \right)^{3/2} \left(\frac{e^2}{16\omega^2 c_0 \epsilon_0 n_0 m^* E_{\text{Gap}}} \right)^{N_\gamma} \exp(2N_\gamma) \cdot \Phi \left[\left(2N_\gamma - \frac{2E_{\text{Gap}}}{\hbar\omega} \right)^{1/2} \right] \quad (2.4)$$

Hierbei bezeichnet Φ das Dawson-Integral, siehe Anhang Gleichung A.4. Durch einen Vergleich der beiden Ionisationsraten σ_{PI} und σ_{MPI} nach Keldysh bzw. Kennedy kann demnach auf die Rolle von TI beim gesamten Photoionisationsprozess geschlossen werden. In Abb. 2.2 sind die Photoionisationsraten σ_{PI} und σ_{MPI} als Funktion des Keldysh-Parameters γ_K bzw. der Spitzenintensität der Laserstrahlung I_0 für eine Wellenlänge $\lambda = 800$ nm für repräsentative Materialparameter von Glas dargestellt, das in dieser Arbeit verwendet wird. Dabei ist zum einen die Berücksichtigung des vollständigen Term σ_{PI} nach Keldysh und zum anderen die Berechnung unter Verwendung der Näherung nach Kennedy σ_{MPI} dargestellt.

Für $\gamma_K \geq 1,6$ bzw. Intensitäten $I_0 \leq 1 \cdot 10^{13}$ W/cm² ist die PI-Rate durch MPI dominiert. Für $\gamma_K < 1,6$ bzw. $I_0 > 1 \cdot 10^{13}$ W/cm² muss zur Beschreibung der PI-Rate TI durch die Verwendung von Gleichung 2.2 nach Keldysh berücksichtigt werden, da das

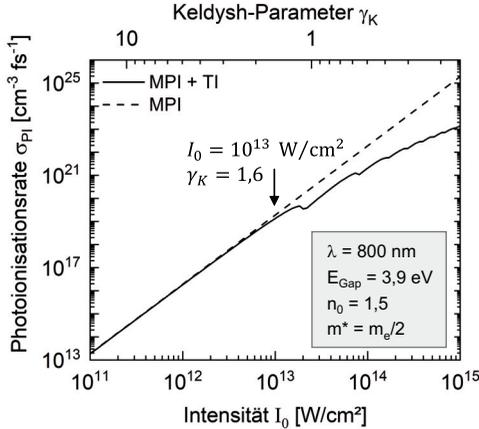


Abbildung 2.2 – Photoionisationsrate σ_{PI} in Abhängigkeit der Spitzenintensität der Laserstrahlung I_0 bzw. des Keldysh-Parameters γ_K zum einen unter Berücksichtigung von sowohl Tunnel- als auch Multiphotonenionisation mit dem Modell nach Keldysh [4] und zum anderen unter Berücksichtigung von ausschließlich Multiphotonenionisation mit dem Modell nach Kennedy [6]. Verwendete Parameter für die Berechnungen: Wellenlänge $\lambda = 800$ nm, Brechungsindex des Dielektrikums $n_0 = 1,5$, $m^* = m_e/2$, $E_{Gap} = 3,9$ eV.

elektrische Feld der Laserstrahlung zu einer Beeinflussung der atomaren Potentiale führt, sodass die PI-Rate im Vergleich zum Kennedy-Modell insgesamt kleiner ist.

2.1.2 Stoß- und Avalanche-Ionisation

Zeitlich nach der initialen Erzeugung von Elektronen im Leitungsband durch die Photoionisationsmechanismen MPI und TI, können die quasi-freien Elektronen durch inverse Bremsstrahlung die Laserstrahlung linear absorbieren, siehe Abb. 2.3 (a). Infolgedessen vergrößert sich die kinetische Energie der Elektronen. Vergrößert sich die kinetische Energie auf mindestens $E_{crit} = 3/2 E_{Gap}$, können die quasi-freien Elektronen durch elastische Stöße weitere Valenzelektronen ionisieren [7]. Effektiv vergrößert sich die Elektronendichte im Leitungsband, siehe Abb. 2.3 (b). Der Prozess wird als Stoßionisation bezeichnet.

Die Absorption von Photonen durch inverse Bremsstrahlung und Stoßionisation führen folglich zu einer exponentiellen Zunahme der freien Elektronendichte, sodass das Material lawinenartig ionisiert wird, was als Avalanche-Ionisation (AI) bezeichnet wird. Der AI-Mechanismus ist schematisch in Abb. 2.3 (c) dargestellt. Die zeitliche Änderung der freien Elektronendichte wird aus dem Produkt des Avalanche-Ionisationskoeffizienten $\alpha_{AI}(t)$, der freien Elektronendichte $\rho(t)$ und der Intensität der Laserstrahlung $I(t)$ mithilfe von Gleichung 2.5 berechnet.

$$\left. \frac{d\rho}{dt} \right|_{AI} \equiv \sigma_{AI} = \alpha_{AI}(t) \cdot \rho(t) \cdot I(t) \quad (2.5)$$

Für eine mathematische Beschreibung der AI-Rate $\sigma_{AI}(t)$ existieren in der Literatur mehrere diskutierte Ansätze. Die ursprüngliche Beschreibung von Kennedy et al. [6] ist

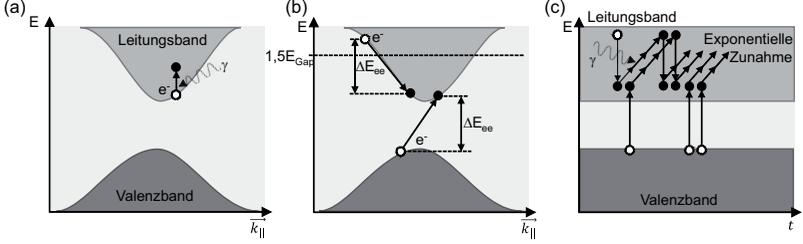


Abbildung 2.3 – Schematische Darstellung der Mechanismen für Initiierung der Avalanche-Ionisation. (a) Lineare Absorption eines Photons von einem freien Elektron im Leitungsband durch inverse Bremsstrahlung. (b) Stoßionisation eines freien Elektrons mit einem Atom oder Molekül zur Erzeugung von zwei freien Elektronen. (c) Zeitlicher Aufbau der Avalanche-Ionisation, bei der nach hinreichender Absorption von Photonen die freien Elektronen sukzessiv eine exponentielle Zunahme der freien Elektronendichte stattfindet. Nachempfunden nach [5].

von anderen Gruppen sukzessiv erweitert worden [2, 8]. Unter der Annahme, dass die Verluste der freien Elektronen im Leitungsband durch Stoßionisation klein gegenüber der Gesamtzahl der freien Elektronen und dass die Zeitdauer für die inverse Bremsstrahlung bis zum Erreichen einer kinetischen Energie E_{crit} klein ist, kann der AI-Koeffizient $\alpha_{\text{AI}}(t)$ durch Gleichung 2.6 beschrieben werden [9].

$$\alpha_{\text{AI}}(t) = \frac{\tau_e(t)}{\omega^2 \tau_e^2(t) + 1} \frac{e^2}{c_0 \epsilon_0 n_0 m_e E_{\text{crit}}} \quad (2.6)$$

Dabei bezeichnet τ_e die Elektronstoßzeit, welche der mittleren Zeit eines freien Elektrons im Leitungsband zwischen zwei inelastischen Stößen entspricht. Nach Gleichung 2.6 hat die Elektronenstoßzeit τ_e einen maßgeblichen Einfluss auf den AI-Koeffizienten α_{AI} und folglich auf die AI-Rate σ_{AI} . Der Wert der Elektronenstoßzeit τ_e ist materialspezifisch und darüber hinaus von der Dichte der freien Elektronen im Leitungsband ρ sowie von der Elektronentemperatur T_e abhängig [10]. Eine quantenmechanisch motivierte Abschätzung wird in [11, 12] durch das Lösen der Boltzmann'sche Transportgleichung beschrieben. Andere Ansätze ermitteln die Elektronenstoßzeit τ_e empirisch, wobei der Wert über circa zwei Größenordnungen variieren kann. Beispielsweise werden für Quarzglas verschiedene Simulationen der Ionisationsdynamik der freien Elektronendichte mit Werten zwischen $\tau_e = 0,1$ bis 5 fs durchgeführt [13, 14]. Eine graphische Darstellung der Elektronenstoßzeit τ_e aus repräsentativen Literaturquellen befindet sich im Anhang in Abb. A.1. Eine umfassende Beschreibung von τ_e ist Gegenstand aktueller Forschung und ist elementar für eine Quantifizierung der Rolle von AI im gesamten Ionisationsprozess [15].

Im Rahmen dieser Arbeit werden zwei Modelle zur Beschreibung der Elektronenstoßzeit τ_e detailliert betrachtet und miteinander verglichen. Zum einen wird in [10, 16] die Elektronenstoßzeit τ_e in Abhängigkeit von der freien Elektronendichte ρ mit der mittleren kinetischen Energie der Elektronen E_{av} und dem Wechselwirkungsquerschnitt mit den Coulomb-Potentialen der Atome hergeleitet, siehe Gleichung 2.7.

$$\tau_e = \frac{16\pi\epsilon_0^2 \sqrt{m^* E_{\text{av}}^3}}{\sqrt{3}e^4} \rho^{-1} \propto \rho^{-1} \quad (2.7)$$

Die Abhängigkeit der Elektronstoßzeit τ_e von der Elektronentemperatur T_e ist mit diesem Ansatz implizit in der mittleren kinetischen Energie berücksichtigt, die als konstant zu $E_{av} = 0,1E_{\text{Gap}}$ angenommen wird und somit unabhängig von der freien Elektronendichte ρ ist [16]. Feit et al. verwenden für die mittlere kinetische Energie $E_{av} = 0,5E_{\text{Gap}}$ [13]. In [15] werden Abtragsschwellen für die Verwendung der Elektronstoßzeit τ_e mit dem Ansatz nach Gleichung 2.7 simuliert und mit experimentellen Messdaten verglichen. Dabei wird festgestellt, dass die Elektronstoßzeit τ_e um eine pulsdauerabhängige Konstante $\tau_{e,\text{const}}(\tau_{\text{Pump}})$ erweitert werden muss, sodass eine effektive Elektronstoßzeit $\tau_{e,\text{eff}}$ mithilfe von Gleichung 2.8 berechnet werden kann.

$$\tau_{e,\text{eff}} = \tau_{e,\text{const}}(\tau_{\text{Pump}}) + \tau_e(\rho) = \tau_{e,\text{const}}(\tau_{\text{Pump}}) + \frac{16\pi\epsilon_0^2 \sqrt{m^* E_{av}^3}}{\sqrt{3}e^4} \rho^{-1} \quad (2.8)$$

Die Konstante $\tau_{e,\text{const}}$ entspricht dabei dem Grenzwert der Elektronstoßzeit für eine große freie Elektronendichte und wird empirisch durch einen Vergleich mit den experimentell ermittelten Abtragsschwellen abgeschätzt. Für eine Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 140$ fs beträgt der Grenzwert $\tau_{e,\text{const}} = 1,9$ fs. Für größere Pulsdauern τ_{Pump} wird $\tau_{e,\text{const}}$ im Allgemeinen größer. Die pulsdauerspezifischen Werte für $\tau_{e,\text{const}}$ sind in Tabelle 2.1 zusammengefasst.

Pulsdauer τ_{Pump}	$\tau_{e,\text{const}}$
140 fs	1,9 fs
0,5 ps	3,5 fs
1,0 ps	4,9 fs
5,0 ps	9,0 fs
10,0 ps	9,4 fs

Tabelle 2.1 – Grenzwerte der Elektronstoßzeit $\tau_{e,\text{const}}$ für eine große freie Elektronendichte ρ , die von Sun et al. empirisch ermittelt werden [15].

Ein weiteres Modell nach [17, 18] zur Berechnung von τ_e impliziert die Abhängigkeit von der Elektronentemperatur T_e durch Berücksichtigung einer von der freien Elektronendichte abhängigen minimalen und maximalen Elektron-Stoßfrequenz ν_{min} bzw. ν_{max} , siehe Gleichung 2.9.

$$\tau_e = \left(\nu_{\text{min}} + \nu_{\text{max}} \frac{\rho}{N_a} \right)^{-1} \propto (1 + \rho)^{-1} \quad (2.9)$$

Dabei ist $\nu_{\text{min}} = k_B T_{\text{Raum}} / \hbar$ die minimale Stoßfrequenz der freien Elektronen bei Raumtemperatur $T_{\text{Raum}} = 300$ K, mit k_B als Boltzmann-Konstante. Die maximale Stoßfrequenz $\nu_{\text{max}} = v_e / d_A$ wird aus v_e als mittlere Geschwindigkeit der freien Elektronen und d_A als interatomarer Abstand berechnet. N_a bezeichnet die Atomdichte des Dielektrikums.

Die mit beiden Modellen nach Gleichungen 2.8 bzw. 2.9 berechnete Elektronstoßzeit τ_e ist in Abhängigkeit der freien Elektronendichte ρ in Abb. 2.4 (a) dargestellt. Des Weiteren ist der mit $\tau_e(\rho)$ jeweils berechnete AI-Koeffizient $\alpha_{\text{AI}}(\rho)$ in (b) dargestellt.

Die berechnete Elektronstoßzeit τ_e für die beiden Modelle ist insbesondere für eine freie Elektronendichte im Bereich $\rho > 10^{19} - 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ unterschiedlich (Abb. 2.4 (a)). Demnach ist der AI-Koeffizient bzw. die Effizienz der AI für die beiden Modelle ebenfalls unterschiedlich (Abb. 2.4 (b)). Für das Modell $\tau_e \propto \rho^{-1}$ [15] liegt $\tau_e \sim 50$ fs für eine freie

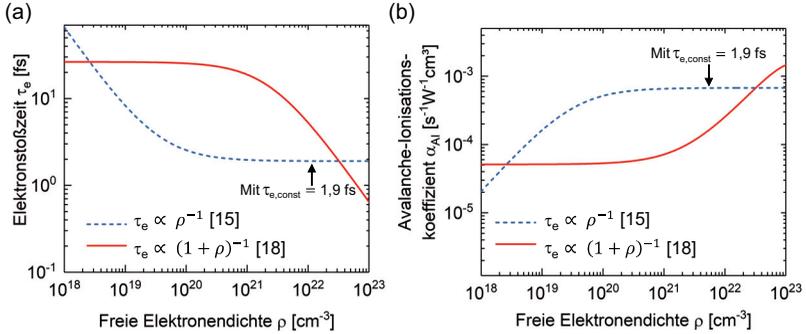


Abbildung 2.4 – (a) Abhängigkeit der Elektronstoßzeit τ_e von der freien Elektronendichte ρ für Berechnung mit zwei verschiedenen Modellen $\tau_e \propto \rho^{-1}$ bzw. $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ [15, 18]. (b) Avalanche-Ionisationskoeffizient α_{AI} in Abhängigkeit der freien Elektronendichte ρ für die beiden Modelle aus (a).

Elektronendichte ρ in der Größenordnung $\rho \sim 10^{18} \text{ cm}^{-3}$ und verkleinert sich auf $\tau_e \approx 1,9 \text{ ps}$ bis $\rho \approx 10^{21} \text{ cm}^{-3}$. Für $\rho > 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ entspricht die Elektronstoßzeit der empirisch ermittelten konstanten Stoßzeit $\tau_{e,\text{const}}$. In diesem Bereich ist aufgrund dessen der AI-Koeffizient α_{AI} konstant. Für das Modell $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ [18] ist die Elektronstoßzeit τ_e für $\rho < 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ nahezu unabhängig von der freien Elektronendichte ρ und entspricht der Elektronstoßzeit bei Raumtemperatur $\tau_e \sim 30 \text{ fs}$. Für eine Vergrößerung der freien Elektronendichte $\rho > 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ verkleinert sich die Elektronstoßzeit bis in die Größenordnung $\tau_e \sim 0,1 \text{ fs}$ bis $\rho \sim 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ und folglich wird der AI-Koeffizient α_{AI} kontinuierlich bis $\rho \sim 10^{23} \text{ cm}^{-3}$ größer. Für das Modell $\tau_e \propto \rho^{-1}$ ist der AI-Koeffizient α_{AI} bei einer freien Elektronendichte $\rho \sim 10^{20} \text{ cm}^{-3}$ maximal, während sie sich für das Modell $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ für eine freie Elektronendichte $\rho > 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ stetig vergrößert. Welches der beiden Modelle zur Beschreibung der Elektronstoßzeit τ_e geeignet ist, wird in Kapitel 3 mithilfe von Simulationen evaluiert.

2.2 Ionisations- und Relaxationsdynamik

2.2.1 Ratengleichung

Die zeitliche Entwicklung der freien Elektronendichte kann mithilfe von Ratengleichungen beschrieben werden. Dabei existieren zwei Ansätze zur mathematischen Formulierung von Ratengleichungen. Zum einen wird eine einfache Ratengleichung (SRE¹) verwendet, in der die im vorherigen Kapitel vorgestellten Ionisationsmechanismen und weitere mögliche Terme wie Verluste Beiträge zur Dynamik der freien Elektronendichte liefern [2, 5, 6, 8, 9, 13, 18–26]. Zum anderen wird eine Multi-Ratengleichung (MRE²) zur Beschreibung der Energiezustände der freien Elektronen und deren Dynamik innerhalb des Leitungsbandes verwendet [7, 27–30].

¹Engl.: Single rate equation

²Engl.: Multiple rate equation

Mit Simulationen der Dynamik der freien Elektronendichte durch das Lösen von einfachen Ratengleichungen SRE können Phänomene von experimentell ermittelte Modifikationen für den Abtrag einer Glasoberfläche reproduziert werden [9, 31]. Aufgrund dessen wird im Folgenden der Schwerpunkt auf die Diskussion der einfachen Ratengleichung SRE gelegt. Die zeitliche Änderung der freien Elektronendichte setzt sich dabei aus der Erzeugung durch die Mechanismen PI und AI mit den Ionisationsraten σ_{PI} bzw. σ_{AI} sowie einer Verkleinerung der freien Elektronendichte ν_{Verluste} durch beispielsweise Rekombination zusammen. Daraus resultiert die SRE in Gleichung 2.10.

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = \sigma_{\text{PI}}(t) + \sigma_{\text{AI}}(t) - \nu_{\text{Verluste}}(\rho(t)) \quad (2.10)$$

Die SRE stellt somit eine gewöhnliche Differentialgleichung erster Ordnung dar, wobei die enthaltenen Terme von der freien Elektronendichte $\rho(t)$ bzw. der zeitlichen Intensitätsverteilung $I(t)$ abhängig sind, wie im vorherigen Abschnitt 2.1 gezeigt wurde.

In [18, 32] werden die PI- und AI-Raten σ_{PI} bzw. σ_{AI} in Gleichung 2.10 um einen Sättigungsfaktor $(1 - \rho(t)/N_a)$ erweitert, der physikalisch einer Limitierung der maximal erzeugbaren freien Elektronendichte auf die der Atomdichte N_a des Materials entspricht. Somit ist die Ionisierung auf ein Elektron pro Atom limitiert. Vergleichbare Limitierungen der Ionisierung werden in [29, 30] verwendet.

Die Verluste ν_{Verluste} sind Relaxationsprozesse der freien Elektronen, beispielsweise Auger-Rekombination, Elektron-Loch-, Elektron-Phonon- und Elektron-Phonon-Photon-Stöße oder Diffusion [33, 34]. Die Diffusion von freien Elektronen ist im Vergleich zu den Rekombinationsprozessen durch Stöße ineffizient und kann demnach für eine Beschreibung der Dynamik der freien Elektronen auf einer Zeitskala der Pulsdauer der Laserstrahlung $\tau_{\text{Pump}} \sim 100 \text{ fs} - 10 \text{ ps}$ vernachlässigt werden [5, 15, 35]. Insbesondere die Rekombination durch Elektron-Loch- und Elektron-Phonon-Stöße liefern die dominanten Beiträge zu den Verlusten [18, 36]. Eine Abschätzung der Rekombinationsrate mithilfe des Wechselwirkungsquerschnitts eines freien Elektrons mit dem Coulomb-Potential des Stoßpartners ergibt für die Verluste $\nu_{\text{Verluste}} = \eta_{\text{Rek}}\rho(t)^2$ mit η_{Rek} als Rekombinationskoeffizient [18]. Insgesamt resultiert unter Berücksichtigung der diskutierten Beiträge für die Ratengleichung zur Beschreibung der Dynamik der freien Elektronendichte Gleichung 2.11.

$$\frac{d\rho(t)}{dt} = \left(\underbrace{\sigma_{\text{PI}}(t)}_{\text{Photoionisation}} + \underbrace{\alpha_{\text{AI}}(t) \cdot I(t) \cdot \rho(t)}_{\text{Avalanche-Ionisation}} \right) \underbrace{\left(1 - \frac{\rho(t)}{N_a} \right)}_{\text{Limitierung}} - \underbrace{\eta_{\text{Rek}}\rho(t)^2}_{\text{Rekombination}} \quad (2.11)$$

Die mit der Ratengleichung 2.11 berechnete zeitabhängige freie Elektronendichte $\rho(t)$ ist in Abb. 2.5 für die Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ und einer Spitzenintensität $I_0 = 5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ dargestellt.

Durch die zeitlich steigende Pulsflanke ($t < 0 \text{ fs}$) findet die initiale Erzeugung der freien Elektronendichte durch PI statt [2]. Eine Änderung der Erzeugungsrate entspricht dem Einsetzen von AI, sodass folglich eine weitere Vergrößerung der freien Elektronendichte stattfindet. Das Einsetzen der AI findet bei einer Elektronendichte in der Nähe der sogenannten kritischen Elektronendichte ρ_{crit} statt, bei der die Plasmafrequenz ω_p der Kreisfrequenz der Laserstrahlung ω entspricht [3, 37]. Für die verwendeten Parameter für die Be-

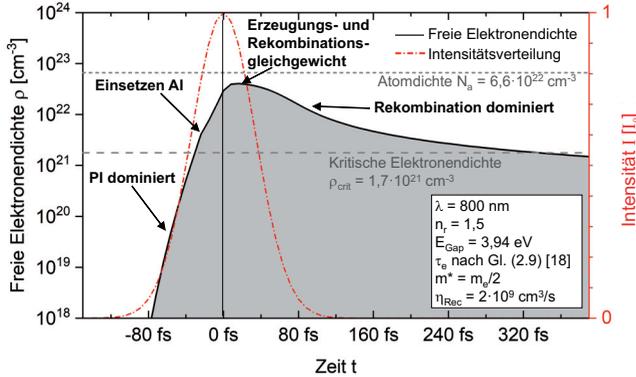


Abbildung 2.5 – Zeitabhängige freie Elektronendichte $\rho(t)$ zur Darstellung der Erzeugungs- und Relaxationsdynamik für die Verwendung eines Laserpulses mit Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und einer Spitzenintensität $I_0 = 5 \cdot 10^{13}$ W/cm 2 . Zusätzlich sind die Werte der Atomdichte N_a und der kritischen Elektronendichte ρ_{crit} dargestellt.

Die rechnerische freie Elektronendichte in Abb. 2.5 ist $\rho_{\text{crit}} = (\omega^2 m_e \epsilon_0) / e^2 = 1,7 \cdot 10^{21}$ cm $^{-3}$ (Details siehe Abschnitt 2.2.2). Beim Erreichen des zeitlichen Pulsmaximums ($t = 0$ fs) sind die Erzeugungs- und Rekombinationsrate bis $t \approx 50$ fs in einem Gleichgewicht. Für ein Abklingen der Intensität ($t > 50$ fs) dominiert Rekombination, sodass sich die freie Elektronendichte mit der Rekombinationsrate $\eta_{\text{Rek}} \rho(t)^2$ verkleinert, wobei für die Ratengleichung 2.11 der Rekombinationskoeffizient $\eta_{\text{Rek}} = 2 \cdot 10^9$ cm 3 /s gewählt wird [15]. In der Literatur werden verschiedene Angaben zur Rekombinationsrate gemacht, die insbesondere vom Material des Dielektrikums abhängt. Eine Zusammenfassung von Literaturwerten ist in Tabelle A.3 im Anhang dargestellt.

Die Dynamik der freien Elektronendichte wird insbesondere in Abhängigkeit der Pulsdauer und Intensität von verschiedenen Gruppen diskutiert. Beispielsweise sind der Zeitpunkt des Einsetzens von AI und die Lebensdauer der freien Elektronendichte für größere Intensitäten im Allgemeinen größer [38]. Die notwendige Intensität zur Erzeugung einer freien Elektronendichte größer als die kritische Elektronendichte ρ_{crit} wird kleiner, je größer die Pulsdauer gewählt wird, was sowohl experimentell als auch durch Simulation der freien Elektronendichte nachgewiesen wird [22]. Dies wird durch eine effektivere Erzeugung der freien Elektronendichte durch AI erklärt.

An dieser Stelle wird betont, dass in der Ratengleichung 2.11 neben der freien Elektronendichte $\rho(t)$ und der zeitlichen Intensitätsverteilung $I(t)$ weitere Parameter wie beispielsweise die reduzierte Elektronenmasse m^* oder die kinetische Energie der freien Elektronen E_{av} in den Ionisationsraten σ_{PI} bzw. σ_{AI} einen Einfluss auf freie Elektronendichte $\rho(t)$ haben. Da die Werte der Parameter im Allgemeinen unbekannt und experimentell nicht direkt zugänglich sind, werden von verschiedenen Gruppen unterschiedliche Abschätzungen vorgenommen oder als freie Parameter zur Anpassung der Simulationsergebnisse an experimentelle Messdaten verwendet, was aufgrund der Vielzahl an unbekanntem Parameter nicht zielführend erscheint. Andere Studien verwenden darüber hinaus konstante Werte für die Ionisationsraten σ_{PI} bzw. σ_{AI} [39, 40]. Insbesondere können die unbekanntem Para-

meter von der Intensität I_0 und der Pulsdauer τ_{Pump} abhängig sein [15]. Aufgrund dessen soll im Folgenden der Stand der Forschung zur Abhängigkeit der Ionisationsmechanismen von der Intensität und Pulsdauer diskutiert werden.

2.2.2 Abhängigkeit von Pulsdauer und Intensität

Experimentelle Hinweise auf die dominanten Ionisationsmechanismen in Abhängigkeit der Pulsdauer τ_{Pump} werden durch einen Vergleich der Abtragsschwellen für einzelne Laserpulse für eine Variation der Pulsdauer τ_{Pump} abgeleitet [41]. Die Abtragsschwelle entspricht dabei der mindestens notwendigen Fluenz³ $F_{\text{thr}} = I_{\text{thr}}/0,94 \cdot \tau_{\text{Pump}}$ der Laserstrahlung, für die eine permanente Materialmodifikation auftritt. Für $\tau_{\text{Pump}} < 100$ fs wird eine Verkleinerung der Abtragsschwelle im Vergleich zum Pulsdauerbereich $100 \text{ fs} < \tau_{\text{Pump}} < 3 \text{ ps}$ festgestellt, was zu einer größeren notwendigen Intensität I_{thr} für die Erzeugung von Materialmodifikationen korrespondiert. Dies wird als Hinweis auf Photoionisation als dominanten Ionisationsprozess interpretiert. Für $\tau_{\text{Pump}} > 100$ fs ist AI der dominante Ionisationsmechanismus. Die AI-Rate skaliert dabei linear mit der verwendeten Intensität I_0 , in Übereinstimmung mit der formulierten Ratengleichung 2.11 [19].

In Bezug auf die dominanten PI-Mechanismen findet für $\tau_{\text{Pump}} > 100$ fs die initiale Erzeugung einer freien Elektronendichte durch MPI statt [42]. Für eine Pulsdauer in der Größenordnung $\tau_{\text{Pump}} \sim 10$ fs und für Intensitäten $I_0 \sim I_{\text{thr}}$ findet die Erzeugung einer freien Elektronendichte in Übereinstimmung mit der Vorhersage durch das Keldysh-Modell (s.o.) primär durch TI statt. In anderen Studien wird festgestellt, dass TI für $\tau_{\text{Pump}} < 1$ ps berücksichtigt werden muss [15].

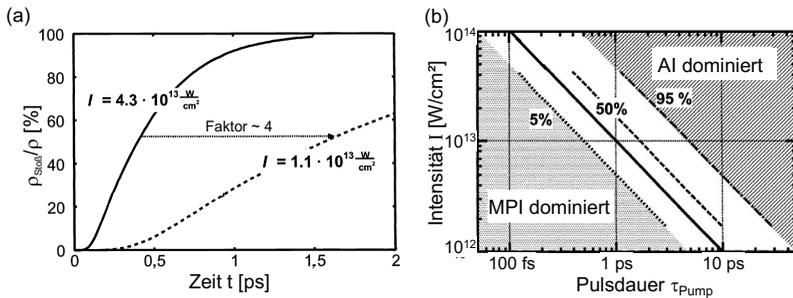


Abbildung 2.6 – Simulationen zur Erfassung der dominanten Ionisationsmechanismen Photo- bzw. Avalanche-Ionisation in Abhängigkeit der Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0 nach [43]. (a) Zeitabhängige freie Elektronendichte, die durch AI für zwei unterschiedliche Intensitäten I_0 erzeugt wird. (b) Anteile der durch AI erzeugten freien Elektronendichte in Bezug auf die gesamte freie Elektronendichte in Abhängigkeit von Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0 .

Mithilfe von Simulationen kann der durch AI erzeugte Anteil der freien Elektronendichte in Bezug zur gesamten freien Elektronendichte abgeschätzt werden [43]. Dazu wird die zeitabhängige freie Elektronendichte zum einen nur unter Berücksichtigung von AI und zum anderen unter Berücksichtigung von sowohl AI als auch PI auf Grundlage einer MRE berechnet, siehe Abb. 2.6 (a). Die Simulationen werden für verschiedene Pulsdauern τ_{Pump}

³Die Fluenz ist als Flächenenergiegedichte definiert.

und Intensitäten I_0 durchgeführt. Insgesamt werden drei Regime identifiziert, siehe Abb. 2.6 (b). Im ersten Regime wird insbesondere in einem Pulsdauerintervall $\tau_{\text{Pump}} < 1$ ps mehr als 95% der freien Elektronendichte durch PI erzeugt. Für $\tau_{\text{Pump}} \leq 100$ fs findet für Intensitäten $I_0 \sim 10^{12}$ W/cm² die Ionisierung zum größten Anteil durch PI statt in Übereinstimmung mit [19, 41]. Im zweiten Regime tragen sowohl PI als auch AI mit vergleichbar großen Anteilen zur Gesamtionisation bei. Im dritten Regime wird mehr als 95% der freien Elektronendichte durch AI erzeugt. Demnach ist näherungsweise für Intensitäten $I_0 > 10^{12}$ W/cm² für $\tau_{\text{Pump}} > 3$ ps im gesamten Ionisationsprozess AI immer beteiligt. Der Anteil von AI zur Gesamtionisation vergrößert sich je größer die Pulsdauer τ_{Pump} ist.

2.3 Puls-Plasma-Wechselwirkung

Die erzeugte freie Elektronendichte $\rho(t)$ verändert die intrinsischen optischen Eigenschaften des Dielektrikums, sodass zeitgleich zur Anregung der freien Elektronendichte durch den Laserpuls eine veränderte Wechselwirkung zwischen Puls und dem Plasma durch Reflexion und Absorption resultiert, was im Folgenden als Puls-Plasma-Wechselwirkung bezeichnet wird. Die Beschreibung der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch die transienten optischen Eigenschaften des Materials erfolgt auf Basis des Drude-Lorentz-Modells. Die dielektrische Funktion $\epsilon(\omega)$ des Materials für die Kreisfrequenz der Laserstrahlung $\omega = 2\pi c/\lambda$ ist unter Berücksichtigung der freien Elektronendichte durch Gleichung 2.12 gegeben [44].

$$\epsilon(\rho, \omega) = \epsilon_{\text{VB}} + \epsilon_{\text{LB}} \quad (2.12)$$

Hierbei bezeichnet ϵ_{VB} den Beitrag der Valenzelektronen bzw. ϵ_{LB} freien Elektronen zur dielektrischen Funktion. Mithilfe des Drude-Lorentz-Modell wird $\epsilon(\rho, \omega)$ durch Gleichung 2.13 analytisch beschrieben [44].

$$\epsilon(\rho, \omega) = \epsilon_{\text{VB}} - \frac{\rho e^2}{\epsilon_0 m^* \omega^2 + i \frac{\omega}{\tau_e(\rho)}} \equiv \epsilon_{\text{VB}} - \frac{\omega_P^2}{\omega^2 + i \frac{\omega}{\tau_e(\rho)}} \quad \text{mit } \omega_P^2 = \frac{\rho e^2}{\epsilon_0 m^*} \quad (2.13)$$

Dabei ist ω_P die Resonanzfrequenz der freien Elektronen ρ , welche im weiteren Verlauf als Plasmafrequenz bezeichnet wird. An dieser Stelle sei explizit angemerkt, dass die Plasmafrequenz ω_P und die Stoßzeit τ_e von der zeitabhängigen freien Elektronendichte $\rho(t)$ abhängen, siehe vorheriges Kapitel. Folglich ist der komplexe Brechungsindex $n(\rho, \omega)$ des Materials eine Funktion der freien Elektronendichte $\rho(t)$, siehe Gleichung 2.14.

$$n(\rho, \omega) = \sqrt{\epsilon(\rho, \omega)} = n_r(\rho, \omega) + i\kappa(\rho, \omega) \quad (2.14)$$

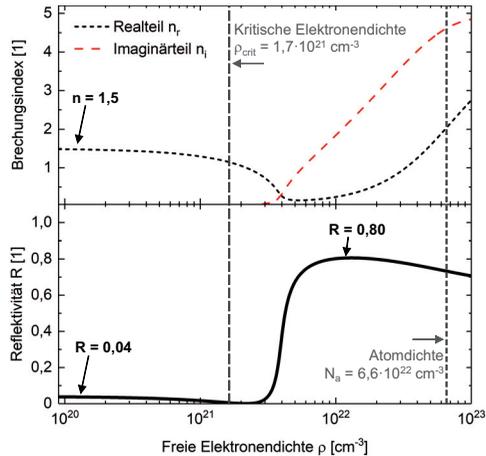
Mit dem komplexen Brechungsindex kann mithilfe der Fresnel'schen Formeln die Reflektivität des Materials R für eine Luft-Dielektrikum-Grenzfläche ($n_{\text{Luft}} \sim 1$) und senkrechtem Einfallswinkel der Laserstrahlung berechnet werden, siehe Gleichung 2.15.

$$R(\rho, \omega) = \left| \frac{n - n_{\text{Luft}}}{n + n_{\text{Luft}}} \right|^2 \approx \left| \frac{n - 1}{n + 1} \right|^2 = \frac{(n_r - 1)^2 + \kappa^2}{(n_r + 1)^2 + \kappa^2} \quad (2.15)$$

Der Real- und Imaginärteil des komplexen Brechungsindex $n(\rho, \omega)$ und die Reflektivität

R einer Luft-Dielektrikum-Grenzfläche sind in Abb. 2.7 in Abhängigkeit der freien Elektronendichte ρ für eine Wellenlänge der Laserstrahlung $\lambda = 800$ nm bei einem senkrechten Einfallswinkel dargestellt.

Abbildung 2.7 – Optische Eigenschaften eines Dielektrikums in Abhängigkeit der freien Elektronendichte ρ für eine Wellenlänge $\lambda = 800$ nm und senkrechtem Einfallswinkel der Laserstrahlung. Als Modell für die Elektronstoßzeit τ_e wird Gleichung 2.9 verwendet. Oben: Real- und Imaginärteil des komplexen Brechungsindex. Unten: Reflektivität des Materials für eine infinitesimale Luft-Dielektrikum-Grenzfläche. Zusätzlich sind die Werte der Atomdichte N_a und der kritischen Elektronendichte ρ_{crit} dargestellt.



Für eine freie Elektronendichte $\rho < 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ ist der Brechungsindex mit $n = 1,5$ reell, sodass die Reflektivität $R = 0,04$ beträgt. Für eine Vergrößerung der Elektronendichte $\rho > 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ verkleinert sich der Brechungsindex und die Reflektivität ist bei $\rho \sim 2 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ mit $R = 0$ minimal. Für $\rho \geq 3 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ gilt für den Imaginärteil des Brechungsindex $\kappa > 0$, sodass sich zum einen die Reflektivität vergrößert und eine Absorption der Laserstrahlung stattfindet. Für $\rho \approx 1,2 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$ weist die Reflektivität $R = 0,80$ ein absolutes Maximum auf. Bis $\rho \approx N_a$ verkleinert sich die Reflektivität auf circa $R = 0,70$.

Zur Erfassung der Puls-Plasma-Wechselwirkung ist in Abb. 2.8 der Einfluss der Reflektivität der zeitabhängigen freien Elektronendichte auf die Intensitätsverteilung $I_R(t) = I(t) \cdot (1 - R(t))$ für die Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und Spitzenintensität $I_0 = 5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ dargestellt (oben). Die freie Elektronendichte wird dabei analog zu Abb. 2.5 berechnet. Zusätzlich sind der zeitabhängige komplexe Brechungsindex und die Reflektivität für die berechnete freie Elektronendichte $\rho(t)$ dargestellt (unten).

Die zeitliche Intensitätsverteilung $I(t)$ wird beim Überschreiten der kritischen Elektronendichte ρ_{crit} durch die Vergrößerung der Reflektivität bis $R \approx 0,60$ signifikant moduliert. Insbesondere das zeitliche Pulsmaximum ($t = 0$) und die fallende Pulsflanke ($t > 0$) werden durch die Wechselwirkung mit der freien Elektronendichte verändert. Die resultierende maximale Intensität der Laserstrahlung liegt bei circa $0,6I_0$. Für Intensitäten, für die eine maximale freie Elektronendichte kleiner als die kritische Elektronendichte ρ_{crit} erzeugt wird, kann die Puls-Plasma-Wechselwirkung vernachlässigt werden [38]. Für größere Pulsdauern im Bereich $\tau_{\text{Pump}} \sim 1 - 10$ ps beeinflusst AI die Dynamik der freien Elektronendichte maßgeblich und eine ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung resultiert [15]. Des Weiteren spielen, wie bereits oben beschrieben, unbekannte bzw. variable Parameter wie beispielsweise die Verlustrate ν_{Verluste} oder die Elektronstoßzeit τ_e eine vordergründige Rolle. Die verwendeten Werte von anderen Gruppen für die Elektronstoßzeit τ_e unterschei-

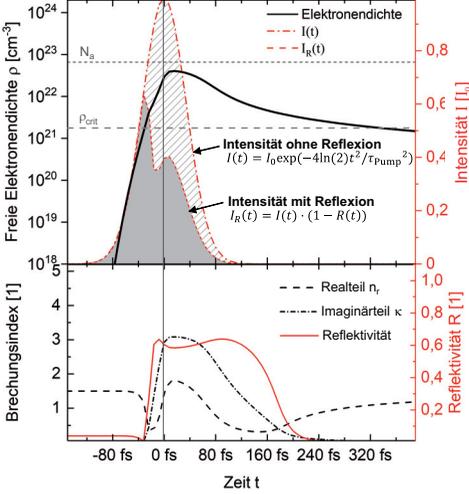


Abbildung 2.8 – Oben: Darstellung der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch Modulation der zeitlichen Intensitätsverteilung aufgrund der Reflektivität der laserinduzierten transienten freien Elektronendichte für eine Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und eine Intensität $I_0 = 5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, analog zu Abb. 2.5.

Unten: Zeitabhängiger komplexer Brechungsindex n und Reflektivität R , die für die erzeugte freie Elektronendichte aus der darüberstehenden Abbildung berechnet werden.

den sich teilweise um mehr als eine Größenordnung bzw. werden als freie Parameter für eine Kalibrierung der Simulation an experimentelle Messdaten verwendet [9].

Mithilfe des Lambert-Beert'schen Gesetzes wird die Extinktion der Intensität der Laserstrahlung für eine Propagation in z -Richtung um die Distanz dz in einem Medium mit komplexen Brechungsindex n beschrieben, siehe Gleichungen 2.16.

$$dI \propto -\alpha I dz \rightarrow I(z) = I_0 \exp(-\alpha z) \quad \text{mit } \alpha = \frac{4\pi\kappa}{\lambda} \quad (2.16)$$

Dabei ist der Absorptionskoeffizient α proportional zum Imaginärteil κ des komplexen Brechungsindex, welcher als Extinktionskoeffizient bezeichnet wird und Verluste der Intensität der Laserstrahlung unter anderem durch Streuung und Absorption berücksichtigt. Für einen vernachlässigbaren Einfluss von Streuung, kann die Absorption A der Laserstrahlung durch die freie Elektronendichte mit Gleichung 2.17 abgeschätzt werden.

$$A(\kappa) \approx I(\kappa)/I_0 = \exp\left(-\frac{4\pi\kappa}{\lambda}\delta_z\right) \quad (2.17)$$

Dabei wird angenommen, dass die Absorption der Laserstrahlung durch die freie Elektronendichte in einer Schichtdicke δ_z stattfindet. Durch die Reflexion und Absorption der Laserstrahlung wird insgesamt die transmittierte Intensität der Laserstrahlung für die Propagation durch eine freie Elektronendichte bzw. die Transmission der Laserstrahlung mithilfe von Gleichungen 2.18 bzw. 2.19 berechnet.

$$I_T = I_0 \cdot (1 - R) \cdot \exp\left(-\frac{4\pi\kappa}{\lambda}\delta_z\right) \quad (2.18)$$

$$T \equiv I_T/I_0 = (1 - R) \cdot \exp\left(-\frac{4\pi\kappa}{\lambda}\delta_z\right) \quad (2.19)$$

Durch Messung der Transmission der Laserstrahlung kann nach Gleichung 2.19 demnach auf die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung zurückgeschlossen werden, was von einigen Gruppen bereits gezeigt wurde [32, 45, 46] und in Kapitel 3 zur Quantifizierung der Puls-Plasma-Wechselwirkung verwendet wird.

2.4 Modifikationen und zugrundeliegende Mechanismen

In diesem Abschnitt wird der Stand der Forschung zu den auftretenden laserinduzierten Modifikationen von Dielektrika dargestellt und mögliche Mechanismen für die Umsetzung der im Dielektrikum deponierte Energie in den Modifikationsprozess diskutiert. Dazu wird zunächst auf die für Dielektrika relevanten Abtrags- und Modifikationsprozesse eingegangen. Daraufhin werden vorgeschlagene Kriterien für das Auftreten von Schädigungen vorgestellt und diskutiert. Abschließend wird auf die Rolle der Wahl von Pulsdauer und Intensität für die auftretende Modifikation eingegangen.

2.4.1 Schmelzen und Verdampfen

Für die Erzeugung einer hinreichend großen freien Elektronendichte an der Oberfläche von Dielektrika, kann infolge der Absorption der Pulsenergie ein Abtrag über Schmelzen und Verdampfen analog zum Abtrag von Metallen mittels ultrakurz gepulster Laserstrahlung realisiert werden [1]. Der Energieübertrag vom Elektronen- an das Phononensystem wird durch das sogenannte Zwei-Temperatur-Modell beschrieben [47]. Der Energieübertrag hängt von der Pulsdauer und der materialspezifischen Kopplungsstärke zwischen Elektronen- und Phononensystem ab. Folglich findet eine Aufheizung des Materials statt, sodass in Abhängigkeit der verwendeten Intensität der Laserstrahlung eine Temperatur größer als die Schmelz- bzw. Verdampfungstemperatur erreicht werden kann. Durch die vorherrschenden großen Temperaturen und Drücke kann ein Abtrag von Material beispielsweise durch Spallation, Phasenexplosion, normales Sieden oder normales Verdampfen stattfinden, siehe [48, 49].

2.4.2 Modifikationen im Volumen

Für Fokussierung von ultrakurz gepulster Laserstrahlung in das Volumen von Dielektrika treten Modifikationsprozesse auf, die Gegenstand aktueller Forschung sind. In Abhängigkeit der verwendeten Prozessparameter wird in der Literatur zwischen zwei charakteristischen Modifikationen, sogenannte Typ-I- und Typ-II-Modifikationen, unterschieden.

Typ-I-Modifikationen: Für die Verwendung kleiner Intensitäten werden im Fokusvolumen der Laserstrahlung positive Brechungsindexänderungen induziert. Mögliche vorgeschlagene Ursachen sind thermische Mechanismen. Beispielsweise kann ein schnelles Abkühlen⁴ einer laserinduzierten heißen Schmelzphase im Fokusvolumen der Laserstrahlung

⁴Engl.: „fast quenching“

zu einer lokalen Dichtevergrößerung führt, was experimentell in Quarzglas beobachtet wird [50, 51]. Neben dem möglichen thermischen Mechanismus kann eine Dichteänderung auch durch eine lokale Umstrukturierung der Atome, Moleküle und Bindungen in der Glasmatrix erfolgen. Beispielsweise kann ein gebundenes Exziton⁵ erzeugt werden, wobei durch die Relaxation des Exzitons eine sogenannte nicht-bindende Sauerstofffehlstelle⁶ erzeugt wird, die zu einer Umstrukturierung der lokalen Anordnung der Atome und Bindungen führt [52, 53]. Des Weiteren können lokale Brechungsindexänderungen durch nicht-thermische Mechanismen wie beispielsweise die Erzeugung sogenannter Farbzentren resultieren [54]. Als Farbzentren werden im Allgemeinen Anionen-Fehlstellen im Material bezeichnet, die von Elektronen besetzt werden. Die lokale Umverteilung kann durch die veränderte elektronische Struktur Licht aus dem sichtbaren Bereich absorbieren und anschließend im sichtbaren Bereich emittieren, sodass ein farblicher Eindruck des Materials entsteht. Die lokale Dichte des Materials ist für die Erzeugung von Farbzentren mit Pulsdauern im Bereich $\tau_{\text{Pump}} \sim 100$ fs unverändert [55, 56].

Im Allgemeinen sind die Typ-I-Modifikationen reversibel, sodass die Modifikationen beispielsweise durch thermische Behandlung ausgeheilt werden können [53]. Repräsentative Typ-I-Modifikationen im Volumen von Glas sind in Abb. 2.9 mittels Transmissions- (a) und Phasenkontrastmikroskopie (b) dargestellt.

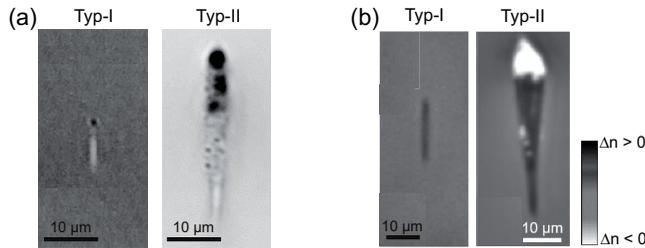


Abbildung 2.9 – Laserinduzierte Typ-I- und Typ-II-Modifikationen im Volumen von Glas. Die Propagationsrichtung der Laserstrahlung ist von oben nach unten. Die Fokusposition befindet sich am unteren Ende des jeweiligen Bildes. (a) Transmissionsmikroskopie zur Charakterisierung der Morphologie (Nachdruck aus [57] mit Genehmigung von AIP Publishing). (b) Phasenkontrastmikroskopie zur Quantifizierung der Brechungsindexänderung, aus [58].

Typ-II-Modifikationen: Bei Verwendung größerer Intensität im Vergleich zu den Typ-I-Modifikationen treten irreversible, permanente Modifikationen auf, die durch Zerstörung der lokalen Bindungsstrukturen und Defektentstehung aufgrund mechanischer Deformationsprozesse resultieren [59]. Durch die Aufheizung des Materials infolge der Energiedeposition der Laserstrahlung entsteht ein stark ausgeprägter Dichtegradient, der zur Ausbildung einer Materialstoßwelle führt [57]. Dabei wird die Materialstoßwelle als Auslöser für die Entstehung von Rissen im Volumen interpretiert.

Die Modifikationen können zum einen durch eine große Energiedeposition mittels einer ausgeprägten Rolle von AI im gesamten Ionisationsprozess erzeugt werden [58]. Zum anderen können die Modifikationen für die Verwendung hochrepetierender Laserpulse

⁵Gebundenes Elektron-Loch-Paar

⁶Engl.: „non-bridging oxygen hole center“, NBOHC

($f_{\text{Rep}} \sim 1 \text{ MHz}$) durch Wärmeakkumulation resultieren [60,61]. Hierbei ist der zeitliche Abstand zweier aufeinanderfolgender Laserpulse so klein (typischerweise im Bereich $< 5 \mu\text{s}$), dass das Material nicht vollständig abgekühlt ist. Folglich findet eine sukzessive Vergrößerung der mittleren Temperatur des Materials statt, sodass für das Überschreiten einer kritischen Temperatur Typ-II-Modifikationen erzeugt werden. Repräsentative Typ-II-Modifikationen sind in Abb. 2.9 mittels Transmissions- (a) und Phasenkontrastmikroskopie zur Quantifizierung der relativen Brechungsindexänderung (b) dargestellt.

2.4.3 Schwelle für die Erzeugung von Modifikationen

Die Definition einer charakteristischen Schwelle für das Auftreten von Modifikationen in Dielektrika ist Gegenstand aktueller Forschung. In einer Vielzahl an Studien wird die Erzeugung von Modifikationen einer starken Absorption der Laserstrahlung durch eine effektive AI zugeordnet, wenn die erzeugte freie Elektronendichte größer oder gleich der kritischen Elektronendichte ρ_{crit} ist. Aufgrund dessen wird die kritische Elektronendichte ρ_{crit} oftmals als Modifikationsschwelle definiert [5, 9, 11, 13], was im weiteren Verlauf als elektronische Modifikationsschwelle bezeichnet wird. Ein Vergleich zwischen Simulationen des Abtrags von Dielektrika und experimentellen Messdaten unterstützt dabei die Annahme, da experimentell ermittelte Abtragstiefen durch die Simulation für die Verwendung des Kriteriums reproduziert werden können [9, 31].

Weitere für die Modifikation möglicherweise beeinflussende Faktoren wie beispielsweise die hydrodynamische Umverteilung von aufgeheiztem Material oder die Propagation von Materialstoßwellen (s.o.) werden von dem Modell der elektronischen Modifikationsschwelle vernachlässigt. Insbesondere ist die elektronische Modifikationsschwelle empirisch motiviert ohne eine begleitende modelltheoretische Motivation [62]. Aufgrund dessen wird in einigen Studien eine alternative Definition für die Modifikationsschwelle eine Deposition einer kritischen Energiedichte im Material vorgeschlagen [63, 64]. Die kritische Elektronendichte ρ_{crit} stellt dabei die Schwelle für das Einsetzen von Absorption dar. Experimentell werden mithilfe zeitaufgelöster Untersuchungen Hinweise gefunden, dass die Scher- und Zugspannungen einer laserinduzierten Stoßwelle die Spannungsverteilung die Entstehung von Typ-II-Modifikationen im Volumen von Dielektrika erklären können [57, 65, 66]. Darüber hinaus wirkt sich neben den transienten Spannungen die anisotrope Temperaturverteilung im Material direkt auf die Entstehung von Modifikationen aus [67, 68].

2.4.4 Abhängigkeit von Pulsdauer und Intensität

Die erzeugten Modifikationen sind analog zu den Ionisationsprozessen sowie die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung von der verwendeten Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0 abhängig. Insbesondere für $\tau_{\text{Pump}} \leq 1 \text{ ps}$ können unterschiedliche Modifikationsphänomene erwartet werden, da ein Wechsel der dominanten Ionisationsmechanismen von AI zu PI für kürzere Pulsdauern stattfindet, siehe Abschnitt 2.2.2.

In [69] wird ein Modell vorgestellt, das die Abhängigkeit der Schwellintensität von der Pulsdauer τ_{Pump} beschreibt. Hierbei bezeichnet die sogenannte Schwellintensität I_{thr} die mindestens notwendige Intensität zur Erzeugung der kritischen Elektronendichte. Die Schwellintensität verkleinert sich dabei monoton für eine Vergrößerung der Pulsdauer

τ_{Pump} mit verschiedenen charakteristischen Abhängigkeiten, siehe Abb. 2.10 (a). Für eine Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} < 100$ fs ist $I_{\text{thr}} \propto \tau_{\text{Pump}}^{-1}$, während für $\tau_{\text{Pump}} \geq 4$ ps der Zusammenhang $I_{\text{thr}} \propto \tau_{\text{Pump}}^{-0.5}$ die Abhängigkeit beschreibt. Der Bereich $100 \text{ fs} \leq \tau_{\text{Pump}} \leq 4 \text{ ps}$ stellt einen Übergangsbereich dar. Die Intensitätsschwellen werden ebenfalls in [10] für $\tau_{\text{Pump}} = 7$ bis 350 fs über ein thermisches Modell simuliert, die mit experimentellen Messwerten übereinstimmen.

Mithilfe von Simulationen der freien Elektronendichte wird der Einfluss der Pulsdauer auf die räumliche Energiedeposition ermittelt [20], die in Abb. 2.10 (b) und (c) dargestellt ist. Für $\tau_{\text{Pump}} = 120$ fs wird eine Energiedeposition außerhalb der Achse des geometrischen Fokus aufgrund von Plasmadefokussierung ermittelt, während die Energiedeposition für $\tau_{\text{Pump}} = 2$ ps insbesondere im geometrischen Fokus stattfindet. Experimentell wird infolge der unterschiedlichen Energiedeposition eine stärker ausgeprägte Typ-I-Modifikation für $\tau_{\text{Pump}} = 2$ ps im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 100$ fs festgestellt. Die unterschiedliche Energiedeposition für Verwendung von Pulsdauern in der Größenordnung fs- bzw. ps wird durch zeitaufgelöste Pump-Probe-Schattenfotografie reproduziert [70]. Insgesamt ist demnach die Ausprägung der Modifikation abhängig von der lokal deponierten Energiedichte, welche wiederum abhängig von der verwendeten Pulsdauer und Intensität ist.

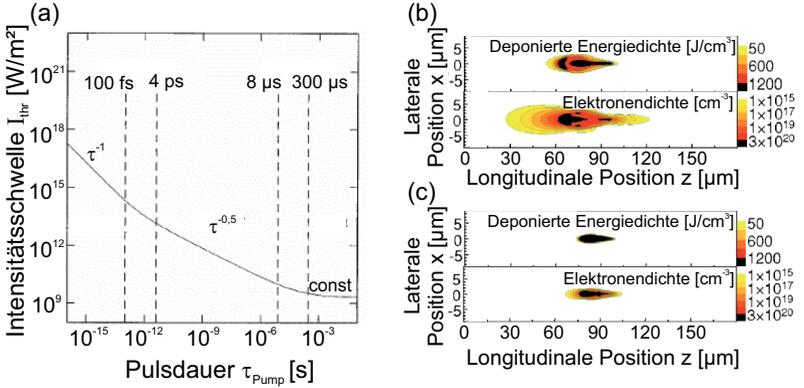


Abbildung 2.10 – (a) Simulation der Abhängigkeit der Schwellintensität I_{thr} von der Pulsdauer τ_{Pump} für die Erzeugung einer freien Elektronendichte ρ größer als die kritische Elektronendichte ρ_{crit} (Nachdruck aus [69] mit Genehmigung von AIP Publishing). (b) und (c) Simulation der räumlichen Energiedeposition und freien Elektronendichte für die Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 120$ fs (b) und 2 ps (c) (Nachdruck aus [20] mit Genehmigung von AIP Publishing). Die Propagationsrichtung der Laserstrahlung ist in $+z$ -Richtung, die Fokusposition befindet sich bei $z = 90 \mu\text{m}$.

Vergleichbare Ergebnisse werden für die Verwendung einer zum Gauß-Profil alternativen Strahlform, ein sogenanntes nicht-beugendes Bessel-Profil ermittelt [71]. Dabei wird durch Simulationen der räumliche Energiedeposition in Abhängigkeit der Pulsdauer τ_{Pump} bei gleicher Pulsenergie eine um einen Faktor 10 größere Energiedeposition für $\tau_{\text{Pump}} = 4,7$ ps erzielt als für $\tau_{\text{Pump}} = 60$ fs. Dies wirkt sich direkt auf die Modifikation aus. Für $\tau_{\text{Pump}} = 60$ fs wird eine Typ-I-Modifikation nachgewiesen, während für $\tau_{\text{Pump}} \geq 3,7$ ps Typ-II-Modifikationen auftreten. Der Bereich von $1,7 \text{ ps} \leq \tau_{\text{Pump}} \leq 2,6 \text{ ps}$ stellt einen Übergang von Typ-I- zu Typ-II-Modifikationen dar. Für $\tau_{\text{Pump}} = 60$ fs sind aufgrund der

vordergründigen PI nicht-thermische Modifikationsprozesse dominanten, die zu der Erzeugung von Typ-I-Modifikationen zu führen (s.o.). Für $\tau_{\text{Pump}} = 4,7$ ps ist die Energiedeposition stärker im Fokusbereich konzentriert, sodass hier durch die ausgeprägte AI eine signifikante Temperaturvergrößerung und somit Typ-II-Modifikationen resultieren [72, 73]. Je nach Wahl der Pulsenergie weisen die Typ-II-Modifikationen eine kontinuierliche oder periodische Struktur auf. Eine vorgeschlagene Erklärung ist ein Wechselspiel von Energiedeposition und hydrodynamischer Bewegung von aufgeheiztem Material.

Darüber hinaus konnte nachgewiesen werden, dass die elektronisch erzeugten Typ-I-Modifikationen durch eine resonante Anregung von transienten Exzitonenzuständen mittels Laserdoppelpulsen im zeitlichen Abstand in der Größenordnung 600 bis 1000 ps verstärkt werden können [74].

3 Quantifizierung der Puls-Plasma-Wechselwirkung

Als fundamentale Grundlage für die Anpassung der räumlichen Energiedeposition von ultrakurz gepulster Laserstrahlung in Gläsern, müssen die zugrundeliegenden Ionisations- und Wechselwirkungsprozesse von Laserstrahlung und dem Glas verstanden sein. Die Prozesse sind dabei insbesondere von der zeitlichen Intensitätsverteilung abhängig, die durch Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0 charakterisiert ist. In diesem Kapitel wird durch das Erreichen von drei Zielen ein umfassendes Verständnis des Zusammenhangs von Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0 mit den zugrundeliegenden die Ionisations- und Wechselwirkungsmechanismen erarbeitet. Die Ziele sind:

- Identifikation der dominanten Ionisationsmechanismen in Abhängigkeit der verwendeten Laserparameter Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0
- Erfassung des Einflusses der zugrundeliegenden Ionisationsmechanismen auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung
- Ermittlung Gültigkeitsbereich der elektronischen Puls-Plasma-Wechselwirkung

Die Puls-Plasma-Wechselwirkung wird insbesondere durch Reflexion und Absorption der Laserstrahlung durch die erzeugte freie Elektronendichte bestimmt, siehe Kapitel 2. Durch experimentelle Messung der Transmission der Laserstrahlung mit unterstützenden Simulationen kann somit mithilfe des Zusammenhangs $1 = A + R + T$ unter Vernachlässigung von Streuung auf die zugrundeliegenden Ionisationsmechanismen und die Puls-Plasma-Wechselwirkung geschlossen werden. Das Vorgehen ist in Abb. 3.1 dargestellt.

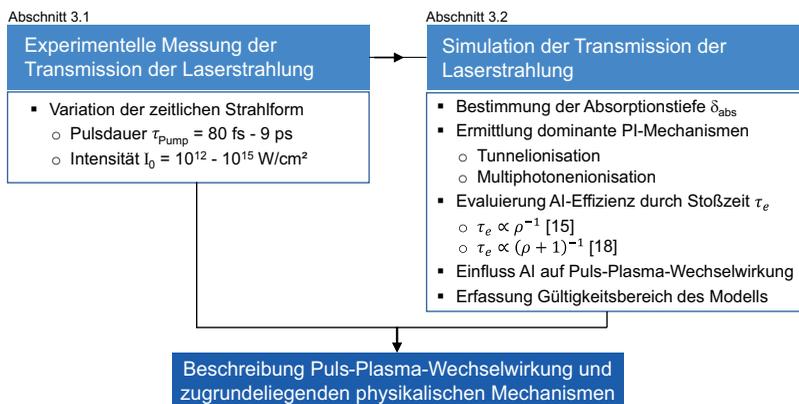


Abbildung 3.1 – Vorgehen, Inhalte und Ziel des Kapitels.

In Abschnitt 3.1 werden die Messungen der Transmission der Laserstrahlung in Abhängigkeit der Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0 dargestellt. Anhand der Ergebnisse wird die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung in Abhängigkeit der Prozessparameter abgeschätzt und insbesondere die Rolle der Pulsdauer τ_{Pump} auf den Wert der Intensitätsschwelle diskutiert. In Abschnitt 3.2 wird auf Basis des Kapitels 2 eine Simulation zur Berechnung der Transmission der Laserstrahlung entwickelt und mit den experimentellen Messdaten verglichen. Somit wird die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung modelltheoretisch abgeschätzt und die Rolle der zugrundeliegenden Ionisationsmechanismen quantifiziert. Zur Entwicklung der Simulation wird zunächst eine Abschätzung der Absorptionstiefe δ_{abs} der Laserstrahlung getroffen. Im nächsten Schritt werden die dominanten Photoionisationsmechanismen evaluiert und anschließend die Effizienz der Avalanche-Ionisation durch Wahl eines geeigneten Modells zur Beschreibung der Elektronstoßzeit τ_e abgeschätzt. Darüber hinaus wird der Einfluss der AI auf die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung diskutiert und quantifiziert. Abschließend wird der Gültigkeitsbereich des Modells der elektronischen Puls-Plasma-Wechselwirkung diskutiert.

3.1 Experimentelle Messung der Transmission

In diesem Abschnitt wird die experimentelle Messung der Transmission der Laserstrahlung in Abhängigkeit der verwendeten Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0 beschrieben. Zunächst wird im Abschnitt 3.1.1 auf die verwendete Laserstrahlquelle, den Versuchsaufbau sowie die verwendeten Systemkomponenten eingegangen. Anschließend werden in Abschnitt 3.1.2 das experimentelle Vorgehen und die Auswertungsmethoden beschrieben. Daraufhin werden im Abschnitt 3.1.3 die Messergebnisse dargestellt und diskutiert.

3.1.1 Strahlquelle, Versuchsaufbau und Systemkomponenten

Verwendet wird die Ultrakurzpuls-Strahlquelle „Libra“ von Coherent, welche auf Basis der CPA-Technik⁷ Laserpulse mit einer minimalen Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und einer Pulsenergie $E_P = 2$ mJ erzeugt. Eine detaillierte Beschreibung der Strahlquelle befindet sich im Anhang A.5. Die Strahlquelle bietet den Vorteil, dass die Pulsdauer im Bereich $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps eingestellt werden kann. Die Eigenschaften der Laserstrahlung sind in Tabelle 3.1 zusammengefasst.

Der experimentelle Versuchsaufbau zur Messung der Transmission ultrakurz gepulster Laserstrahlung durch eine erzeugte freie Elektronendichte ist in Abb. 3.2 schematisch dargestellt.

Die Intensität I_0 der linear polarisierten Laserstrahlung wird durch Einstellen der Pulsenergie E_P der emittierten Laserstrahlung durch Reflexionsfilter (RF) grob und durch die Kombination einer $\lambda/2$ -Wellenplatte mit einem Polarisationsstrahlteiler (PST) präzise eingestellt. Die Laserstrahlung wird mithilfe eines Mikroskopobjektivs (MO) mit einer numerischen Apertur $NA = 0,25$ fokussiert. Die Glasprobe wird auf die Eintrittsöffnung

⁷Engl.: „chirped pulse amplification“

Parameter	Formelzeichen	Wert
Wellenlänge	λ	800 nm
Pulsdauer	τ_{Pump}	80 fs - 9 ps
Pulsenergie	E_P	2 mJ
Puls-Repetitionsrate	f_{Rep}	Einzelpuls, 1 - 1000 Hz
Beugungsmaßzahl	M^2	1,2

Tabelle 3.1 – Spezifikationen der emittierten Laserstrahlung der Strahlquelle „Libra“, die für die Messung der Transmission verwendet wird.

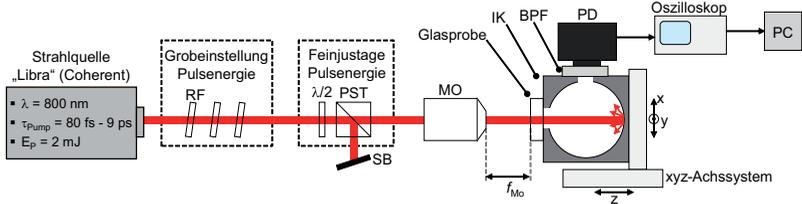


Abbildung 3.2 – Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Messung der Transmission ultrakurz gepulster Laserstrahlung durch eine Glasprobe mit einer Integrationskugel und Photodiode. RF: Reflexionsfilter; $\lambda/2$: Wellenplatte; PST: Polarisationsstrahlteiler; SB: Strahlblocker; MO: Mikroskopobjektiv mit Brennweite f_{MO} ; IK: Integrationskugel; BPF: Bandpassfilter für $\lambda = 800$ nm; PD: Photodiode.

einer Integrationskugel (IK) befestigt. Die Integrationskugel ist auf einem xyz -Achssystem montiert, sodass die Oberfläche der Glasprobe in die Fokusebene des Mikroskopobjektivs positioniert werden kann. Als Glas wird Aluminosilikatglas verwendet, das in Abschnitt A.2 im Anhang detailliert beschrieben wird. Der Fokusradius w_0 auf der Glasoberfläche wird indirekt durch Messung der Modifikationsflächen D^2 in Abhängigkeit der Pulsenergie E_P zu $w_0 = 1,3 \pm 0,1 \mu\text{m}$ nach Liu et al. [75] ermittelt, siehe Anhang A.6. Die von der Glasprobe transmittierte Laserstrahlung wird in der Integrationskugel reflektiert und gestreut. An einer weiteren Öffnung ist eine Photodiode⁸ montiert, mit der die transmittierte Laserstrahlung in Form einer Spannung U gemessen und mithilfe eines digitalen Oszilloskops⁹ aufgenommen wird. Vor der Photodiode befindet sich ein spektraler Bandpassfilter für $\lambda = 800 \pm 10$ nm, damit der Einfluss von beispielsweise Hintergrundsignalen oder Prozessleuchten auf die gemessene Transmission der Laserstrahlung minimal ist.

3.1.2 Experimentelles Vorgehen und Auswertungsmethoden

Für die Erzeugung einer großen freien Elektronendichte werden Einzelpulse der Laserstrahlquelle verwendet, die über einen Computer ausgelöst werden. Nach einer einzelnen Messung wird die Glasprobe mithilfe des Achssystems lateral um circa $20 \mu\text{m}$ verschoben, um die Bestrahlung einer unmodifizierten Position der Glasprobe zu gewährleisten zur Vermeidung eines Einfluss von Inkubation auf die gemessene Transmission.

⁸PDA10A, Thorlabs

⁹PicoScope 6402D, PicoTech

Die relative Transmission T für eine gewählte Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P wird ermittelt, indem zunächst die Signale der Photodiode zum einen mit Glas $U_{\text{mit Glas}}$ und zum anderen ohne Glas $U_{\text{ohne Glas}}$ aufgezeichnet. Von jedem Signal wird der Einfluss von Rauschen und Hintergrundeffekten verkleinert, indem eine Messung ohne die Laserstrahlung $U_{\text{Hintergrund}}$ durchgeführt wird und diese subtrahiert werden. Die relative Transmission der Laserstrahlung wird anschließend mithilfe von Gleichung 3.1 ermittelt:

$$T = \frac{U_{\text{mit Glas}} - U_{\text{Hintergrund}}}{U_{\text{ohne Glas}} - U_{\text{Hintergrund}}} \quad (3.1)$$

Eine repräsentative Messung der Spannung ist im Anhang in A.7 dargestellt. Für eine gewählte Pulsenergie E_P werden mindestens 25 Messungen durchgeführt und das arithmetische Mittel der Transmission sowie der Fehler auf den Mittelwert berechnet. Somit wird der Einfluss von beispielsweise Oberflächendefekten oder Kontaminationen auf die Transmission der Laserstrahlung reduziert.

3.1.3 Ergebnisse

Nach dem Stand der Forschung in Kapitel 2 ist die Energiedeposition zum einen von der gewählten Intensität I_0 und zum anderen insbesondere von der Pulsdauer τ_{Pump} abhängig [76,77]. Aufgrund dessen wird die Pulsdauer in einem Bereich von $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps verwendet, um eine minimale bzw. vergrößerte Puls-Plasma-Wechselwirkung einzustellen. Für Intensitäten in der Größenordnung $I_0 \sim 10^{14}$ W/cm² kann eine freie Elektronendichte räumlich bereits vor dem Fokusvolumen erzeugt werden, da die lokale Intensität bereits die Intensitätsschwelle überschreitet, siehe Kapitel 2 und [20]. Da die Laserstrahlung auf die Glasoberfläche fokussiert ist (siehe Abschnitt 3.1.1), wird eine Absorption der Laserstrahlung durch eine freie Elektronendichte vor dem Fokusvolumen vermieden. Für Intensitäten $I_0 \gtrsim 2 \cdot 10^{14}$ W/cm² kann ein Luftplasma induziert werden, das einen Einfluss auf die gemessene Transmission und folglich die Puls-Plasma-Wechselwirkung haben kann [40]. Eine ausführliche Diskussion des möglichen Einflusses eines Luftplasmas auf die Transmission der Laserstrahlung findet im Abschnitt 3.2.3 statt.

Die gemessene Transmission T ist für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 9$ ps und Spitzenintensitäten von circa $I_0 = 2 \cdot 10^{11}$ W/cm² bis $6 \cdot 10^{13}$ W/cm² in Abb. 3.3 dargestellt. Dabei wird die Abhängigkeit der Transmission von der Intensität in drei charakteristische Intensitätsregime I bis III eingeteilt, die im Folgenden beschrieben werden.

- **Intensitätsdomäne I:**

Für Intensitäten kleiner als eine Intensitätsschwelle $I_{\text{thr}} \approx 1,6 \cdot 10^{12}$ W/cm² entspricht die gemessene Transmission $T \approx 0,95 \pm 0,03$ im Rahmen der Messgenauigkeit¹⁰ der mit $T = (1 - R)^2 = 0,92$ für zwei Luft-Glas-Grenzflächen berechneten Transmission, wobei die Reflexion R mithilfe der Fresnel'schen Formel 2.15 berechnet wird (Brechungsindex Glas $n_{\text{Glas}} = 1,5$, Wellenlänge $\lambda = 800$ nm, senkrechter Einfallswinkel). Somit wird geschlussfolgert, dass für $I < I_{\text{thr}}$ eine Absorption der Laserstrahlung durch eine freie Elektronendichte vernachlässigbar ist und demzufolge nicht-lineare Ionisationsprozesse in diesem Regime eine untergeordnete Rolle spielen.

¹⁰Die Transmission $T \approx 0,95 \pm 0,03$ für $I < I_{\text{thr}}$ weist auf eine systematische Messabweichung hin, die beispielsweise durch die Kalibrierung der Photodiode resultieren kann (siehe Anhang A.3).

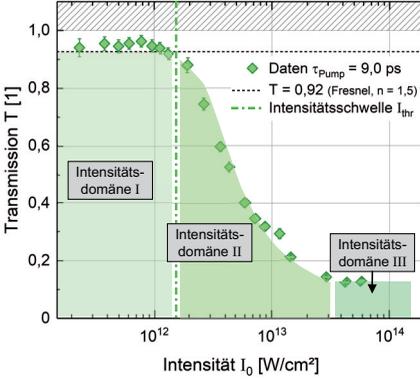


Abbildung 3.3 – Transmission T eines einzelnen Laserpulses in Abhängigkeit der Intensität I_0 für eine Pulsdauer $\tau_{\text{pump}} = 9$ ps. Drei charakteristische Intensitätsregime I bis III der Transmission sind markiert. Die nach Fresnel berechnete Transmission $T = 0,92$ für zwei Luft-Glas-Grenzflächen ist als gestrichelte Linie markiert (Brechungsindex $n_{\text{Glas}} = 1,5$, $\lambda = 800$ nm, senkrechter Einfallswinkel).

- **Intensitätsdomäne II:**

Für $I > I_{\text{thr}}$ verkleinert sich die Transmission T monoton bis zu einem Minimum T_{min} . Die Verkleinerung der Transmission kann durch ein Einsetzen von nicht-linearen Ionisationsprozessen PI und AI sowie der darauffolgenden linearen Absorption der Laserstrahlung durch inverse Bremsstrahlung durch die erzeugte freie Elektronendichte erklärt werden. Für größere Intensitäten I_0 wird die freie Elektronendichte größer, sodass die Absorption größer und folglich die Transmission kleiner wird.

- **Intensitätsdomäne III:**

Die Transmission ist für etwa $I > 10I_{\text{thr}}$ konstant, was durch die Erzeugung einer maximalen freien Elektronendichte $\rho_{\text{max}} = N_a$ erklärt werden kann, siehe Kapitel 2 [18, 32]. Des Weiteren kann die konstante Transmission durch eine Vergrößerung der Reflektivität aufgrund der freien Elektronendichte erklärt werden, die eine Vergrößerung der Absorption durch Abschirmung begrenzt [46].

Die gemessene Transmission T ist für Pulsdauern von $\tau_{\text{pump}} = 80$ fs bis 9 ps in Abhängigkeit der Intensität I_0 in Abb. 3.4 dargestellt. Die qualitative Abhängigkeit der Transmission von der Intensität ist für alle untersuchten Pulsdauern τ_{pump} vergleichbar. Der Wert der Intensitätsschwelle $I_{\text{thr}}(\tau_{\text{pump}})$ ist dabei abhängig von der Pulsdauer τ_{pump} . Die Ergebnisse sind zum Teil in [78] publiziert worden.

Für Intensitäten $I \approx I_{\text{thr}}(\tau_{\text{pump}})$ kann aufgrund des vernachlässigbaren Einflusses von Reflexion und Streuung durch die gemessene Transmission $T \approx 0,88$ die Absorption zu $A \approx -\Delta T \approx 0,04$ abgeschätzt werden, wobei $\Delta T = T(I_{\text{thr}}) - T(I < I_{\text{thr}})$ [32, 46]. Da die Intensitätsschwelle fast ausschließlich im Zentrum des räumlichen Gauß-Profiles überschritten wird, findet eine Absorption der Laserstrahlung in einem kleinen Raumbereich statt, sodass die Transmission in Bezug auf den gesamten Fokus $2w_0$ insgesamt groß ist. Die Intensitätsschwelle I_{thr} für das Einsetzen von Absorption ist im Rahmen der Messgenauigkeit gleich der Modifikationsschwelle [46]. Eine Verkleinerung der Transmission für größere Intensitäten in der Intensitätsdomäne II kann neben einer effektiveren Absorption der Laserstrahlung durch Streuung und die Erzeugung eines Weißlichtkontinuums erklärt

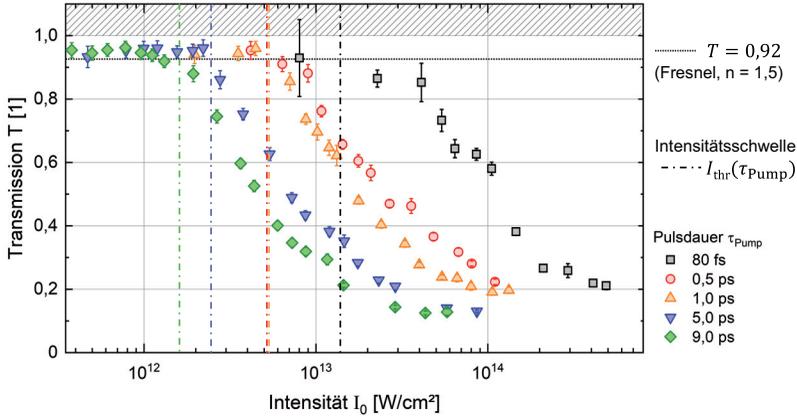


Abbildung 3.4 – Transmission T eines einzelnen Laserpulses in Abhängigkeit der Intensität I_0 für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps ($\lambda = 800$ nm). Für jede Pulsdauer ist eine charakteristische Intensitätsschwelle $I_{\text{thr}}(\tau_{\text{Pump}})$ als Strich-Punkt-Linie eingezeichnet. Die nach Fresnel berechnete Transmission $T = 0,92$ für zwei Luft-Glas-Grenzflächen ist als gestrichelte Linie markiert (Brechungsindex $n_{\text{Glas}} = 1,5$, $\lambda = 800$ nm, senkrechter Einfallswinkel).

werden. Beispielsweise kann durch nicht-lineare Selbstfokussierung der Laserstrahlung eine so große Intensität erreicht werden, dass durch Selbstphasenmodulation etwa $\sim 10\%$ der Pulsenergie für die Erzeugung eines Weißlichtkontinuums umgesetzt wird [45]. Darüber hinaus kann für große Intensitäten (Intensitätsdomäne III) Streuung durch das Plasma eine Rolle spielen [32].

Im Folgenden wird die Abhängigkeit der Intensitätsschwelle $I_{\text{thr}}(\tau_{\text{Pump}})$ von der Pulsdauer τ_{Pump} diskutiert, die in Abb. 3.4 markiert sind. Die Intensitätsschwelle wird dabei als Mittelwert der Intensitäten definiert, für die die Transmission im Rahmen der Messgenauigkeit noch $T > 0,92$ und gerade $T < 0,92$ beträgt.

In Abb. 3.5 sind die ermittelten Intensitätsschwellen I_{thr} für die verwendeten Pulsdauern τ_{Pump} dargestellt. Die Intensitätsschwelle I_{thr} beträgt für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs etwa $I_{\text{thr}} = 15,4 \pm 7,4 \cdot 10^{12}$ W/cm² und wird im Rahmen der Messgenauigkeit für eine Vergrößerung der Pulsdauer τ_{Pump} im Allgemeinen kleiner in Übereinstimmung mit Ergebnissen aus anderen Studien [41, 79, 80]. Im direkten Vergleich von $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs zu 9 ps verkleinert sich die Intensitätsschwelle um circa einen Faktor 10 auf $I_{\text{thr}} = 1,6 \pm 0,3 \cdot 10^{12}$ W/cm². Der Zusammenhang von Intensitätsschwellen und Pulsdauer kann im Rahmen der Messgenauigkeit für das untersuchte Pulsdauerintervall von $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps durch $I_{\text{thr}} \propto \tau_{\text{Pump}}^{-0,5}$ beschrieben werden, in Übereinstimmung mit Simulationen der freien Elektronendichte aus [69], siehe Kapitel 2. Aufgrund dessen wird geschlussfolgert, dass in dem Pulsdauerintervall $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps die Intensitätsschwellen und die Transmission der Laserstrahlung mit einem elektronischen Modell der Puls-Plasma-Wechselwirkung beschrieben werden kann. Im Folgenden Abschnitt werden Simulationen auf Basis der elektronischen Puls-Plasma-Wechselwirkung (siehe Kapitel 2) durchgeführt, mit denen der Einfluss der unterschiedlichen Ionisationsmechanismen auf die Abhängigkeit der Intensitätsschwelle quantifiziert werden soll.

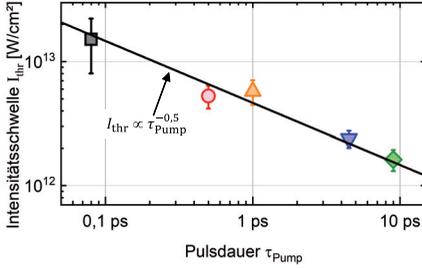


Abbildung 3.5 – Ermittelte Intensitätsschwellen $I_{\text{thr}}(\tau_{\text{Pump}})$ für das Einsetzen von Absorption in Abhängigkeit der Pulsdauer für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps für die Verwendung von Einzelpulsen mit $\lambda = 800$ nm. Zusätzlich ist eine angepasste Kurve an die Messdaten mit der Abhängigkeit $I_{\text{thr}} \propto \tau_{\text{Pump}}^{-0,5}$ eingezeichnet.

3.2 Simulation der Transmission der Laserstrahlung

In diesem Abschnitt wird mithilfe von Simulationen die Transmission der Laserstrahlung durch die erzeugte freie Elektronendichte berechnet. Dazu wird die zeitabhängige freie Elektronendichte $\rho(t)$ durch das Lösen der Ratengleichung 2.11 (siehe Abschnitt 2.2) und daraus die Puls-Plasma-Wechselwirkung mit der Laserstrahlung nach Gleichungen 2.15 und 2.17 berechnet. Damit soll durch die Beantwortung von drei zentralen Fragestellungen zum einen der Einfluss der Pulsdauer τ_{Pump} auf die dominanten Ionisationsmechanismen und zum anderen die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung beschrieben werden.

1. Welche Ionisationsmechanismen erklären die Abhängigkeit der Transmission T von der Intensität I_0 und Pulsdauer τ_{Pump} ? Wie wirken sie sich auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung aus?
2. Was ist die Ursache für die Abhängigkeit der Intensitätsschwelle $I_{\text{thr}}(\tau_{\text{Pump}})$ von der Pulsdauer?
3. Wie groß ist der Gültigkeitsbereich des elektronischen Modells zur Beschreibung der Puls-Plasma-Wechselwirkung?

Das elektronische Modell zur Beschreibung der Puls-Plasma-Wechselwirkung bezeichnet dabei die in Abschnitt 2.3 vorgestellte Wechselwirkung des Laserpulses mit der freien Elektronendichte, die durch die transienten optischen Eigenschaften durch Reflexion R und Absorption A gegeben ist.

3.2.1 Vorgehen und verwendete Parameter

Die Ratengleichung 2.11 wird für jede lokale Intensität eines zweidimensionalen Gauß-Profiles mit Fokusbereich $2w_0$ gelöst und somit die zeitabhängige freie Elektronendichte ermittelt. Im nächsten Schritt wird der zeitabhängige, komplexe Brechungsindex und daraus die Reflexion und Absorption der Laserstrahlung durch die freie Elektronendichte für jeden Raumpunkt berechnet. Die Propagation der Laserstrahlung durch das Glasvolumen kann für die Rayleigh-Länge $z_R \sim 8 \mu\text{m}$ näherungsweise vernachlässigt werden. Aufgrund dessen wird angenommen, dass die Puls-Plasma-Wechselwirkung auf eine spezifische Absorptionstiefe δ_{abs} beschränkt ist, die in der Größenordnung $\delta_{\text{abs}} \sim 100$ nm liegt. Eine detaillierte Diskussion findet im Abschnitt 3.2.2 statt.

Das Vorgehen zur Simulation der zweidimensionalen, zeitlich und räumlich integrierten Transmission T der Laserstrahlung, ist in Abb. 3.6 schematisch dargestellt.

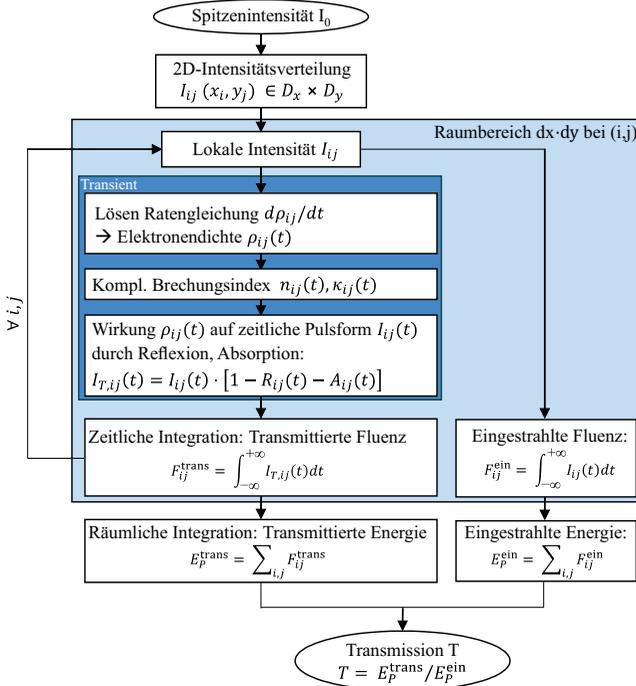


Abbildung 3.6 – Schematische Darstellung des Vorgehens zur Simulation der Transmission T für eine zweidimensionales Gauß-Profil $I(x,y)$ fokussiert auf eine Glasoberfläche.

Die Glasoberfläche wird dabei in diskrete Raumbereiche mit Größe der Ortseinheitszelle $d_x \cdot d_y$ für einer gesamte Raumgröße von $[-D_x/2, D_x/2]$ und $[-D_y/2, D_y/2]$ eingeteilt. Für eine Spitzenintensität I_0 wird die zweidimensionale Intensitätsverteilung $I_{ij}(x_i, y_j)$ über Gleichung 3.2 für jeden Raumpunkt i, j berechnet.

$$I_{ij}(x_i, y_j) = I_0 \cdot \exp\left(-2 \frac{(x_i + y_j)^2}{w_0^2}\right) \quad \text{mit } I_0 = \frac{0,94 \cdot 2E_P}{\pi w_0^2 \Gamma_{\text{ump}}} \quad (3.2)$$

Als nächstes werden für jeden Raumpunkt i, j die folgenden Schritte 1 bis 5 zur Ermittlung der eingestrahlenen und transmittierten Fluenz durchgeführt, die einer Flächenenergiedichte entspricht und aus zeitlicher Integration der Intensitätsverteilung $I_{ij}(t)$ ermittelt wird.

1. Berechnung der zeitabhängigen freien Elektronendichte ρ_{ij} durch numerisches Lösen der Ratengleichung 2.11.
2. Ermittlung des zeitabhängigen komplexen Brechungsindex $n_{ij}(t)$ nach Gleichung 2.14 und daraus der Reflexion $R_{ij}(t)$ sowie des Absorptionskoeffizienten $\alpha_{ij}(t) = 4\pi\kappa_{ij}(t)/\lambda$ mithilfe von Gleichungen 2.15 und 2.16.
3. Berücksichtigung der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch Reflexion $R_{ij}(t)$ und Ab-

sorption $A_{ij}(t)$ nach Gleichung 2.17.

4. Berechnung transmittierte Fluenz $F_{ij}^{\text{trans}} = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{T,ij}(t) dt$

5. Berechnung der eingestrahnten Fluenz $F_{ij}^{\text{ein}} = \int_{-\infty}^{+\infty} I_{ij}(t) dt$

Nachdem die Schritte 1 bis 5 jeweils für alle Raumpunkte i, j durchgeführt wurden, wird die relative Transmission der Laserstrahlung durch räumliche Integration berechnet:

6. Berechnung der transmittierten Pulsenergie $E_P^{\text{trans}} = \sum_{i,j} F_{ij}^{\text{trans}}$ bzw. der eingestrahnten Pulsenergie $E_P^{\text{ein}} = \sum_{i,j} F_{ij}^{\text{ein}}$

7. Berechnung der relativen Transmission $T = E_P^{\text{trans}}/E_P^{\text{ein}}$

Zur Berücksichtigung der Propagation der Laserstrahlung durch die Glasrückseite, wird die simulierte relative Transmission durch die erzeugte freie Elektronendichte nach Schritt 7 mit 0,96 multipliziert. Die Simulation wird für Spitzenintensitäten von $I_0 = 5 \cdot 10^{11}$ bis $5 \cdot 10^{14}$ W/cm² für Pulsdauern von $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps durchgeführt, um einen Vergleich mit der experimentell ermittelten Transmission zu ermöglichen, siehe Abschnitt 3.1.3. Die Parameter der Laserstrahlung werden analog zu den verwendeten Parametern zur experimentellen Messung der Transmission der Laserstrahlung in Abschnitt 3.1.1 gewählt. Die für die Simulation verwendeten Laserparameter sind zusammen mit den materialspezifischen Parametern in Tabelle 3.2 zusammengefasst.

Parameter	Formelzeichen	Wert
Wellenlänge	λ	800 nm
Fokusradius auf der Glasoberfläche	w_0	1,3 μm
Linearer Brechungsindex Glas [70]	n_{Glas}	1,5
Bandlücke (Anhang A.8)	E_{Gap}	3,94 eV
Effektive Elektronenmasse [9]	m^*	$m_e/2$
Atomdichte [46]	N_a	$6,6 \cdot 10^{22}$ cm ⁻³
Rekombinationsrate [15]	η_{Rek}	$2 \cdot 10^{-15}$ m ³ /s

Tabelle 3.2 – Verwendete Parameter der Laserstrahlung und des Materials für die Simulation.

Die effektive Elektronenmasse m^* , atomare Teilchendichte N_a sowie die Rekombinationsrate η_{Rek} werden anhand von Literaturwerten für Quarzglas abgeschätzt. Dabei existieren für alle Größen teilweise stark unterschiedliche Werte. Eine Übersicht ist im Anhang A.4, A.9 bzw. A.10 zusammengefasst. Für die Simulationen im Rahmen dieser Arbeit werden Werte verwendet, für die andere Gruppen Übereinstimmungen von Simulationen und Experiment feststellen [9, 15, 46, 70]. Die verwendeten numerischen Parameter für die Simulation sind in Tabelle 3.3 zusammengefasst. Die Simulationen werden mithilfe der Software MATLAB durchgeführt.

Parameter	Formelzeichen	Wert
Größe der Oberfläche in x, y	D_x, D_y	6,0 μm
Größe Ortseinheitszelle in x, y	d_x, d_y	0,5 μm
Zeitlicher Bereich für Simulation von $\rho(t)$	D_t	$[-5, 5]\tau_{\text{Pump}}$
Zeitschrittweite	d_t	0,1 τ_{Pump}

Tabelle 3.3 – Verwendete numerische Parameter für die Simulation.

3.2.2 Bestimmung der Absorptionstiefe

Zur Berechnung der Absorption A mithilfe des simulierten Absorptionskoeffizienten aus Gleichung 2.17, muss eine endliche Absorptionstiefe $\delta_{\text{abs}} > 0$ abgeschätzt werden. Die relative Absorptionstiefe kann mit $\delta_{\text{abs}}/A \sim \lambda/4\pi$ nach Gamaly et al. abgeschätzt werden [81]. Für die verwendeten Wellenlänge $\lambda = 800$ nm folgt demnach für die relative Absorptionstiefe $\delta_{\text{abs}}/A \approx 64$ nm. Dabei sind die Absorptionstiefe δ_{abs} und das Absorptionsvermögen A von der verwendeten Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P abhängig [82], was in die Abschätzung von Gamaly et al. vernachlässigt wird. Aufgrund dessen wird die Absorptionstiefe δ_{abs} mithilfe von eigenen experimentellen Messungen für alkalifreiem Borosilikatglas¹¹ indirekt mithilfe von Messungen der Abtragtiefe pro Puls in Abhängigkeit der verwendeten Pulsdauer τ_{Pump} für Pulsenergien E_P in der Nähe der Intensitätsschwelle $I_{\text{thr}}(\tau_{\text{Pump}})$ abgeschätzt [83]. Die Absorptionstiefen werden für alle Pulsdauern von $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps ermittelt, für die die Intensitätsschwellen experimentell ermittelt wurden, siehe Abb. 3.5. Die Messergebnisse der Abtragstiefen sind im Anhang in Abschnitt A.11 für alle verwendeten Pulsdauern dargestellt. Tendenziell vergrößert sich die Absorptionstiefe für größere Pulsdauern. Die ermittelten Absorptionstiefen δ_{abs} , die für die Simulationen verwendet werden, sind in Tabelle 3.4 zusammengefasst.

Pulsdauer τ_{Pump}	Absorptionstiefe δ_{abs}	Anmerkung
80 fs	80 ± 5 nm	-
0,5 ps	137 ± 21 nm	Interpoliert zwischen $\delta_{\text{abs}}(80 \text{ fs})$ und $\delta_{\text{abs}}(1 \text{ ps})$
1,0 ps	204 ± 29 nm	-
5,0 ps	287 ± 77 nm	Ermittelt für $\tau_{\text{Pump}} \approx 5,1$ ps
9,0 ps	193 ± 30 nm	Ermittelt für $\tau_{\text{Pump}} \approx 9,7$ ps

Tabelle 3.4 – Experimentell ermittelte Absorptionstiefen δ_{abs} für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps, die für die Simulationen in diesem Kapitel zur Berechnung der Absorption A der Laserstrahlung verwendet werden.

Die Werte befinden sich im Intervall $\delta_{\text{abs}} = 80$ nm bis 287 nm. Die ermittelte Absorptionstiefe $\delta_{\text{abs}} = 80 \pm 5$ nm für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs liegt in derselben Größenordnung wie die Abschätzung von Gamaly et al. $\delta_{\text{abs}} \approx 64$ nm [81]. Für größere Pulsdauern τ_{Pump} werden für Absorptionstiefen in der Größenordnung $\delta_{\text{abs}} \sim 100$ nm ermittelt, sodass hier eine Abweichung zur Abschätzung von Gamaly et al. vorliegt. In Übereinstimmung mit den für die Simulationen verwendeten Werten wird in [84] für eine Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ ps eine Absorptionstiefe in der Größenordnung $\delta_{\text{abs}} \approx 100$ nm ermittelt. Eine mögliche Erklärung der Vergrößerung der Absorptionstiefe δ_{abs} für größere Pulsdauern τ_{Pump} ist Diffusion der freien Elektronen aus dem Fokusbereich durch ballistischen Elektronentransport, der nach dem Zwei-Temperaturmodell für größere Pulsdauern in Abhängigkeit der Kopplungsstärke zwischen Elektronen- und Phononensystem eine Rolle spielt [1].

¹¹Willow[®], Corning[®]

3.2.3 Erfassung der dominanten Photoionisationsmechanismen

In diesem Abschnitt werden dominante Intensitätsregime der PI-Mechanismen TI und MPI in Abhängigkeit der verwendeten Pulsdauer τ_{Pump} durch einen Vergleich von Simulationen und experimentell ermittelter Transmission identifiziert. Nach Abschnitt 2.1 wird für Intensitäten $I_0 \sim 1 \cdot 10^{13}$ W/cm² der Keldysh-Parameter $\gamma_K < 1,6$, sodass für diese Intensitäten sowohl TI als auch MPI jeweils einen vergleichbaren Beitrag zur Gesamtionisation liefern können. Da die experimentell ermittelten Intensitätsschwellen $I_{\text{thr}}(\tau_{\text{Pump}})$ für die $\tau_{\text{Pump}} \leq 1$ ps in derselben Größenordnung liegen, müssen für eine hinreichende Energie-deposition Intensitäten in der Größenordnung $I_0 \sim 10^{13} - 10^{15}$ W/cm² verwendet werden, für die $\gamma_K < 1,6$ gilt. Aufgrund dessen wird insbesondere für $\tau_{\text{Pump}} \leq 1$ ps ein signifikanter Beitrag von TI und PI auf die Gesamtionisation erwartet, der die Transmission der Laserstrahlung beeinflusst.

Für die Identifikation der dominanten PI-Mechanismen werden Simulationen jeweils unter Berücksichtigung des Keldysh-Terms nach Gleichung 2.2 bzw. der Kennedy-Näherung in Gleichung 2.4 für die PI-Rate σ_{PI} durchgeführt, sodass die PI-Rate σ_{PI} zum einen sowohl durch TI als auch MPI und zum anderen nur durch MPI gegeben wird. In Abb. 3.7 ist die simulierte Transmission für die beiden PI-Raten für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs, 0,5 ps und 1 ps mit den experimentell ermittelten Werten der Transmission dargestellt. Dabei sei angemerkt, dass die Elektronstoßzeit τ_e für die dargestellten Pulsdauern τ_{Pump} durch den Zusammenhang $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ nach Gleichung 2.9 berechnet wird (siehe Abschnitt 2.1), da mit der Wahl des Modells eine Übereinstimmung von Simulation mit den Messdaten erreicht wird. Der Einfluss der beiden Modelle für die Elektronstoßzeit τ_e auf die simulierte Transmission wird im nächsten Abschnitt detailliert diskutiert.

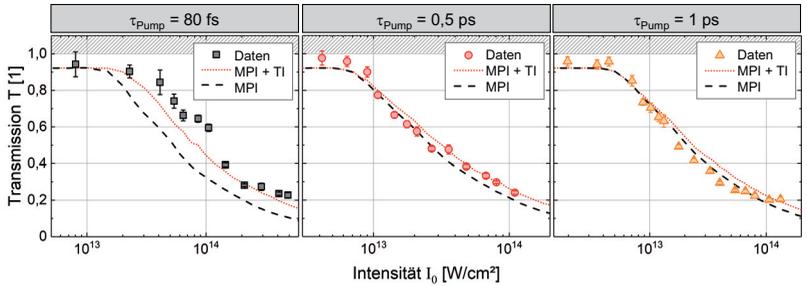


Abbildung 3.7 – Simulierte Transmission (Linien) für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs, 0,5 ps und 1 ps für Berücksichtigung von sowohl MPI als auch TI (Keldysh-Term nach Gleichung 2.2, gepunktet) bzw. nur MPI (Kennedy-Näherung nach Gleichung 2.4, gestrichelt) für den Photoionisationskoeffizienten σ_{PI} . Zusätzlich sind die Messdaten als Datenpunkte eingezeichnet.

Für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs wird für die Berücksichtigung von sowohl MPI als auch von TI im Vergleich zur Berücksichtigung von ausschließlich MPI eine um etwa einen Faktor 3 größere Intensitätsschwelle simuliert. Die größere Intensitätsschwelle kann dabei durch die kleinere Photoionisationsrate für Keldysh-Parameter $\gamma_K < 1,6$ um etwa eine Größenordnung im Vergleich zur Ionisation durch MPI erklärt werden, siehe Abb. 2.2 in Abschnitt 2.1. Eine

mögliche Ursache ist die Vergrößerung der effektiven Bandlücke, sodass mehr Photonen für MPI benötigt werden. Demnach verkleinert sich die Rate der MPI. Durch die große vorherrschende elektrische Feldstärke vergrößert sich die Tunnelwahrscheinlichkeit der Valenzelektronen, sodass insgesamt der relative Anteil an erzeugten freien Elektronen durch TI vergrößert wird [4, 10, 85]. Die Berücksichtigung von sowohl MPI als auch TI führt zu einer Übereinstimmung der Simulation mit den experimentellen Messdaten. Eine Ionisation des Materials durch MPI alleine beschreibt die Transmission der Laserstrahlung für alle Intensitäten unzureichend. Sowohl MPI als auch TI sind somit die dominanten PI-Mechanismen für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs für Intensitäten $I_0 = 2 \cdot 10^{13} - 10^{15}$ W/cm².

Für eine Vergrößerung der Pulsdauer zu $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ ps und 1 ps sind die Intensitätsschwellen für Simulationen mit MPI und TI bzw. nur MPI gleich. Das bedeutet, dass MPI der dominante PI-Mechanismus ist, während TI eine zweitrangige Rolle spielt. Für Intensitäten $I_0 \geq 2 \cdot 10^{13}$ W/cm² ist die Differenz zwischen Simulation und experimentellen Daten im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs klein. Aufgrund dessen wird geschlussfolgert, dass MPI der dominante PI-Mechanismus für $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ ps und 1 ps im gesamten untersuchten Intensitätsbereich ist. Da die Intensitätsschwellen für eine weitere Vergrößerung der Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} > 1$ ps kleiner und somit für den Keldysh-Parameter $\gamma_K \gg 1,6$ gilt, (siehe Abb. 2.2), wird für $\tau_{\text{Pump}} > 1$ ps ein vernachlässigbarer Einfluss von TI auf die PI-Rate σ_{PI} erwartet. Insgesamt ist MPI somit der dominante PI-Mechanismus für $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps im gesamten untersuchten Intensitätsbereich.

Einfluss eines laserinduzierten Luftplasmas auf die Transmission

Für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs wird bei Spitzenintensitäten $I_0 \geq 1,7 \pm 0,1 \cdot 10^{14}$ W/cm² für Fokussierung der Laserstrahlung in Luft ein Luftplasma mittels koaxialer Pump-Probe-Mikroskopie beobachtet, siehe Abb. A.7 im Anhang. Der Wert der kritischen Intensität für die Erzeugung eines Luftplasmas ist in Übereinstimmung mit Abschätzungen aus der Literatur [40]. Die experimentell ermittelte Transmission der Laserstrahlung wird für Intensitäten $I_0 \geq 2 \cdot 10^{14}$ W/cm² durch die simulierte Transmission reproduziert. Aufgrund dessen wird geschlussfolgert, dass ein erzeugtes Luftplasma für die verwendeten Fokussierungsbedingungen eine untergeordnete Rolle für eine zusätzliche Absorption bzw. Reflexion der Laserstrahlung im Intensitätsbereich $2 \cdot 10^{14}$ W/cm² $\leq I_0 \leq 10^{15}$ W/cm² einnimmt und die Transmission der Laserstrahlung insbesondere durch die Wechselwirkung mit der freien Elektronendichte des Glases gegeben ist.

3.2.4 Rolle der Avalanche-Ionisation

Wahl des Modells für die Elektronstoßzeit

Die Elektronstoßzeit τ_e bestimmt maßgeblich den Wert der AI-Rate α_{AI} und somit den Beitrag von AI zur gesamten Ionisation von freien Elektronen ρ , siehe Kapitel 2. In diesem Abschnitt werden Simulationen der Transmission mit zwei verschiedenen Modellen zur Berechnung der Elektronstoßzeit τ_e nach Gleichungen 2.8 bzw. 2.9 durchgeführt, für die unterschiedliche Ausprägungen der AI in Abhängigkeit der freien Elektronendichte resultieren [15, 18]. Für das Modell nach Gleichung 2.8 mit $\tau_e \propto \rho^{-1}$ ist die AI bei vergleichsweise kleinen freien Elektronendichten in der Größenordnung $\rho \sim 10^{20}$ cm⁻³ bereits ausgeprägt, während nach Gleichung 2.9 mit $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ die AI bei freien Elektronendichten größer

der kritischen Elektronendichte $\rho > \rho_{\text{crit}} \approx 1,7 \cdot 10^{21} \text{ cm}^{-3}$ einen wesentlichen Beitrag zur Gesamtionisation liefert. Durch einen Vergleich der Simulationen mit der experimentell ermittelten Transmission kann ein geeignetes Modell zur Beschreibung der Elektronstoßzeit τ_e in Abhängigkeit der Pulsdauer τ_{Pump} ermittelt werden. Durch eine Quantifizierung des Anteils der durch AI erzeugten freien Elektronendichte kann darüber hinaus die Rolle von AI in Hinblick auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung bewertet werden.

In Abb. 3.8 sind für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$, $0,5 \text{ ps}$ und 1 ps Simulationen für die Verwendung der beiden Modelle zusammen mit der experimentell gemessenen Transmission dargestellt. Die PI-Rate σ_{PI} wird für alle Pulsdauern τ_{Pump} mit dem Keldysh-Term nach Gleichung 2.2 berechnet, sodass sowohl TI als auch MPI für die Berechnung der PI-Rate berücksichtigt werden, siehe Abschnitt 3.2.3.

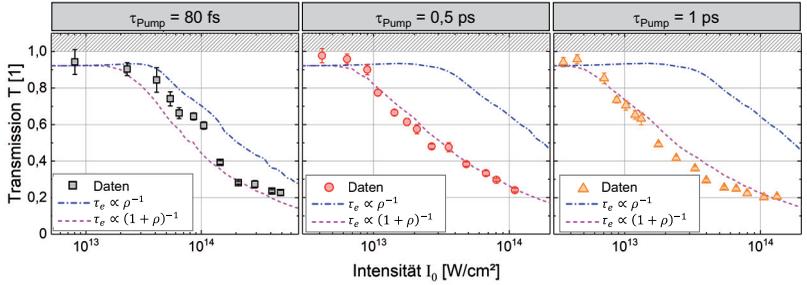


Abbildung 3.8 – Simulierte Transmission (Linien) für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$, $0,5 \text{ ps}$ und 1 ps mit zwei verschiedenen Modellen zur Berechnung der Elektronstoßzeit: $\tau_e \propto \rho^{-1}$ nach Gleichung 2.8 bzw. $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ nach Gleichung 2.9 [15, 18]. Die Photoionisationsrate σ_{PI} wird jeweils unter Berücksichtigung des Keldysh-Terms nach Gleichung 2.2 berechnet. Zusätzlich sind die Messdaten eingezeichnet.

Für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ wird für das Modell $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ im Bereich $I_0 \sim 5 \cdot 10^{13}$ bis 10^{14} W/cm^2 eine kleinere Transmission simuliert als experimentell gemessen. Für Intensitäten in der Nähe der Intensitätsschwelle $I_0 \sim I_{\text{thr}}$ und für $I_0 > 10^{14} \text{ W/cm}^2$ wird eine Übereinstimmung von Simulation und experimenteller Messdaten festgestellt. Mit dem Modell $\tau_e \propto \rho^{-1}$ wird dagegen für alle untersuchten Intensitäten eine größere Transmission simuliert als experimentell gemessen. Somit kann die Elektronstoßzeit im Wesentlichen über den Zusammenhang $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ beschrieben werden. In Bezug auf die Ausprägung der AI wird deshalb geschlussfolgert, dass für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ die AI für eine freie Elektronendichte $\rho \sim 10^{22} \text{ cm}^{-3} > \rho_{\text{crit}}$ eine Rolle spielt. Dies wird qualitativ durch vergleichbare Studien festgestellt, die der AI für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} < 80 \text{ fs}$ in Bezug auf die PI eine sekundäre Rolle zuordnen [10, 72]. Folglich ist die Puls-Plasma-Wechselwirkung für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ für Intensitäten $I_0 \sim I_{\text{thr}}$ durch AI schwach ausgeprägt.

Für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ und 1 ps wird für das Modell $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ eine Übereinstimmung der simulierten mit der experimentell gemessenen Transmission festgestellt. Die simulierte Intensitätsschwelle und die Transmission mit dem Modell $\tau_e \propto \rho^{-1}$ sind für alle untersuchten Intensitäten zu groß. Aufgrund dessen wird analog zur Argumentation für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ geschlussfolgert, dass die AI für $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ und 1 ps für eine freie Elektronendichte $\rho > \rho_{\text{crit}}$ eine Rolle spielt. Mit dem Modell $\tau_e \propto \rho^{-1}$ nach Gleichung 2.8 in [15] werden demnach im Allgemeinen zu große Elektronstoßzeiten τ_e und somit eine zu

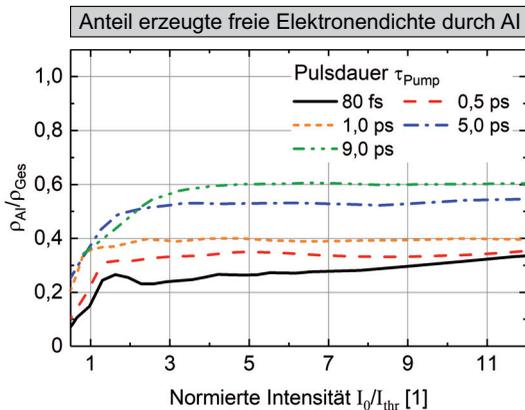
kleine AI-Rate für große freie Elektronendichten berechnet.

Die Simulation der Transmission wird für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 5$ und 9 ps analog zu den diskutierten Pulsdauern durchgeführt. Die Simulationen sind unter Berücksichtigung des Modells $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ im Wesentlichen in Übereinstimmung mit den experimentellen Messdaten, sodass für $\tau_{\text{Pump}} = 5$ und 9 ps ebenfalls geschlussfolgert wird, dass die AI-Rate für freie Elektronendichten $\rho > \rho_{\text{crit}}$ eine Rolle spielt.

Rolle der AI und Auswirkung auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung

Im nächsten Schritt wird die Rolle der AI in Bezug zum gesamten Ionisierung quantifiziert, um insbesondere den Einfluss von AI auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung zu beschreiben. Dazu wird zunächst die freie Elektronendichte $\rho = \rho_{\text{PI}} + \rho_{\text{AI}}$ mithilfe der Ratengleichung 2.11 unter Berücksichtigung von PI und AI berechnet. Anschließend wird die Elektronendichte nur für Berücksichtigung von PI ρ_{PI} berechnet, indem die AI-Rate $\sigma_{\text{AI}} = 0$ gesetzt wird. Über $(\rho - \rho_{\text{PI}})/\rho = \rho_{\text{AI}}/\rho$ wird anschließend der relative Anteil der freien Elektronendichte berechnet, der durch AI erzeugt wird. Die Ergebnisse sind für alle Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps in Abb. 3.9 dargestellt. In der Darstellung ist die Intensität jeweils auf die pulsdauerspezifische Intensitätsschwelle I_{thr} normiert.

Abbildung 3.9 – Berechneter Anteil der erzeugten freien Elektronendichte durch AI ρ_{AI}/ρ im Bezug zur gesamten freien Elektronendichte ρ für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps. Die Intensitäten sind jeweils auf die pulsdauerspezifische Intensitätsschwelle I_{thr} für das Einsetzen von Absorption normiert.



Der Anteil von AI ist für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs im Vergleich zu den anderen Pulsdauern am kleinsten und liegt je nach Wahl der Intensität I_0 zwischen 10% für $I_0 \approx I_{\text{thr}}$ und 30% für $I_0 \approx 10I_{\text{thr}}$. Je größer die Pulsdauer τ_{Pump} gewählt wird, desto größer ist der Anteil und damit der Einfluss von AI im gesamten Ionisationsprozess in Übereinstimmung mit den Ergebnissen in [19, 41, 43], siehe Abschnitt 2.2.2. Für $\tau_{\text{Pump}} > 80$ fs ist für Intensitäten in der Nähe der Intensitätsschwelle $I_0 \geq I_{\text{thr}}$ der Anteil von AI mit circa 35% im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs groß und für $I_0 \geq 3I_{\text{thr}}$ maximal sowie für eine weitere Vergrößerung der Intensität konstant. Für die größte verwendete Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 9$ ps werden bis zu 60% der freien Elektronen durch AI erzeugt.

Die AI ist insbesondere für Intensitäten im Bereich der Intensitätsschwelle I_{thr} für die untersuchten Pulsdauern unterschiedlich ausgeprägt. Aufgrund dessen soll im Folgenden der Einfluss der AI auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung untersucht werden. Dazu ist in

Abb. 3.10 zeigt den durch die freie Elektronendichte transmittierte Anteil der Laserstrahlung für die Spitzenintensität $I_0 = I_{\text{thr}}$ und $I_0 = 3I_{\text{thr}}$ für zwei Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und 1 ps dargestellt, der jeweils mithilfe von Gleichung 2.18 berechnet wird. Zusätzlich ist die berechnete zeitabhängige freie Elektronendichte dargestellt (oben).

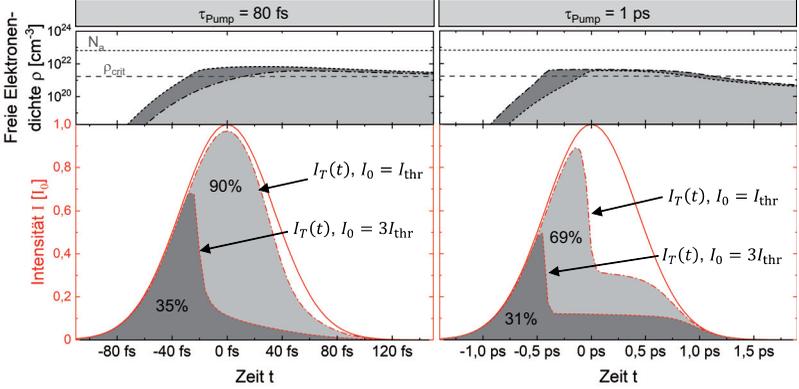


Abbildung 3.10 – Einfluss der Pulsdauer und Intensität auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und 1 ps jeweils für zwei Intensitäten $I_0 = I_{\text{thr}}$ bzw. $I_0 = 3I_{\text{thr}}$. Oben: Berechnete zeitabhängige freie Elektronendichte ρ . Unten: Modulierte zeitliche Intensitätsverteilung $I_T(t)$ durch Reflexion und Absorption durch die erzeugte freie Elektronendichte.

Für die Spitzenintensität $I_0 = I_{\text{thr}}$ wird für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs etwa 90% transmittiert und die zeitliche Intensitätsverteilung ist vernachlässigbar durch Reflexion und Absorption modifiziert. Im Gegensatz dazu wird für $\tau_{\text{Pump}} = 1$ ps bei $I_0 = I_{\text{thr}}$ in etwa 69% transmittiert und eine signifikante Modulation der fallenden Pulsflanke ($t > 0$) berechnet. Aufgrund dessen wird geschlossen, dass die für $\tau_{\text{Pump}} = 1$ ps ausgeprägte AI zu einer signifikanten Puls-Plasma-Wechselwirkung für Intensitäten ab der Intensitätsschwelle führt. Wird die Intensität $I_0 = 3I_{\text{thr}}$ gewählt, ist für beide Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und 1 ps die Transmission mit 35% bzw. 31% in etwa gleich groß und eine Reflexion und Absorption des Pulses findet bereits für die steigende Pulsflanke ($t < 0$) statt. Vergleichbare Ergebnisse werden in [86] berichtet. Somit wird für $I_0 = 3I_{\text{thr}}$ geschlossen, dass aufgrund des vergrößerten Anteils der AI im gesamten Ionisationsprozess für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs eine signifikante Puls-Plasma-Wechselwirkung resultiert.

Zwischenfazit

Durch einen Vergleich der Simulation der Transmission mit der experimentell ermittelten Transmission der Laserstrahlung durch die erzeugte freie Elektronendichte wird festgestellt, dass die Elektronstoßzeit τ_e nach dem Modell $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ in [18] bzw. Gleichung 2.9 gewählt werden muss. Das Modell beschreibt eine ausgeprägte Rolle der AI für freie Elektronendichten größer als die kritische Elektronendichte $\rho > \rho_{\text{crit}}$. Für $\rho < \rho_{\text{crit}}$ spielt die AI im Vergleich zum Modell in [15] bzw. Gleichung 2.8 eine untergeordnete Rolle. Die Abhängigkeit des AI-Koeffizienten α_{AI} wird in [87] experimentell abgeschätzt und stimmt mit dem AI-Koeffizienten für die Verwendung der Abhängigkeit $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ überein, sodass die Wahl des Modells $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ zur Beschreibung der Elektronstoßzeit τ_e

weiter unterstützt wird.

Die Ausprägung der AI ist sowohl von der Pulsdauer τ_{Pump} als auch von der Intensität I_0 abhängig, wobei sich der Anteil der durch AI erzeugten freien Elektronendichte in Bezug zum gesamten Ionisationsprozess für größere Pulsdauern und für größere Intensitäten bis zu 60% vergrößert. Die AI ist korreliert mit der Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung, was mit der zeitlichen Dauer des Absorptionsprozesses der Laserstrahlung durch die freie Elektronendichte erklärt werden kann [84]. Für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs ist die AI für Intensitäten nahe der Intensitätsschwelle untergeordnet, sodass eine vernachlässigbare Puls-Plasma-Wechselwirkung resultiert und der Puls zu 90% transmittiert wird. Im Gegensatz dazu liefert die AI für $\tau_{\text{Pump}} \geq 1$ ps für Intensitäten in der Nähe der Intensitätsschwelle einen signifikanten Beitrag zur gesamten Ionisation, sodass eine ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung resultiert.

3.2.5 Gültigkeitsbereich elektronisches Modell

In diesem Abschnitt wird durch einen Vergleich der Simulation mit der experimentell ermittelten Transmission der Gültigkeitsbereich der Beschreibung der elektronischen Puls-Plasma-Wechselwirkung abgeschätzt. Dazu sind in Abb. 3.11 Simulationen der Transmission für $\tau_{\text{Pump}} = 5$ und 9 ps zusammen mit der experimentell ermittelten Transmission dargestellt. Dabei werden für die PI-Rate sowohl TI als auch MPI berücksichtigt und die AI-Rate über Gleichung 2.9 mit dem Modell $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ für die Elektronstoßzeit berechnet.

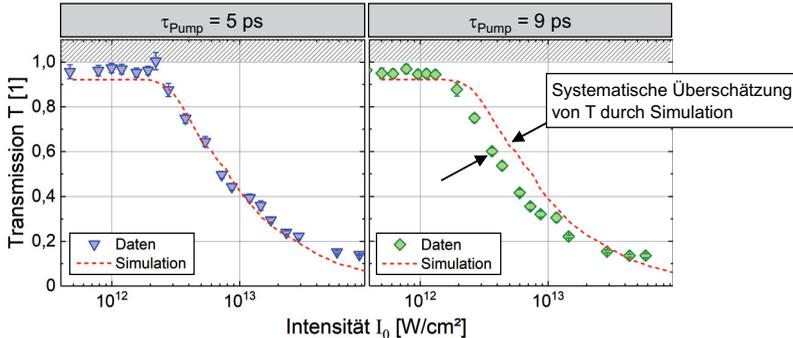


Abbildung 3.11 – Simulierte Transmission (gestrichelte Linien) für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 5$ und 9 ps zur Überprüfung des Gültigkeitsbereichs der elektronischen Beschreibung der Puls-Plasma-Wechselwirkung. Für beide Pulsdauern wird für die PI sowohl MPI als auch TI berücksichtigt und für die AI das Modell $\tau_e \propto (1 + \rho)^{-1}$ für die Elektronstoßzeit verwendet. Zusätzlich sind die Messdaten eingezeichnet.

Die simulierte Transmission stimmt mit der experimentellen Intensitätsschwelle und intensitätsabhängigen Transmission für $\tau_{\text{Pump}} = 5$ ps im Rahmen der Messgenauigkeit überein. Für $\tau_{\text{Pump}} = 9$ ps wird mit der Simulation zum einen eine zu große Intensitätsschwelle und zum anderen für alle Intensitäten eine zu große Transmission im Vergleich zu der experimentellen Transmission festgestellt. Die Transmission wird demnach von der Simulation systematisch überschätzt. Insbesondere die simulierte Intensitätsschwelle $I_{\text{thr}}^{\text{sim}} = 2,0 \pm 0,2$.

10^{12} W/cm^2 ist deutlich größer als experimentell ermittelt $I_{\text{thr}}^{\text{exp}} = 1,2 \pm 0,1 \cdot 10^{12} \text{ W/cm}^2$ und unterscheidet sich kaum von der Intensitätsschwelle für $\tau_{\text{Pump}} = 5 \text{ ps}$. Im Folgenden werden zunächst mögliche physikalische Ursachen und anschließend mögliche messtechnische Ursachen für die systematische Abweichung diskutiert.

Diskussion physikalische Ursachen für die Abweichung

Durch die Übereinstimmung von Simulation und Experiment für $\tau_{\text{Pump}} = 5 \text{ ps}$ wird geschlossen, dass die Puls-Plasma-Wechselwirkung im Wesentlichen mit dem elektronischen Modell der Puls-Plasma-Wechselwirkung beschrieben werden kann. Das Modell ist demzufolge für $\tau_{\text{Pump}} \leq 5 \text{ ps}$ gültig. Zur Berücksichtigung einer weiteren Wechselwirkung der Laserstrahlung mit weiteren transienten Zuständen, kann die Ratengleichung um zusätzliche Terme erweitert werden, siehe [34]. Von Grojo et al. werden Hinweise auf erzeugte transiente Exzitonen ermittelt, die durch eine Änderung der optischen Eigenschaften des Materials einen weiteren Einfluss auf die Transmission der Laserstrahlung haben können [88] (siehe Kapitel 2). Eine Erweiterung des Modells wird an dieser Stelle nicht weiter verfolgt, da der Schwerpunkt im Rahmen dieser Arbeit auf der Analyse der elektronischen Puls-Plasma-Wechselwirkungsprozesse liegt.

Diskussion mögliche messtechnische Ursachen für die Abweichung

Das Einstellen der Pulsdauer wird durch die entsprechende Positionierung des spektralen Reflexionsgitters in der Kompressor-Einheit der Strahlquelle realisiert, siehe Anhang A.5. Die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 9 \text{ ps}$ kann mit dem verwendeten Autokorrelator¹² aufgrund der Limitierung des Messbereichs nicht direkt gemessen werden. Stattdessen wird die Pulsdauer τ_{Pump} extrapoliert, nachdem die Pulsdauer τ_{Pump} in Abhängigkeit des Abstands von Reflexionsgitter und Retroreflektor in der Kompressor-Einheit der Strahlquelle kalibriert wurde. Für $\tau_{\text{Pump}} < 3 \text{ ps}$ wird eine Vergrößerung der Pulsdauer τ_{Pump} um $\Delta\tau_{\text{Pump}} = 0,64 \text{ ps}$ gemessen, wenn der Abstand zwischen dem Reflexionsgitter und dem Retroreflektor um $\Delta_{\text{G-RR}} = 1 \text{ mm}$ vergrößert wird. Somit muss beispielsweise für die Ausgangspulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 2 \text{ ps}$ der Abstand $\Delta_{\text{G-RR}}$ um circa 11 mm vergrößert werden, damit eine $\tau_{\text{Pump}} = 9 \text{ ps}$ resultiert. Der Abstand zwischen Reflexionsgitter und dem Retroreflektor kann mit einer Genauigkeit von 0,5 mm über eine motorisierte Linearachse eingestellt werden. Somit beträgt aufgrund der linearen Abhängigkeit zwischen zeitlicher Pulsverlängerung die Genauigkeit der Pulsdauer $\sigma_{\tau_{\text{Pump}}} = 0,32 \text{ ps}$ [89]. Eine messtechnische Ursache durch eine ungenau eingestellte Pulsdauer kann daher nahezu ausgeschlossen werden.

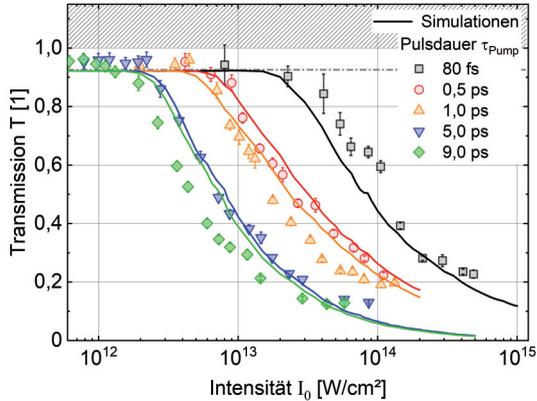
3.3 Zusammenfassung

In Abb. 3.12 sind zusammenfassend die in diesem Kapitel durchgeführten Simulationen für alle Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ bis 9 ps zusammen mit der experimentell ermittelten Transmission der Laserstrahlung aus Abb. 3.4 in Abhängigkeit der Intensität I_0 dargestellt.

Des Weiteren sind in Abb. 3.13 die experimentell ermittelten und simulierten Intensitätsschwellen $I_{\text{thr}}^{\text{sim}}$ für einen direkten Vergleich zusammengefasst. Darüber hinaus ist die

¹²Carpe Mini, APE

Abbildung 3.12 – Zusammenfassung experimentell ermittelte Transmission (Datenpunkte) und Simulationen (Linien) für alle verwendeten Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps als Funktion der Intensität I_0 .



Abhängigkeit der Intensitätsschwelle $I_{\text{thr}} \propto \tau_{\text{Pump}}^{-0,5}$ von der Pulsdauer dargestellt. Durch systematische Vergleiche von Simulationen der Transmission mit den experimentellen Daten sind die dominanten Regime sowie Gültigkeitsbereiche der fundamentalen Ionisations- und Puls-Plasma-Wechselwirkungsprozesse evaluiert worden. Die erarbeiteten zentralen Ergebnisse hinsichtlich der PI-Mechanismen sowie der Rolle der AI im gesamten Ionisationsprozess sind in Abb. 3.13 schematisch zusammengefasst.

Des Weiteren ist der Einfluss von der AI auf die Puls-Plasma-Wechselwirkung sowie der Gültigkeitsbereich des elektronischen Modells zur Beschreibung der Puls-Plasma-Wechselwirkung evaluiert worden. Die zu Beginn des Kapitels formulierten Fragestellungen können folgendermaßen beantwortet werden:

1. **Dominante Ionisationsmechanismen und Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung:** Für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs sind TI und MPI die dominanten PI-Mechanismen. Für $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps spielt TI im gesamten Ionisationsprozess für Intensitäten $I_0 < 10^{14}$ W/cm² eine vernachlässigbare Rolle, sodass der dominante PI-Mechanismus MPI ist. Die Ausprägung der AI ist direkt mit der Puls-Plasma-Wechselwirkung korreliert. Für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und für Intensitäten in der Größenordnung der Intensitätsschwelle spielt AI eine untergeordnete Rolle, sodass eine vernachlässigbare Puls-Plasma-Wechselwirkung resultiert. Für größere Intensitäten und für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps ist der Anteil von AI im gesamten Ionisationsprozess $> 30\%$, sodass eine ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung auftritt. Insbesondere für $\tau_{\text{Pump}} \geq 1$ ps kann eine freie Elektronendichte größer als die kritische Elektronendichte nur durch einen signifikanten Beitrag von AI im gesamten Ionisationsprozess erzeugt werden.
2. **Abhängigkeit der Intensitätsschwelle I_{thr} von der Pulsdauer:** Der Wert der Intensitätsschwelle $I_{\text{thr}}(\tau_{\text{Pump}})$ ist mit der AI-Rate korreliert. Je größer die Pulsdauer τ_{Pump} , desto größer ist aufgrund der ausgeprägten Puls-Plasma-Wechselwirkung die AI-Rate und folglich findet eine vergrößerte Absorption der Laserstrahlung durch inverse Bremsstrahlung statt. Folglich wird die Intensitätsschwelle durch die effiziente Erzeugung von freien Elektronen durch AI für größere Pulsdauern kleiner.

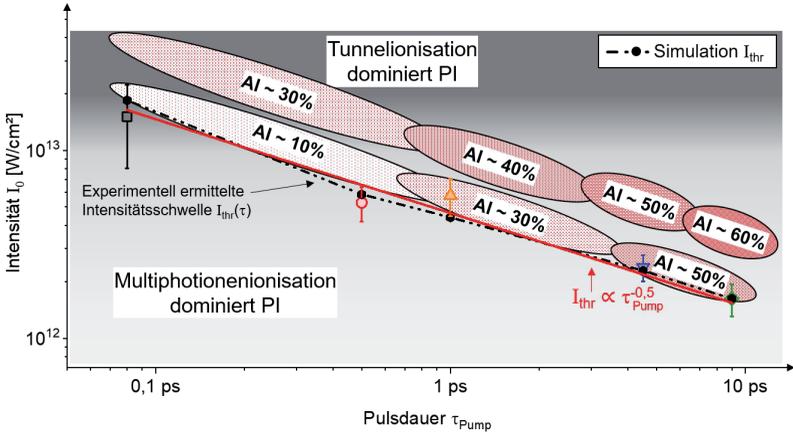


Abbildung 3.13 – Übersicht der erarbeiteten Ergebnisse in Abhängigkeit der Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0 . Die Datenpunkte entsprechen der pulsdauerspezifischen Intensitätsschwelle I_{thr} , die dem Einsetzen von linearer Absorption der Laserstrahlung infolge nicht-linearer Ionisationsprozesse entspricht. Darüber hinaus sind die simulierten Intensitätsschwellen sowie die Abhängigkeit $I_{\text{thr}} \propto \tau_{\text{Pump}}^{-0,5}$ dargestellt. Hinsichtlich der Photoionisation (PI) sind dominante Bereiche der Multiphotonen- bzw. Tunnelionisation eingezeichnet. Für Intensitäten in der Nähe und deutlich größer als die Intensitätsschwelle ist der Anteil von Avalanche-Ionisation (AI) im gesamten Ionisationsprozess angegeben, welcher ein Maß für die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung darstellt.

3. **Gültigkeitsbereich:** Das verwendete elektronische Modell zur Beschreibung der Puls-Plasma-Wechselwirkung ist für $\tau_{\text{Pump}} \leq 5$ ps geeignet. Für $\tau_{\text{Pump}} = 9$ ps werden die Hinweise auf eine zusätzliche Wechselwirkung des Laserpulses beispielsweise mit angeregten transienten Exzitonen festgestellt. Zusätzlich wird für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs für Intensitäten $I_0 \geq 2 \cdot 10^{14}$ W/cm² ein Luftplasma erzeugt, wobei eine zusätzliche Absorption oder Reflexion der Laserstrahlung vernachlässigbar ist und folglich das elektronische Modell zur Beschreibung der Puls-Plasma-Wechselwirkung für Intensitäten $I_0 < 1 \cdot 10^{15}$ W/cm² die experimentellen Messdaten hinreichend beschreibt.

4 Räumliche Energiedeposition im Glasvolumen mit einem Gauß-Profil

In diesem Kapitel wird ein grundlegendes Verständnis der räumlichen Energiedeposition im Volumen von Glas für die Verwendung eines Gauß-Profiles in Abhängigkeit der Puls-Plasma-Wechselwirkung erarbeitet. Dabei wird auf das im vorherigen Kapitel 3 erarbeitete Grundlagenverständnis aufgebaut und die Modellvorstellung der Puls-Plasma-Wechselwirkung auf die Propagation der Laserstrahlung und die darauffolgende Erzeugung einer freien Elektronendichte im Glasvolumen erweitert. Die Ziele sind:

- Ermittlung von charakteristischen Zeitregimen für die Erzeugung und Relaxation einer freien Elektronendichte im Volumen
- Identifikation nicht-linearer Propagationseffekte
- Erfassung charakteristischer Phänomene der räumlichen Energiedeposition und Einordnung in Intensitätsregimen
- Quantifizierung der Amplitude und Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition in Abhängigkeit der Puls-Plasma-Wechselwirkung
- Identifikation der Korrelationen von Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition

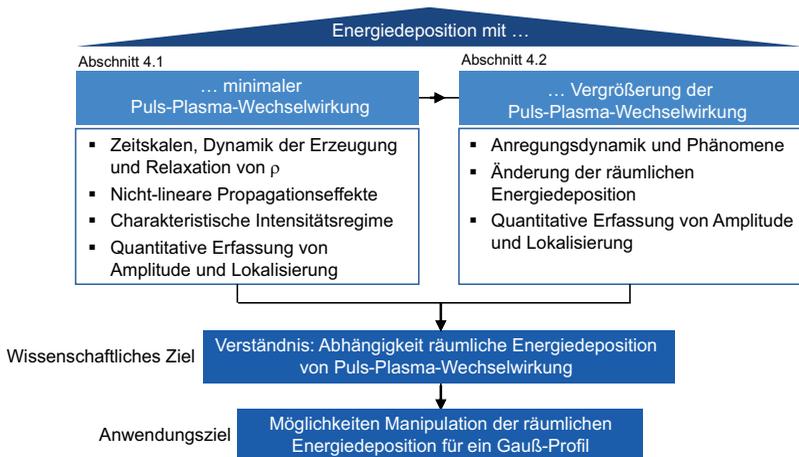


Abbildung 4.1 – Vorgehen und Ziele des Kapitels für die Energiedeposition von ultrakurz gepulster Laserstrahlung im Glasvolumen mit einem räumlichen Gauß-Profil.

Das Vorgehen und die Ziele sind in Abb. 4.1 schematisch dargestellt. Gemäß Kapitel 3 kann die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch die Pulsdauer τ_{Pump} eingestellt werden und spielt insbesondere für $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps eine vordergründige Rolle. In diesem Kapitel wird die räumliche Energiedeposition der Laserstrahlung zunächst möglichst isoliert von einer ausgeprägten Puls-Plasma-Wechselwirkung untersucht, sodass im ersten Schritt in Abschnitt 4.2 die Energiedeposition für die Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs analysiert wird. Im nächsten Schritt wird in Abschnitt 4.3 die Puls-Plasma-Wechselwirkung durch eine Vergrößerung der Pulsdauer τ_{Pump} angepasst und der Einfluss auf die räumliche Energiedeposition untersucht.

4.1 Experimentelle Methoden, Vorgehen und Auswertungsmethoden

In diesem Abschnitt werden die experimentellen Methoden sowie das Vorgehen und die verwendeten Auswertungsmethoden zur Untersuchung der räumlichen Energiedeposition im Glasvolumen beschrieben. Zunächst wird im ersten Abschnitt die Pump-Probe-Schattenfotografie vorgestellt, die für die Analyse der räumlichen Energiedeposition verwendet wird sowie die Eigenschaften des verwendeten Systems und der Versuchsaufbau erläutert. Anschließend werden das experimentelle Vorgehen zur Messdatenakquise sowie die zugehörigen Auswertungsmethoden beschrieben.

4.1.1 Pump-Probe-Schattenfotografie

Die räumliche Energiedeposition von fokussierter ultrakurz gepulster Laserstrahlung im Glasvolumen ist direkt mit der lokal erzeugten freien Elektronendichte korreliert, siehe Kapitel 2 [20]. Die Erzeugung einer freien Elektronendichte findet in erster Näherung auf einer Zeitskala der Pulsdauer $t \approx \tau_{\text{Pump}}$ nach initialer Erzeugung der freien Elektronendichte statt. Die Lebensdauer der freien Elektronendichte liegt je nach Material im Bereich einiger 10 bis 100 ps [90–92]. Mithilfe der Methode der zeitaufgelösten Pump-Probe-Mikroskopie kann die Dynamik der freien Elektronendichte mit einer zeitlichen Auflösung ~ 100 fs abgebildet werden, wobei die Zeitauflösung der Pulsdauer des verwendeten Lasersystems entspricht. Aufgrund dessen eignet sich die transversale Pump-Probe-Schattenfotografie für die zeit- und orts aufgelöste Analyse der Dynamik der laserinduzierten freien Elektronendichte im Volumen. Dabei wird die freie Elektronendichte mit dem sogenannten Pump-Puls erzeugt, die eine Verkleinerung der transmittierten Intensität eines dazu senkrecht propagierenden Probe-Pulses bewirkt, welche optisch detektiert wird. Mit der Methode kann beispielsweise die Lebensdauer der freien Elektronendichte ermittelt, nicht-lineare Selbstfokussierung durch den optischen Kerr-Effekt und die Entstehung von Filamenten beobachtet werden [66, 70, 93–95].

Der Versuchsaufbau für die Pump-Probe-Schattenfotografie ist in Abb. 4.2 schematisch dargestellt. Als Strahlquelle wird wie in Kapitel 3 das Lasersystem „Libra“ eingesetzt, mit dem eine Zeitauflösung von $\tau_{\text{Probe}} = 80$ fs erzielt wird. Die Eigenschaften der Strahlquelle sind im Detail in Kapitel 3.1.1 beschrieben.

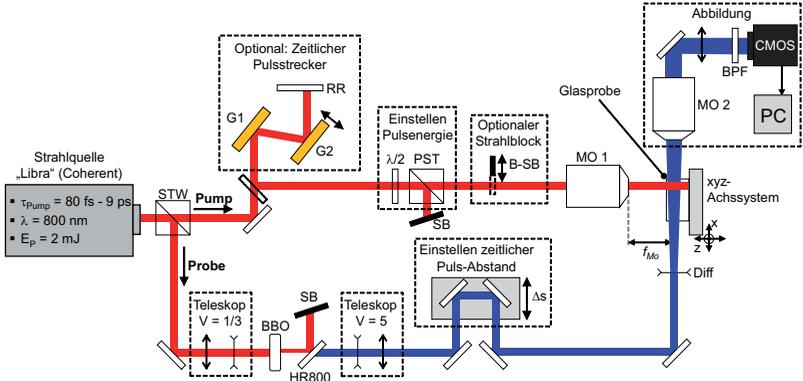


Abbildung 4.2 – Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus für Pump-Probe Schattenfotografie für die zeitaufgelöste Analyse der räumlichen Energiedeposition im Glasvolumen. STW: Strahlteilerwürfel; G1, G2: Reflektierende Goldgitter; RR: Retroreflektor; PST: Polarisationsstrahlteilerwürfel; SB: Strahlblocker; B-SB: Beweglicher Strahlblocker; MO 1, MO 2: Mikroskopobjektive; BBO: Beta-Bariumborat Kristall; HR800: Dielektrischer Spiegel für $\lambda = 800$ nm; Diff: Glasdiffuser; BPF: Bandpassfilter.

Die emittierten Laserpulse werden durch einen Strahlteilerwürfel (STW) in einen Pump- und einen Probe-Puls aufgeteilt. Im Folgenden werden die Propagationsstrecken nacheinander beschrieben.

Der Pump-Puls kann durch eine zweistufige Propagation durch zwei parallel angeordnete, reflektierende Goldgitter (G1, G2) analog zur Pulsstreckung bzw. Kompression im Lasersystem zeitlich gestreckt werden. Die Position des zweiten Gitters G2 kann variiert werden, sodass durch die veränderte Propagationsdistanz des spektral aufgespalteten Pulses zwischen den Gittern die Pulsdauer τ_{Pump} eingestellt wird. Mit dem verwendeten Pulsstreckerelement können Pulsdauern $2 \text{ ps} \leq \tau_{\text{Pump}} \leq 9 \text{ ps}$ eingestellt werden. Für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ wird der zeitliche Pulsstreckerelement durch einen optionalen Spiegel im Strahlengang überbrückt. Für $80 \text{ fs} < \tau_{\text{Pump}} < 2 \text{ ps}$ wird die emittierte Pulsdauer mithilfe der internen Kompressor-Einheit der Strahlquelle angepasst, siehe Anhang A.5.

Die Pulsenergie E_P des Pump-Pulses wird analog zu Kapitel 3.1.1 durch die Kombination einer $\lambda/2$ -Wellenplatte ($\lambda/2$) mit einem Polarisationsstrahlteilerwürfel (PST) eingestellt. Durch einen ansteuerbaren beweglichen Strahlblocker (B-SB) kann der Pump-Puls unabhängig vom Probe-Puls geblockt oder transmittiert werden. Der Pump-Puls wird mithilfe eines Mikroskopobjektivs (MO 1) in die Mitte des Glasvolumens fokussiert (siehe Abb. 4.3 (a)). Dabei wird analog zu Kapitel 3.1.1 ein Objektiv mit Vergrößerung $10\times$ und numerischer Apertur $NA = 0,25$ verwendet, sodass der Fokusradius $w_0 = 1,3 \pm 0,1 \mu\text{m}$ beträgt.

Der Probe-Puls wird in einem Beta-Bariumborat-Kristall (BBO) zu einer Wellenlänge $\lambda_{\text{Probe}} = 400 \text{ nm}$ transformiert, um eine spektrale Unterscheidung von Pump- und Probe-Puls in der Arbeitsebene des Beobachtungsobjektivs (MO 2) zu ermöglichen. Der durch den Kristall transmittierte Anteil mit $\lambda_{\text{Pump}} = 800 \text{ nm}$ wird durch einen dielektrischen Spiegel (HR800) reflektiert, sodass nur der Probe-Puls mit $\lambda_{\text{Probe}} = 400 \text{ nm}$ transmittiert wird. Die Propagationsdistanz des Probe-Pulses kann relativ zum Pump-Puls über eine

Verzögerungsstrecke eingestellt werden, sodass die Zeitpunkte t_D nach der initialen Erzeugung einer freien Elektronendichte eingestellt werden können. Die Zeitpunkte können von $t_D = 0$ bis 15 ns mit einer Positioniergenauigkeit von $\sigma_{t_D} = \pm 3$ fs gewählt werden. Die Zeitauflösung ist direkt durch die Pulsdauer des Probe-Pulses τ_{Probe} gegeben, welche in der Regel $\tau_{\text{Probe}} = 80$ fs beträgt. Wird die Pump-Pulsdauer im Intervall $80 \text{ fs} < \tau_{\text{Pump}} < 2 \text{ ps}$ mithilfe der internen Kompressor-Einheit der Strahlquelle eingestellt (s.o.), entspricht die Zeitauflösung der Pump-Pulsdauer $\tau_{\text{Probe}} = \tau_{\text{Pump}}$. Der Probe-Puls wird über Spiegel senkrecht zur Bearbeitungsebene des Pump-Pulses abgelenkt. Für eine homogene, vollständige Beleuchtung der Arbeitsebene, wird der Probe-Puls durch einen Glasdiffuser (Diff) vor der Glasprobe vergrößert. Dadurch wird die feste Phasenbeziehung benachbarter Teilstrahlen aufgehoben, sodass eine Änderung der transmittierten Amplitude durch Absorption des Probe-Pulses gemessen wird [96]. Die Prozessebene wird durch Kombination eines 20x Mikroskopobjektivs (MO 2) mit $NA = 0,42$ und eine plan-konvexe Linse $f = 150$ mm auf den Chip einer 8bit CMOS Kamera abgebildet. Vor der Kamera befindet sich ein Bandpassfilter (BPF) für den Spektralbereich $\lambda = 405 \pm 10$ nm, sodass näherungsweise ausschließlich die Probe-Wellenlänge λ_{Probe} als Signal detektiert wird. Ein möglicherweise erzeugtes breitbandiges Prozessleuchten durch die Experimente ist demnach nahezu vernachlässigbar. Das räumliche Auflösungsvermögen des verwendeten Systems beträgt $d_{\text{Auf}} = \lambda_{\text{Probe}} / (2NA) \approx 0,5 \mu\text{m}$.

Die zentralen Eigenschaften des verwendeten Systems für die Pump-Probe Schattenfotografie sind in Tabelle 4.1 zusammengefasst.

Beschreibung	Formelzeichen	Wert, Bereich
Wellenlänge Pump-Puls	λ_{Pump}	800 nm
Pulsdauer Pump-Puls	τ_{Pump}	80 fs - 9 ps
Maximale Pulsenergie Pump-Puls	$E_{P,\text{max}}$	1 mJ
Fokusradius Pump-Puls	w_0	$1,3 \pm 0,1 \mu\text{m}$
Rayleigh-Länge Pump-Puls (in Luft)	$z_{R,\text{Luft}}$	$5,5 \pm 0,4 \mu\text{m}$
Wellenlänge Probe-Puls	λ_{Probe}	400 nm
Pulsdauer Probe-Puls	τ_{Probe}	80 fs für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$, $\geq 2 \text{ ps}$; $\tau_{\text{Probe}} = \tau_{\text{Pump}}$ sonst
Zeitpunkt nach initialer Anregung einer freien Elektronendichte	t_D	0 - 15 ns
Räumliche Auflösung der Abbildung	d_{Auf}	$0,5 \mu\text{m}$
Dynamikbereich CMOS Kamera	-	8 bit

Tabelle 4.1 – Zusammenfassung der zentralen Eigenschaften des verwendeten Systems für die Pump-Probe-Schattenfotografie.

Die Bearbeitungsebene, in der Pump- und Probe-Puls im Glasvolumen räumlich überlagert werden, ist in Abb. 4.3 (a) schematisch dargestellt. Im Rahmen dieser Arbeit ist die Propagationsrichtung des Pump-Pulses von links nach rechts, sofern nicht anders angegeben. Bei der Fokussierung des Pump-Pulses in das Volumen von Glas muss die Brechung der Laserstrahlung durch den Brechungsindexunterschied an der Luft-Glas-Grenzfläche berücksichtigt werden. Aufgrund dessen vergrößert sich Rayleigh-Länge auf $z_R = n_{\text{Glas}} \cdot z_{R,\text{Luft}} \approx 8,3 \pm 0,6 \mu\text{m}$.

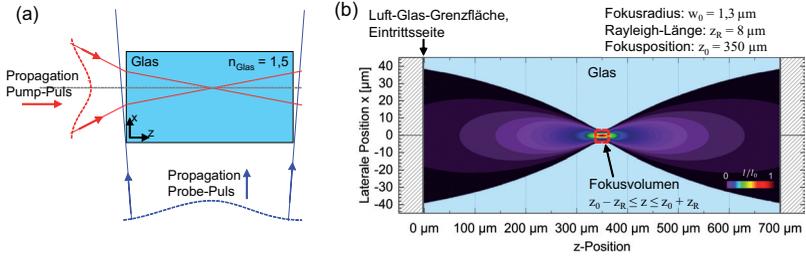


Abbildung 4.3 – (a) Schematische Darstellung der Propagation der Laserstrahlung in der Bearbeitungsebene, in der Pump- und Probe-Puls im Volumen von Glas überlagert werden. (b) Berechnete räumliche Intensitätsverteilung für ein Gauß-Profil, dessen Fokus in die Mitte des Glasvolumens $z = 350 \mu\text{m}$ positioniert wird.

In Abb. 4.3 (b) ist die berechnete Intensitätsverteilung im Volumen von Glas mit einer Glasdicke $d_{\text{Glas}} = 700 \mu\text{m}$ für die oben beschriebene Fokussierungsbedingungen dargestellt. Die Position des Fokus wird dabei in die Mitte des Volumens $z_0 = 350 \mu\text{m}$ eingestellt. Die Fokusslänge $z_F = 2z_R$ ist definiert als die doppelten Rayleigh-Länge z_R und das Fokussvolumen V_F als näherungsweise zylindrisches Volumen mit $V_F = z_F \cdot \pi w_0^2$.

4.1.2 Vorgehen und Auswertungsmethoden

Im Folgenden wird zunächst das Vorgehen zur Messdatenakquise für die zeitaufgelöste Schattenfotografie beschrieben. Anschließend wird auf die Auswertungsmethoden insbesondere die Bildverarbeitung der Schattenfotografie eingegangen.

Um mögliche Artefakte bei der Abbildung beispielsweise durch Kontaminationen der Glasprobe oder der verwendeten Optiken für die Abbildung auf der Kamera zu minimieren, wird die relative Änderung der transmittierten Intensität des Probe-Pulses durch die erzeugte freie Elektronendichte in Bezug auf den Ausgangszustand des Glases dargestellt. Das Vorgehen ist in Abb. 4.4 schematisch dargestellt.

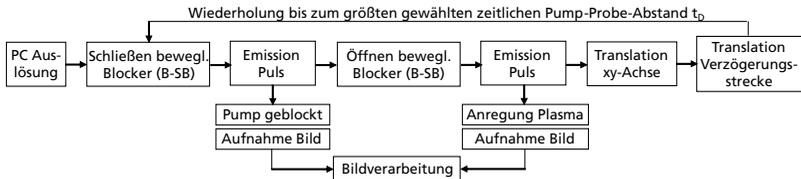


Abbildung 4.4 – Schematische Darstellung des experimentellen Vorgehens zur Messdatenakquise mittels Pump-Probe-Schattenfotografie zur Berechnung der relativen Transmissionsänderung des Probe-Pulses.

Die Messdatenakquise für einen ausgewählte Satz an Prozessparametern (Pulsdauer τ_{Pump} , Pulsenergie E_P), wird durch ein elektronisches Signal am Ansteuerungs-Computer gestartet. Zur Akquisition der relativen Transmission, wird zunächst ein Bild des unangeregten Glases aufgenommen, indem im ersten Schritt mit dem beweglichen Strahlblocker (B-SB) ein von der Strahlquelle emittierter Pump-Puls blockiert wird und eine Beleuchtung der Kamera durch den Probe-Puls stattfindet. Das akquirierte Bild wird

abgespeichert. Anschließend wird der bewegliche Strahlblocker entfernt und ein weiterer Puls emittiert, sodass sowohl Pump- als auch Probe-Puls die Glasprobe bestrahlen. Das Bild wird abgespeichert. Anschließend wird die Glasprobe um einen wählbaren Abstand verfahren, damit die nächste Bestrahlung auf einer unmodifizierten Position stattfindet, um Inkubation zu vermeiden. Die Verzögerungsstrecke wird um einen definierten Abstand Δs bewegt, um im nächsten Schritt einen neuen Zeitpunkt t_D zu untersuchen. Anschließend wird die Schleife wieder durchlaufen, solange bis der Endzeitpunkt $t_{D,\max}$ nach $N_{\text{Messungen}} = t_{D,\max} \cdot c/\Delta s$ Wiederholungen erreicht ist.

Das Signal der Kamera wird als 8bit Graustufe in einem Datenarray mit Dimension $1920 \cdot 1280$ Pixel gespeichert. Um den Einfluss von Bildartefakten auf die Messung zu minimieren, wird mithilfe der beiden akquirierten Signale (siehe Abb. 4.4) die relative Transmissionsänderung der Intensität des Probe-Pulses pro Pixel berechnet. Dazu wird für jeden Pixel die Intensität mit Pump-Puls $I_{\text{Pump}}^{\text{CMOS}}(x,z)$ durch die Intensität mit nur dem Hintergrund $I_{\text{Hint}}^{\text{CMOS}}(x,z)$ mithilfe von Gleichung 4.1 berechnet.

$$\frac{\Delta T(x,z)}{T_0(x,z)} = \left| \frac{I_{\text{Pump}}^{\text{CMOS}}(x,z) - I_{\text{Hint}}^{\text{CMOS}}(x,z)}{I_{\text{Hint}}^{\text{CMOS}}(x,z)} \right| = \left| \frac{I_{\text{Pump}}^{\text{CMOS}}(x,z)}{I_{\text{Hint}}^{\text{CMOS}}(x,z)} - 1 \right| \quad (4.1)$$

Die lokale relative Transmissionsänderung entspricht einem Wert der freien Elektronendichte $\rho(x,z)$, wobei die Berechnung eines absoluten Werts der Elektronendichte $\rho(x,z)$ mithilfe der relativen Transmissionsänderung mithilfe des Drude-Lorenz-Modells in Kapitel 2 prinzipiell möglich ist [72, 97]. Dabei müssen unbekannte Parameter wie die Absorptionstiefe senkrecht zur Propagationsrichtung der Laserstrahlung abgeschätzt werden. Aufgrund dessen wird im Rahmen dieser Arbeit die relative transmittierte Probe-Intensität zur Quantifizierung der freien Elektronendichte in Bezug auf eine maximale freie Elektronendichte ρ_{\max} verwendet. In Kapitel 2 wird für die größten verwendeten Intensitäten $I_0 > 10^{14} \text{ W/cm}^2$ eine maximale Transmissionsänderung von circa 80% ermittelt, die mit einer vollständigen Ionisierung des Materials erklärt werden kann. Somit wird angenommen, dass die maximale freie Elektronendichte $\rho_{\max} \approx N_a$ einer relativen Transmissionsänderung von $\Delta T/T_0 = 0,80$ entspricht.

Die Verarbeitung der Messdaten findet mithilfe der Software MATLAB statt. Die ermittelte relative Transmissionsänderung $\Delta T/T_0$ bzw. freie Elektronendichte ρ/ρ_{\max} wird in Graustufen dargestellt. Das Vorgehen und ist in Abb. 4.5 schematisch anhand einer Messung mittels Pump-Probe-Schattenfotografie für Fokussierung eines Gauß-Profiles im Glasvolumen dargestellt. Für eine optimierte Darstellung der relativen Transmissionsänderung bzw. der freien Elektronendichte, wird der Kontrast der ausgewerteten Bilder gegebenenfalls maximiert, indem die obere bzw. untere Grenze der Graustufenskala angepasst wird. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit wird aufgrund dessen die Graustufenskala jeweils in den ausgewerteten Messungen angegeben. Durch leichte Vibrationen des Versuchsaufbaus können trotz Auswertungsmethode Bildartefakte auftreten. Aufgrund dessen werden gegebenenfalls die Messungen hinreichend oft wiederholt.

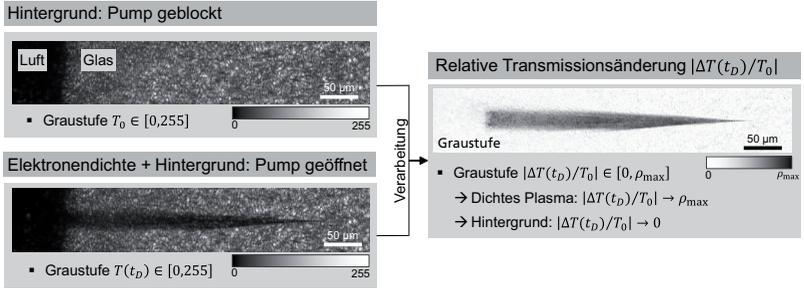


Abbildung 4.5 – Schematische Darstellung des Vorgehens zur Auswertung der mittels Pump-Probe-Schattenfotografie akquirierten Messdaten zur Berechnung der relativen Transmissionsänderung bzw. der freien Elektronendichte.

4.2 Energiedeposition mit minimaler Puls-Plasma-Wechselwirkung

In diesem Abschnitt wird die räumliche Energiedeposition mit einem Gauß-Profil für Fokussierung in das Glasvolumen mit einer minimalen Puls-Plasma-Wechselwirkung für die Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs analysiert. In Abschnitt 4.2.1 wird zeitaufgelöst die Erzeugung einer freien Elektronendichte dargestellt und Zeitregime der Anregungs- und Relaxationsdynamik identifiziert. In Abschnitt 4.2.2 werden auftretende nicht-lineare Propagationsphänomene diskutiert und anschließend in Abschnitt 4.2.3 die Abhängigkeit der räumlichen Energiedeposition von der Intensität I_0 durch die Identifikation von charakteristischen Intensitätsregimen diskutiert. Abschließend wird in Abschnitt 4.2.4 quantitativ die Amplitude und die Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition quantifiziert und durch Identifikation der Korrelation der beiden Größen die Möglichkeiten der Kontrolle der Energiedeposition für eine minimalen Puls-Plasma-Wechselwirkung für die Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs erarbeitet.

4.2.1 Dynamik der Energiedeposition und Identifikation von Zeitregimen

In Abb. 4.6 ist die zeitliche Entwicklung der Erzeugung einer freien Elektronendichte für Verwendung eines räumlichen Gauß-Profiles mit $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs für eine Pulsenergie $E_P = 30 \mu\text{J}$ durch zeitaufgelöste Pump-Probe-Schattenfotografie für Zeitpunkte $t_D \leq 10$ ps dargestellt. Dies entspricht einer Spitzenintensität im Fokusbereich $I_0 = 595 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ berechnet für Fokussierung in Luft. Die Intensität ist so gewählt, dass nicht-lineare Effekte wie beispielsweise Selbstfokussierung auftreten können [19, 98]. Die Pulsspitzenleistung im Fokusbereich beträgt $P_0 = I_0 \pi w_0^2 = 316$ MW, sodass die notwendige kritische Pulsspitzenleistung für das Einsetzen von Selbstfokussierung $P_{\text{crit}} = 3,77 \lambda^2 / (8\pi n_0 n_2) = 3,3$ MW überschritten ist, wobei $n_2 = 2 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ den nicht-linearen Brechungsindex bezeichnet [95, 99].

Auf Grundlage der zeitlichen Entwicklung der freien Elektronendichte werden drei cha-

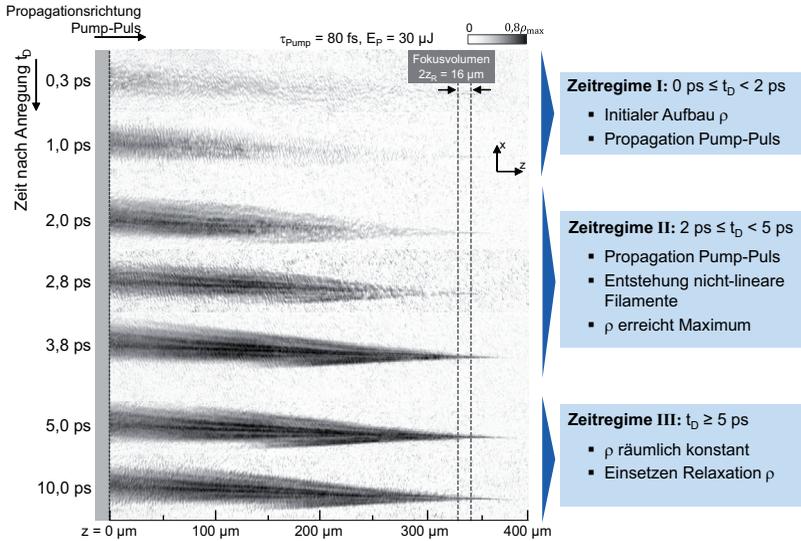


Abbildung 4.6 – Räumliche Energiedeposition und Identifikation von Zeitregimen der Erzeugung und Relaxation einer freien Elektronendichte im Glasvolumen für die Verwendung eines Gauß-Profiles mit $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs, $E_P = 30$ μJ , $w_0 = 1,3$ μm , Intensität im Fokus $I_0 = 595 \cdot 10^{13}$ W/cm² für Fokussierung in Luft. Zeitauflösung $\tau_{\text{Probe}} = 80$ fs.

rakteristische Zeitregime identifiziert, die im Folgenden einhergehend mit der phänomenologischen Analyse der räumlichen Energiedeposition beschrieben werden. In Zeitregime I ($t_D \leq 2$ ps) findet der initiale Aufbau der freien Elektronendichte und die Propagation des Pump-Pulses durch das Glasvolumen statt. Die Erzeugung einer freien Elektronendichte wird initial bei $t_D = 0,3$ ps an der Eintrittsseite beobachtet. Die lokale Intensität der Laserstrahlung an der Eintrittsseite des Glasvolumens ist bereits so groß, dass die Intensitätsschwelle für das Einsetzen von nicht-linearen Ionisationsprozessen überschritten ist und infolgedessen eine freie Elektronendichte erzeugt wird. Die freie Elektronendichte absorbiert über inverse Bremsstrahlung einen Großteil der Pulsenergie des Pump-Pulses, sodass die Energiedeposition räumlich bereits deutlich vor dem Fokusvolumen stattfindet.

Im Zeitregime II (2 ps $\leq t_D < 5$ ps) findet der vollständige Aufbau der freien Elektronendichte bis zum Fokusvolumen durch die Propagation des Pump-Pulses statt. Darüber hinaus werden Filamente beobachtet, die jeweils ein lokales Maximum der räumlichen freien Elektronendichte darstellen. Die Filamente treten initial für $t_D = 2$ ps auf und bilden sich bis $t_D = 3,8$ ps aus. Die Filamente können durch nicht-lineare Propagationseffekte Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung erklärt werden, die im nächsten Abschnitt 4.2.2 diskutiert werden.

Die Erzeugung einer freien Elektronendichte hinter dem Fokusvolumen ($z \gtrsim 335$ μm) wird nicht festgestellt, da die Energiedeposition im Wesentlichen vor dem Fokusvolumen $z \lesssim 335$ μm stattfindet. Vergleichbare Ergebnisse werden in [66, 70] berichtet. Im Folgenden wird spezifisch auf die Ergebnisse eingegangen, die für das Verständnis des weiteren Vorgehens zur Quantifizierung der räumlichen Energiedeposition notwendig sind. Für eine

Abschätzung der anteiligen Energiedeposition innerhalb des Fokusbereichs in Bezug zur gesamten Energiedeposition, wird für die freie Elektronendichte zum Zeitpunkt $t_D = 3,8$ ps die Transmissionsänderung $\Delta T(x, z)/T_0$ für jede z -Position über alle laterale Positionen x summiert. Die ermittelten Werte sind in Abb. 4.7 (a) in Abhängigkeit der z -Position dargestellt. Die Transmissionsänderung innerhalb der Fokusbereichslänge $z_F = 2z_R$ (rot markiert) beträgt circa 1% der gesamten Transmissionsänderung, sodass abgeschätzt wird, dass die Energiedeposition zu 99% außerhalb des Fokusbereichs stattfindet.

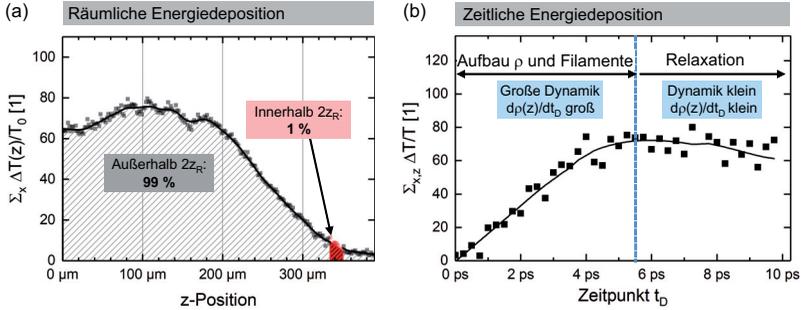


Abbildung 4.7 – (a) Vergleich der Anteile der räumlichen Energiedeposition außerhalb des Fokusbereichs mit der Energiedeposition im Fokusbereich $2z_R$ für eine freie Elektronendichte, die mit $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs, $E_P = 30 \mu\text{J}$, $t_D = 3,8$ ps erzeugt wird. (b) Zeitliche Entwicklung der Energiedeposition und Identifikation der Anregungs- bzw. Relaxationsdynamik für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs, $E_P = 30 \mu\text{J}$ (vgl. Abb. 4.6). Die Linien entsprechen jeweils einer an die Messdaten geglätteten Kurve.

In Zeitregime III ($t_D \geq 5$ ps) ist die räumliche Energiedeposition abgeschlossen und der Relaxationsprozess der freien Elektronendichte beginnt. Für eine quantitative Erfassung der Dynamik der freien Elektronendichte ist in Abb. 4.7 (b) die über alle Positionen (x_i, z_j) integrierten Transmissionsänderung $\Delta T/T_0$ für Zeitpunkte bis $t_D = 10$ ps dargestellt. Bis circa $t_D \approx 5,5$ ps findet eine Vergrößerung der integrierten Transmissionsänderung statt, was zu der Erzeugung der freien Elektronendichte und die Entstehung der Filamente korrespondiert. Für $t_D \geq 5,5$ ps wird eine Verkleinerung der integrierten Transmissionsänderung ermittelt. Die zeitliche Änderung der integrierten Transmissionsänderung ist ein Maß für die Erzeugungs- bzw. Relaxationsdynamik. Aufgrund dessen wird festgestellt, dass die Relaxationsdynamik deutlich kleiner als die Erzeugungsdynamik ist in Übereinstimmung mit vergleichbaren zeitaufgelösten Studien mittels Pump-Probe-Mikroskopie [90, 91, 100]. Zeitpunkte $t_D > 10$ ps werden an dieser Stelle nicht dargestellt, damit die Transmissionsänderung größtenteils durch die erzeugte freie Elektronendichte identifiziert werden kann. Für $t_D > 10$ ps ist nach dem Zwei-Temperatur-Modell ein wesentlicher Anteil der Energie des Elektronensystems an das Phononensystem übertragen worden, siehe Kapitel 2 [1, 47]. Aufgrund dessen kann die Transmissionsänderung für $t_D > 10$ ps sowohl durch weitere Faktoren wie Dichte- und Temperaturänderungen beeinflusst werden.

4.2.2 Nicht-lineare Propagationseffekte: Entstehung von Filamenten

In diesem Abschnitt werden die zugrundeliegenden physikalischen Effekte für die Entstehung der Filamente diskutiert. In der Literatur wird das Auftreten von Filamenten durch Selbstfokussierung aufgrund des optischen Kerr-Effekts sowie einer Defokussierung durch eine große freie Elektronendichte, was im Folgenden als Plasmadefokussierung bezeichnet wird, erklärt [93,101]. In Abb. 4.8 ist für eine repräsentative Messung der Filamente für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und $E_P = 30 \mu\text{J}$ in (a) eine schematische Darstellung der Selbstfokussierung sowie Plasmadefokussierung in (b) dargestellt. Darüber hinaus ist in (c) schematisch die ortsabhängige effektive Brechungsindex gezeigt, der sich aus dem linearen Brechungsindex für Glas n_{Glas} und den Anteilen der Selbstfokussierung $n_2 \cdot I$ und der Plasmadefokussierung n_{PD} zusammensetzt.

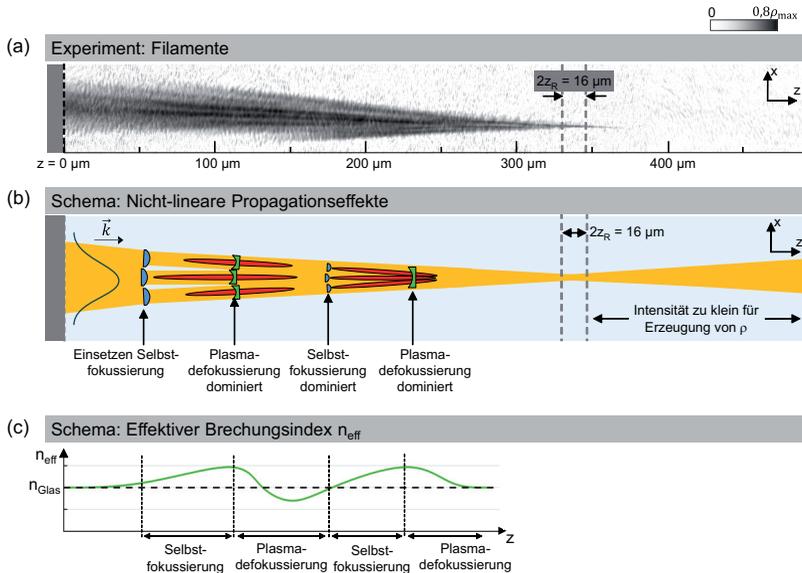


Abbildung 4.8 – Schematische Darstellung der nicht-linearen Propagationseffekte Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung für die Entstehung von Filamenten. (a) Pump-Probe-Schattenfotografie einer erzeugten freien Elektronendichte für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs, $I_0 = 595 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ zum Zeitpunkt $t_D = 4$ ps. (b) Schematische Darstellung der Selbstfokussierung durch den optischen Kerr-Effekt und Plasmadefokussierung. Orange: Laserstrahlung; plan-konvexe Linse: Selbstfokussierung durch den optischen Kerr-Effekt dominiert; rot: Lokales Maximum der freien Elektronendichte; plan-konkave-Linse: Plasmadefokussierung dominiert gegenüber Selbstfokussierung. (c) Schematische Darstellung des ortsabhängigen effektiven Brechungsindex des Materials und der Raumbereiche, bei denen entweder Selbstfokussierung oder Plasmadefokussierung dominieren.

Im Folgenden wird mithilfe von Abb. 4.8 (a), (b) und (c) die Entstehung der Filamente erläutert. Im lateralen Zentrum des Gauß-Profiles wird bei $z = 50 \mu\text{m}$ eine so große Intensität erreicht, dass durch den optischen Kerr-Effekt eine lokale Vergrößerung des Brechungsindex induziert wird, siehe Schema in (c). Aufgrund dessen werden einzelne Teil-

strahlbündel der Laserstrahlung stärker fokussiert (schematisch dargestellt in (b) durch eine plan-konvexe Linse). In den einzelnen, fokussierten Strahlbündeln wird jeweils eine so große freie Elektronendichte erzeugt, dass die Selbstfokussierung durch die defokussierenden optischen Eigenschaften der freien Elektronendichte die Laserstrahlung kompensiert wird (schematisch dargestellt in (b) durch eine plan-konkave Linse). Folglich verkleinert sich die freie Elektronendichte und aufgrund des Kerr-Effekts findet anschließend erneut Selbstfokussierung statt. Durch die Alternierung beider Effekte entsteht ein selbstorganisiertes, geradliniges Filament [101]. Durch die Absorption der Laserstrahlung bereits deutlich vor dem Fokusbereich verkleinert sich die lokale Intensität der Laserstrahlung, sodass die erzeugte freie Elektronendichte im Fokusbereich vergleichsweise klein ist.

4.2.3 Intensitätsregime der räumlichen Energiedeposition

Im Folgenden wird die Abhängigkeit der räumlichen Energiedeposition von der Intensität I_0 der Laserstrahlung für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs untersucht. Dabei soll insbesondere ein Intensitätsregime ermittelt werden, für das eine Energiedeposition möglichst nur im Fokusbereich der Laserstrahlung stattfindet.

Für die Erzeugung der freien Elektronendichte werden Spitzenintensitäten im Bereich von $I_0 = 6 \cdot 10^{13}$ bis $595 \cdot 10^{13}$ W/cm² verwendet, wobei die kleinste Intensität empirisch so gewählt wird, dass gerade noch eine freie Elektronendichte detektiert werden kann. Als Zeitpunkt t_D wird für alle Intensitäten $t_D = 6$ ps gewählt, sodass die Propagation des Pump-Pulses durch das Glasvolumen vollständig abgeschlossen ist und eine weitere Erzeugung einer freien Elektronendichte sowie eine signifikante Puls-Plasma-Wechselwirkung vernachlässigt werden kann. Darüber hinaus spielt die Relaxation der freien Elektronendichte durch die vergleichsweise kleine Dynamik für $t_D \sim 10$ ps eine untergeordnete Rolle, siehe Abb. 4.7. Die erzeugte freie Elektronendichte für die verschiedenen Intensitäten ist jeweils in Abb. 4.9 dargestellt.

Für die kleinste verwendete Intensität $I_0 = 6 \cdot 10^{13}$ W/cm² wird eine freie Elektronendichte näherungsweise ausschließlich im Fokusbereich erzeugt, sodass die Lokalisierung der Energiedeposition in Bezug auf das Fokusbereich groß ist, während die freie Elektronendichte insgesamt klein ist. Eine quantitative Beschreibung der Amplitude und der räumlichen Lokalisierung der Energiedeposition erfolgt im nächsten Abschnitt. Für eine Vergrößerung der Intensität $I_0 = 20$ bis $60 \cdot 10^{13}$ W/cm² wird eine freie Elektronendichte vor dem Fokusbereich erzeugt, wobei sich die Energiedeposition insgesamt vergrößert. Für Intensitäten $I_0 \geq 218 \cdot 10^{13}$ W/cm² wird eine freie Elektronendichte bereits an der Eintrittsseite des Glasvolumens erzeugt und Filamente treten auf. Anhand der Beobachtungen werden drei Intensitätsregime identifiziert, mit denen die charakteristische Energiedeposition für die Verwendung eines Gauß-Profiles charakterisiert wird.

Im Intensitätsregime I findet die Energiedeposition im Fokusbereich statt. Die Energiedeposition ist hoch lokalisiert während die Amplitude kleine Werte aufweist. Im Intensitätsregime II findet die Energiedeposition vor dem Fokusbereich mit einer kleinen Amplitude statt. Im Intensitätsregime III findet die Energiedeposition über eine noch größere Distanz statt und Filamente treten auf, sodass die Lokalisierung der Energiedeposition insgesamt sehr klein und die Amplitude groß ist.

Im nächsten Abschnitt wird die qualitative Beschreibung der räumlichen Energiede-

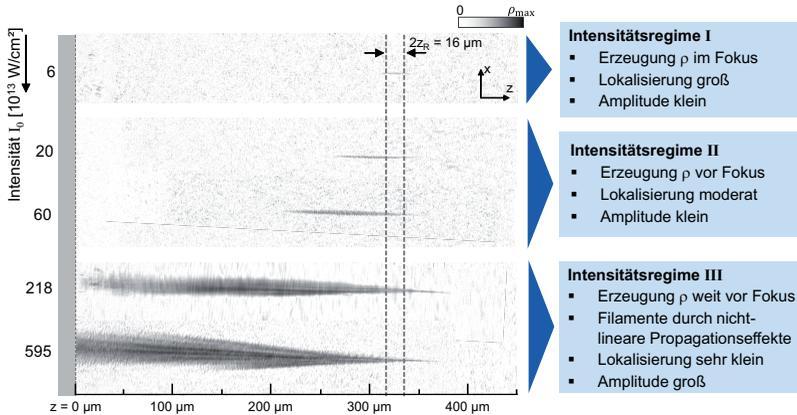


Abbildung 4.9 – Erzeugung ein freien Elektronendichte in Abhängigkeit der Intensität I_0 circa $t_D = 6$ ps nach der initialen Anregung mit $T_{\text{pump}} = 80$ fs. Die Ergebnisse werden in drei Intensitätsregime I bis III eingeteilt, die unterschiedliche Phänomene der räumlichen Energiedeposition aufweisen. Die Lage und Ausdehnung des Fokusvolumens $2z_R = 16 \mu\text{m}$ ist mit gestrichelten Linien markiert.

position für die in Abb. 4.9 dargestellten Intensitätsregime quantitativ aufgearbeitet und dabei die Amplitude sowie die Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition definiert. Die Amplitude und Lokalisierung werden im weiteren Verlauf dieser Arbeit als quantitative Vergleichsgrößen zur Bewertung der Energiedeposition verwendet. Die Größen stellen dabei ein Maß für die freien Elektronendichte bzw. die räumlichen Verteilung der freien Elektronendichte in Bezug auf die Intensitätsverteilung dar.

4.2.4 Amplitude und Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition

In diesem Abschnitt wird das Vorgehen zur quantitativen Analyse der räumlichen Energiedeposition vorgestellt. Dazu werden die sogenannte Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition definiert, die ein Maß für den Wert und die räumliche Verteilung der freien Elektronendichte darstellen.

Im ersten Schritt wird für jede longitudinale Position z eine Gauß-Funktion an die relative Transmissionsänderung $\Delta T(x, z)/T_0$ bzw. die freie Elektronendichte $\rho(x, z)/\rho_{\text{max}}$ angepasst und der Wert im lateralen Zentrum $\Delta T(x = 0, z)$ sowie die laterale Breite w_ρ der freien Elektronendichte¹³ ermittelt. In Abb. 4.10 ist für die Intensitäten $I_0 = 6$ bis $595 \cdot 10^{13}$ W/cm² aus dem vorherigen Abschnitt (siehe Abb. 4.9) die so ermittelte freie Elektronendichte ρ sowie die Breite der Elektronendichte w_ρ für z -Positionen von $z = 0$ bis $400 \mu\text{m}$ dargestellt. Zusätzlich ist der berechnete Strahlradius $w(z) = w_0 \sqrt{1 + (z - z_0)^2/z_R^2}$ des fokussierten Gauß-Profiles im Glasvolumen dargestellt. Für eine ausführliche qualitative Beschreibung der ermittelten Daten in Abb. 4.10 (a) und (b) wird auf den vorherigen Abschnitt 4.2.3 verwiesen.

¹³Definiert als „Full Width Half Maximum“ (FWHM) des Maximalwertes

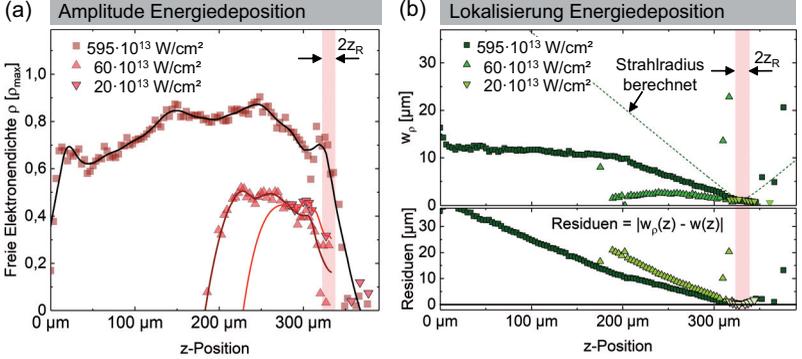


Abbildung 4.10 – Freie Elektronendichte ρ im lateralen Zentrum freier Elektronendichte $x = 0$ (a) und Breite der freien Elektronendichte w_ρ (b) in Abhängigkeit der z -Position für verschiedene Intensitäten für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ bei $l_D = 6 \text{ ps}$ (vgl. Abb. 4.9) zur Ermittlung der Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition. Zusätzlich ist in (b) der Strahlradius $w(z)$ dargestellt. Für die Quantifizierung der Abweichung der Breite der freien Elektronendichte $w_\rho(z)$ vom berechneten Strahlradius $w(z)$ sind in (b) zusätzlich die Residuen dargestellt.

Im zweiten Schritt wird die Amplitude der Energiedeposition berechnet, indem die ermittelte freie Elektronendichte ρ/ρ_{\max} über alle longitudinale Positionen z summiert und anschließend durch die maximale Ausdehnung der freien Elektronendichte in z -Richtung l_ρ geteilt wird, siehe Gleichung 4.2.

$$\text{Amplitude} \equiv \hat{A} = \left(\sum_{i=1}^{l_\rho} \Delta T(x=0, z_i)/T_0 \right) / l_\rho \quad (4.2)$$

Die Amplitude entspricht demnach der mittleren freien Elektronendichte normiert auf die maximale freie Elektronendichte ρ_{\max} in Bezug auf die longitudinale Ausdehnung l_ρ . Je größer der Wert der Amplitude, desto größer ist die freie Elektronendichte in Bezug auf die Ausdehnung in z -Richtung l_ρ . Für eine maximale Energiedeposition konvergiert die Amplitude gegen den Maximalwert der freien Elektronendichte ρ_{\max} .

Zur Berechnung der Lokalisierung der Energiedeposition wird zunächst für jede longitudinale Position z_i der Betrag von der Differenz der Breite der freien Elektronendichte $w_\rho(z_i)$ und der Breite der Intensitätsverteilung $w(z_i)$ berechnet. Die resultierenden Residuen $|w_\rho(z_i) - w(z_i)|$ sind exemplarisch in Abb. 4.10 (b) unten dargestellt. Anschließend werden die ermittelten Residuen über alle Positionen z_i summiert und der resultierende Wert mit -1 multipliziert, damit große Werte einer hohen Lokalisierung bzw. kleine Werte einer kleinen Lokalisierung entsprechen, siehe Gleichung 4.3.

$$\text{Lokalisierung} \equiv \hat{L} = -1 \cdot \sum_{i=1}^{l_\rho} |w_\rho(z_i) - w(z_i)| \quad (4.3)$$

Für eine maximale Lokalisierung der Energiedeposition konvergiert der Wert der Lokalisierung demnach gegen 0, sodass die transversale Breite der freien Elektronendichte $w_\rho(z)$ im Wesentlichen der Breite der Intensitätsverteilung $w(z)$ an allen z -Positionen entspricht,

an denen die Energiedeposition stattfindet.

Hierbei sei angemerkt, dass durch die Definition der Amplitude und Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition in zwei skalaren Werten ein Informationsverlust über einzelne Phänomene der räumlichen Energiedeposition resultiert. Beispielsweise werden die Filamente (siehe Abschnitt 4.2.2) aufgrund der Definition von Amplitude und Lokalisierung nur indirekt berücksichtigt. Im weiteren Verlauf werden die auftretenden Phänomene in den quantitativen Auswertungen qualitativ aufgegriffen.

Die quantitativ erfassten Werte der Amplitude und Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition mit einem Gauß-Profil mit minimaler Puls-Plasma-Wechselwirkung für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs sind in Abb. 4.11 für die verwendeten Intensitäten von $I_0 = 6$ bis $595 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ zusammengefasst. Als Maß für eine präzise Energiedeposition werden Werte mit $\hat{L} > -1$ markiert. Für eine große Amplitude bzw. Effizienz der Energiedeposition sollen für die Amplitude Werte $\hat{A} \geq 0,6$ erreicht werden.

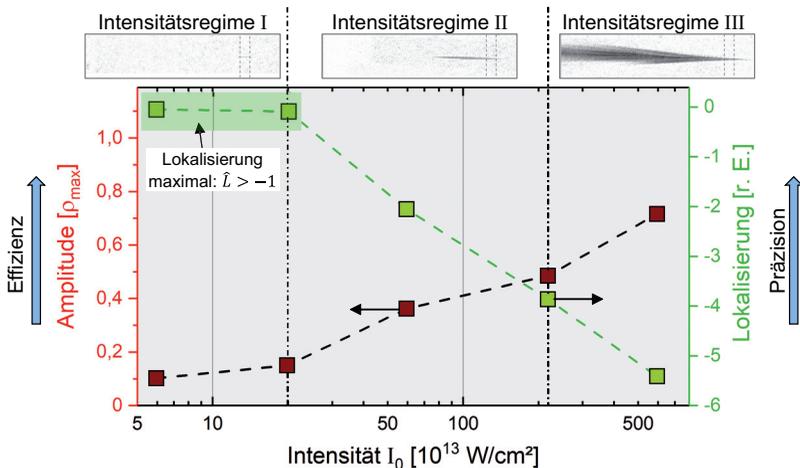


Abbildung 4.11 – Amplitude und Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition für die Verwendung eines Gauß-Profiles mit minimaler Puls-Plasma-Wechselwirkung $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs für Intensitäten $I_0 = 6$ bis $595 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$. Im markierten Bereich befinden sich Messwerte, die einer hoch lokalisierten Energiedeposition entsprechen. Zusätzlich sind die Intensitätsregime I bis III dargestellt, die in Abschnitt 4.2.3 definiert sind.

Für Intensitäten im Intensitätsregime I findet die räumliche Energiedeposition im Wesentlichen im Fokusbereich statt, sodass eine hohe Lokalisierung $\hat{L} > -1$ resultiert. Die Amplitude ist mit $\hat{A} \approx 0,1$ klein. Für eine Vergrößerung der Intensität vergrößert sich im Intensitätsregime II die Amplitude bis $\hat{A} \approx 0,4$, während durch Plasmadefokussierung die Lokalisierung $\hat{L} < -1$ kleiner wird. Für eine weitere Vergrößerung der Intensität findet im Intensitätsregime III aufgrund der Filamente eine weitere Verkleinerung der Lokalisierung statt, während sich die Amplitude auf $\hat{A} \approx 0,7$ vergrößert.

Insgesamt bedingt die Verwendung größerer Intensitäten zur Vergrößerung der Amplitude der Energiedeposition eine Verkleinerung der Lokalisierung aufgrund der Erzeugung einer freien Elektronendichte deutlich vor dem Fokusbereich, was qualitativ in Abb. 4.9

gezeigt ist. Somit sind die Amplitude der Energiedeposition und die Lokalisierung durch das räumliche Strahlprofil korreliert. Für eine Vergrößerung der Amplitude geht stets eine Verkleinerung der Lokalisierung einher. Die Möglichkeiten der Kontrolle der Amplitude und Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition sind demnach für die Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs eingeschränkt.

4.2.5 Zusammenfassung

Im Folgenden werden die Ergebnisse der räumlichen Energiedeposition für die Verwendung eines Gauß-Profiles mit einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs in Hinblick auf die eingangs definierte Ziele zusammengefasst:

- Hinsichtlich der Zeitskalen der Erzeugung und Relaxation der freien Elektronendichte werden drei Zeitregime identifiziert: Im Zeitregime I findet die initiale Erzeugung der freien Elektronendichte sowie die Propagation des Laserpulses durch das Glasvolumen statt. Im Zeitregime II findet während der weiteren Propagation des Pulses die Ausbildung von Filamenten statt und die freie Elektronendichte ist maximal. Im Zeitregime III ist die Erzeugung abgeschlossen und Relaxation setzt ein, was zu einer Verkleinerung der freien Elektronendichte führt.
- Die Dynamik der Erzeugung der freien Elektronendichte (Größenordnung der Erzeugung ~ 5 ps) ist größer als die die Dynamik der Relaxation (Größenordnung ~ 100 ps in Übereinstimmung mit [90]).
- Auftretende Filamente werden durch die intensitätsabhängigen, nicht-linearen Effekte Selbstfokussierung durch den optischen Kerr-Effekt sowie Plasmadefokussierung erklärt.
- Die räumliche Energiedeposition wird in drei Intensitätsregime eingeteilt: Im Intensitätsregime I findet die Energiedeposition hoch lokalisiert im Fokusvolumen mit kleiner Amplitude statt. Im Intensitätsregime II findet aufgrund der größeren Intensität eine Energiedeposition bereits vor dem Fokusvolumen statt, sodass sich die Lokalisierung verkleinert und die Amplitude vergrößert. Im Intensitätsregime III vergrößert sich die Amplitude weiter während die Lokalisierung durch das Auftreten von Filamenten sich signifikant verkleinert.
- Das räumlichen Gauß-Profil bedingt eine lineare Korrelation von Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition: Für eine Vergrößerung der Amplitude verkleinert sich stets die Lokalisierung.

Für eine minimale Puls-Plasma-Wechselwirkung $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs müssen für die Erzeugung einer hinreichend großen Elektronendichte $\hat{A} > 0,5$ aufgrund der ausgeprägten Energiedeposition vor dem Fokusvolumen so große Intensitäten verwendet werden, dass nicht-lineare Phänomene Selbstfokussierung sowie Plasmadefokussierung zur Ausbildung von Filamenten führen. Folglich wird die Lokalisierung der Energiedeposition signifikant verkleinert. Aufgrund dessen soll im nächsten Schritt die notwendige Intensität zur Erzeugung einer freien Elektronendichte verkleinert werden, indem die Puls-Plasma-Wechselwirkung durch eine Vergrößerung der Pulsdauer τ_{Pump} eingestellt wird, siehe Kapitel 3.

4.3 Energiedeposition für eine Vergrößerung der Puls-Plasma-Wechselwirkung

Für eine Vergrößerung der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch Einstellen der Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps wird aufgrund der dominanten Avalanche-Ionisation die notwendige Intensität zur Erzeugung einer freien Elektronendichte größer als die kritische Elektronendichte ρ_{crit} verkleinert, siehe Kapitel 3. Aufgrund dessen können bei geeigneter Wahl der Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P intensitätsabhängige Phänomene wie das Entstehen von Filamenten vermieden werden, sodass die Lokalisierung der Energiedeposition im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs prinzipiell vergrößert werden kann.

In diesem Abschnitt wird die räumliche Energiedeposition für die Verwendung eines räumlichen Gauß-Profil für die Fokussierung in das Glasvolumen für eine vergrößerte Puls-Plasma-Wechselwirkung mit $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps quantitativ erfasst. Dabei wird insbesondere auf Unterschiede zu der Energiedeposition für eine minimale Puls-Plasma-Wechselwirkung $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs aus dem vorherigen Abschnitt eingegangen. In Abschnitt 4.3.1 wird die Änderung der initialen Anregungsdynamik der freien Elektronendichte in Abhängigkeit der Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung erfasst und die Auswirkung auf die Zeitskalen der Erzeugung bzw. Relaxation evaluiert. In Abschnitt 4.3.2 wird für ausgewählte Pulsdauern τ_{Pump} die Änderung der räumlichen Energiedeposition für eine Variation der Intensität I_0 beschrieben. In Abschnitt 4.3.3 werden die Amplitude und die Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition quantitativ analysiert, um die Korrelation von Amplitude und Lokalisierung zu erfassen sowie die Möglichkeit einer präzisen und effizienten Energiedeposition für die Verwendung eines räumlichen Gauß-Profiles zu evaluieren.

4.3.1 Dynamik der Energiedeposition und Identifikation von Zeitregimen

In diesem Abschnitt wird die Dynamik der Erzeugung einer freien Elektronendichte im Glasvolumen orts- und zeitaufgelöst für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps erfasst. Dabei wird insbesondere die Anregungsdynamik der freien Elektronendichte analysiert und die Änderung der Zeitregime der Anregungs- und Relaxationsdynamik in Abhängigkeit von der Puls-Plasma-Wechselwirkung bzw. der Pulsdauer τ_{Pump} diskutiert.

In Abb. 4.12 ist die zeitliche Entwicklung der Erzeugung einer freien Elektronendichte mit einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 5$ ps für eine Pulsenergie $E_P = 30 \mu\text{J}$ für Zeitpunkte bis $t_D = 13$ ps dargestellt. Die Spitzenintensität für Fokussierung in Luft beträgt $I_0 = 4,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$, sodass für den Strahlradius $w_0 = 1,3 \mu\text{m}$ eine Pulsspitzenleistung von $P_0 = 2,4 \text{ MW}$ resultiert, die kleiner als die notwendige Pulsspitzenleistung für nicht-lineare Selbstfokussierung $P_{\text{crit}} = 3,3 \text{ MW}$ ist, siehe Abschnitt 4.2.3. Aufgrund dessen kann das Auftreten von Filamenten prinzipiell vermieden werden.

Die initiale Erzeugung der freien Elektronendichte wird im Gegensatz zu $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs im Fokusbereich zum Zeitpunkt $t_D = 0,3$ ps beobachtet. Für Zeitpunkte bis $t_D = 1,8$ ps findet eine weitere Erzeugung räumlich vor dem Fokusbereich in $-z$ -Richtung entgegen der Propagationsrichtung des Pump-Pulses statt. Für $1,8 \leq t_D \leq 4,8$ ps findet die Er-

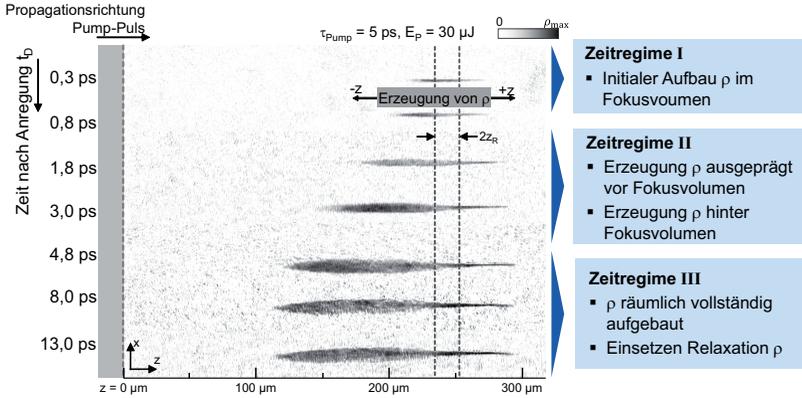


Abbildung 4.12 – Räumliche Energiedeposition und Identifikation von Zeitregimen der Erzeugung und Relaxation einer freien Elektronendichte im Glasvolumen für ein Gauß-Profil mit $\tau_{\text{Pump}} = 5 \text{ ps}$, $E_P = 30 \mu\text{J}$, $w_0 = 1,3 \mu\text{m}$, Spitzenintensität $I_0 = 4,5 \cdot 10^{13} \text{ W/cm}^2$ für Fokussierung in Luft.

zeugung der freien Elektronendichte sowohl in $+z$ - als auch in $-z$ -Richtung statt, wobei die Ausdehnung in $-z$ -Richtung größer als in $+z$ -Richtung ist. Für $t_D > 4,8 \text{ ps}$ ist die freie Elektronendichte räumlich vollständig aufgebaut und eine große freie Elektronendichte wird insbesondere in der Umgebung des Fokusbvolumens festgestellt. Für größere Zeitpunkte t_D setzt Relaxation ein.

Die Dynamik der Erzeugung und Relaxation für $\tau_{\text{Pump}} = 5 \text{ ps}$ kann im Wesentlichen in die Zeitregime aus Kapitel 4.2.3 eingeordnet werden. Die initiale Anregung findet im Zeitregime I statt. Im Zeitregime II findet für $\tau_{\text{Pump}} = 5 \text{ ps}$ durch die Propagation der Laserstrahlung durch das Glasvolumen die Erzeugung der freien Elektronendichte sowohl in $+z$ - als auch in $-z$ -Richtung statt. Im Zeitregime III für $t_D > 4,8 \text{ ps}$ ist die Erzeugung der freien Elektronendichte abgeschlossen und Relaxation mit einer vergleichsweise kleinen Dynamik in Bezug auf die initiale Anregungsdynamik setzt ein. Eine weitere Puls-Plasma-Wechselwirkung wird auf dieser Zeitskala aufgrund der auftretenden Relaxation ausgeschlossen.

Eine Interpretation der unterschiedlichen Richtungen der Erzeugung der freien Elektronendichte ist über das sogenannte „moving breakdown“-Modell möglich [102, 103], das im Folgenden vorgestellt wird. Durch die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 5 \text{ ps}$ ist der Laserpuls räumlich in longitudinaler z -Richtung mit $l_r = \tau_{\text{Pump}} \cdot c_0 = 1500 \mu\text{m}$ um mehr als zwei Größenordnungen länger als für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ mit $l_r = 24 \mu\text{m}$ ¹⁴. Infolgedessen kann eine hinreichend große Intensität im Fokusbvolumen der Laserstrahlung bereits durch die zeitlich steigende Flanke der Laserstrahlung resultieren, die zu einer Erzeugung einer freien Elektronendichte führt. Für spätere Zeitpunkte propagiert das zeitliche Pulsmaximum in $+z$ -Richtung zum geometrischen Fokus, sodass vor dem Fokusbvolumen durch die größere Intensität eine freie Elektronendichte erzeugt wird. Die Laserstrahlung wird zum größten Teil vor dem Fokusbvolumen absorbiert, sodass die Intensitätsschwelle an longitudinalen Positionen hinter dem Fokus nicht überschritten wird und infolgedessen die räumliche Ausdehnung der

¹⁴Für Fokussierung in Luft

freien Elektronendichte an longitudinalen Positionen vor dem Fokusvolumen größer als hinter dem Fokusvolumen ist.

Im Folgenden wird die Dynamik der Erzeugung und Relaxation der freien Elektronendichte quantitativ erfasst. In Abb. 4.13 ist die über alle Position (x_i, z_j) summierte Transmissionsänderung $\Delta T/T_0$ in Abhängigkeit des Zeitpunktes t_D für Pulsdauern von $\tau_{\text{Pump}} = 0,5, 1$ und 5 ps dargestellt, wobei jeweils eine Pulsenergien $E_P = 30 \mu\text{J}$ verwendet wird.

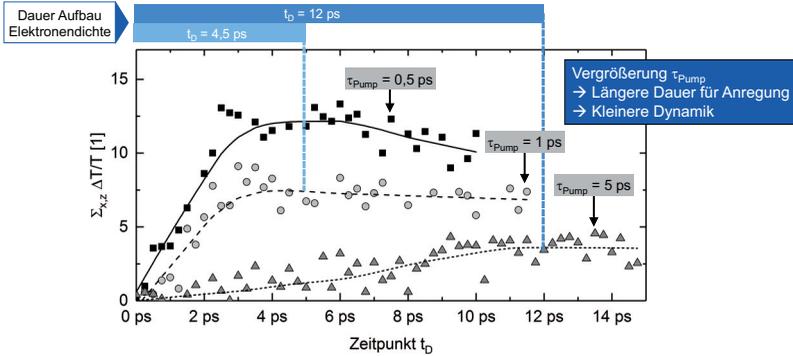


Abbildung 4.13 – Zeitliche Entwicklung der räumlich integrierten Energiedeposition und Identifikation der Anregungs- bzw. Relaxationsdynamik in Abhängigkeit der Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 0,5, 1$ und 5 ps. Die Pulsenergie beträgt jeweils $E_P = 30 \mu\text{J}$. Die Linien entsprechen jeweils an die Messdaten geglättete Kurven.

Die Erzeugung der freien Elektronendichte findet für $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ und 1 ps im Rahmen der Messgenauigkeit bis etwa $t_D = 4,5$ ps statt und ist im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs um etwa $\Delta t_D = 1$ ps kleiner. Dies kann durch die Vermeidung von Filamenten erklärt werden, deren Erzeugung verzögert im Zeitregime II beginnt und dadurch zu einem späteren Zeitpunkt t_D abgeschlossen ist. Für $\tau_{\text{Pump}} = 5$ ps wird die Erzeugung der freien Elektronendichte bis $t_D = 12$ ps beobachtet, was durch die ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung durch die räumliche Ausdehnung des Pulses $l_r = 1500 \mu\text{m}$ erklärt werden kann. Die Relaxationsdynamik ist für alle τ_{Pump} im Vergleich zur Erzeugungsdynamik klein. Für $\tau_{\text{Pump}} = 9$ ps (nicht dargestellt) ist die Erzeugungs- und Relaxationsdynamik im Rahmen der Messgenauigkeit vergleichbar mit $\tau_{\text{Pump}} = 5$ ps. Durch die unterschiedliche Dynamik der Erzeugung der freien Elektronendichte in Abhängigkeit der Pulsdauer τ_{Pump} unterscheiden sich die zu betrachtenden Zeitpunkte t_D nach der initialen Anregung in Abhängigkeit der Pulsdauer τ_{Pump} , um die gesamte räumliche Energiedeposition analysieren zu können. Für längere Pulsdauern müssen tendenziell spätere Zeitpunkte t_D analysiert werden.

4.3.2 Energiedeposition für eine Variation der Puls-Plasma-Wechselwirkung

In diesem Abschnitt wird die räumliche Energiedeposition in Abhängigkeit der Puls-Plasma-Wechselwirkung beschrieben. Dazu wird die Pulsdauer von $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ bis 9 ps variiert und der Einfluss auf die Änderung der räumlichen Energiedeposition analysiert. Die verwendeten Pulsenergien E_P werden so gewählt, dass eine Energiedeposition entsprechend der Intensitätsregime I und II aus Abschnitt 4.2.3 realisiert wird. Zum einen findet die Energiedeposition größtenteils im Fokusbolumen statt (Intensitätsregime I) und zum anderen außerhalb des Fokusbolumens mit einer größeren Amplitude (Intensitätsregime II).

In Abb. 4.14 ist die erzeugte freie Elektronendichte für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 0,5, 1, 5$ und 9 ps dargestellt. Die Zeitpunkte t_D werden in Abhängigkeit der Pulsdauer im Intervall $5 \text{ ps} \leq t_D \leq 12 \text{ ps}$ gewählt, um die vollständige erzeugte freie Elektronendichte zu analysieren, ohne dass eine signifikante Relaxation eingesetzt hat, siehe Abschnitt 4.3.1.

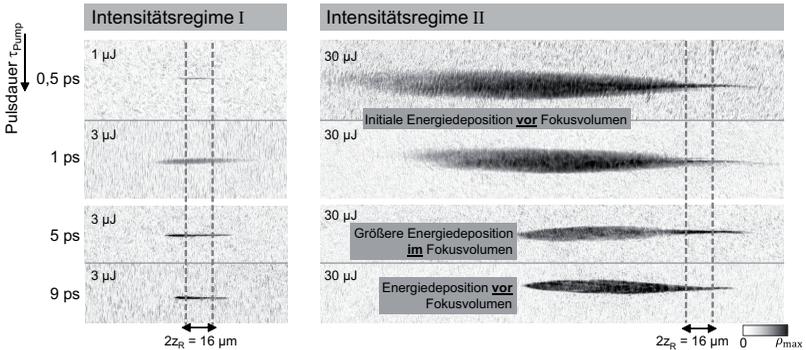


Abbildung 4.14 – Erzeugung einer freien Elektronendichte in Abhängigkeit der Puls-Plasma-Wechselwirkung bzw. Pulsdauer τ_{Pump} für die Intensitätsregime I und II. Die Zeitpunkte t_D entsprechen jeweils der maximalen räumlichen Anregung der freien Elektronendichte, bevor eine signifikante Relaxation einsetzt. Die Propagationsrichtung ist von links nach rechts und die Lage und Ausdehnung des Fokusbolumens $2z_R = 16 \mu\text{m}$ ist als gestrichelte Linie markiert.

Für das Intensitätsregime I wird für $\tau_{\text{Pump}} = 5$ und 9 ps die größte Amplitude der freien Elektronendichte im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ und 1 ps im Fokusbolumen ermittelt. Im Intensitätsregime II ist die räumliche Energiedeposition signifikant von der Pulsdauer τ_{Pump} abhängig. Für $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ und 1 ps findet die Energiedeposition primär vor dem Fokusbolumen statt, was durch die Erzeugung der freien Elektronendichte insbesondere durch das zeitliche Pulsmaximum erklärt wird und vergleichbar mit $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ ist. Für $\tau_{\text{Pump}} = 5$ und 9 ps findet die initiale Erzeugung der freien Elektronendichte im Fokusbolumen statt, analog zu Abb. 4.12. Aufgrund dessen wird im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ und 1 ps eine ausgeprägte Energiedeposition im Fokusbolumen erzielt. Für $\tau_{\text{Pump}} = 9 \text{ ps}$ ist die Energiedeposition vor dem Fokusbolumen im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 5 \text{ ps}$ größer, was einen Hinweis auf eine stärkere Absorption der Laserstrahlung aufgrund einer ausgeprägten Puls-Plasma-Wechselwirkung darstellt. Die zeitliche Dauer der Wechselwirkung von

Puls und freier Elektronendichte ist signifikant größer, sodass Absorption und Reflexion der Laserstrahlung stärker ausgeprägt sind und folglich im Fokusbereich eine kleinere Energiedeposition stattfindet. Die longitudinale Ausdehnung der freien Elektronendichte wird für größere Pulsdauern τ_{Pump} bei gleicher Pulsenergie E_P durch die Verkleinerung der Spitzenintensität I_0 im Allgemeinen reduziert.

Eine präzise Energiedeposition wird für eine Einstellen der Puls-Plasma-Wechselwirkung für eine Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 5$ ps und Spitzenintensitäten I_0 aus dem Intensitätsregime I festgestellt. Für eine Vergrößerung der Amplitude durch Vergrößerung der verwendeten Intensität I_0 (Intensitätsregime II) findet aufgrund des räumlichen Strahlprofils analog zu $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs eine Verkleinerung der Lokalisierung der Energiedeposition statt, da eine freie Elektronendichte deutlich vor dem Fokusbereich erzeugt wird. Im Allgemeinen wird festgestellt, dass eine zu lange Pulsdauer ($\tau_{\text{Pump}} = 9$ ps) aufgrund der ausgeprägten Puls-Plasma-Wechselwirkung zu einer signifikanten Absorption und Reflexion vor dem Fokusbereich führt. Für eine zu kurze Pulsdauer ($\tau_{\text{Pump}} \leq 1$ ps) findet aufgrund der großen Spitzenintensität und der kleineren räumlichen Ausdehnung des Pulses die Erzeugung einer freien Elektronendichte deutlich vor dem Fokusbereich statt.

4.3.3 Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition

Im Folgenden wird die Amplitude und die Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition für die Verwendung eines Gauß-Profiles mit Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ ps bis 9 ps in Abhängigkeit der verwendeten Intensität I_0 analog zu Abschnitt 4.2.4 diskutiert. Die entsprechenden Analysen der freien Elektronendichte $\rho(z)$ und der transversalen Breite $w_\rho(z)$ sind im Anhang in Abb. A.13 dargestellt. Die ermittelten Werte der Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition sind in Abb. 4.15 zusammengefasst.

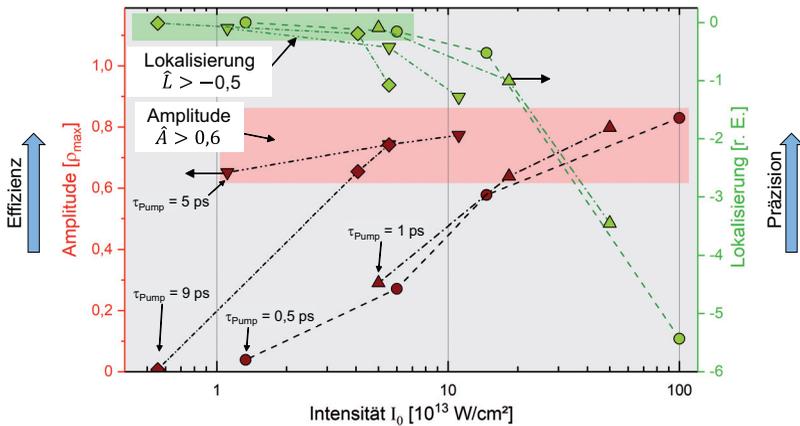


Abbildung 4.15 – Amplitude und Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition für die Verwendung eines Gauß-Profiles für unterschiedliche Puls-Plasma-Wechselwirkung für $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps in Abhängigkeit der Intensität I_0 . In den markierten Bereichen befinden sich Messwerte, für die eine präzise bzw. hohe Amplitude der Energiedeposition ermittelt werden.

Eine hohe Lokalisierung der Energiedeposition $\hat{L} > -0,5$ wird im Allgemeinen für die kleinsten Intensitäten für alle Pulsdauern τ_{Pump} ermittelt, siehe Abb. 4.14. Die Amplitude ist dabei mit $\hat{A} < 0,2$ klein. Für eine Vergrößerung der verwendeten Intensitäten wird eine größere Amplitude bis zu $\hat{A} \approx 0,8$ erzielt auf Kosten der Lokalisierung der Energiedeposition, die sich auf $\hat{L} < -5$ verkleinert. Die Korrelation von Amplitude und Lokalisierung ist aufgrund der räumlichen Strahlform vergleichbar mit $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs. Dieser Zusammenhang zwischen Lokalisierung und Amplitude gilt aufgrund der räumlichen Intensitätsverteilung für alle untersuchten Pulsdauern τ_{Pump} in Übereinstimmung mit Vorhersagen anderer Studien [20, 77]. Durch die Vermeidung von nicht-linearen Effekten zur Entstehung von Filamenten und der Erzeugung einer freien Elektronendichte bereits deutlich vor dem Fokusbereich ist die Lokalisierung der Energiedeposition im Vergleich mit $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs im Allgemeinen größer. Eine weitere Möglichkeit zur Vermeidung von Filamenten wird durch die Fokussierung von räumlich spektral gechirpten Laserpulsen demonstriert, sodass die hohen Intensitäten fast ausschließlich im Fokusbereich erreicht werden und somit Selbstfokussierung sowie Plasmadefokussierung vor dem Fokusbereich vermieden werden können [104].

4.3.4 Zusammenfassung

Die zentralen Ergebnisse der räumlichen Energiedeposition mit einem Gauß-Profil für eine Vergrößerung der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch Vergrößerung der Pulsdauer mit $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps sind im Folgenden zusammengefasst:

- Hinsichtlich der Anregungsdynamik findet für $\tau_{\text{Pump}} \leq 1$ ps die räumliche Erzeugung der freien Elektronendichte analog zu $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs in Propagationsrichtung der Laserstrahlung statt. Demnach folgt die Energiedeposition direkt dem zeitlichen Pulsmaximum.
- Für $\tau_{\text{Pump}} \geq 5$ ps findet aufgrund der räumlichen Ausdehnung des Pulses l_r die initiale Energiedeposition zunächst im Fokusbereich statt und nachfolgend aufgrund der Pulspropagation sowohl entgegen als auch entlang der Propagationsrichtung.
- Die Erzeugung der freien Elektronendichte findet für $\tau_{\text{Pump}} = 5$ und 9 ps bis circa $t_D = 12$ ps nach initialer Anregung statt, sodass die Erzeugungsdynamik für längere Pulsdauern τ_{Pump} kleiner wird und daraus die Puls-Plasma-Wechselwirkung länger andauert.
- Für eine Verwendung von Intensitäten des Intensitätsregimes I, für die eine Erzeugung der freien Elektronendichte nahezu ausschließlich im Fokusbereich stattfindet, wird die größte Amplitude der Energiedeposition für $\tau_{\text{Pump}} = 5$ und 9 ps erzielt.
- Für das Intensitätsregime II findet für $\tau_{\text{Pump}} \leq 1$ ps aufgrund der Anregung mit dem zeitlichen Pulsmaximum eine Energiedeposition im Wesentlichen vor dem Fokusbereich statt. Für $\tau_{\text{Pump}} = 5$ ps wird aufgrund der initialen Energiedeposition im Fokusbereich eine große Amplitude im Fokusbereich erzeugt, während für $\tau_{\text{Pump}} = 9$ ps aufgrund der großen Puls-Plasma-Wechselwirkung ein Großteil der Pulsenergie durch die erzeugte freie Elektronendichte vor dem Fokusbereich absorbiert wird.

Im Vergleich zur Energiedeposition mit einer minimalen Puls-Plasma-Wechselwirkung für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs wird durch die geeignete Wahl von Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P

eine größere Lokalisierung $\hat{L} > -0,5$ der Energiedeposition im Fokusvolumen erzielt, während die Amplitude mit $\hat{A} < 0,7$ (Intensitätsregime I, $\tau_{\text{Pump}} = 5$ ps) moderat ist, siehe Abb. 4.15. Das Entstehen von Filamenten durch die Effekte Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung wird durch die Verwendung kleinerer Pulsspitzenleistungen vermieden. Eine Vergrößerung der Intensität führt für alle verwendeten Pulsdauern τ_{Pump} analog zu $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs aufgrund des räumlichen Gauß-Profiles zu einer Verkleinerung der Lokalisierung der räumlichen Energiedeposition. Das bedeutet insbesondere, dass die Amplitude der Energiedeposition nicht unabhängig von der Lokalisierung eingestellt werden kann.

Die Energiedeposition kann insgesamt durch eine gezielte Anpassung der Puls-Plasma-Wechselwirkung für eine geeignete Wahl von Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P auf die Dimension des Fokusvolumens V_F angepasst werden. Je nach Prozess wie beispielsweise einem Glattrennprozess nach [105] müssen Modifikationen mit transversaler Ausdehnung $\sim 1 \mu\text{m}$ über die Dicke des Glasvolumens ~ 1 mm hergestellt werden. Für die Verwendung eines Gauß-Profiles müssen die einzelnen Modifikationen räumlich sukzessiv kombiniert werden, was mit einer entsprechenden Prozessstrategie prinzipiell möglich ist. Daraus resultiert im Allgemeinen eine große Prozessdauer sowie ein statistisches Auftreten von mikroskopischen Materialdefekten aufgrund von Inkubationseffekten, die je nach Anwendungsgebiet für eine weitere Verwendung ungeeignet sein können.

5 Räumliche Energiedeposition mit einem Bessel-Profil

Um die in Kapitel 4 aufgezeigten Limitierungen der Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition für die Verwendung eines Gauß-Profiles aufzuheben, wird in diesem Kapitel beschrieben, wie durch räumliche Strahlformung ein sogenanntes Bessel-Profil erzeugt werden kann, mit dem die zeitliche Energiedeposition der Laserstrahlung im Glasvolumen angepasst wird. Durch zeitaufgelöste Analyse der Energiedeposition soll ein Verständnis für die physikalischen Zusammenhänge der Laserparameter Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P bzw. Intensität I_0 mit der räumlichen Energiedeposition für das erzeugte Bessel-Profil erarbeitet werden, um die Amplitude und Lokalisierung gezielt einstellen zu können. Das Vorgehen ist in Abb. 5.1 dargestellt.

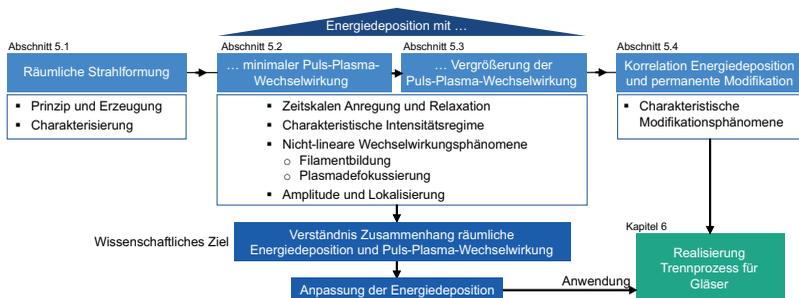


Abbildung 5.1 – Inhalte, Vorgehen und Ziele des Kapitels für die Energiedeposition mit einem Bessel-Profil.

Zunächst wird in Abschnitt 5.1 das Prinzip zur Erzeugung eines Bessel-Profiles, die zentralen charakteristischen Eigenschaften sowie die experimentelle Umsetzung und Charakterisierung des Strahlprofils dargestellt. In Abschnitt 5.2 werden für das erzeugte Bessel-Profil bei einer minimalen Puls-Plasma-Wechselwirkung die Zeitskalen der Anregungsdynamik sowie der Relaxation quantifiziert. In Abhängigkeit der Pulsenergie E_P werden charakteristische Regime der räumlichen Energiedeposition, insbesondere nicht-lineare Effekte Filamententstehung und Plasmadefokussierung identifiziert und charakterisiert sowie die Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition quantifiziert. Anschließend wird in Abschnitt 5.3 durch die Vergrößerung der Puls-Plasma-Wechselwirkung die räumliche Energiedeposition angepasst. Hierbei werden insbesondere Änderungen der relevanten Zeitskalen für die Anregung und Relaxation untersucht sowie der Einfluss der Puls-Plasma-Wechselwirkung auf die nicht-lineare Propagationseffekte erarbeitet. Durch die systematische Analyse der Abhängigkeit der räumlichen Energiedeposition von den Laserparametern werden Regime der Energiedeposition hinsichtlich einer effektiven und präzisen Energiedeposition

osition ermittelt. In Abschnitt 5.4 wird in Hinblick auf einen Laserbearbeitungsprozess in Kapitel 6 die Korrelation der räumlichen Energiedeposition mit permanenten Materialmodifikationen untersucht. Dabei werden in Abhängigkeit der charakteristischen Intensitätsregime der Energiedeposition und der Puls-Plasma-Wechselwirkung verschiedene Modifikationsphänomene ermittelt und diskutiert. Mit den Erkenntnissen wird die Grundlage für einen laserbasierten Trennprozess von Gläsern mit minimaler Materialschädigung erarbeitet, der in Kapitel 6 vorgestellt wird.

5.1 Räumliche Strahlformung: Erzeugung eines Bessel-Profiles und experimentelles Vorgehen

In diesem Abschnitt wird die verwendete Methode zur räumlichen Strahlformung für die Erzeugung eines Bessel-Profiles präsentiert. In Abschnitt 5.1.1 wird zunächst auf das Prinzip zur Erzeugung des Bessel-Profiles eingegangen sowie die grundlegenden Eigenschaften des Bessel-Profiles beschrieben. Des Weiteren wird das verwendete Optiksyste beschrieben und die resultierenden räumlichen Dimensionen des Bessel-Profiles berechnet. In Abschnitt 5.1.2 wird das erzeugte Bessel-Profil experimentell durch Vermessung der räumlichen Intensitätsverteilung in transversaler und longitudinale Dimension charakterisiert. In Abschnitt 5.1.3 wird das experimentelle Vorgehen für die Messungen mittels Pump-Probe-Schattenfotografie mit einem Bessel-Profil erläutert.

5.1.1 Prinzip, charakteristische Eigenschaften und verwendetes Optiksyste

Eine Möglichkeit für die Erzeugung eines Bessel-Profiles ist die Transformation eines Gauß-Profiles mithilfe einer konischen Linse, die als Axicon bezeichnet wird [106]. Weitere Möglichkeiten bestehen durch die Verwendung von sogenannten „Spatial Light Modulatoren“ oder diffraktiven optischen Elemente [107, 108]. Durch die nicht-beugenden Propagationseigenschaften eines Bessel-Profiles wird die Strahlform insbesondere für Anwendungen beispielsweise im Bereich der Medizintechnik für die optische Kohärenztomografie oder im Bereich der Bildgebung für eine Vergrößerung der Tiefenschärfe oder des lateralen Auflösungsvermögens verwendet [109–111]. Im Folgenden wird auf ausgewählte Eigenschaften des Bessel-Profiles eingegangen, die für die Lasermaterialbearbeitung eine vordergründige Rolle spielen.

Die Erzeugung des Bessel-Profiles durch ein Axicon ist schematisch in Abb. 5.2 dargestellt. Die ebenen Wellenfronten des Gauß-Profiles (blau) werden durch die Geometrie der Axiconoberfläche konisch zusammengeführt. In der Region der Überlagerung (rot markiert) wird aufgrund von Interferenz der Wellenfronten das Bessel-Profil erzeugt. Hinter der Region des Bessel-Profiles wird eine divergierende symmetrische, ringförmige Intensitätsverteilung erzeugt.

Die longitudinale Ausdehnung des Bessel-Profiles hinter dem Axicon z_{Pr} ist für eine konstante Wellenlänge λ der Laserstrahlung durch den Basiswinkel θ_{Ax} des Axicons, dem

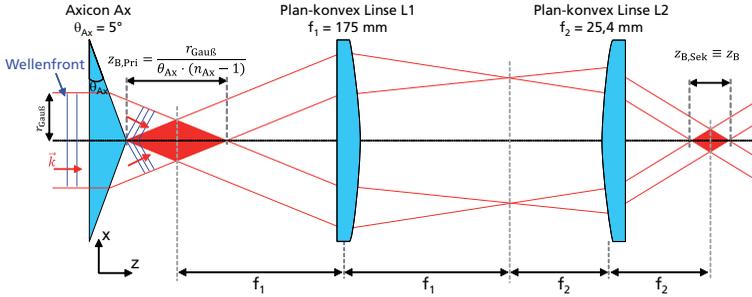


Abbildung 5.2 – Schematische Darstellung der Erzeugung eines Bessel-Profiles mithilfe eines Axicons (Ax) und des verwendeten Optiksystems zur Verkleinerung des Bessel-Profiles hinter dem Axicon z_{Pri} mithilfe von zwei plan-konvexen Linsen L1 und L2. $r_{\text{Gau\beta}}$ Radius Gauß-Profil; θ_{Ax} : Basiswinkel Axicon; f_1, f_2 : Brennweiten der Linsen L1 bzw. L2; z_{Sek} bzw. z_B : Verkleinerte longitudinale Ausdehnung des Bessel-Profiles.

Brechungsindex n_{Ax} sowie dem Strahlradius des Gauß-Strahls $r_{\text{Gau\beta}}$ vor dem Axicon bestimmt und kann mithilfe von Gleichung 5.1 berechnet werden [112].

$$z_{\text{Pri}} = \frac{r_{\text{Gau\beta}}}{\theta_{\text{Ax}}(n_{\text{Ax}} - 1)} \quad (5.1)$$

Der transversale Durchmesser ($1/e^2$) des Bessel-Profiles $2w_{B,\text{Pri}}$ wird mit Gleichung 5.2 abgeschätzt. Eine analytische Formulierung des transversalen Intensitätsprofils auf Grundlage der nullten und ersten Ordnung der Bessel-Funktion befindet sich in [112].

$$2w_{B,\text{Pri}} \approx \frac{1,2\lambda}{\pi\theta_{\text{Ax}}(n_{\text{Ax}} - 1)} \quad (5.2)$$

Gemäß den Gleichungen 5.1 und 5.2 kann demnach die longitudinale Ausdehnung des Bessel-Profiles z_{Pri} durch Einstellen des Radius des Gauß-Profiles $r_{\text{Gau\beta}}$ unabhängig vom transversalen Durchmesser des Bessel-Profiles $2w_{B,\text{Pri}}$ eingestellt werden. Darüber hinaus bietet das Bessel-Profil durch die Interferenz der konisch zusammengeführten Wellenfronten den Vorteil, dass beispielsweise abschirmende Effekte bei der Materialbearbeitung im vorderen Teil des Bessel-Profiles für die Intensitätsverteilung am hinteren Ende des Bessel-Profiles vermieden werden können.

Verwendet wird ein Axicon aus Quarzglas $n_{\text{Ax}} = 1,45$ für $\lambda_{\text{Pump}} = 800$ nm mit Basiswinkel $\theta_{\text{Ax}} = 5^\circ$. Der Radius des verwendeten Gauß-Profiles beträgt $r_{\text{Gau\beta}} = 3$ mm, sodass mithilfe von Gleichung 5.1 die longitudinale Ausdehnung des Bessel-Profiles $z_{\text{Pri}} = 76$ mm berechnet wird. Zur Erreichung hinreichend großer Intensitäten für das Einsetzen nicht-linearer Ionisationseffekte für die Materialmodifikation wird das hinter dem Axicon erzeugte Bessel-Profil durch zwei Linsen L1 und L2 verkleinert in der Brennebene der Linse L2 abgebildet, siehe Abb. 5.2. Der Faktor der Verkleinerung V ist proportional zum Verhältnis der Brennweiten $V = f_2/f_1$ und beträgt für die in diesem Kapitel verwendeten Linsen L1 und L2 mit $f_1 = 175$ mm bzw. $f_2 = 25,4$ mm circa $V \approx 1/7$. Zur Berechnung der longitudinalen Ausdehnung z_B und des transversalen Durchmessers $2w_B$ des abgebildeten primären Bessel-Profiles wird der Basiswinkel $\theta_{\text{Ax}}^{\text{virt}}$ des virtuellen Axicons berechnet.

Mithilfe von Gleichung 5.1 wird mit den Basiswinkel des virtuellen Axicons die longitudinale und transversale Ausdehnung des verkleinerten Bessel-Profiles zu $z_B = 0,85$ mm und $2w_B = 1,1 \mu\text{m}$ berechnet.

Die in diesem Kapitel verwendeten Optikkomponenten und die daraus resultierenden Dimensionen des abgebildeten Bessel-Profiles in der Brennebene der Linse L2 sind in Tabelle 5.1 zusammengefasst.

Bezeichnung	Formelzeichen	Wert
Basiswinkel Axicon	θ_{Ax}	5°
Brennweite Linse L1, plan-konvex	f_1	175 mm
Brennweite Linse L2, plan-konvex	f_2	25,4 mm
Material Axicon: Quarzglas	n_{Ax}	1,45
Radius Gauß-Profil	$r_{\text{Gauß}}$	3 mm
Longitudinale Ausdehnung Bessel-Profil	z_B	0,85 mm
Transversaler Durchmesser Bessel-Profil	$2w_B$	$1,1 \mu\text{m}$

Tabelle 5.1 – Verwendete Optikkomponenten zur räumlichen Strahlformung und resultierende Dimensionen des erzeugten Bessel-Profiles.

5.1.2 Charakterisierung des räumlichen Bessel-Profiles

Zur Durchführung von Messungen mittels Pump-Probe-Schattenfotografie mit der Verwendung eines räumlichen Bessel-Profiles, wird analog zu Kapitel 4 die Strahlquelle „Libra“ verwendet. In dem experimentellen Aufbau für die Pump-Probe-Schattenfotografie (Abb. 4.2) wird dabei das Mikroskopobjektiv (MO 2) zur Fokussierung des Pump-Pulses durch das in Abb. 5.2 dargestellte Optiksystm zur Erzeugung des Bessel-Profiles ersetzt. Zur Charakterisierung des räumlichen Strahlprofils wird das Bessel-Profil mithilfe eines Mikroskopobjektivs (MO, Vergrößerung 20x, $NA = 0,46$) und einer plan-konvexen Linse mit Brennweite $f_{\text{Abb}} = 200$ mm auf den CCD-Chip einer Strahlprofilkamera¹⁵ mit einem Dynamikbereich von 12bit abgebildet. Der verwendete Versuchsaufbau zur Strahlcharakterisierung ist schematisch in Abb. 5.3 (a) dargestellt.

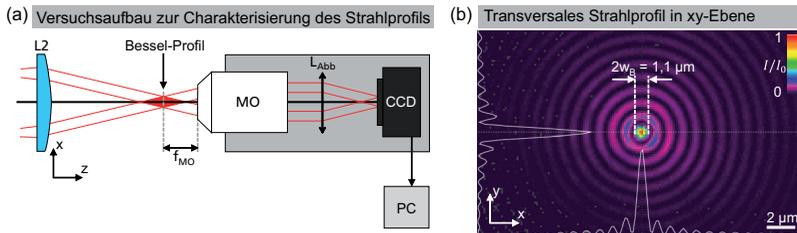


Abbildung 5.3 – Charakterisierung des erzeugten Bessel-Profiles. (a) Schematische Darstellung des Versuchsaufbaus zur Charakterisierung des räumlichen Strahlprofils mithilfe eines Mikroskopobjektivs (MO), einer plan-konvexen Linse L_{Abb} mit Brennweite f_{Abb} sowie einer CCD-Kamera. (b) Bessel-Profil in der xy -Ebene für $z = 160 \mu\text{m}$.

¹⁵Spiricon SP620, Ophir

Der ermittelte transversale Durchmesser des Bessel-Profiles ($1/e^2$) beträgt $2w_B = 1,1 \mu\text{m}$, siehe Abb. 5.3 (b). Somit entspricht der Durchmesser dem mithilfe von Gleichung 5.2 berechneten Durchmesser. Für eine Charakterisierung der longitudinalen Intensitätsverteilung des Bessel-Profiles, wird das Optiksystm zur Strahlcharakterisierung relativ zur Position des Bessel-Profiles mithilfe einer Linearachse verschoben. Hierbei ist $z = 0 \mu\text{m}$ als die longitudinale Position definiert, für die das erste Mal eine Intensität größer als das statistische Rauschen ermittelt wird.

Um die longitudinale Intensitätsverteilung entlang der Propagationsrichtung der Laserstrahlung zu charakterisieren, wird das laterale Strahlprofil an longitudinalen Positionen $z = 0$ bis $1100 \mu\text{m}$ in Schritten $\Delta z = 20 \mu\text{m}$ gemessen. Das so ermittelte longitudinale Strahlprofil ist in Abb. 5.4 für die xz -Ebene dargestellt. Zusätzlich ist die Intensität im Zentrum des Profils $x = y = 0 \mu\text{m}$ für alle longitudinalen Positionen z sowie die laterale Intensität für die Position $z = 160 \mu\text{m}$ dargestellt.

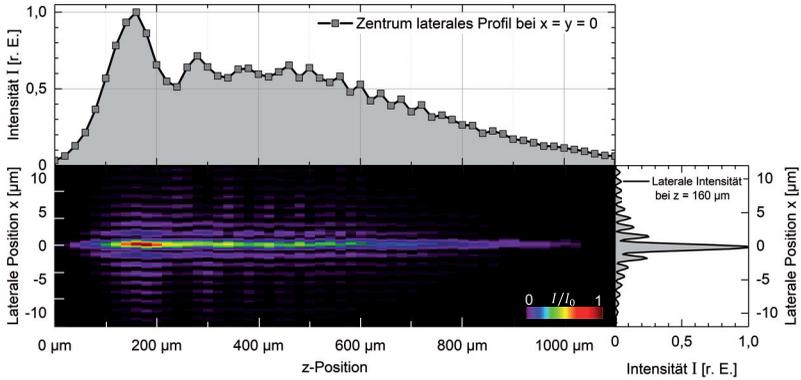


Abbildung 5.4 – Gemessene longitudinale Intensitätsverteilung des erzeugten Bessel-Profiles. Oben: Longitudinale Intensitätsverteilung im Zentrum des Bessel-Profiles für $x = y = 0 \mu\text{m}$. Unten: xz -Ebene. Rechts: Laterales Intensitätsprofil bei $z = 160 \mu\text{m}$.

Die Intensität des erzeugten Bessel-Profiles ist in longitudinaler Richtung moduliert, wobei an der Position $z = 160 \mu\text{m}$ das absolute Maximum des Intensitätsprofils gemessen wird. Die Modulation kann durch eine abweichende Geometrie der Spitze des verwendeten Axicons von der ideal konischen Geometrie erklärt werden, die durch das mechanische Polieren im Herstellungsverfahren des Axicons resultiert [113, 114]. Durch die Abrundung der Axiconspitze wird die Laserstrahlung im Zentralbereich des Axicons im Vergleich zu den umliegenden Bereichen unterschiedlich gebrochen. Aufgrund dessen tritt nach Propagation der Laserstrahlung durch das Axicon eine Änderung der Interferenz auf, die durch die beiden Linsen L1 und L2 abgebildet wird. Das Höhenprofil des Zentralbereichs des verwendeten Axicons (A_x) wird mittels Laser-Scanning-Mikroskopie ermittelt und ist in Abb. 5.5 (a) dargestellt. Hierbei bezeichnet $x = 0 \mu\text{m}$ das Zentrum des Axicons.

Innerhalb eines räumlichen Bereiches von $\delta_x = \pm 300 \mu\text{m}$ um das Zentrum des Axicons weicht die gemessene Geometrie von der idealen Spitzengeometrie ab. Zum Vergleich der experimentell ermittelten longitudinalen Intensitätsverteilung mit der idealen Intensitätsverteilung für eine ideale Geometrie der Axiconspitze, wird mit Gleichung 5.3 die Intensität

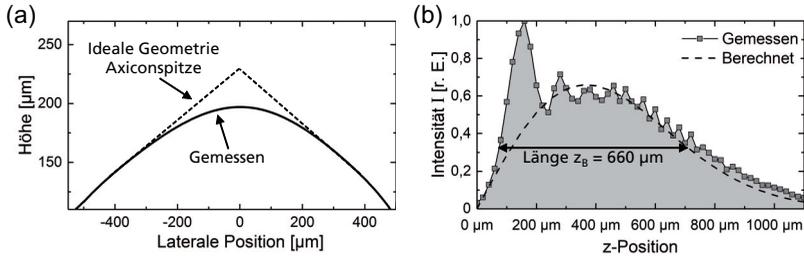


Abbildung 5.5 – (a) Höhenprofil des verwendeten Axicons ermittelt durch Laser-Scanning-Mikroskopie im Vergleich mit einer idealen Geometrie des Zentralbereichs des Axicons (gestrichelte Linie). (b) Vergleich berechnete und experimentell ermittelte longitudinale Intensitätsverteilung.

im Zentrum des Bessel-Profiles in Abhängigkeit der z -Position berechnet [112, 115].

$$I(z) = \frac{8\pi E_P (n_{Ax} - 1) \theta_{Ax}}{\tau_{Pump} \lambda_{Pump} r_{Gauß}} \frac{z}{z_B} \exp\left(-2 \left(\frac{z}{z_B}\right)^2\right) \quad (5.3)$$

Die Pulsenergie E_P in Gleichung 5.3 wird für einen direkten Vergleich mit den Messdaten so gewählt, dass die Spitzenintensität des Bessel-Profiles $0,67I_0$ beträgt. Die berechnete longitudinale Intensitätsverteilung ist mit den experimentellen Messdaten in Abb. 5.5 (b) dargestellt. Die longitudinale Ausdehnung des Bessel-Profiles wird über die Halbwertsbreite (FWHM) der Verteilung zu $z_B = 660 \mu\text{m}$ ermittelt. Für eine Fokussierung des Bessel-Profiles im Glasvolumen vergrößert sich die Ausdehnung durch die Brechung an der Glas-Luft-Grenzfläche um den Wert des Brechungsindex n_{Glas} , sodass prinzipiell eine freie Elektronendichte im kompletten Glasvolumen mit einer Dicke von $d_{\text{Glas}} = 700 \mu\text{m}$ erzeugt werden kann.

Durch die Modulation durch die abgerundete Axiconspitze wird im ersten Maximum der Intensitätsverteilung eine signifikant größere Intensität erreicht als an anderen Positionen. Aufgrund dessen soll durch die Untersuchungen in den folgenden Abschnitten evaluiert werden, ob durch eine geeignete Wahl der Prozessparameter eine möglichst homogene Energie deposition realisiert werden kann.

5.1.3 Experimentelles Vorgehen

Messungen mittels Pump-Probe-Schattenfotografie werden analog zu Kapitel 4 durchgeführt. Um eine Energiedeposition von Eintritts- bis Rückseite im Glasvolumen zu ermöglichen, wird das Bessel-Profil möglichst symmetrisch in das Glasvolumen mit einer Dicke $d_{\text{Glas}} = 700 \mu\text{m}$ positioniert, was schematisch in Abb. 5.6 dargestellt ist. Das durch den Brechungsindexunterschied an der Luft-Glas-Grenzfläche verlängerte Intensitätsprofil ist in Abb. 5.6 (b) dargestellt.

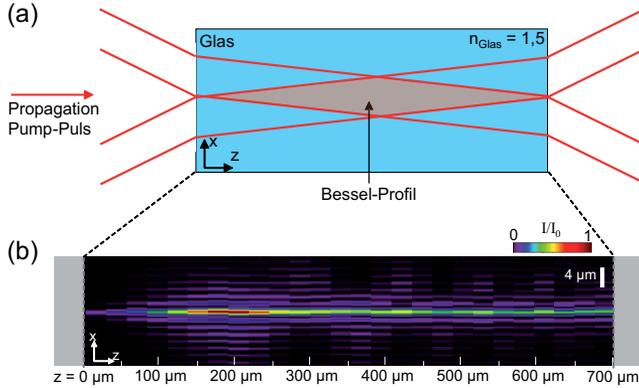


Abbildung 5.6 – (a) Schematische Darstellung des Strahlengangs und der Positionierung des Bessel-Profiles im Glasvolumen. (b) Intensitätsverteilung im Glasvolumen mit Dicke $d_{\text{Glas}} = 700 \mu\text{m}$ und Brechungsindex $n_{\text{Glas}} = 1,5$.

5.2 Energiedeposition mit minimaler Puls-Plasma-Wechselwirkung

In diesem Abschnitt wird die Energiedeposition im Glasvolumen für die Verwendung des erzeugten Bessel-Profiles aus Abschnitt 5.1 für eine minimale Puls-Plasma-Wechselwirkung für die Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ untersucht. Zunächst wird in Abschnitt 5.2.1 zeitaufgelöst die Erzeugung einer freien Elektronendichte auf einer Zeitskala bis $t_D = 10 \text{ ps}$ dargestellt, um Zeitskalen für die Anregungsdynamik und das Einsetzen von Relaxation zu identifizieren. In Abschnitt 5.2.2 wird die Änderung der räumlichen Energiedeposition in Abhängigkeit der verwendeten Pulsenergie E_P analysiert. Dabei werden insbesondere Intensitätsregime für das Auftreten von Filamenten und Plasmadefokussierung identifiziert. In Abschnitt 5.2.3 werden die Amplitude und die Lokalisierung der Energiedeposition für die verwendeten Pulsparameter ermittelt und mit auftretenden charakteristischen Phänomenen zusammengefasst, um die räumliche Energiedeposition für eine minimale Puls-Plasma-Wechselwirkung zu quantifizieren.

5.2.1 Dynamik der Energiedeposition und Identifikation von Zeitskalen

In Abb. 5.7 ist die zeitliche Entwicklung der Anregung einer freien Elektronendichte mit dem in Abschnitt 5.1 erzeugten Bessel-Profil für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ und $E_P = 17 \mu\text{J}$ im Glasvolumen mit Dicke $d_{\text{Glas}} = 700 \mu\text{m}$ für Zeitpunkte $t_D < 10 \text{ ps}$ dargestellt. Die Positionierung des Bessel-Profiles ist im vorherigen Abschnitt 5.1 beschrieben.

Der initiale Aufbau der freien Elektronendichte findet bei $t_D = 0,3 \text{ ps}$ im Bereich $z \approx 50 \text{ bis } 200 \mu\text{m}$ im Glasvolumen statt. Bis $t_D = 4 \text{ ps}$ wird die freie Elektronendichte insbesondere an der Position des ersten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles größer. Nach $t_D = 4 \text{ ps}$ ist das komplette Glasvolumen angeregt, da der Pump-Puls nach

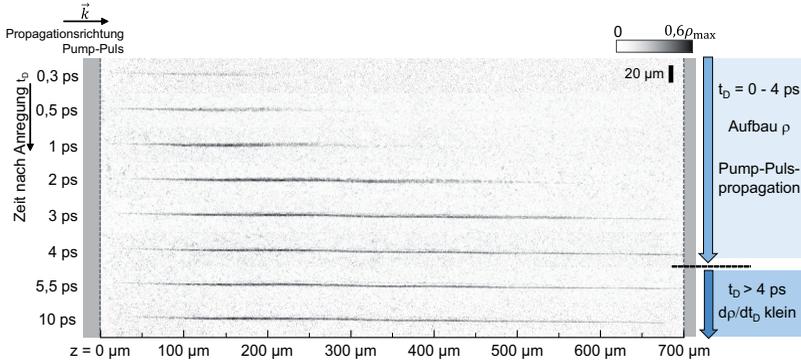
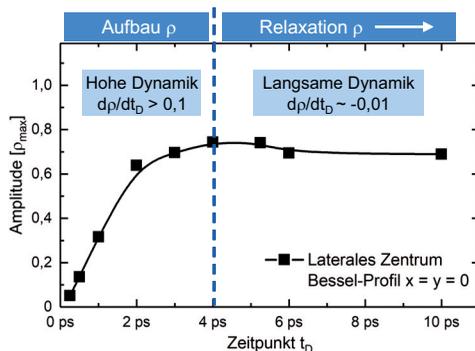


Abbildung 5.7 – Zeitlicher Aufbau einer freien Elektronendichte im Glasvolumen für die Verwendung eines räumliches Bessel-Profiles für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$, $E_P = 17 \mu\text{J}$.

$d_{\text{Glas}} \cdot n_{\text{Glas}}/c_0 \approx 4 \text{ ps}$ vollständig durch das Glasvolumen propagiert ist. Somit wird geschlossen, dass die Anregung der freien Elektronendichte dem zeitlichen Pump-Pulsmaximum folgt, analog zu der Anregung mit einem Gauß-Profil für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ in Kapitel 4. Für eine quantitative Erfassung der Zeitskala für den Aufbau der freien Elektronendichte ist in Abb. 5.8 für Zeitpunkte $t_D < 10 \text{ ps}$ die Amplitude der Energiedeposition dargestellt. Hierbei ist die Amplitude auf die gesamte Glasdicke $d_{\text{Glas}} = 700 \mu\text{m}$ bezogen. Das Maximum bei $t_D = 4 \text{ ps}$ entspricht der vollständigen Anregung des Glasvolumens. Darüber hinaus werden zwei verschiedene Zeitregime der Dynamik der Erzeugung der Energiedeposition identifiziert: Der Aufbau der freien Elektronendichte findet bis $t_D = 4 \text{ ps}$ mit einer großen Dynamik $d\rho/dt_D > 0,1\rho_{\text{max}} \text{ ps}^{-1}$ statt, während die darauffolgende Relaxation eine vergleichsweise kleine Dynamik $d\rho/dt_D \sim -0,01\rho_{\text{max}} \text{ ps}^{-1}$ aufweist. In diesem Dynamikbereich ist die Puls-Plasma-Wechselwirkung vernachlässigbar, da der Pump-Puls das Glasvolumen verlassen hat. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit werden für die vollständige Detektion der räumlichen Energiedeposition Zeitpunkte t_D gewählt, die in der Nähe des Maximums der Amplitude mit einer kleinen Dynamik der freien Elektronendichte liegen, für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ entspricht dies $t_D = 4 \text{ ps}$.

Abbildung 5.8 – Zeitskalen und Dynamikbereiche der Amplitude der Energiedeposition bzw. die Erzeugung einer freien Elektronendichte im Glasvolumen für die Verwendung eines Bessel-Profiles für eine Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ und $E_P = 17 \mu\text{J}$.



Die transversale Ausdehnung der freien Elektronendichte ist im Rahmen der Messgenauigkeit über die gesamte Glasdicke mit $w_\rho \approx 1 \mu\text{m}$ in etwa konstant und folglich hoch lokalisiert im Bezug zum Bessel-Profil $w_B \approx 1 \mu\text{m}$. Das Maximum der Amplitude beträgt bei $t_D = 4 \text{ ps}$ circa $0,75\rho_{\text{max}}$ und ist damit qualitativ vergleichbar mit der maximal erzielten Amplitude mit einem Gauß-Profil. Die quantitative Erfassung der transversalen Ausdehnung der Elektronendichte und der Amplitude wird in den nächsten Abschnitten 5.2.2 und 5.2.3 diskutiert. Um die Amplitude der Energiedeposition zu vergrößern, wird im nächsten Schritt die verwendete Pulsenergie E_P variiert.

5.2.2 Identifikation von Intensitätsregimen

In Abb. 5.9 ist die Anregung einer freien Elektronendichte für Pulsenergien von $E_P = 6$ bis $550 \mu\text{J}$ dargestellt. Der Zeitpunkt $t_D \approx 4 \text{ ps}$ ist für alle Pulsenergien E_P so gewählt, dass die Amplitude der Energiedeposition maximal ist, sodass das Glasvolumen komplett angeregt und die Relaxation der freien Elektronendichte klein ist, siehe Abschnitt 5.2.1.

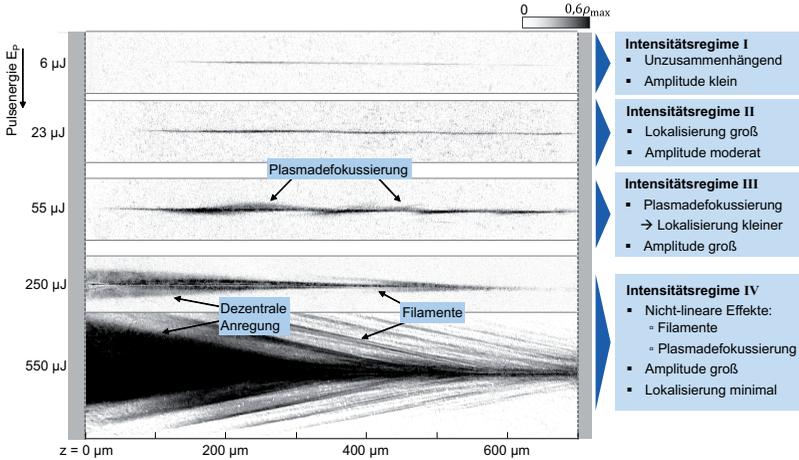


Abbildung 5.9 – Charakteristische Intensitätsregime I bis IV der Energiedeposition mit einem Bessel-Profil in Abhängigkeit von der Pulsenergie E_P für eine minimale Puls-Plasma-Wechselwirkung mit $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ ermittelt durch zeitaufgelöste Pump-Probe-Schattenfotografie. Glasdicke $d_{\text{glas}} = 700 \mu\text{m}$. Der Zeitpunkt der Analyse der freien Elektronendichte wird jeweils zu $t_D \approx 4 \text{ ps}$ gewählt.

In Abhängigkeit der Pulsenergie E_P werden deutliche Unterschiede in der räumlichen Energiedeposition festgestellt, was ebenfalls in [116] publiziert worden ist. Insbesondere findet für größere Pulsenergien E_P aufgrund der größeren Intensität eine signifikante Energiedeposition außerhalb des Zentrums des Bessel-Profiles statt. Die beobachteten Phänomene werden in vier Intensitätsregime I bis IV eingeteilt, die jeweils durch charakteristische Eigenschaften hinsichtlich der Amplitude und die Lokalisierung der Energiedeposition gekennzeichnet sind. Im Folgenden werden die Intensitätsregime beschrieben.

Intensitätsregime I: Für $E_P = 6 \mu\text{J}$ ist aufgrund der kleinen Intensität die Anregung un-

zusammenhängend und insbesondere nicht über das komplette Glasvolumen ausgedehnt. Die Amplitude ist im Vergleich zu den anderen Intensitätsregimen klein, während die Energiedeposition im Zentrum des Bessel-Profiles stattfindet, sodass eine große Lokalisierung der Energiedeposition folgt.

Intensitätsregime II: Die Energiedeposition findet für $E_P = 23 \mu\text{J}$ im Wesentlichen durch das transversale Zentrum des Bessel-Profiles über das gesamte Glasvolumen statt. Eine quantitative Darstellung der Amplitude und der transversalen Ausdehnung der Elektronendichte w_ρ ist in Abb. 5.10 dargestellt. Zusätzlich ist in (a) für einen direkten Vergleich die longitudinale Intensitätsverteilung des Bessel-Profiles im lateralen Zentrum $x = 0$ dargestellt. Für $E_P = 23 \mu\text{J}$ findet eine ausgeprägte Energiedeposition im ersten lokalen Maximum des Bessel-Profiles statt. Für einen Vergleich mit einer kleineren Pulsenergie des Intensitätsregimes II, sind Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition für $E_P = 17 \mu\text{J}$ dargestellt. Für $E_P = 17 \mu\text{J}$ ist die freie Elektronendichte im Vergleich zu $23 \mu\text{J}$ über das Glasvolumen homogener. Darüber hinaus ist für $E_P = 17 \mu\text{J}$ im Rahmen der statistischen Schwankungen die Breite der Anregung $w_\rho \approx 1,0 \mu\text{m}$ in etwa genauso breit wie das Bessel-Profil. Für $E_P = 23 \mu\text{J}$ ist die transversale Breite $w_\rho \approx 1,5 \mu\text{m}$ größer. Die Lokalisierung ist demnach in diesem Intensitätsregime groß und die Amplitude der Energiedeposition moderat.

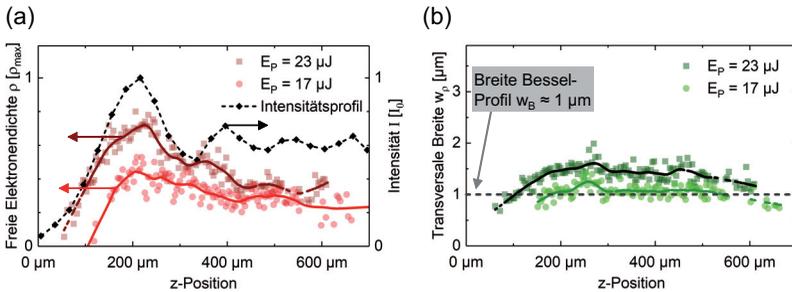


Abbildung 5.10 – (a) Freie Elektronendichte ρ und (b) transversale Breite der freien Elektronendichte w_ρ für Pulsenergien E_P des Intensitätsregimes II für die Verwendung eines Bessel-Profiles für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs. In (a) ist zusätzlich die longitudinale Intensitätsverteilung im lateralen Zentrum des Bessel-Profiles $x = 0$ dargestellt.

Intensitätsregime III: Für $E_P = 55 \mu\text{J}$ wird an drei Positionen eine verbreiterte Energiedeposition beobachtet, was einen Hinweis auf Plasmadefokussierung darstellt und im Folgenden diskutiert wird. Die lokale Transmissionsänderung $\Delta T/T_0$ bzw. die freie Elektronendichte ρ und die transversale Breite w_ρ der Energiedeposition sind für alle z -Positionen in Abb. 5.11 dargestellt.

Die Amplitude der Transmissionsänderung, Abb. 5.11 (b), weist vier lokale Maxima mit Werten bis $0,80\rho_{\max}$ auf. Die z -Positionen der Maxima stimmen mit den lokalen Intensitätsmaxima des Bessel-Profiles überein, sodass die Modulation der Amplitude durch das inhomogene Strahlprofil erklärt werden kann. Die transversale Breite der Energiedeposition, Abb. 5.11 (c), vergrößert sich an Positionen hinter den lokalen Maxima der Amplitude von $w_\rho = 4 \mu\text{m}$ auf $6 \mu\text{m}$. Die transversale Breite erreicht den Maximalwert

circa $\Delta z = 57 \mu\text{m}$ hinter dem Maximum der Amplitude. Der räumliche Versatz Δz ist ein Hinweis auf Plasmadefokussierung, siehe Kapitel 4. Für das zweite Maximum der Amplitude und der transversalen Breite der Energiedeposition ist der räumliche Versatz mit $\Delta z = 80 \mu\text{m}$ größer als beim ersten Intensitätsmaximum. Dies wird erklärt durch eine schwächere Plasmadefokussierung, da die lokale freie Elektronendichte aufgrund der kleineren Intensität kleiner ist im Vergleich zum ersten Intensitätsmaximum. Der räumliche Versatz zwischen dem dritten Maximum der Amplitude und dem dritten Maximum der transversalen Breite beträgt $\Delta z = 80 \mu\text{m}$ und ist demnach vergleichbar mit dem Versatz für das zweite Maximum, da die lokale Intensität vergleichbar groß ist.

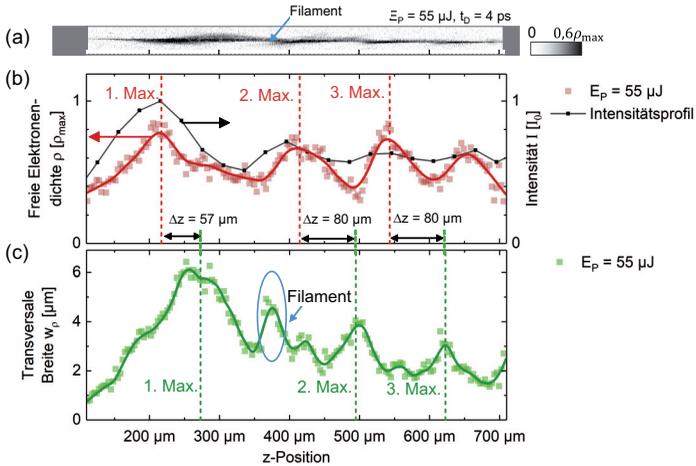


Abbildung 5.11 – (a) Freie Elektronendichte im Glasvolumen im Intensitätsregime III für ein Bessel-Profil mit $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$, $E_P = 55 \mu\text{J}$. (b) Freie Elektronendichte ρ in Abhängigkeit der longitudinalen Position z . Zusätzlich ist die longitudinale Intensitätsverteilung des Zentrums des Bessel-Profiles dargestellt. (c) Breite der Anregung w_p für die freie Elektronendichte aus (a).

Intensitätsregime IV: Für $E_P = 250 \mu\text{J}$ wird insbesondere innerhalb an der ersten Hälfte des Glasvolumens $z \leq 350 \mu\text{m}$ eine dezentrale, konische Energiedeposition für $x \neq 0$ beobachtet. Die lokale Intensität ist für diesen Fall in den transversalen Nebenmaxima des Bessel-Profiles so groß, dass außerhalb des Zentralmaximums des Bessel-Profiles ($x = 0$) eine freie Elektronendichte erzeugt wird. Des Weiteren treten Ansätze von Filamenten auf. Für eine weitere Vergrößerung der Pulsenergie $E_P = 550 \mu\text{J}$ vergrößert sich die transversale Ausdehnung des konischen Bereichs weiter und eine große Anzahl von Filamenten tritt auf. In diesem Intensitätsregime ist die Amplitude der Energiedeposition groß, während die Lokalisierung sehr klein ist.

5.2.3 Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition

Die Amplitude \hat{A} und Lokalisierung \hat{L} der Energiedeposition sind in Abb. 5.12 quantitativ für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ für die verwendeten Pulsenergien $E_P = 6 \mu\text{J}$ bis $550 \mu\text{J}$ dargestellt. Die Werte werden dabei analog zu Kapitel 4 ermittelt. Dabei sei angemerkt,

dass die Lokalisierung nicht direkt mit der Lokalisierung des Gauß-Profiles vergleichen werden kann, da sie sich auf das jeweilige verwendete Strahlprofil beziehen. Anhand dieser Auswertungsmethode sollen fundamentale Korrelationen der Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition für die jeweilige spezifische Strahlform identifiziert werden. Als Kriterium für eine präzise Energiedeposition wird $\hat{L} > -1$ verwendet und für eine effiziente Energiedeposition $\hat{A} > 0,6$.

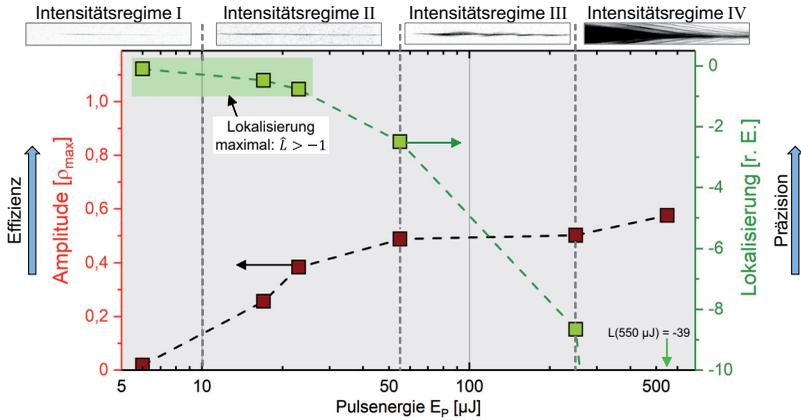


Abbildung 5.12 – Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition für die Verwendung eines Bessel-Profiles mit Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs für Pulsenergien von $E_P = 6 \mu\text{J}$ bis $550 \mu\text{J}$. Durch auftretende charakteristische Phänomene wird die Energiedeposition in charakteristische Intensitätsregime I bis IV eingeteilt.

Im Intensitätsregime I ist die Lokalisierung der Energiedeposition maximal, während die Amplitude $\hat{A} < 0,1$ klein ist. Im Intensitätsregime II ist die Energiedeposition in Bezug zur Bessel-Intensitätsverteilung nach wie hoch lokalisiert. Die Amplitude der Energiedeposition ist mit $\hat{A} \leq 0,5$ vergleichbar groß mit der Energiedeposition für ein Gauß-Profil (siehe Kapitel 4). Allerdings wird beim Gauß-Profil für diese Amplituden bereits eine signifikante Verkleinerung der Lokalisierung durch das Auftreten von Filamenten festgestellt. Demzufolge wird mit dem verwendeten Bessel-Profil für Pulsenergien im Intensitätsregime II bereits eine vergleichsweise hohe Lokalisierung der Energiedeposition mit moderater Amplitude im Vergleich zum Gauß-Profil erzielt. Das Intensitätsregime II stellt demnach den Arbeitsbereich für eine circa $w_B \sim 1 \mu\text{m}$ breite Energiedeposition dar, die entlang des gesamten Glasvolumens mit Dicke $d_{\text{Glas}} = 700 \mu\text{m}$ ausgedehnt ist. Für eine Vergrößerung der Amplitude durch Vergrößerung der Pulsenergie E_P treten für das Bessel-Profil Plasmadefokussierung und Filamente auf, die zu einer Verkleinerung der Lokalisierung der Energiedeposition führen (Intensitätsregime III, IV). Eine Vergrößerung der Amplitude der Energiedeposition ist in diesen Intensitätsregimen in Hinblick auf die Verkleinerung der räumlichen Lokalisierung nicht zielführend, da Plasmadefokussierung aufgrund der Vergrößerung der Breite der Energiedeposition eine weitere Vergrößerung der Amplitude verhindert.

Aufgrund dessen wird im nächsten Schritt für eine Anpassung der räumlichen Energiedeposition die Puls-Plasma-Wechselwirkung vergrößert. Dazu wird die Pulsdauer τ_{Pump} des

Pump-Pulses vergrößert und der Einfluss auf die Amplitude und die räumliche Lokalisierung der Energiedeposition ermittelt. Durch das Vergrößern der Pulsdauer τ_{Pump} wird die Intensitätsschwelle aufgrund der effektiveren Avalanche-Ionisation kleiner, siehe Kapitel 3. Folglich können kleinere Intensitäten für eine hinreichende Energiedeposition im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs verwendet werden, sodass intensitätsabhängige nicht-lineare Effekte wie Plasmadefokussierung und die Entstehung von Filamenten prinzipiell vermieden werden können.

5.3 Energiedeposition für Vergrößerung der Puls-Plasma-Wechselwirkung

In diesem Abschnitt wird die Energiedeposition für eine Vergrößerung der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch eine Vergrößerung der Pulsdauer τ_{Pump} quantifiziert. In Abschnitt 5.3.1 wird die initiale Anregungsdynamik und die relevante Zeitskala für die räumliche Energiedeposition quantifiziert. In Abschnitt 5.3.2 werden auftretende nicht-lineare Propagationseffekte Plasmadefokussierung und Filamentbildung hinsichtlich charakteristischer Merkmale und der Dynamik untersucht. In Abschnitt 5.3.3 werden Pulsdauerregime identifiziert, die jeweils eine charakteristische räumliche Energiedeposition aufweisen. Abschließend wird in Abschnitt 5.3.4 die Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition quantitativ analysiert, um den Einfluss der Puls-Plasma-Wechselwirkung die räumliche Energiedeposition zu ermitteln.

5.3.1 Dynamik der Energiedeposition und charakteristische Zeitskalen

In diesem Abschnitt wird zeit- und orts aufgelöst die Energiedeposition im Volumen für die Verwendung von Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} \geq 1$ ps untersucht und charakteristische Propagationsphänomene identifiziert. In Abb. 5.13 ist die Erzeugung einer freien Elektronendichte für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 1$ und 3 ps für Zeitpunkte bis $t_D = 10$ ps nach initialer Anregung dargestellt.

Für $\tau_{\text{Pump}} = 1$ ps und $E_P = 55 \mu\text{J}$ findet die initiale Erzeugung der freien Elektronendichte von der Eintrittsseite ($z = 0$) bis etwa zur Position $z = 175 \mu\text{m}$ im Volumen statt und breitet sich für größere Zeitpunkte t_D entlang der Propagationsrichtung der Laserstrahlung in $+z$ -Richtung aus. Die freie Elektronendichte ist nach $t_D \approx 3,5$ ps von Eintritts- bis Austrittsseite des Glasvolumens angeregt. Analog zu den Ergebnissen in Kapitel 4 wird geschlussfolgert, dass die Erzeugung der freien Elektronendichte primär durch das zeitliche Pulsmaximum stattfindet.

Für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps und $E_P = 196 \mu\text{J}$ wird die initiale Erzeugung der freien Elektronendichte an der Position des ersten Maximums des Bessel-Profiles $z \approx 200 \mu\text{m}$ beobachtet. Für spätere Zeitpunkte t_D nach der initialen Anregung findet die Erzeugung der freien Elektronendichte zum einen entgegen der Pump-Propagationsrichtung in $-z$ -Richtung und zum anderen in $+z$ -Richtung statt. Nach circa $t_D = 5$ ps ist die Elektronendichte von Eintritts- bis Austrittsseite ausgedehnt. Die Erzeugung der freien Elektronendichte

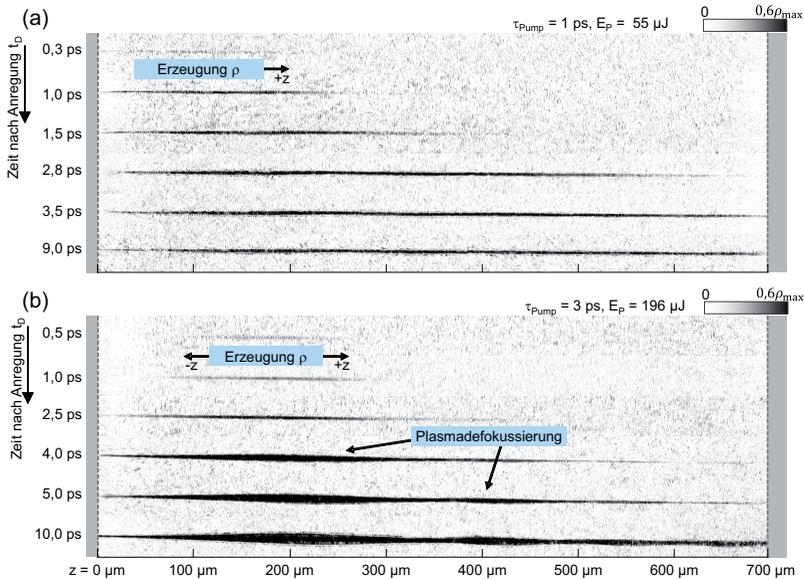


Abbildung 5.13 – Zeitlicher Aufbau einer freien Elektronendichte für Zeitpunkte bis $t_D = 10$ ps zur Identifikation der Anregungsdynamik in Abhängigkeit der Pulsdauer τ_{Pump} . (a) Aufbau in $+z$ -Richtung für $\tau_{\text{Pump}} = 1$ ps, $E_P = 55 \mu\text{J}$, $\tau_{\text{Probe}} = 1$ ps. (b) Aufbau in $-z$ - und $+z$ -Richtung für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps, $E_P = 196 \mu\text{J}$, $\tau_{\text{Probe}} = 80$ fs.

an der Austrittsseite $z > 650 \mu\text{m}$ ist zwischen $t_D = 5$ und 10 ps abgeschlossen, sodass insgesamt die Erzeugung für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps über einen längeren Zeitraum stattfindet als für $\tau_{\text{Pump}} = 1$ ps. Die Ausbreitungsrichtung in $-z$ - und $+z$ -Richtung und die Dauer der Anregung weisen darauf hin, dass die zeitlich steigende Pulsflanke bereits eine freie Elektronendichte erzeugt, was mit dem „moving breakdown“-Modell in Kapitel 4 erklärt wird. Für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps und $E_P = 196 \mu\text{J}$ wird für Zeitpunkte $t_D \geq 4$ ps an den Positionen der lokalen Intensitätsmaxima des Bessel-Profiles eine Verbreiterung der freien Elektronendichte in lateraler Richtung beobachtet, die vergleichbar mit der Plasmadefokussierung des Intensitätsregimes III in Abb. 5.9 für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs ist. Im Gegensatz dazu findet die Verbreiterung für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps zeitlich erst nachdem das Glasvolumen vollständig angeregt wurde statt. Des Weiteren sind die longitudinalen Positionen der Maxima der Intensitätsverteilung und der Maxima der transversalen Breite w_ρ der freien Elektronendichte gleich. Eine detaillierte Analyse der Plasmadefokussierung sowie eine quantitative Analyse von Amplitude und transversaler Breite der Energiedeposition finden weiter unten statt.

In Abb. 5.14 ist die über das gesamte Glasvolumen gemittelte erzeugte freie Elektronendichte im Zentrum des Bessel-Profiles für $x = 0 \mu\text{m}$ in Abhängigkeit des Zeitpunkts t_D nach initialer Anregung für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 1, 3, 7$ und 9 ps dargestellt. Die Pulsenergie E_P wird dabei für jede Pulsdauer τ_{Pump} angepasst, damit jeweils die Intensitätsschwelle für die Erzeugung einer freien Elektronendichte erreicht wird und die freie Elektronendichte von Ein- bis Austrittsseite ausgedehnt ist.

Für $\tau_{\text{Pump}} = 1$ ps wird die größte freie Elektronendichte zum Zeitpunkt $t_D = 4,5$ ps

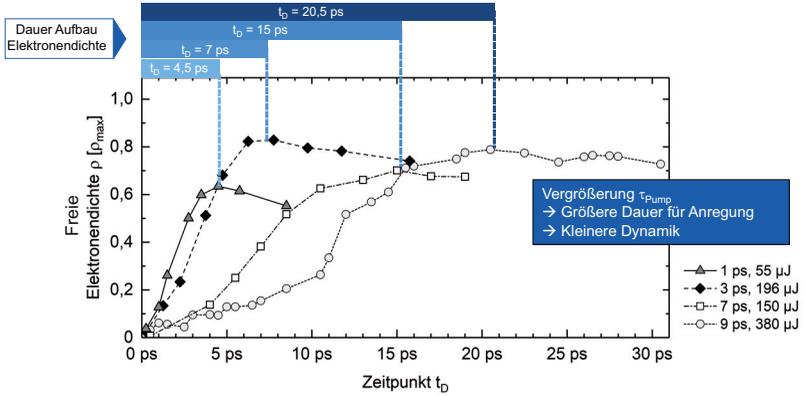


Abbildung 5.14 – Zeitliche Entwicklung der freien Elektronendichte für verschiedene Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 1, 3, 7$ und 9 ps bzw. unterschiedlich ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkungen zur Identifikation der Zeitskalen der Energiedeposition sowie von Zeitregimen mit hoher und kleiner Dynamik der freien Elektronendichte.

ermittelt. Demnach findet eine Erzeugung der freien Elektronendichte noch statt nachdem das zeitliche Pulsmaximum durch das komplette Glasvolumen propagiert ist. Das Maximum der freien Elektronendichte wird für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 3, 7$ und 9 ps zu den Zeitpunkten $t_D = 7, 15$ bzw. $20,5$ ps erreicht. Da die Erzeugung der freien Elektronendichte über einen größeren Zeitraum stattfindet je größer die Pulsdauer τ_{Pump} gewählt wird, verkleinert sich die Anregungsdynamik. Analog zu Kapitel 4 kann durch die räumlichen Ausdehnung des Laserpulses l_τ die initiale Erzeugung einer freien Elektronendichte durch die zeitlich steigende Pulsflanke erklärt werden. Anhand der Abhängigkeit der Erzeugungsdynamik von der Pulsdauer τ_{Pump} , kann das notwendige Zeitintervall für den vollständigen Aufbau der freien Elektronendichte Δt_{Aufbau} empirisch über $\Delta t_{\text{Aufbau}} = 2\tau_{\text{Pump}} + 1$ ps für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} \leq 9$ ps abgeschätzt werden. Demzufolge kann ebenfalls die Zeitdauer der Puls-Plasma-Wechselwirkung mit Δt_{Aufbau} approximiert werden.

5.3.2 Identifikation von Intensitätsregimen

In diesem Abschnitt wird der Einfluss der vergrößerten Puls-Plasma-Wechselwirkung auf die räumliche Energiedeposition evaluiert, indem die freie Elektronendichte und die räumliche Lokalisierung in die in Abschnitt 5.2.2 definierten Intensitätsregimen I bis IV eingeordnet werden. In Abb. 5.15 sind repräsentative Messungen der freien Elektronendichte mittels Pump-Probe-Schattenfotografie für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 1, 5$ und 7 ps sowie die quantitativ erfassten Werte für die ortsabhängige freie Elektronendichte ρ sowie die transversale Ausdehnung der freien Elektronendichte w_ρ dargestellt. Dabei sind die Zeitpunkte jeweils als Maximum der mittleren freien Elektronendichte gewählt (siehe Abb. 5.14).

Für das Intensitätsregime I, hier exemplarisch für $\tau_{\text{Pump}} = 7$ ps und $E_P = 23 \mu\text{J}$, ist die freie Elektronendichte unzusammenhängend oder erstreckt sich nicht über das komplette Glasvolumen. Dies ist charakteristisch für eine zu kleine Pulsenergie E_P . Die maximale freie Elektronendichte beträgt circa $0,45\rho_{\text{max}}$ und die transversale Ausdeh-

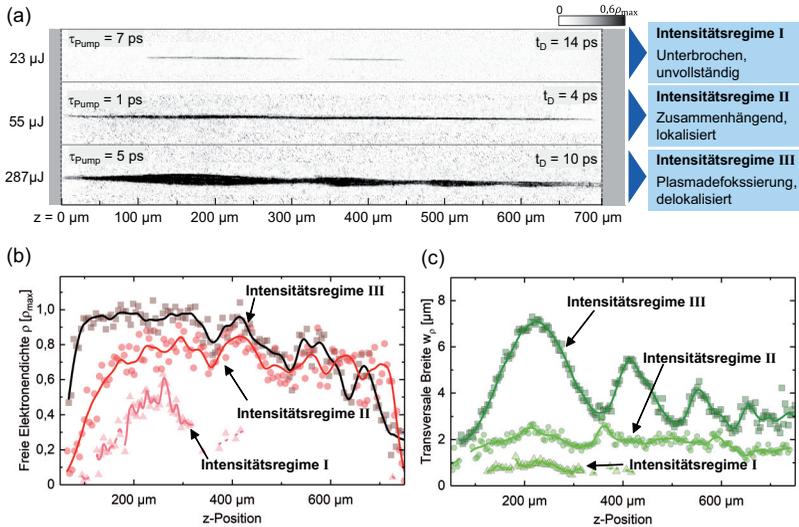


Abbildung 5.15 – (a) Intensitätsregime I bis III der räumlichen Energiedeposition im Glasvolumen mit einem Bessel-Profil in Abhängigkeit von E_P für Pulsdauern $\tau_{Pump} \geq 1 \text{ ps}$. Die Zeitpunkte sind jeweils so gewählt, dass die maximale freie Elektronendichte gemessen wird (siehe Abb. 5.14). (b) Freie Elektronendichte für die Messung in (a). (c) Transversale Breite der freien Elektronendichte w_ρ für die Messung aus (a).

nung w_ρ entspricht im Rahmen der Messgenauigkeit der Breite des Bessel-Profiles. Im Intensitätsregime II, hier beispielhaft für $\tau_{Pump} = 1 \text{ ps}$ und $E_P = 55 \mu\text{J}$, ist die freie Elektronendichte nahezu gleichförmig und homogen über das komplette Glasvolumen ausgedehnt, wobei die freie Elektronendichte $0,80\rho_{max}$ beträgt. Die transversale Breite beträgt in etwa $w_\rho = 2 \mu\text{m}$. Für das Intensitätsregime III werden für große Pulsenergien E_P lokal freie Elektronendichten $> 0,95\rho_{max}$ ermittelt und an Positionen der lokalen Intensitätsmaxima des Bessel-Profiles Verbreiterungen der transversalen Ausdehnung bis zu $w_\rho = 7 \mu\text{m}$ festgestellt, die durch Plasmadefokussierung erklärt werden können. Weitere nicht-lineare Phänomene wie beispielsweise Filamente werden für $\tau_{Pump} \geq 1 \text{ ps}$ für $E_P \leq 550 \mu\text{J}$ nicht festgestellt, sodass das Intensitätsregime IV (siehe Abb. 5.9) in der weiteren Diskussion nicht berücksichtigt wird. Eine detaillierte, quantitative Analyse der Intensitätsregime I bis III findet im folgenden Abschnitt statt.

5.3.3 Quantifizierung der Plasmadefokussierung

Die auftretende Plasmadefokussierung verkleinert die Lokalisierung der Energiedeposition signifikant. In diesem Abschnitt wird die Abhängigkeit der Ausprägung der Plasmadefokussierung von der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch die Wahl der Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P analysiert. Dadurch soll insbesondere die Möglichkeit einer hoch lokalisierten und effizienten Energiedeposition für das verwendete Bessel-Profil evaluiert werden. Zunächst wird die räumliche Geometrie der Plasmadefokussierung beschrieben und anschließend der zeitliche Aufbau der Plasmadefokussierung untersucht. Durch ei-

ne quantitative Analyse der Lokalisierung der Plasmadefokussierung in Abhängigkeit der verwendeten Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P wird der Zusammenhang zwischen der Ausprägung von Plasmadefokussierung und der Puls-Plasma-Wechselwirkung erarbeitet.

Räumliche Geometrie der Plasmadefokussierung

In Abb. 5.16 ist ein Detailausschnitt eines Raumbereichs der Plasmadefokussierung aus Abb. 5.13 für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps und $E_P = 196$ μJ dargestellt. Der Raumbereich entspricht der Umgebung des ersten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles, siehe Abb. 5.13. Die Grauskala der Darstellung ist dabei zur Kontrastvergrößerung im Vergleich zu Abb. 5.13 angepasst.

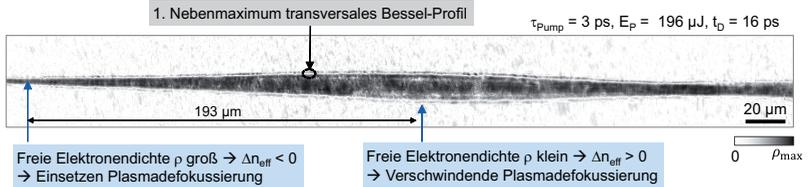


Abbildung 5.16 – Vergrößerte Darstellung der Plasmadefokussierung in der Umgebung des ersten Maximums des Bessel-Profiles für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps und $E_P = 196$ μJ . Zeitpunkt nach initialer Anregung $t_D = 16$ ps, $\tau_{\text{Probe}} = 80$ fs.

Außerhalb des lateralen Zentrums des Bessel-Profiles ($x = 0$) wird ein zweiter, räumlich getrennter Anregungsbereich identifiziert, der an allen longitudinalen z -Positionen parallel zur zentralen freien Elektronendichte beobachtet wird. Dieser Effekt wird von Polesana et al. in numerischen Simulationen der Strahlpropagation eines Bessel-Profiles im Glasvolumen unter Berücksichtigung von Plasmadefokussierung durch die Erzeugung einer kritischen freien Elektronendichte beschrieben [21]. Die Erzeugung der freien Elektronendichte findet durch das erste Nebenmaximum der transversalen Intensitätsverteilung statt. Durch die qualitative Übereinstimmung der Phänomene, kann der lateral verbreiterte Bereich der freien Elektronendichte durch Plasmadefokussierung erklärt werden.

Zeitlicher Aufbau der Plasmadefokussierung

In Abb. 5.13 ist für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps und $E_P = 196$ μJ gezeigt, dass der Aufbau der Plasmadefokussierung zeitlich nach der Anregung des Zentrums des Bessel-Profiles $x = 0$ stattfindet. Für eine detaillierte Analyse der zeitlichen Evolution der Plasmadefokussierung ist in Abb. 5.17 die Plasmadefokussierung für Zeitpunkte $t_D = 4$ bis 9,5 ps nach initialer Anregung für eine Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps und Pulsenergie $E_P = 550$ μJ dargestellt. Die Pulsenergie ist so gewählt, dass eine möglichst deutliche Ausprägung der Plasmadefokussierung resultiert. Für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps findet die laterale Verbreiterung der freien Elektronendichte in den lokalen Intensitätsmaxima des Bessel-Profiles bei $z \approx 180$ μm von $t_D = 4$ bis 9,5 ps statt. Darüber hinaus wird in den äußeren Regionen der Plasmadefokussierung eine schweifartige Anregung beobachtet, die auf die Entstehung von Filamenten hinweist. Bei $t_D = 9,5$ ps ist die Anregung in den verbreiterten Bereichen abgeschlossen. Die transversale Ausdehnung im ersten Intensitätsmaximum beträgt etwa $w_\rho = 28$ μm und ist deutlich breiter als an der Eintrittsseite bei $z < 50$ μm mit $w_\rho = 5$ μm .

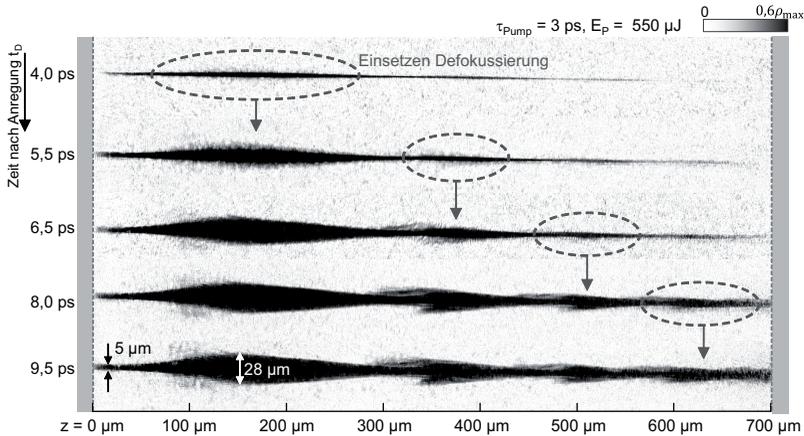


Abbildung 5.17 – Zeitlicher Aufbau der Plasmadefokussierung in der Umgebung der lokalen Intensitätsmaxima der Intensitätsverteilung des Bessel-Profiles für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps, $E_P = 550 \mu\text{J}$ für Zeitpunkte $t_D = 4$ ps bis 9,5 ps nach initialer Anregung.

Plasmadefokussierung in Abhängigkeit der Puls-Plasma-Wechselwirkung

Die Ausprägung der Plasmadefokussierung bzw. die transversale Ausdehnung der freien Elektronendichte w_ρ ist durch die Puls-Plasma-Wechselwirkung bestimmt, sodass im Folgenden der Einfluss von Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P untersucht wird. In Abb. 5.18 ist die erzeugte freie Elektronendichte für Pulsdauern im Intervall $2 \text{ ps} \leq \tau_{\text{Pump}} \leq 9 \text{ ps}$ dargestellt, wobei die Pulsenergien jeweils so gewählt werden, dass die Plasmadefokussierung hinreichend ausgeprägt ist.

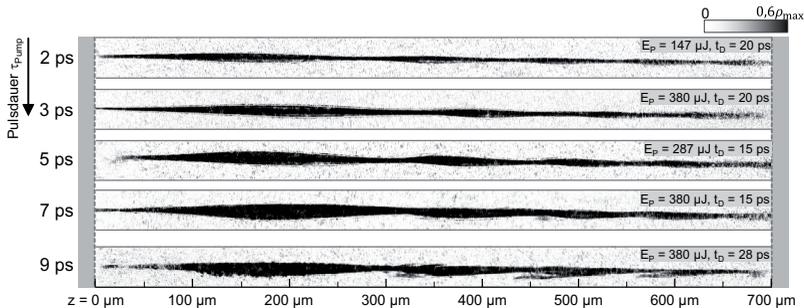


Abbildung 5.18 – Räumlichen Geometrie und Ausprägung der Plasmadefokussierung für ein Bessel-Profil in Abhängigkeit der Pulsdauer für $\tau_{\text{Pump}} = 2$ bis 9 ps. Die Pulsenergie E_P ist jeweils so gewählt, dass die Plasmadefokussierung möglichst stark ausgeprägt ist. Die Zeitpunkte sind jeweils so gewählt, dass die Plasmadefokussierung vollständig aufgebaut ist und noch keine signifikante Relaxation eingegsetzt hat.

Für alle untersuchten Pulsdauern im Intervall $2 \text{ ps} \leq \tau_{\text{Pump}} \leq 9 \text{ ps}$ ist die Geometrie der Plasmadefokussierung qualitativ vergleichbar. Die Schwelle für das Auftreten von Plas-

madefokussierung ist dabei für die untersuchten Pulsdauern τ_{Pump} unterschiedlich, sodass im Folgenden für die verwendeten Pulsdauern die Abhängigkeit der Plasmadefokussierung von der Pulsenergien E_P quantitativ analysiert wird.

Die transversale Ausdehnung w_ρ der freien Elektronendichte wird wie im Folgenden beschrieben quantitativ ausgewertet. Zunächst wird die transversale Ausdehnung w_ρ für alle z -Positionen in einem Histogramm dargestellt, siehe Abb. 5.19 repräsentativ für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps, $E_P = 550 \mu\text{J}$ zum Zeitpunkt $t_D = 9,5$ ps nach initialer Anregung. Das Histogramm ist durch drei Messgrößen charakterisiert: Das Maximum entspricht der häufigsten transversalen Ausdehnung w_ρ . Die Breite der Verteilung¹⁶ ist ein Maß für die größte bzw. kleinste transversale Ausdehnung freien der Elektronendichte. Die Breite der ermittelten Verteilung in positiver Richtung ist demnach ein Maß für die Ausprägung der Plasmadefokussierung. Je breiter die Verteilung in positiver Richtung, desto stärker ist die Plasmadefokussierung ausgeprägt.

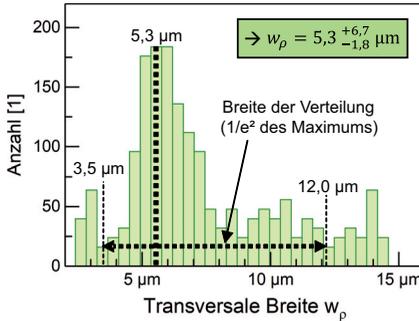


Abbildung 5.19 – Histogramm für die transversale Breite w_ρ der erzeugten freien Elektronendichte für ein Bessel-Profil mit $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps, $E_P = 550 \mu\text{J}$. Mithilfe des Histogramms wird die häufigste Breite und die Ausdehnung des Histogramms in Richtung der maximalen bzw. minimalen transversalen Breite ermittelt.

In Abb. 5.20 sind die ermittelten Schwerpunkte und Breiten der Histogramme für Pulsdauern $1 \text{ ps} \leq \tau_{\text{Pump}} \leq 9 \text{ ps}$ für Pulsenergien von $E_P = 20$ bis $550 \mu\text{J}$ dargestellt. Für jeden Parametersatz sind Messungen zu Zeitpunkten t_D gewählt, bei denen die Dynamik der Erzeugung der freien Elektronendichte im gesamten Glasvolumen abgeschlossen und Relaxation vernachlässigbar ist. Zusätzlich ist die laterale Ausdehnung w_ρ der freien Elektronendichte für Pulsenergien E_P der Intensitätsregime I und II dargestellt, für die eine unzusammenhängende bzw. homogene Energiedeposition stattfindet (siehe Abb. 5.15). Als Kriterium für den Übergang von Intensitätsregime II zum Intensitätsregime III wird eine transversale Breite der freien Elektronendichte $w_\rho > 2 \mu\text{m}$ verwendet.

Im Allgemeinen wird für alle Pulsdauern bis $\tau_{\text{Pump}} = 9$ ps für eine zu kleine Pulsenergie eine unzusammenhängende oder nicht vollständig über das Glasvolumen ausgedehnte freie Elektronendichte erzeugt (Intensitätsregime I). Hier ist $w_\rho \sim 1 \mu\text{m}$, da annähernd nur im Zentrum des Bessel-Profiles die Intensität groß genug für die Erzeugung einer freien Elektronendichte ist. Das Intensitätsregime I ist für $\tau_{\text{Pump}} \geq 5$ ps breiter, da im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} < 5$ ps eine größere Pulsenergie zur Erzeugung einer freien Elektronendichte benötigt wird. Eine homogene, über das gesamte Glasvolumen ausgedehnte Energiedeposition (Intensitätsregime II) wird insbesondere für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 1$ und 2 ps erreicht. Für $\tau_{\text{Pump}} = 3$ und 5 ps, verkleinert sich das Intensitätsregime II durch ein Einsetzen

¹⁶Definiert über $1/e^2$ des Maximalwertes

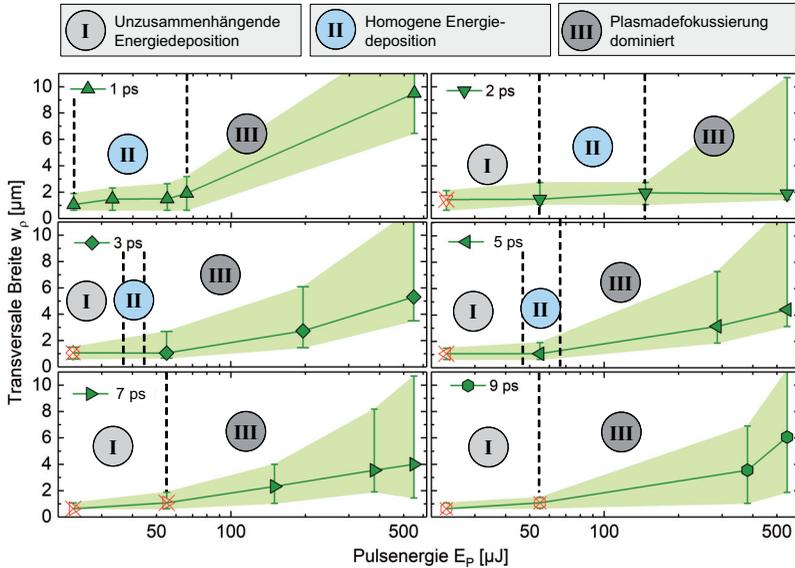


Abbildung 5.20 – Transversale Ausdehnung der freien Elektronendichte w_p in Abhängigkeit der Pulsenergie E_P für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 1$ bis 9 ps für die Verwendung eines Bessel-Profiles. Die Datenpunkte entsprechen der häufigsten transversalen Ausdehnung. Die Schattierung entspricht der ermittelten größten und kleinsten transversalen Ausdehnungen. Gekreuzte Datenpunkte: Unvollständige oder unzusammenhängende Anregung des Glasvolumens. Intensitätsregime I: Unzusammenhängende, unvollständige Anregung. Intensitätsregime II: Homogene und vollständige Anregung. Intensitätsregime III: Plasmadefokussierung.

von Plasmadefokussierung (Intensitätsregime III). Die Plasmadefokussierung tritt bei vergleichsweise kleinen Pulsenergien $E_P = 55 \mu\text{J}$ im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} = 1$ und 2 ps auf. Für $\tau_{\text{Pump}} = 7$ und 9 ps kann keine homogene Energiedeposition erzielt werden. Die Plasmadefokussierung ist bereits für Pulsenergien E_P ausgeprägt, für die gerade eben eine freie Elektronendichte im gesamten Glasvolumen erzeugt wird. Demnach wird geschlossen, dass die zeitliche Puls-Plasma-Wechselwirkung durch die Wahl der Pulsdauer τ_{Pump} die Ausprägung von Plasmadefokussierung signifikant beeinflusst.

Zusammenfassend werden hinsichtlich der Plasmadefokussierung sowie der räumlichen Energiedeposition für die Verwendung von $1 \text{ ps} \leq \tau_{\text{Pump}} \leq 9 \text{ ps}$ folgende zentrale Ergebnisse erfasst:

- Die freie Elektronendichte ist unzusammenhängend bzw. unvollständige über das Volumen ausgedehnt für zu kleine Pulsenergien (Intensitätsregime I). Die notwendige Pulsenergie für eine vollständige Anregung (Intensitätsregime II) wird größer für größere Pulsdauern.
- Die homogenste Energiedeposition für ein breites Pulsenergieintervall wird für die Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 1$ und 2 ps erzielt (Intensitätsregime II)
- Plasmadefokussierung tritt für alle Pulsdauern je nach Wahl der Pulsenergie auf (Intensitätsregime III)

- Für $\tau_{\text{Pump}} \geq 3$ ps tritt die Plasmadefokussierung bereits bei moderaten Pulsenergien auf, da die Puls-Plasma-Wechselwirkung stärker ausgeprägt ist
- Für $\tau_{\text{Pump}} \geq 7$ ps ist die Anregung entweder immer unzusammenhängend (Intensitätsregime I) oder Plasmadefokussierung führt zu einer signifikanten Energiedeposition außerhalb des lateralen Zentrums des Bessel-Profiles (Intensitätsregime III)

Relaxationsdynamik der Plasmadefokussierung

Im Folgenden wird die Dynamik der Plasmadefokussierung auf einer Zeitskala $t_D > 10$ ps am Beispiel für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps und Pulsenergie $E_P = 550 \mu\text{J}$ analysiert. Die entsprechende Erzeugungsdynamik ist in Abb. 5.13 diskutiert worden. In Abb. 5.21 ist die freie Elektronendichte für Zeitpunkte $t_D = 17$ ps bis 5 ns nach der initialen Anregung dargestellt.

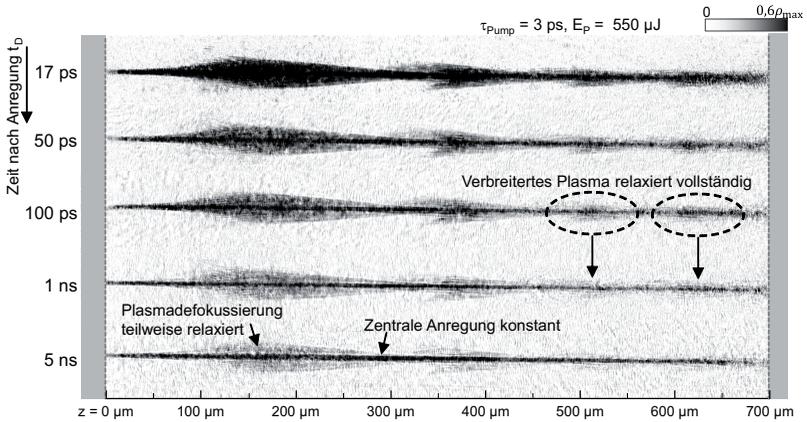


Abbildung 5.21 – Relaxation der freien Elektronendichte für Zeitpunkte $t_D = 17$ ps bis 5 ns nach initialer Anregung mit einem Bessel-Profil mit Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 3$ ps und $E_P = 550 \mu\text{J}$ ermittelt durch zeitaufgelöste Pump-Probe-Schattenfotografie.

Für $t_D = 17$ ps wird in den Bereichen der Plasmadefokussierung eine Relaxation der freien Elektronendichte festgestellt. Ab circa $t_D = 50$ ps bis etwa 5 ns verkleinert sich die freie Elektronendichte in den Bereichen der Plasmadefokussierung weiter, während die freie Elektronendichte im Zentrum des Bessel-Profiles in etwa konstant bleibt. Insbesondere an Positionen $z > 500 \mu\text{m}$ wird für $t_D \geq 1$ ns eine vollständige Relaxation der freien Elektronendichte beobachtet. Demnach wird geschlossen, dass die lokale Intensität der Laserstrahlung einen Einfluss auf die Relaxationsdynamik hat. Hierbei sei angemerkt, dass auf der Zeitskala $t_D > 100$ ps Diffusion der freien Ladungsträger und beispielsweise lokale Volumenänderungen sowie hydrothermische Prozesse eine Rolle spielen (siehe Kapitel 2), die einen Einfluss auf die Transmission des Probe-Pulses haben können. Die unterschiedliche Dynamik der Plasmadefokussierung in Bezug auf das Zentrum des Bessel-Profiles weist darauf hin, dass ausschließlich der Wert der freien Elektronendichte ρ unzureichend für eine Vorhersage von weiteren Prozessen auf einer Zeitskala $t_D \geq 50$ ps ist, da für $t_D < 20$ ps an beiden Positionen die freie Elektronendichte in etwa denselben Wert aufweist. Für eine weitere Untersuchung der Plasmadefokussierung, wird in Abschnitt 5.4 der

Zusammenhang der Plasmadefokussierung auf die resultierende permanente Modifikation des Materialvolumens diskutiert.

5.3.4 Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition

Im Folgenden werden die Amplitude und die Lokalisierung der Energiedeposition für das verwendete Bessel-Profil für eine ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung zusammengefasst. Dabei soll insbesondere ein Parameterregime identifiziert werden, für das eine effiziente und präzise Energiedeposition realisiert werden kann. Die Werte für die Amplitude und Lokalisierung werden dabei analog zu Kapitel 4.2.4 ausgewertet. In Abb. 5.22 ist die Amplitude und Lokalisierung für ausgewählte Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 1, 5$ und 9 ps für Pulsenergien von $E_P = 20$ bis $550 \mu\text{J}$ dargestellt. Auf die Darstellung der Amplitude und der Lokalisierung für die untersuchten Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 2, 3$ und 7 ps wird für die Übersicht verzichtet.

Als Kriterium für eine effiziente Energiedeposition wird eine Amplitude $\hat{A} > 0,6$ gewählt. Eine große Lokalisierung wird für $\hat{L} > -1$ erreicht. Die Prozessparameter, für die jeweils effiziente bzw. präzise Energiedeposition erzielt wird, sind jeweils in Abb. 5.22 farblich markiert. Darüber hinaus ist ein gemeinsames Prozessfenster für eine effiziente und gleichzeitig präzise Energiedeposition markiert.

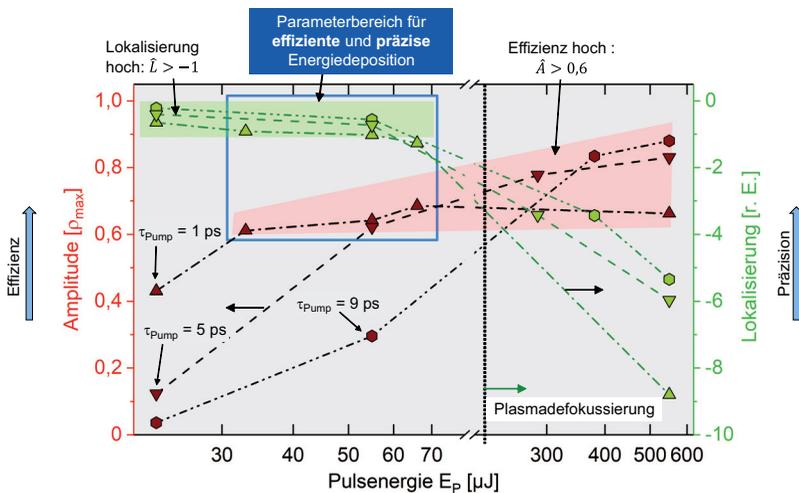


Abbildung 5.22 – Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition für die Verwendung eines Bessel-Profiles in Abhängigkeit der Puls-Plasma-Wechselwirkung für ausgewählte Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} \geq 1$ ps. Als Kriterium für eine präzise Energiedeposition wird $\hat{L} > -1$ verwendet und für eine effiziente Energiedeposition $\hat{A} > 0,6$. Die ermittelten Parameter für eine präzise bzw. effiziente Energiedeposition sind markiert. Zusätzlich ist das Prozessfenster für eine präzise und gleichzeitig effiziente Energiedeposition markiert.

Folgende zentrale Ergebnisse werden aus Abb. 5.22 abgeleitet:

- Für Pulsenergien $E_P \leq 70 \mu\text{J}$ kann für die Amplitude der Energiedeposition ohne eine signifikante Verkleinerung der Lokalisierung vergrößert werden.
- Das Prozessfenster für eine hoch lokalisierte und effiziente Energiedeposition wird für größere Pulsdauern kleiner.
- Für $\tau_{\text{Pump}} = 1 \text{ ps}$ ist für eine Vergrößerung der Pulsenergie E_P um circa eine Größenordnung die Amplitude der Energiedeposition im Zentrum des Bessel-Profiles konstant. Die zusätzlich eingestrahelte Pulsenergie wird durch Plasmadefokussierung außerhalb des Zentrums des Bessel-Profiles deponiert.
- Für $\tau_{\text{Pump}} > 1 \text{ ps}$ kann die Amplitude für größere Pulsenergien im Gegensatz zu $\tau_{\text{Pump}} = 1 \text{ ps}$ vergrößert werden, allerdings tritt aufgrund der Puls-Plasma-Wechselwirkung Plasmadefokussierung auf, die die Lokalisierung der Energiedeposition reduziert.
- Für $\tau_{\text{Pump}} = 9 \text{ ps}$ kann eine große Amplitude der Energiedeposition erzielt werden, wenn eine ausgeprägte Plasmadefokussierung zu einer Verkleinerung der Lokalisierung führt.

Die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung beeinflusst maßgeblich die Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition. Zusammenfassend wird in diesem Kapitel durch ein gezieltes Anpassen der Puls-Plasma-Wechselwirkung demonstriert, dass mit einem entlang der z -Achse inhomogenem Intensitätsprofil durch die abgerundete Spitze des verwendeten Axicons eine homogene Energiedeposition über das gesamte Glasvolumen mit großer Amplitude erreicht werden kann.

- Stark ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung ($\tau_{\text{Pump}} = 7 \text{ und } 9 \text{ ps}$): Die Plasmadefokussierung ist signifikant ausgeprägt und für eine Verkleinerung der Pulsenergie ist die freie Elektronendichte unzusammenhängend.
- Zu kleine Puls-Plasma-Wechselwirkung ($\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs und } 0,5 \text{ ps}$): Die Amplitude der Energiedeposition ist klein und für größere Pulsenergien E_P treten sowohl Plasmadefokussierung als auch Filamente auf.
- Moderate Puls-Plasma-Wechselwirkung ($\tau_{\text{Pump}} = 1 \text{ bis } 5 \text{ ps}$): Effiziente und präzise Energiedeposition für eine entsprechende Wahl der Pulsenergie E_P .

5.4 Korrelation Energiedeposition und permanente Materialmodifikation

In diesem Abschnitt werden permanente Materialmodifikationen im Glasvolumen identifiziert, die charakteristisch für die räumliche Energiedeposition für die Intensitätsregime I bis IV sind. Dazu wird für die Intensitätsregime die räumliche Energiedeposition aus den Abschnitten 5.2 und 5.3 mit ex-situ Untersuchungen der Modifikationen mittels Transmissionsmikroskopie verglichen. In Abschnitt 5.4.1 werden resultierende Modifikationen für die konische Energiedeposition und Filamente des Intensitätsregimes IV untersucht. Im Abschnitt 5.4.2 wird die Auswirkung der Plasmadefokussierung (Intensitätsregime III) insbesondere auf die Geometrie der Modifikation analysiert und in Abschnitt 5.4.3 charakteristische Modifikationsphänomene für eine stark ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung für Verwendung von Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} \geq 7$ ps identifiziert.

5.4.1 Konische Energiedeposition und Filamente: Farbzentren und Brechungsindexmodifikation

In Abb. 5.23 ist die erzeugte freie Elektronendichte für das Intensitätsregime IV für eine Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und einer Pulsenergie $E_P = 550 \mu\text{J}$ zum Zeitpunkt $t_D = 10$ ps nach initialer Anregung (oben) mit ex-situ Transmissionsmikroskopie der permanenten Materialmodifikation (unten) dargestellt.

Mittels Transmissionsmikroskopie wird mit einer starken Kontrastvergrößerung in den räumlichen Bereichen der konischen Energiedeposition außerhalb des Zentrums des Bessel-Profiles eine Kontraständerung beobachtet. Des Weiteren wird diese Kontraständerung in den Bereichen der Filamente im gesamten Glasvolumen d_{Glas} beobachtet. Vergleichbare Modifikationen werden in [117] für die Erzeugung von Filamenten in Glas durch Verwendung von Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} = 120$ fs beobachtet. Die Modifikationen können durch lokale Brechungsindexänderungen oder Farbzentren erklärt werden, die in Kapitel 2 den Typ-I-Modifikationen zugeordnet werden. Die Modifikationen sind charakteristisch für die Verwendung von Pulsdauern in der Größenordnung $\tau_{\text{Pump}} \sim 100$ fs.

Im Zentrum des Bessel-Profiles wird über das gesamte Glasvolumen eine Modifikation mit transversaler Ausdehnung $\sim 4 \mu\text{m}$ in Form eines hell-dunkel-hell-Kontrastes festgestellt, siehe Detaildarstellung in Abb. 5.23 (b) unten. Der transversale Kontrastverlauf ist vergleichbar mit kontinuierlichen Brechungsindexänderungen, die aus lokale Dichteänderungen infolge einer lokalen Erhitzung des Materials über die Schmelztemperatur resultieren können, siehe Kapitel 2. Diese Modifikationen werden den Typ-II-Modifikationen zugeordnet [58].

An der Position des ersten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles wird im Außenbereich der Brechungsindexmodifikation eine weitere Modifikation beobachtet. Die Modifikation kann durch Risse erklärt werden, die durch der großen Energiedeposition im ersten Intensitätsmaximum des Bessel-Profiles infolge eines großen Temperatur- und Spannungsgradienten resultiert.

Insgesamt werden drei verschiedene charakteristische Modifikationen für die Energiedeposition

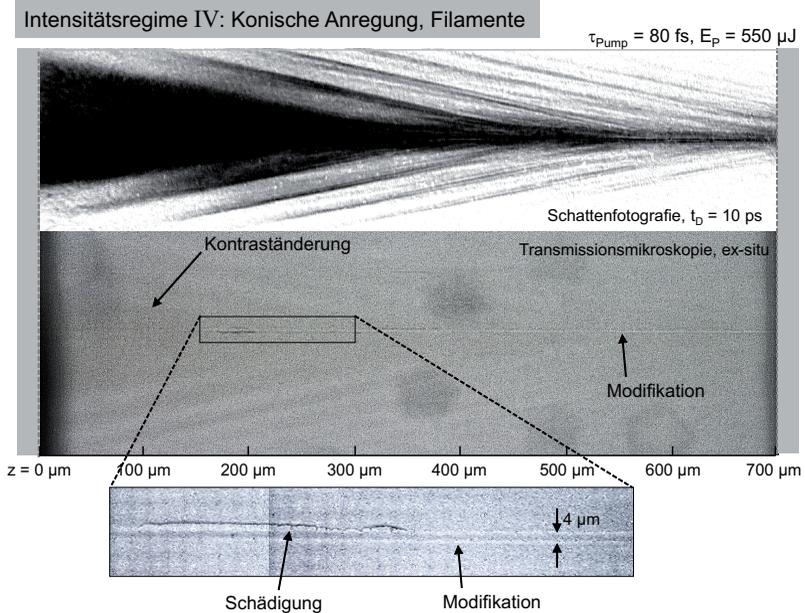


Abbildung 5.23 – Vergleich der räumlichen Energiedeposition des Intensitätsregimes IV mit permanenter Materialmodifikation. Oben: Freie Elektronendichte für $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ und $E_P = 550 \mu\text{J}$ ermittelt durch Pump-Probe-Schattenfotografie zum Zeitpunkt $t_D = 10 \text{ ps}$. Unten: Transmissionsmikroskopische Aufnahme der permanenten Materialmodifikation. Darüber hinaus ist eine Detaildarstellung der Materialmodifikation an der Position des ersten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles dargestellt.

eposition des Intensitätsregime IV für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$ festgestellt:

- Brechungsindexänderungen und Farbzentren im Bereich der konischen Energiedeposition und der Filamente (Typ-I-Modifikationen)
- Kontinuierliche Brechungsindexänderung in Form eines hell-dunkel-hell-Kontrastes im Zentrum des Bessel-Profiles (Typ-II-Modifikationen)
- Risse in der Umgebung des ersten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles

Der Vergleich der transienten freien Elektronendichte und der permanenten Materialmodifikation in Abb. 5.23 liefert einen weiteren Hinweis darauf, dass der Wert der freien Elektronendichte alleine nicht die auftretende Materialmodifikation erklären kann, da in den Bereichen der unterschiedlichen Modifikationsphänomene zum Zeitpunkt $t_D = 10 \text{ ps}$ näherungsweise derselbe Wert der freien Elektronendichte ermittelt wird.

5.4.2 Plasmafokussierung: Modifikation und Risse

In Abb. 5.24 ist die Energiedeposition für eine vergrößerte Puls-Plasma-Wechselwirkung bei der Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 2 \text{ ps}$ zusammen mit ex-situ Transmissionsmikroskopie der permanenten Materialmodifikation für drei Pulsenergien E_P dargestellt. Dabei entspricht $E_P = 55 \mu\text{J}$ einer homogenen Energiedeposition entlang des Glasvolu-

mens (Intensitätsregime II) und die Pulsenergien $E_P = 147$ und $550 \mu\text{J}$ einer moderaten bzw. starken Ausprägungen von Plasmadefokussierung (Intensitätsregime III).

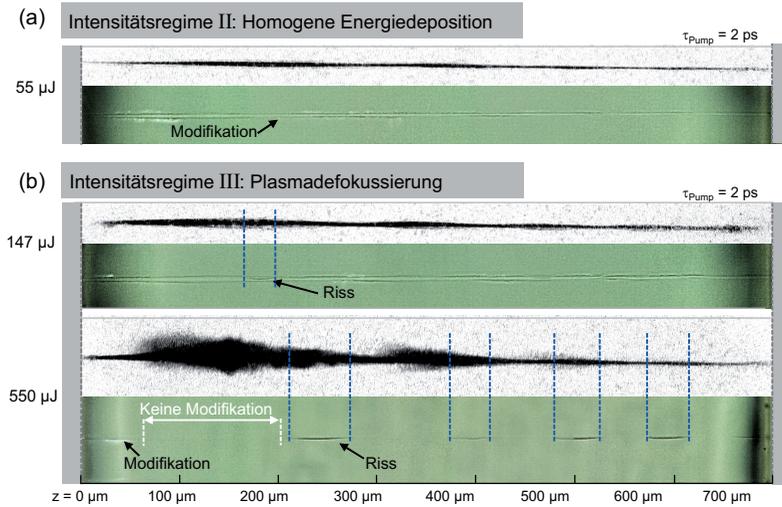


Abbildung 5.24 – Vergleich der räumlichen Energiedeposition mit der permanenten Materialmodifikation in Abhängigkeit der Ausprägung der Plasmadefokussierung für $\tau_{\text{Pump}} = 2 \text{ ps}$. (a) Homogene Energiedeposition für $E_P = 55 \mu\text{J}$ (Intensitätsregime II). (b) Moderate und starke Ausprägung von Plasmadefokussierung für $E_P = 147 \mu\text{J}$ bzw. $550 \mu\text{J}$ (Intensitätsregime III).

Für das Intensitätsregime II ($E_P = 55 \mu\text{J}$) wird über das gesamte Glasvolumen eine homogene Modifikation in Form des hell-dunkel-hell-Kontrastes festgestellt (Abb. 5.24 (a)). Die Modifikation ist vergleichbar mit der Brechungsindexänderung bzw. Typ-II-Modifikation, die im vorherigen Abschnitt beschrieben wird. Der Kontrast der Modifikation ist dabei vergleichsweise größer, was auf eine stärkere Modifikation bzw. Brechungsindexänderung im Zentrum des Bessel-Profiles hinweist. Im Anfangsbereich $z < 100 \mu\text{m}$ werden im Außenbereich der Brechungsindexänderung weitere Modifikationen festgestellt.

Für eine moderat ausgeprägte Plasmadefokussierung ($E_P = 147 \mu\text{J}$) im Intensitätsregime III wird zusätzlich zu der Brechungsindexänderung ein longitudinaler Riss an der Position des ersten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles festgestellt, dessen Entstehung durch eine vergrößerte Energiedeposition im Vergleich zum Intensitätsregime II erklärt werden kann.

Für eine stark ausgeprägte Plasmadefokussierung ($E_P = 550 \mu\text{J}$) wird für $z < 50 \mu\text{m}$ eine Brechungsindexmodifikation festgestellt, während im Bereich der Plasmadefokussierung ($75 \mu\text{m} \leq z \leq 220 \mu\text{m}$) keine permanente Materialmodifikation ermittelt wird. Aufgrund der kleinen Lokalisierung der Energiedeposition im Bereich der Plasmadefokussierung, ist die lokale Energiedeposition im Zentrum des Bessel-Profiles so klein, dass die Schwelle für die Erzeugung einer permanenten Materialmodifikation unterschritten ist. Hinter dem lokalen Intensitätsmaximum bei $z = 250 \mu\text{m}$ wird ein Riss im Zentrum des Bessel-Profiles ermittelt. Dies wird ebenfalls in der Umgebung des zweiten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles festgestellt. Für das dritte und vierte Intensitätsmaximum treten Risse an

den Positionen der Intensitätsmaxima auf. Die Plasmadefokussierung ist an den Positionen des dritten und vierten Intensitätsmaximums moderat ausgeprägt, sodass die Lokalisierung der Energiedeposition so groß ist, dass eine permanente Modifikation in Form eines Risses im Zentrum des Bessel-Profiles induziert wird, was vergleichbar mit $E_P = 147 \mu\text{J}$ ist.

5.4.3 Starke Puls-Plasma-Wechselwirkung: Punktförmige Modifikation

In Abb. 5.25 ist für eine ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung für $\tau_{\text{Pump}} = 7 \text{ ps}$ die Energiedeposition zusammen mit ex-situ Transmissionsmikroskopie der permanenten Materialmodifikation für drei verschiedene Pulsenergien E_P dargestellt, die einer Energiedeposition der Intensitätsregime I bzw. III entsprechen.

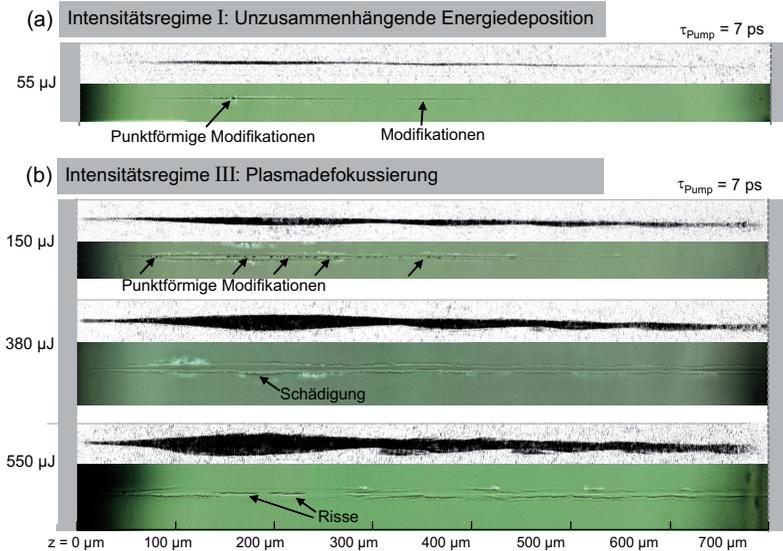


Abbildung 5.25 – Vergleich der räumlichen Energiedeposition mit der permanenten Materialmodifikation für eine ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung für $\tau_{\text{Pump}} = 7 \text{ ps}$ in Abhängigkeit der Pulsenergie E_P . (a) Unzusammenhängende Energiedeposition (Intensitätsregime I) für $E_P = 55 \mu\text{J}$. (b) Moderate bis starke Ausprägung von Plasmadefokussierung (Intensitätsregime III) für $E_P = 150$ bis $550 \mu\text{J}$.

Für die unzusammenhängende Energiedeposition im Intensitätsregime I ($E_P = 55 \mu\text{J}$) wird in der Umgebung der ersten beiden Intensitätsmaxima $z \approx 150$ und $350 \mu\text{m}$ eine permanente Modifikation festgestellt. Darüber hinaus werden im Zentrum des ersten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles einzelne punktförmige Modifikationen beobachtet. Für die kleinste Pulsenergie des Intensitätsregimes III ($E_P = 150 \mu\text{J}$) treten die punktförmigen Modifikationen in einer größeren Anzahl innerhalb der Brechungsindexmodifikation auf. Die freie Elektronendichte ist an den Positionen zusammenhängend und im Rahmen

der Messgenauigkeit homogen verteilt. Aufgrund dessen wird geschlussfolgert, dass die Entstehung der punktförmigen Modifikationen durch weitere Prozesse möglicherweise auf einer Zeitskala $t_D > 100$ ps stattfindet. Vergleichbare punktförmigen Modifikationen treten ausschließlich für $\tau_{\text{Pump}} \geq 7$ ps auf, sodass eine ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung möglicherweise für die Entstehung der Modifikationen notwendig ist. Eine mögliche Erklärung ist ein Wechselspiel von räumlicher Energiedeposition und hydrodynamischer Bewegung von aufgeheiztem Material, siehe Kapitel 2 und [71–73].

Für eine Vergrößerung der Pulsenergie $E_P = 380 \mu\text{J}$ ist die Brechungsindexmodifikation über das gesamte Glasvolumen ausgedehnt und im Bereich des ersten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles durch die Plasmadefokussierung circa $11 \mu\text{m}$ in transversaler Richtung ausgedehnt. In den äußeren Bereichen der Brechungsindexmodifikationen werden Modifikationen beobachtet, die vergleichbar mit der Schädigung für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs sind. Punktförmige Modifikationen werden möglicherweise aufgrund der verkleinerten Energiedeposition im Zentrum des Bessel-Profiles durch die Plasmadefokussierung vermieden.

Eine weitere Vergrößerung der Pulsenergie zu $E_P = 550 \mu\text{J}$ führt zu der Ausbildung von zwei longitudinalen Rissen im Bereich des ersten Intensitätsmaximums des Bessel-Profiles. An dieser Position ist die Brechungsindexmodifikation schwach ausgeprägt, was einen Hinweis darauf darstellt, dass die lokale Energiedeposition ab dem Überschreiten eines Schwellwertes aufgrund hoher thermischer Spannungen zur Rissentstehung anstatt zu einer Brechungsindexmodifikation führt.

5.4.4 Zusammenfassung

Die zentralen Ergebnisse hinsichtlich der permanenten Modifikation des Glasvolumens und der Korrelation mit der räumlichen Energiedeposition für die Verwendung eines Bessel-Profiles werden im Folgenden zusammengefasst. Insgesamt werden fünf charakteristische, permanente Modifikationen festgestellt:

- Brechungsindexänderungen und Farbzentren (klassifiziert als Typ-I-Modifikationen, siehe Abschnitt 2.4) für eine minimale Puls-Plasma-Wechselwirkung $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs für das Intensitätsregime IV, für das Filamente beobachtet werden und eine konische Energiedeposition stattfindet
- Brechungsindexänderung (analog zu den Typ-II-Modifikationen, siehe Abschnitt 2.4) im Zentrum des Bessel-Profiles, insbesondere für das Intensitätsregime II, für das eine homogene, hoch lokalisierte Energiedeposition stattfindet
- Starke Schädigung in den Außenbereichen der lokalen Brechungsindexänderung
- Risse an Positionen einer großen lokalen Energiedeposition
- Punktförmige Modifikationen für eine ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung für Pulsdauern $\tau_{\text{Pump}} \geq 7$ ps zum einen im Intensitätsregime I (unzusammenhängende Energiedeposition) und zum anderen für eine moderate Ausprägung von Plasmadefokussierung im Intensitätsregime III

Im Wesentlichen wird für eine homogene, zusammenhängende Energiedeposition für das Intensitätsregime II eine permanente Modifikation des gesamten Volumens in Form einer Brechungsindexänderung festgestellt. Für eine starke Ausprägung der Plasmadefokussierung im Intensitätsregime III, ist aufgrund der kleinen Lokalisierung der Energiedeposition das Glasvolumen im Zentrum des Bessel-Profiles unmodifiziert. Aufgrund dessen resultiert

eine unterbrochene Modifikation des Volumens trotz einer vollständigen Energiedeposition im gesamten Volumen.

Das Auftreten der punktförmigen Modifikationen für eine ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung $\tau_{\text{Pump}} \geq 7$ ps kann durch die selektive Betrachtung der räumlichen Energiedeposition mittels Pump-Probe-Schattenfotografie nicht erklärt werden. In Kombination mit der Untersuchung der Dynamik der Plasmadefokussierung auf einer Zeitskala $t_D > 20$ ps nach initialer Anregung einer freien Elektronendichte stellt dies einen Hinweis dar, dass weitere Prozesse wie beispielsweise der Energieübertrag an das Phononensystem und die lokale Aufheizung des Materials eine entscheidende Rolle für die Entstehung von Defekten spielen. Aufgrund dessen wird geschlossen, dass das elektronische Modell zur Beschreibung der Materialmodifikation durch Verwendung der kritischen Elektronendichte ρ_{crit} um beispielsweise weitere thermische und hydrodynamische Effekte erweitert werden muss.

6 Realisierung eines Trennprozesses für Gläser

In diesem Kapitel wird auf Grundlage der erarbeiteten Erkenntnisse aus den Kapiteln 4 und 5 ein Trennprozess für Gläser für die Verwendung eines maßgeschneiderten Bessel-Profiles realisiert. Dabei ist ein Ziel die Erstellung einer Prozesslandkarte, sodass in Abhängigkeit der verwendeten Prozessparameter eine Vorhersage der auftretenden Modifikations- und Abtragsphänomene ermöglicht wird und die Auswirkungen der erzeugten Modifikationen auf den Trennprozess quantifiziert werden. Das Vorgehen ist in Abb. 6.1 dargestellt.

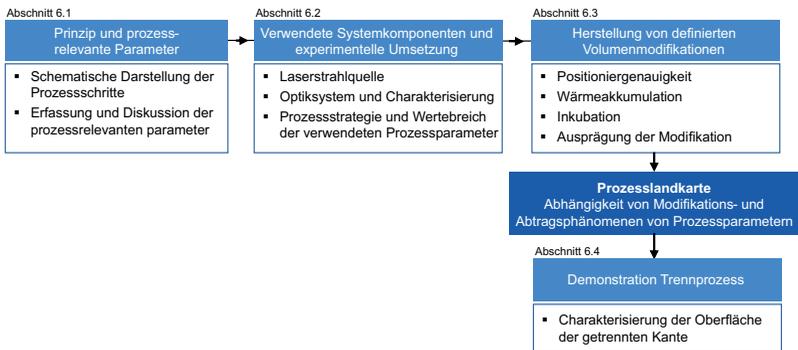


Abbildung 6.1 – Vorgehen und Inhalte dieses Kapitels.

Zunächst wird in Abschnitt 6.1 das Prinzip des Trennprozesses vorgestellt sowie die prozessrelevanten Parameter identifiziert und deren Einfluss auf die resultierende Bearbeitungsqualität des Trennprozesses diskutiert. In Abschnitt 6.2 werden die verwendete Systemtechnik und -komponenten sowie die experimentelle Umsetzung des Prozesses dargestellt. In Abschnitt 6.3 werden die die Bearbeitungsergebnisse in Abhängigkeit der Prozessparameter analysiert. Dabei wird zunächst der Einfluss der Positionierung des Bessel-Profiles relativ zur Glasprobe ermittelt zur Quantifizierung der Justagetoleranzen des Prozesses. Anschließend werden auftretende Phänomene Wärmeakkumulation, Inkubation sowie die Ausprägung der Modifikation in Abhängigkeit der Prozessparameter diskutiert. Die auftretenden Phänomene werden in Form einer Prozesslandkarte zusammengefasst. In Abschnitt 6.4 wird auf Grundlage der Ergebnisse der Trennprozesses für das verwendete Bessel-Profil realisiert sowie eine Charakterisierung der Qualität des Bearbeitungsergebnisses durchgeführt.

6.1 Prinzip und prozessrelevante Parameter

6.1.1 Prinzip des Trennprozesses

Der Prozess zum Trennen von Gläsern mittels ultrakurz gepulster Laserstrahlung gliedert sich in zwei Teilprozesse 1 und 2, die in Abb. 6.2 schematisch dargestellt sind. In Teilprozess 1 werden entlang einer definierten Schnittkontur sukzessiv Volumenmodifikationen in das Glas mithilfe des Bessel-Profiles erzeugt, die sich jeweils über das gesamte Glasvolumen erstrecken. In Teilprozess 2 wird anschließend externe, mechanische Energie in Form von Druckkräften auf das Werkstück ausgeübt. Durch die zusätzliche Energie werden Spannungen eingebracht, die durch die Entstehung von Rissen relaxieren, wobei die erzeugten Volumenmodifikationen dabei als Führungsstruktur für die Risspropagation dienen.

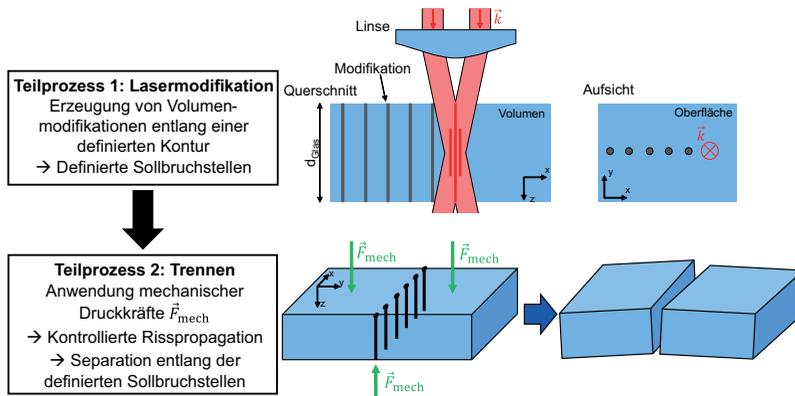


Abbildung 6.2 – Schematische Darstellung des zweischrittigen Trennprozesses von Gläsern mit einem maßgeschneiderten Bessel-Profil.

Der Schwerpunkt des Vorgehens zur Realisierung des Trennprozesses liegt auf der Lasermodifikation des Teilprozesses 1. Als Trennkante wird eine lineare Geometrie gewählt. Damit die durch den Teilprozess 2 entstehenden Risse selektiv entlang der eingebrachten Volumenmodifikationen geführt werden, müssen die Modifikationen hinreichend stark ausgeprägt sein, sodass genügend Vorspannungen eingebracht worden sind. Aufgrund dessen sind neben den Prozessparametern Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P weitere Parameter für eine Umsetzung des Prozesses relevant, die im nächsten Abschnitt erläutert und diskutiert werden.

Das prinzipielle Vorgehen der Teilprozesse 1 und 2 ist in der Literatur für die Verwendung von stark fokussierten fs-Laserpulsen mit räumlichen Gauß-Profil entwickelt worden [105]. Durch die großen Intensitäten werden durch die Erzeugung von Filamenten Modifikationslängen im Glasvolumen bis zu $80 \mu\text{m}$ erreicht. Für dieses Verfahren werden die Modifikationen in Abhängigkeit der Glasdicke d_{Glas} sukzessiv aneinander angeordnet. Die prozessierte Schnittkante weist eine Oberflächenstruktur mit einer lokalen Rauheit im Bereich $R_a > 3 \mu\text{m}$ auf. Durch die kommerzielle Verfügbarkeit von Laserstrahlquellen mit großen Pulsenergien $E_P > 100 \mu\text{J}$ können die Nachteile des Trennens mit Filamenten

durch Anpassung der räumlichen Strahlformung vermieden werden und Pulsdauern τ_{Pump} im Bereich einiger Pikosekunden verwendet werden. Aufgrund dessen ist von verschiedenen Gruppen der hier untersuchte Trennprozess auf Grundlage einer angepassten räumlichen Strahlform beschrieben und demonstriert worden [118–122]. Hier soll in Kombination mit den Erkenntnissen der Kapitel 3 und 4 ein fundamentales Verständnis entwickelt werden, für welche Prozessparameter der oben beschriebene Trennprozess mit einem Bessel-Profil realisiert werden kann, das mit einem Axicon erzeugt wird, um eine Grundlage für die Entwicklung eines universellen Trennprozesses für transparente Materialien zu schaffen.

6.1.2 Erfassung und Diskussion der prozessrelevanten Parameter

Durch geeignete Wahl von Pulsdauer τ_{Pump} und Pulsenergie E_P wird mit einem Bessel-Profil eine Volumenmodifikation erzeugt, die über das gesamte Glasvolumen ausgedehnt ist und eine transversale Ausdehnung im Bereich $< 5 \mu\text{m}$ aufweist. Die resultierende Kantenqualität nach dem Trennen ist abhängig von der Struktur der Volumenmodifikation. Des Weiteren kann je nach Größe der lokalen Intensität an der Glasoberfläche bzw. -rückseite, ein direkter Abtrag von Material stattfinden. Die resultierenden Abtragskrater können beim mechanischen Trennen zu Ausbrüchen an der Oberfläche und Rückseite führen.

Für das Trennen durch die Einbringung mechanischer Energie Teilprozess 2, müssen die Modifikationen hinreichend ausgeprägt sein bzw. die eingebrachten Spannungen groß sein. In Kapitel 5 ist gezeigt worden, dass eine Vergrößerung der Pulsenergie E_P zu einer Verkleinerung der Lokalisierung der Energiedeposition führen kann, wodurch die Ausprägung der Modifikation verkleinert wird. Aufgrund dessen werden insbesondere die Anzahl der Laserpulse pro Fläche N beim Modifikationsprozess vergrößert, um die eingebrachten Spannungen zu verstärken. Für $N > 1$ tritt aufgrund des bereits modifizierten Materials für die Laserpulse eine veränderte Absorption auf, was im Allgemeinen als Inkubation bezeichnet wird. Folglich können aufgrund der veränderten Energiedeposition zusätzliche Modifikationen bzw. Defekte wie beispielsweise Risse im Volumen entstehen.

Für eine Vergrößerung der verwendeten Anzahl der Pulse N kann in Abhängigkeit des zeitlichen Abstands Δt_{Puls} zweier aufeinanderfolgender Pulse Wärmeakkumulation auftreten. Für die Volumenmodifikation von Glas mit einem Bessel-Profil wird in [58] für Verwendung von Puls-Repetitionsraten $f_{\text{Rep}} \geq 500 \text{ kHz}$ bzw. einem zeitlichen Pulsabstand $\Delta t_{\text{Puls}} \leq 2 \mu\text{s}$ eine Wärmeeinflusszone beobachtet, die durch Wärmeakkumulation erklärt wird. Die maßgebende Größe für die Ausprägung von Wärmeakkumulation ist die Lebensdauer des aufgeheizten Materials, die für große Pulsenergien E_P länger sein kann. Somit kann für große Pulsenergien E_P Wärmeakkumulation auch bei Puls-Repetitionsraten $f_{\text{Rep}} \leq 500 \text{ kHz}$ auftreten.

Die resultierende Kantenqualität beim mechanischen Trennen in Teilprozess 2 ist abhängig vom räumlichen Abstand d_{Mod} der Volumenmodifikationen. Für einen zu großen Abstand wird die Risspropagation nicht entlang der Modifikationen geführt und ein unkontrolliertes Trennen resultiert. Für einen zu kleinen Abstand kann durch die vormodifizierte Eintrittsseite eine Abschirmung oder unkontrollierte Energiedeposition im Glasvolumen stattfinden. Darüber hinaus beeinflusst der Abstand d_{Mod} die resultierende Oberflächenwelligkeit der Schnittkante.

In Abb. 6.3 sind die Parameter zusammengefasst, die einen Einfluss auf den Trennprozess im Teilprozess 2 sowie das Bearbeitungsergebnis haben.

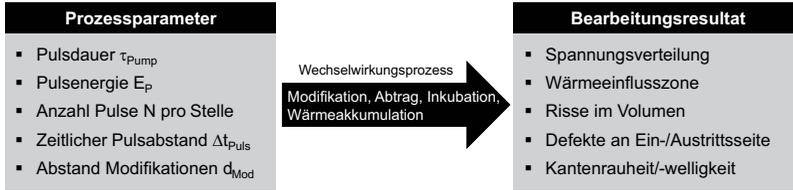


Abbildung 6.3 – Schematische Zusammenfassung der prozessrelevanten Parameter für das Trennen von Gläsern und deren Zusammenhang mit spezifischen Größen des Bearbeitungsergebnisses.

6.2 Verwendete Systemkomponenten und experimentelles Vorgehen

6.2.1 Laserstrahlquelle

Für die Realisierung des Trennprozesses wird eine Hochleistungsstrahlquelle „Amphos 400 Flex“ der Amphos GmbH verwendet. Die Strahlquelle liefert Pulse mit einer maximalen Pulsenergie $E_p \approx 285 \mu\text{J}$, welche für eine Volumenmodifikation mit einem Bessel-Profil notwendig ist. Darüber hinaus können im Vergleich zur Strahlquelle „Libra“, die für die Pump-Probe-Schattenfotografie verwendet wird, Puls-Repetitionsraten $f_{\text{Rep}} > 1 \text{ kHz}$ verwendet werden. Die zentralen Parameter der Strahlquelle sind in Tabelle 6.1 zusammengefasst.

Parameter	Formelzeichen	Wert
Wellenlänge	λ	1030 nm
Maximale mittlere Leistung	P_{max}	400 W
Puls-Repetitionsrate	f_{Rep}	1,4 - 56,8 MHz
Pulsdauer	τ_{Pump}	0,7 - 7,5 ps
Beugungsmaßzahl, x -Richtung	M_y^2	1,2
Beugungsmaßzahl, y -Richtung	M_x^2	1,6

Tabelle 6.1 – Laserparameter der verwendeten Strahlquelle „Amphos 400 Flex“.

Mithilfe eines zusätzlich integrierten elektrooptischen Modulators (EOM) kann die Puls-Repetitionsrate f_{Rep} auf ganzzahlige Teiler von 1,4 MHz reduziert werden. Die emittierte mittlere Leistung wird durch Einstellen des Pump-Diodenstroms reguliert. Die räumliche Intensitätsverteilung des Rohstrahls der Strahlquelle ist in Abb. 6.4 dargestellt. Der Durchmesser in horizontaler bzw. vertikaler Richtung wird jeweils aus $1/e^2$ der Spitzenintensität I_0 zu $2r_{0,x} = 7,7 \text{ mm}$ bzw. $2r_{0,y} = 3,2 \text{ mm}$ ermittelt. Somit ist die Intensitätsverteilung in horizontaler Richtung um mehr als einen Faktor 2 breiter als in vertikaler Richtung,

was mit einer Dejustage eines Zylinderlinsen-Teleskops hinter dem Verstärkermodul innerhalb der Strahlquelle erklärt werden könnte. Die Modulation der Intensitätsverteilung in vertikaler Richtung kann durch Beugung der Laserstrahlung an Optiken innerhalb oder hinter dem Verstärkermodul erklärt werden.

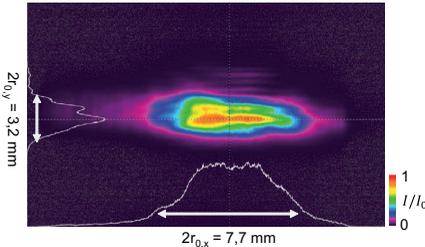


Abbildung 6.4 – Räumliche Intensitätsverteilung des Rohstrahls der verwendeten Strahlquelle. Die Durchmesser in horizontaler x - bzw. vertikaler y -Richtung $2r_{0,x}$ bzw. $2r_{0,y}$ werden aus $1/e^2$ der Spitzenintensität ermittelt.

6.2.2 Optiksystem und Charakterisierung des Bessel-Profiles

Die prinzipielle Erzeugung des Bessel-Profiles erfolgt analog zu Kapitel 5. Durch die veränderte Intensitätsverteilung, Dimensionen des Rohstrahls sowie der größeren Wellenlänge λ im Vergleich zu Kapitel 5, wird das Optiksystm für eine Angleichung der longitudinalen Ausdehnung des Bessel-Profiles auf die Glasdicke d_{Glas} modifiziert. Die verwendeten Optik-Komponenten sind in Tabelle 6.2 zusammengefasst.

Parameter	Charakteristische Größe	Formelzeichen	Wert
Axicon (Ax)	Basiswinkel	θ_{Ax}	10°
Linse L1, plan-konvex	Brennweite	f_1	150 mm
Linse L2, plan-asphärisch	Brennweite	f_2	20 mm

Tabelle 6.2 – Verwendeten Optik-Komponenten zur Erzeugung des Bessel-Profiles.

In Abb. 6.5 (a) ist das erzeugte zweidimensionale Bessel-Profil an zwei verschiedenen longitudinalen Positionen z sowie in Abb. 6.5 (b) die normierte Intensität des Zentralmaximums des Bessel-Profiles für longitudinalen Positionen $z < 900 \mu\text{m}$ dargestellt.

Das transversale Intensitätsprofil weist an der longitudinalen Position $z = 260 \mu\text{m}$ im ersten Nebenmaximum des Bessel-Profiles eine Asymmetrie auf, Abb. 6.5 (a). Für größere z -Positionen, hier exemplarisch anhand von $z = 600 \mu\text{m}$ gezeigt, ist in horizontaler Richtung eine größere Intensität in den Nebenmaxima des Bessel-Profiles lokalisiert als in vertikaler Richtung. Eine mögliche Ursache ist das elliptische transversale Rohstrahlprofil der Laserstrahlquelle, siehe Abb. 6.4.

Die Länge des longitudinalen Intensitätsprofils wird anhand der Halbwertsbreite der Intensitätsverteilung (FWHM) zu $z_B = 460 \mu\text{m}$ ermittelt, Abb. 6.5 (b). Durch den Brechungsindexsprung von Luft zu Glas bei der Positionierung der Intensitätsverteilung in das Glasvolumen, wird die effektive Länge des longitudinalen Intensitätsprofils zu $z_{B,\text{eff}} = n_{\text{Glas}} \cdot z_B \approx 1,5 \cdot 460 \mu\text{m} = 690 \mu\text{m}$ vergrößert. Die Länge ist näherungsweise in Übereinstimmung mit der verwendeten Glasdicke $d_{\text{Glas}} = 700 \mu\text{m}$. Die Modulation des longitudinalen Intensitätsprofils durch die abgerundete Spitze des Axicons ist weniger aus-

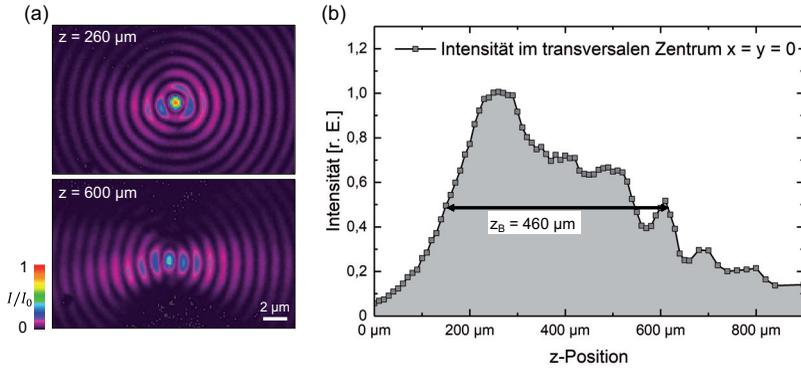


Abbildung 6.5 – Verwendetes Bessel-Profil für die Realisierung eines Trennprozesses für Gläser. (a) Transversales Intensitätsprofil an den longitudinalen Positionen $z = 260 \mu\text{m}$ und $600 \mu\text{m}$. (b) Longitudinales Intensitätsprofil im Zentrum des Bessel-Profiles $x = y = 0$.

geprägt als bei dem Optiksistem, das für die Pump-Probe-Schattenfotografie in Kapitel 4 verwendet wird.

6.2.3 Prozessstrategie

Im Folgenden wird die Prozessstrategie und das Vorgehen zur Erzeugung der Volumenmodifikationen gemäß des Teilprozesses 1 aus Abb. 6.2 erläutert. Die Glasprobe ist auf eine Halterung montiert, wobei sich unterhalb des zu prozessierenden Bereichs Luft befindet, um Reflexionen oder Absorption durch die Halterung zu vermeiden. Die Volumenmodifikationen werden in einer linearen Anordnung durch das Verfahren der Halterung bzw. der Glasprobe relativ zur Laserstrahlung mithilfe eines Linearachssystems hergestellt.

Die Puls-Repetitionsrate f_{Rep} wird mithilfe des EOM durch die Selektion ausgewählter Pulse von $f_{\text{Rep}} = 1,4 \text{ MHz}$ auf $f_{\text{Rep}} \leq 200 \text{ kHz}$ reduziert, um den Einfluss von Wärmeakkumulation auf den Trennprozess zu verkleinern, wie im vorherigen Abschnitt beschrieben wird. Der zeitliche Pulsabstand beträgt demnach $\Delta t_{\text{Puls}} \geq 5 \mu\text{s}$. Um räumlich separierte Volumenmodifikationen mit der gewählten Puls-Repetitionsrate f_{Rep} herzustellen, werden mit einem Pulsgenerator Puls-Züge mit einstellbarer Anzahl der Pulse N pro Pulszug sowie zeitlichem Abstand Δt_{Burst} erzeugt, siehe Abb. 6.6.

Der räumliche Pulsüberlapp $P\ddot{U} = 1 - v_{\text{Feed}} / (f_{\text{Rep}} \cdot 2w_0)$ von einzelnen aufeinanderfolgenden Pulsen beträgt für einen Strahldurchmesser $2w_0 \approx 1 \mu\text{m}$ für eine Puls-Repetitionsrate $f_{\text{Rep}} = 200 \text{ kHz}$ mit einer Vorschubgeschwindigkeit $v_{\text{Feed}} < 10 \text{ mm/s}$ mindestens 95%, sodass nachfolgende Pulse mit einem zeitlichen Abstand $\Delta t_{\text{Puls}} = f_{\text{Rep}}^{-1} = 5 \mu\text{s}$ während des Vorschubs durch die Achsen näherungsweise dieselbe Position bestrahlen. Die Anzahl der Pulse pro Stelle N wird über folgenden Zusammenhang mithilfe der zeitlichen Breite des Puls-Zugs Δt_{Gate} berechnet:

$$N = \Delta t_{\text{Gate}} \cdot f_{\text{Rep}} = \Delta t_{\text{Gate}} / \Delta t_{\text{Puls}} \quad (6.1)$$

Die räumliche Separation d_{Mod} der Modifikationen wird durch Wahl der Vorschubge-

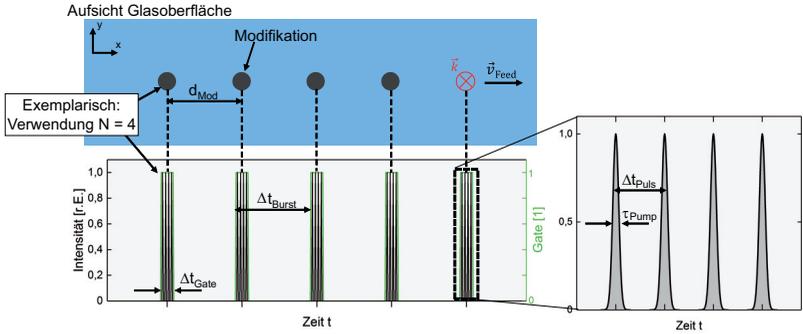


Abbildung 6.6 – Schematische Darstellung der räumlichen (oben) und zeitlichen (unten) Anordnung von zeitlichen Puls-Zügen für die räumliche Separation der Modifikationen mit Abstand d_{Mod} und zum Einstellen der verwendeten Anzahl der Pulse pro Stelle N . Die Darstellungen sind nicht maßstabsgetreu.

schwindigkeit v_{Feed} sowie des zeitlichen Abstandes der Puls-Züge Δt_{Burst} eingestellt und mit Gleichung 6.2 berechnet.

$$d_{\text{Mod}} = v_{\text{Feed}} \cdot \Delta t_{\text{Burst}} \quad (6.2)$$

Die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 6$ ps wird gewählt, um Schäden im Verstärker der Strahlquelle durch zu große Pulsspitzenintensitäten zu vermeiden. Gemäß Kapitel 5 verkleinert sich für diese Pulsdauer das Prozessfenster für eine hoch lokalisierte Energiedeposition im Vergleich zu $\tau_{\text{Pump}} \sim 1$ ps, was im weiteren Verlauf berücksichtigt werden muss.

Die für die folgenden Abschnitte verwendeten Wertebereiche der Prozessparameter für die Realisierung des Trennprozesses sind in Tabelle 6.3 zusammengefasst.

Parameter	Formelzeichen	Wert
Pulsdauer	τ_{Pump}	6 ps
Pulsenergie	E_{P}	40 - 120 μJ
Anzahl Pulse pro Stelle	N	1 - 50
Zeitlicher Pulsabstand	Δt_{Puls}	≥ 5 μs
Modifikationsabstand	d_{Mod}	3 μm

Tabelle 6.3 – Verwendete Prozessparameter für die Ermittlung des Prozessfensters für die Erzeugung definierter Volumenmodifikationen zur Realisierung eines Trennprozesses für Gläser.

6.3 Prozessfenster für die Erzeugung definierter Volumenmodifikationen

In Abschnitt 6.3.1 wird die Abhängigkeit der erzeugten Modifikation von der relativen Positionierung des Bessel-Profiles relativ zur Glasprobe ermittelt, um die Toleranz des Modifikationsprozesses hinsichtlich einer möglichen Verkippung der Glasprobe zu quantifizieren. Damit soll die Anforderung an die Positioniergenauigkeit des Bessel-Profil relativ

unterschiedlich sein. Darüber hinaus können durch einen veränderten Einfallswinkel der Laserstrahlung auf die Glasoberfläche Aberrationen resultieren [123]. Durch die Vergrößerung der effektiven longitudinalen Intensitätsverteilung $z_{B,eff}$ ist der Prozess prinzipiell auf Dejustagen unempfindlicher, allerdings wird durch die größere Intensität an der Oberfläche bzw. Rückseite ein ausgeprägter Materialabtrag stattfinden. Aufgrund dessen werden weitere Pulse durch die vormodifizierte Oberfläche gegebenenfalls abgeschirmt. Demnach sollte die effektive longitudinale Ausdehnung der Intensitätsverteilung $z_{B,eff}$ nicht größer als die Glasdicke d_{Glas} und insgesamt die Positioniergenauigkeit über den gesamten Weg der Schnittlänge $< 50 \mu\text{m}$ sein, um darüber hinaus Aberrationen der Intensitätsverteilung im Glasvolumen zu vermeiden.

6.3.2 Einfluss Wärmeakkumulation: Wahl des zeitlichen Pulsabstands

In Abhängigkeit der Prozessparameter kann aufgrund von Wärmeakkumulation eine veränderte Energiedeposition und die Entstehung einer Wärmeeinflusszone resultieren. Prinzipiell kann durch die Wärmeeinflusszone eine Verkleinerung der Oberflächenrauheit der Trennkante vergleichbar mit einem Laserpolierprozess resultieren [124]. Zur Realisierung einer räumlichen Energiedeposition, die mit einer homogenen Energiedeposition aus Kapitel 5 vergleichbar ist, soll der Einfluss von Wärmeakkumulation auf den Modifikationsprozess klein sein. Aufgrund dessen wird im Folgenden das Einsetzen von Wärmeakkumulation in Abhängigkeit der Prozessparameter untersucht.

In Abb. 6.8 sind Aufnahmen mittels Transmissionsmikroskopie einer modifizierten Glasoberfläche dargestellt, wobei die Modifikationen für die Positionierung des Bessel-Profiles bei $z = 0$ (siehe Abb. 6.7) mit $N = 50$ Pulse, $\Delta t_{Puls} = 5 \mu\text{s}$ und $d_{Mod} = 3 \mu\text{m}$ für eine Variation der Pulsenergie E_P hergestellt werden.

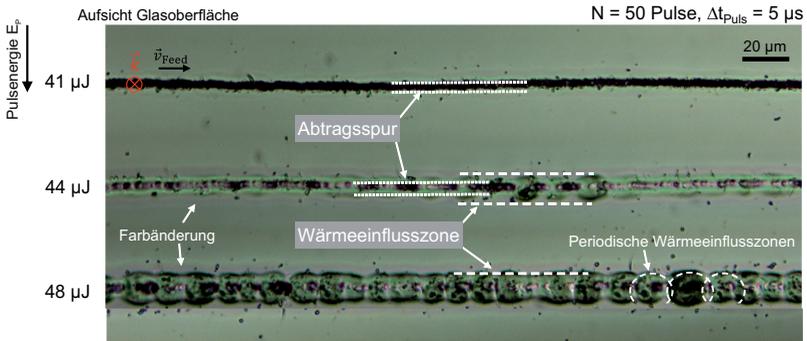


Abbildung 6.8 – Transmissionsmikroskopie von Modifikationen auf der Glasoberfläche, die mit drei unterschiedlichen Pulsenergien E_P erzeugt werden. $N = 50$, $\Delta t_{Puls} = 5 \mu\text{s}$ und $d_{Mod} = 3 \mu\text{m}$. Anhand charakteristischer Modifikationsbereiche wird das Einsetzen von Wärmeakkumulation ermittelt.

Für $E_P = 41 \mu\text{J}$ wird eine zusammenhängende Abtragsspur an der Oberfläche erzeugt. Das folgt aus einem größeren Durchmesser der einzelnen Abtragskrater im Vergleich zum

Abstand der Modifikationen d_{Mod} durch eine große Intensität an der Oberfläche. Für eine Vergrößerung der Pulsenergie auf $E_P = 44 \mu\text{J}$ wird zusätzlich zur Abtragsspur eine Wärmeinflusszone mit transversaler Ausdehnung $23 \mu\text{m}$ beobachtet sowie eine Farbänderung im äußeren Bereich der Wärmeinflusszone festgestellt. Für $E_P = 48 \mu\text{J}$ vergrößert sich die Wärmeinflusszone und periodische, elliptische Wärmeinflusszonen treten auf.

Durch die ausgeprägte Einbringung von Materialmodifikationen ist ein prinzipielles Trennen entlang der prozessierten Linien möglich. Die Oberflächen von zwei Trennkanten sind in Abb. 6.9 (a) bzw. (b) exemplarisch für eine moderate und eine dominante Ausprägung von Wärmeakkumulation sowie eine Abtragsspur an der Oberfläche dargestellt. Für beide Fälle werden in der oberen Probenhälfte nach dem mechanischen Trennen Ausbrüche festgestellt. Darüber hinaus werden in der Mitte des Glasvolumens Risse festgestellt. Für eine moderate Ausprägung von Wärmeakkumulation in (a) ist die untere Probenhälfte unmodifiziert. Das kann durch die absorbierende und abschirmende Wirkung der Wärmeakkumulationszonen im Modifikationsprozess erklärt werden, sodass eine Propagation bis zur unteren Probenhälfte verhindert wird. Für eine dominante Wärmeakkumulation in (b) werden Wärmeinflusszonen vergleichbar mit den periodischen Einflusszonen aus Abb. 6.9 beobachtet. Des Weiteren treten Risse, Ausbrüche sowie eine Modifikation der Glasrückseite auf.

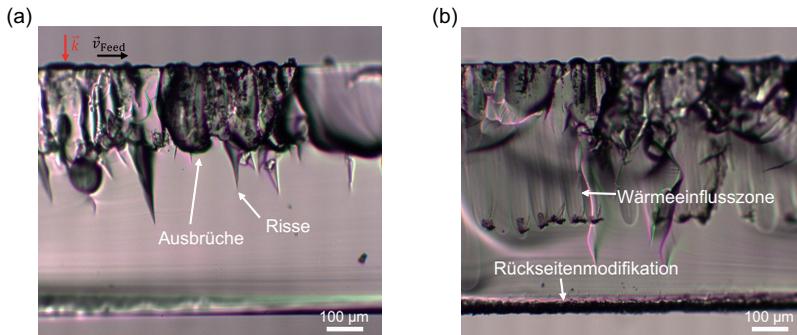


Abbildung 6.9 – Transmissionmikroskopie von Trennkanten für verschiedene Ausprägungen der Wärmeakkumulation ($f_{\text{Rep}} = 200 \text{ kHz}$, $N = 50$ Pulse, $d_{\text{Mod}} = 3 \mu\text{m}$). (a) Moderate Wärmeakkumulation für $E_P = 45 \mu\text{J}$: Ausbrüche in der oberen Probenhälfte und Risse im Volumen. (b) Dominante Wärmeakkumulation für $E_P = 70 \mu\text{J}$: Periodische Wärmeinflusszonen, Risse, Ausbrüche und Rückseitenmodifikation.

Das beobachtete Auftreten von Wärmeakkumulation ist ein Resultat der Kombination der gewählten Prozessparameter Δt_{Puls} , N sowie E_P [125]. Das Auftreten von Wärmeakkumulation wird für eine Puls-Repetitionsrate $f_{\text{Rep}} = 500 \text{ kHz}$ für die Verwendung eines Bessel-Profiles in [120] zur Erzeugung von Volumenmodifikationen in Glas berichtet. Zur Realisierung des Trennprozesses im Rahmen dieser Arbeit soll der Einfluss von Wärmeakkumulation möglichst gering sein. Aufgrund dessen wird eine Puls-Repetitionsrate von $f_{\text{Rep}} < 200 \text{ kHz}$ bzw. ein zeitlicher Pulsabstand $\Delta t_{\text{Puls}} > 5 \mu\text{s}$ eingestellt sowie die Anzahl der Pulse $N < 50$ gewählt für die Vermeidung von Oberflächenabtrag und die Separation einzelner Modifikationen, um Ausbrüche zu vermeiden.

6.3.3 Einfluss Inkubation: Wahl der Anzahl der Pulse

Zur Quantifizierung des Einflusses von Inkubation auf die Modifikationen wird im Folgenden die Anzahl der Pulse N variiert. In Abb. 6.10 sind Aufnahmen mittels Transmissionsmikroskopie für Modifikationen mit $N = 1, 10$ und 40 Pulse für $E_P = 75 \mu\text{J}$ dargestellt. Dabei wird je ein Bild von der Oberseite, der Volumenmitte ($z = 350 \mu\text{m}$) sowie der Glasrückseite gezeigt. Zur Vermeidung von Wärmakkumulation wird $f_{\text{Rep}} = 67 \text{ kHz}$ verwendet. Der Modifikationsabstand beträgt $d_{\text{Mod}} = 3 \mu\text{m}$.

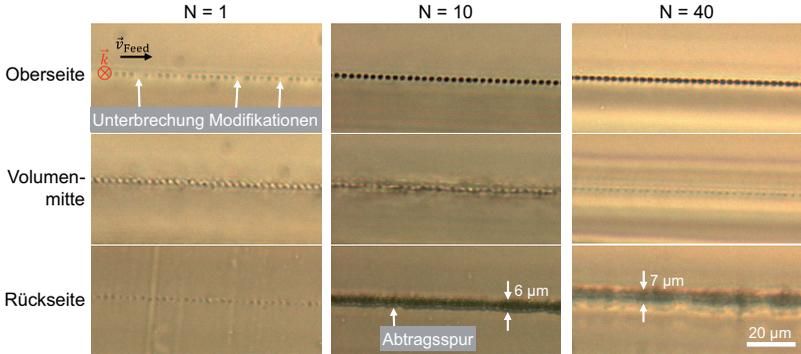


Abbildung 6.10 – Transmissionsmikroskopie der Modifikationen in Abhängigkeit der Anzahl der Pulse N an der Glasoberseite (obere Reihe), in der Volumenmitte (mittlere Reihe) und an der Rückseite (untere Reihe) zur Ermittlung des Einflusses von Inkubation auf die Modifikation. $E_P = 75 \mu\text{J}$, $f_{\text{Rep}} = 67 \text{ kHz}$, $d_{\text{Mod}} = 3 \mu\text{m}$.

Für $N = 1$ werden an der Oberseite des Glases Unterbrechungen der Modifikationen beobachtet, die auf der Rückseite ebenfalls vereinzelt auftreten. Die Modifikationen in der Volumenmitte sind kontinuierlich. Eine mögliche Erklärung sind Kontaminationen oder Defekte der Oberflächen. Aufgrund dessen kann ein einzelner Puls $N = 1$ beispielsweise Rückstände des Reinigungsprozesses vor den Modifikationsexperimenten abtragen und somit zum größten Teil an der Oberfläche absorbiert werden. Aufgrund dessen wird geschlossen, dass für $N = 1$ ein Trennprozess aufgrund fehlender Modifikationen zu einer reduzierten Trennqualität aufgrund von Ausbrüchen führen kann. Für $N = 10$ und $N = 40$ Pulse sind die Modifikationen an der Oberseite und in der Volumenmitte an allen bestrahlten Positionen vorhanden. An der Rückseite wird eine $6 \mu\text{m}$ bzw. $7 \mu\text{m}$ breite Abtragsspur beobachtet. In Bezug auf den vorherigen Abschnitt wird geschlossen, dass beim mechanischen Trennen durch die Abtragsspur Ausbrüche an der Glasrückseite auftreten werden.

Zusammenfassend wird der geeignete Parameterbereich für die Erzeugung definierter Modifikationen zu $1 < N < 10$ Pulse ermittelt.

6.3.4 Ausprägung der Modifikation: Wahl der Pulsenergie

Im Folgenden wird die Ausprägung der Modifikation und die eingebrachten Spannungen im Glasvolumen in Abhängigkeit der verwendeten Pulsenergie E_P untersucht. In Abb. 6.11 sind Aufnahmen mittels Transmissionsmikroskopie für fünf verschiedene Pulsenergie

dargestellt. Basierend auf den Ergebnissen der Abschnitte 6.3.2 und 6.3.3 wird für den Modifikationsprozess $N = 2$ Pulse für eine separierte Erzeugung von Volumenmodifikationen verwendet. Des Weiteren wird $f_{\text{Rep}} = 67 \text{ kHz}$ zur Vermeidung von Wärmeakkumulation gewählt und $d_{\text{Mod}} = 3 \text{ }\mu\text{m}$.

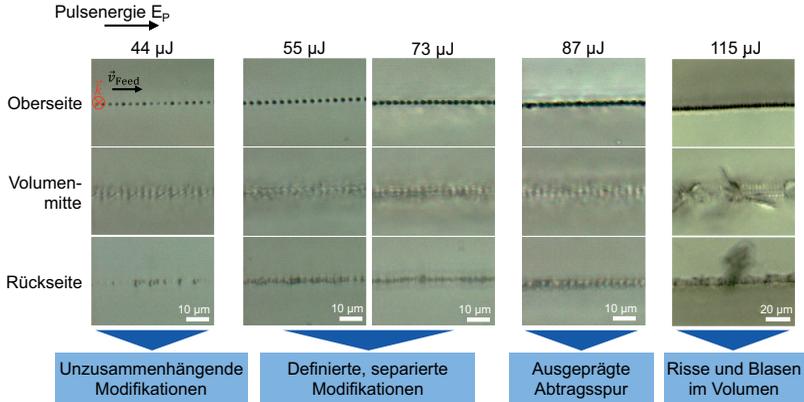


Abbildung 6.11 – Transmissionsmikroskopie von erzeugten Modifikationen mit einem Bessel-Profil in Abhängigkeit der Pulsenergie E_P an der Glasoberseite (obere Reihe), in der Volumenmitte (mittlere Reihe) und an der Rückseite (untere Reihe) zur Ermittlung des Einflusses der lokalen Energiedeposition auf die Ausprägung der Modifikation. $N = 2$ Pulse, $f_{\text{Rep}} = 67 \text{ kHz}$, $d_{\text{Mod}} = 3 \text{ }\mu\text{m}$.

Für $E_P = 44 \text{ }\mu\text{J}$ treten an der Glasoberseite und im Volumen Modifikationen auf. An der Rückseite sind die Modifikationen unterbrochen, vergleichbar mit den Ergebnissen des vorherigen Abschnitts für $N = 1$ Puls. Hier werden für ein mechanisches Trennen des Glases Ausbrüche und Defekte erwartet, da durch das Einbringen zusätzlicher Spannungen ein Trennen gegebenenfalls nicht an den Volumenmodifikationen stattfindet. Die Modifikationen sind für $E_P = 55 \text{ }\mu\text{J}$ und $73 \text{ }\mu\text{J}$ stärker ausgeprägt im Vergleich zu $44 \text{ }\mu\text{J}$. Für eine weitere Vergrößerung der Pulsenergie $E_P = 87 \text{ }\mu\text{J}$ bildet sich an der Glasoberseite eine zusammenhängende Abtragsspur aus, vergleichbar zu den Abschnitten 6.3.2 und 6.3.3. Für diese Abtragsspur werden für einen Trennprozess Ausbrüche und Defekte an der Glasoberseite erwartet, siehe Abschnitt 6.3.2. Für $E_P = 115 \text{ }\mu\text{J}$ treten Schädigungen im Glasvolumen und insbesondere transversal Risse mit Länge $\approx 29 \text{ }\mu\text{m}$ auf.

Für eine weitere Analyse der Schädigung des Glasvolumens, die für $E_P = 115 \text{ }\mu\text{J}$ beobachtet wird, sind in Abb. 6.12 Aufnahmen mittels Transmissionsmikroskopie von Querschliffen der Volumenmodifikation für zwei verschiedene Pulsenergien E_P dargestellt.

Für $E_P = 83 \text{ }\mu\text{J}$ werden neben der Modifikation im Zentrum des Bessel-Profiles transversale Risse mit Länge $\approx 4 \text{ }\mu\text{m}$ festgestellt. Für eine Vergrößerung der Pulsenergie zu $E_P = 100 \text{ }\mu\text{J}$ vergrößert sich die Länge der Risse bis zu circa $10 \text{ }\mu\text{m}$. Des Weiteren treten zwei longitudinale Risse zwischen den transversalen Rissen auf. Für $N = 1$ werden Brechungsindexänderungen, eine Modifikation im Zentrum des Bessel-Profiles sowie longitudinale Risse beobachtet, siehe Abb. 6.10 (b). Dies ist in Übereinstimmung mit den Ergebnissen des Abschnitts 5.3. Somit wird geschlossen, dass das Auftreten transversaler Risse durch Inkubation für eine hinreichend große Energiedeposition in Abhängigkeit

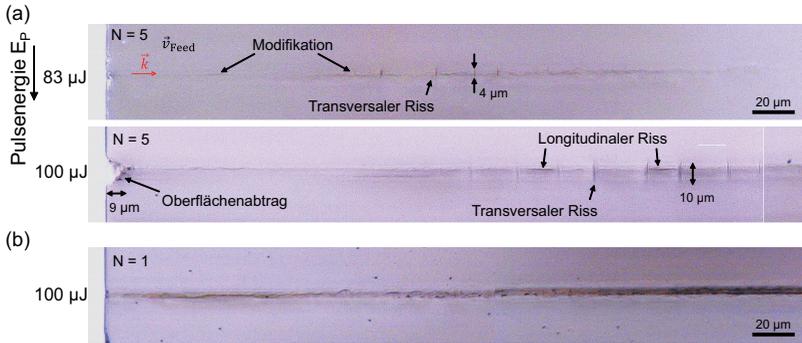


Abbildung 6.12 – Transmissionsmikroskopie der Querschliffe von Volumenmodifikation mit einem Bessel-Profil zur Identifikation der Ausprägung der Modifikation und von Rissen in Abhängigkeit der Pulsenergie E_P und Anzahl der Pulse N . (a) Anzahl der Pulse $N = 5$, Pulsenergien $E_P = 83$ und $100 \mu\text{J}$. (b) Anzahl der Pulse $N = 1$, Pulsenergie $E_P = 100 \mu\text{J}$.

von E_P und N resultiert. Wird zu viel Energie in das Glasvolumen eingebracht, treten lokal so große Spannungsgradienten auf, dass neben der Ausbildung der transversalen Risse zwischen diesen Spannungszonen longitudinale Risse entstehen.

6.3.5 Zusammenfassung

Die Ergebnisse der vorherigen Abschnitte sind in Abb. 6.13 in Form einer Prozesslandkarte für das verwendete Bessel-Profil zusammengefasst. Dabei werden die festgestellten Phänomene in fünf verschiedene Domänen eingeteilt. Die Grenzen der Domänen sind neben der Pulsenergie E_P und Anzahl der Pulse N abhängig von den weiteren Prozessparametern Δt_{Puls} , d_{Mod} sowie τ_{Pump} . Aufgrund dessen liegt der Schwerpunkt auf einer qualitativen Beschreibung des Zusammenhangs der auftretenden Phänomene des Modifikationsprozesses und den verwendeten Prozessparametern.

- Domäne 1: Für eine zu kleine Wahl der Pulsenergie E_P bzw. Anzahl der Pulse N sind die Modifikationen aufgrund der zu kleinen lokalen Intensität bzw. von Kontaminationen der Oberflächen unzusammenhängend. Ein Trennen durch das Einbringen mechanischer Kräfte resultiert in eine undefinierte Trennkante und Ausbrüche.
- Domäne 2: Bei moderaten Pulsenergien $E_P \sim 50 \mu\text{J}$ und $1 < N < 10$ sind die Modifikationen lokalisiert und hinreichend ausgeprägt, sodass ein anschließendes Trennen zu einer definierten Trennkante führt.
- Domäne 3: Für moderate Pulsenergien E_P und $N > 10$ tritt ein ausgeprägter Abtrag der Glasoberflächen auf, was zu Ausbrüchen bei einem anschließenden Trennen führt.
- Domäne 4: Für große Pulsenergien E_P und $N < 10$ treten Volumenschädigungen in Form von transversalen und longitudinalen Rissen mit Längen $\sim 10 \mu\text{m}$ auf. Die Qualität der Trennkante ist aufgrund der großen lokalen Defektkonzentration klein.
- Domäne 5: Für sehr große Pulsenergien E_P und $N > 10$ treten auch für vergleichsweise moderate zeitliche Pulsabstände $\Delta t_{\text{Puls}} \approx 15 \mu\text{s}$ aufgrund von Wärmeakkumulation große Wärmeeinflusszonen auf, die zu Ausbrüchen und einer geringen Oberflächenqualität der Trennkante führen.

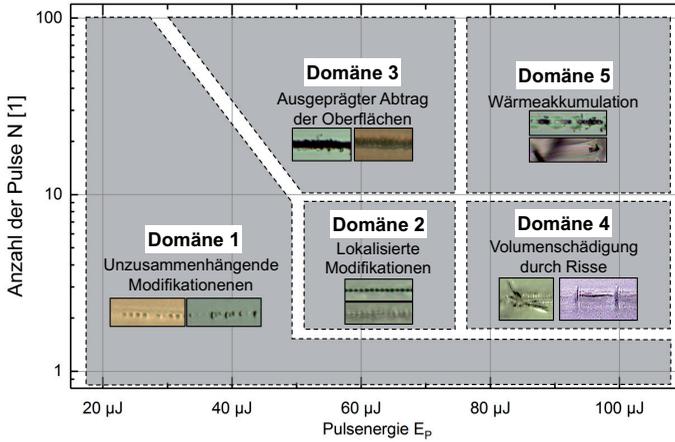


Abbildung 6.13 – Qualitative Darstellung der auftretenden Phänomene bei der Erzeugung von Modifikationen mit einem Bessel-Profil in Abhängigkeit der Pulsenergie E_P und N für die Demonstration des Trennprozesses für $f_{\text{Rep}} = 67$ kHz, $d_{\text{Mod}} = 3$ μm , $\tau_{\text{Pump}} = 6$ ps. Die Phänomene sind in fünf charakteristische Domänen eingeteilt.

6.4 Demonstration des Trennprozesses

Für die experimentelle Umsetzung des Trennprozesses werden für die Erzeugung von definierten Volumenmodifikationen Prozessparameter aus der in Abb. 6.13 identifizierte Domäne 2 gewählt. Die verwendeten Prozessparameter sind in Tabelle 6.4 zusammengefasst.

Parameter	Formelzeichen	Wert
Pulsenergie	E_P	70 μJ
Anzahl Pulse pro Stelle	N	5
Zeitlicher Pulsabstand	Δt_{Puls}	15 μs
Modifikationsabstand	d_{Mod}	3 μm

Tabelle 6.4 – Verwendete Prozessparameter für die experimentelle Umsetzung des Trennprozesses.

Für eine Analyse der räumlichen Spannungsverteilung entlang eines bearbeiteten Bereichs, sind in Abb. 6.14 Aufnahmen der Modifikationen mittels Transmissionsmikroskopie zusammen mit Aufnahmen mittels Polarisationskontrastmikroskopie an der Oberseite, in der Volumenmitte sowie Rückseite des Glases dargestellt.

Die Spannungen sind am stärksten im Glasvolumen sowie an der Rückseite zwischen den einzelnen Modifikationen ausgeprägt. An der Oberseite werden vergleichsweise kleine Spannungen detektiert. Im nächsten Schritt werden gemäß des Prozessschritts 2 aus Abb. 6.2 mechanische Druckkräfte händisch eingebracht. Damit wird das Glas entlang der vorgegebenen Kontur eines linearen Schnitts getrennt. Einige exemplarische getrennte Gläser mit jeweils einer Glasdicke $d_{\text{Glas}} = 700$ μm sind in Abb. 6.15 (a) dargestellt.

In Abb. 6.15 (b) ist eine repräsentative Trennkante vergrößert abgebildet. Die Kante ist

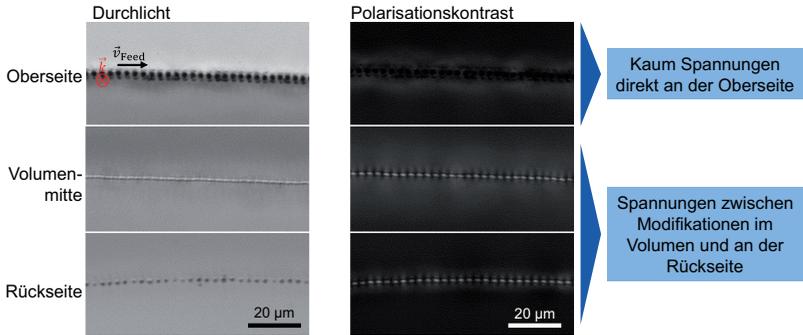


Abbildung 6.14 – Transmissions- (links) und Polarisationskontrastmikroskopie (rechts) zur Analyse der Spannungsverteilung von Modifikationen an der Glasoberseite (obere Reihe), in der Volumenumittel (mittlere Reihe) und an der Rückseite (untere Reihe) für die Umsetzung des Trennprozesses. $E_P = 70 \mu\text{J}$, $N = 5$ Pulse, $\Delta t_{Puls} = 15 \mu\text{s}$, $d_{Mod} = 3 \mu\text{m}$.

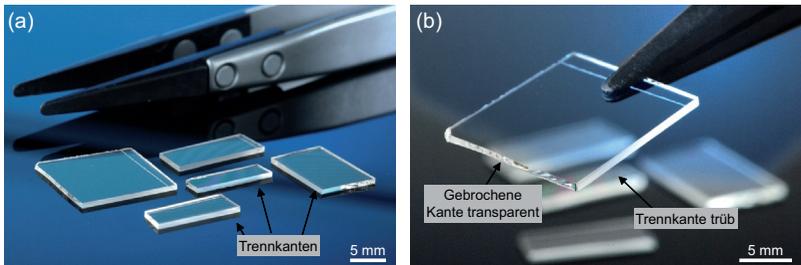


Abbildung 6.15 – Getrenntes Glas mit dem in dieser Arbeit entwickelten laserbasierten Trennprozess für die Glasdicke $d_{Glas} = 700 \mu\text{m}$. (a) Exemplarische lineare Trennkanten nach der Vereinzelung. (b) Detailaufnahme einer Trennkante.

intransparent und erscheint getrübt. Zur Quantifizierung der Oberflächenqualität der Kante sind in Abb. 6.16 Aufnahmen der Trennkante mittels Auflichtmikroskopie dargestellt. An der Oberfläche der Trennkante werden an allen longitudinalen Positionen regelmäßige Modifikationen beobachtet, die durch die einzelnen Modifikationen des Bessel-Profiles erklärt werden können. Detailaufnahmen der Modifikationen sind in Abb. 6.16 (b) dargestellt. An der Eintrittsseite werden bis in eine Tiefe von etwa $28 \mu\text{m}$ Ausbrüche festgestellt. Dies kann durch zu schwach ausgeprägte Spannungen an der Oberseite des Glases erklärt werden, wie in Abb. 6.14 dargestellt ist. In der Mitte und an der Austrittsseite des Glases sind die Modifikationen regelmäßig.

Für eine quantitative Analyse der Oberflächenqualität wird das Höhenprofil der Trennkante mittels konfokaler Laser-Scanning-Mikroskopie analysiert. Das ermittelte Höhenprofil ist Abb. 6.17 (a) dargestellt.

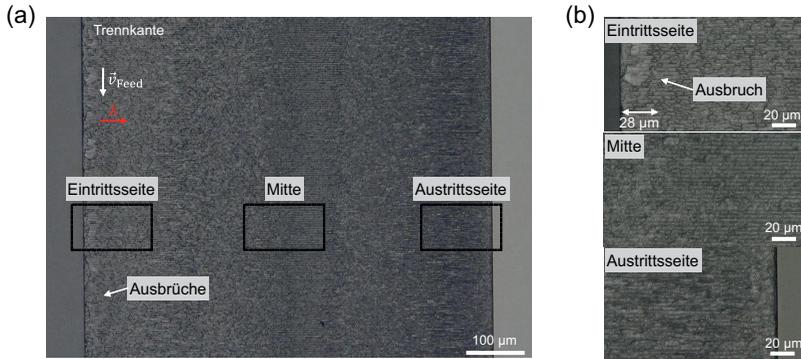


Abbildung 6.16 – Auflichtmikroskopie einer Trennkante zur Analyse der Oberflächenqualität nach dem Trenprozess. (a) Übersicht der Trennkante. (b) Detailausschnitte der Eintritsseite, Mitte sowie der Austritsseite der Laserstrahlung.

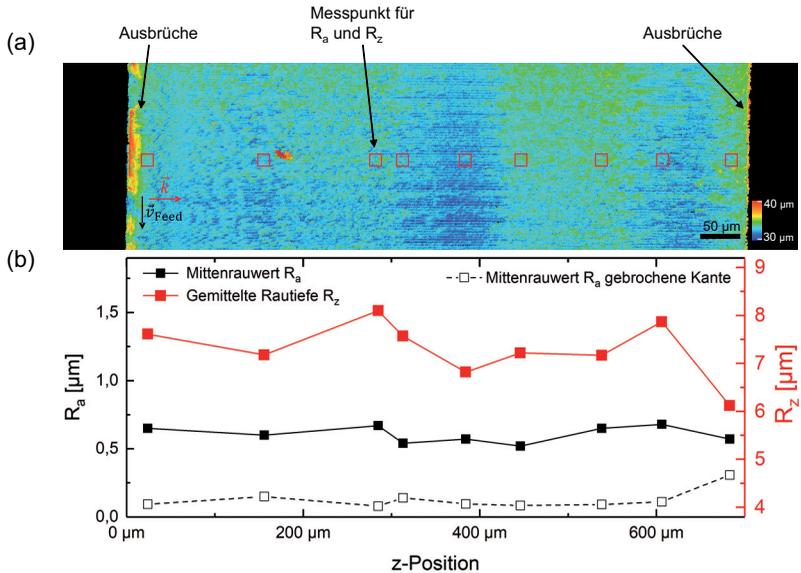


Abbildung 6.17 – Quantitative Analyse der Oberflächenstruktur einer Trennkante. (a) Höhenprofil der Oberfläche einer Trennkante ermittelt durch Laser-Scanning-Mikroskopie. Markiert sind Positionen für Messpunkte des Mittenrauwerter R_a und der gemittelten Rautiefe R_z . (b) Gemessener Mittenrauwert R_a und gemittelte Rautiefe R_z an verschiedenen longitudinalen Positionen. Zusätzlich ist der gemessene Mittenrauwert R_a für eine Glaskante dargestellt, die ohne den laserbasierten Trenprozess gebrochen wurde.

Die Ausbrüche an der Eintritsseite sind lokale Erhöhungen, die im Bezug zur umliegenden Oberfläche $6 \mu\text{m}$ erhöht sind. Zusätzlich wird an der Austritsseite eine vergleichbar große Erhöhung festgestellt. In longitudinaler Richtung wird eine Welligkeit beobachtet,

die mit der longitudinalen Intensitätsverteilung des Bessel-Profiles (siehe Abb. 6.5) erklärt werden kann. Für eine Beurteilung der Oberflächenqualität werden an ausgewählten Positionen der Mittenrauwerths R_a sowie die gemittelte Rautiefe R_z gemessen. Die ermittelten Werte sind in Abb. 6.17 (b) dargestellt. Im Mittel beträgt der Mittenrauwert für die Trennkante $R_a = 0,61 \pm 0,06 \mu\text{m}$ und Rautiefe $R_z = 7,3 \pm 0,1 \mu\text{m}$. Mit dem Mittenrauwert R_a und der ermittelte Rautiefe R_z kann dabei der trübe visuelle Eindruck der Trennkante in Abb. 6.15 durch diffuse Streuung des Lichts durch die Oberflächenrauheit erklärt werden. Zusätzlich ist der gemessene Mittenrauwert R_a für eine Glaskante dargestellt, die ohne den Trennprozess gebrochen wurde. Im Mittel beträgt der Mittenrauwert $R_a = 0,13 \pm 0,07 \mu\text{m}$, sodass die Glaskante optisch transparent erscheint, siehe Abb. 6.15.

Für eine detaillierte Analyse der Oberflächenstruktur in der Mitte der Trennkante, ist in Abb. 6.18 ein vergrößerter Ausschnitt des ermittelten Höhenprofils bei der longitudinalen Position $z = 384 \mu\text{m}$ dargestellt. Hierbei wird in Richtung der Verfahrrichtung der Laserstrahlung v_{Feed} eine Periode von circa $3 \mu\text{m}$ ermittelt, was durch die einzelnen erzeugten Modifikationen mit einem Abstand $d_{\text{Mod}} = 3 \mu\text{m}$ erklärt werden kann. Aufgrund dessen kann diese periodische Oberflächenstruktur der Trennkante durch Anpassen des Abstands der einzelnen Modifikationen d_{Mod} prinzipiell eingestellt werden.

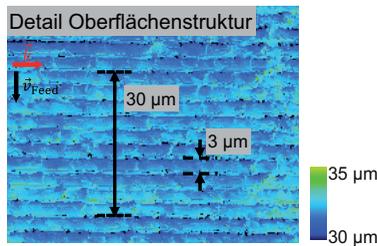


Abbildung 6.18 – Detailausschnitt des Höhenprofils der Oberfläche einer Trennkante zur Analyse der periodischen Struktur in Verfahrrichtung der Laserstrahlung v_{Feed} .

7 Zusammenfassung und Ausblick

Zusammenfassung

Im Rahmen dieser Arbeit wurden die fundamentalen Zusammenhänge zwischen der räumlichen Energiedeposition von ultrakurz gepulster Laserstrahlung in Gläsern und der zeitlichen und räumlichen Intensitätsverteilung analysiert mit dem Ziel, die räumliche Energiedeposition gezielt zu beeinflussen. Durch das komplexe Zusammenspiel von nicht-linearen und linearen Ionisations- und Absorptionsprozessen sowie der zeitlichen und räumlichen Puls-Plasma-Wechselwirkung wurde dabei zunächst in Kapitel 3 ein grundlegendes Verständnis der zugrundeliegenden Mechanismen und die Korrelation mit der Puls-Plasma-Wechselwirkung erarbeitet. In Kapitel 4 ist die Energiedeposition im Glasvolumen zeit- und ortsaufgelöst analysiert und die Limitierungen der Energiedeposition für die Verwendung eines räumlichen Gauß-Profiles erarbeitet worden. Im nächsten Schritt ist in Kapitel 5 zur Maßschneiderung der räumlichen Energiedeposition ein Bessel-Profil erzeugt und die Abhängigkeit der Energiedeposition von der Intensitätsverteilung quantifiziert worden. Auf Grundlage der erarbeiteten fundamentalen Analyse der räumlichen Energiedeposition ist in Kapitel 6 für die Verwendung eines Bessel-Profiles ein Trennprozess für Gläser realisiert und grundlegende Prozessfenster für den Trennprozess erarbeitet sowie der Prozess demonstriert worden. Im Folgenden werden die zentralen Ergebnisse dargestellt, die im Rahmen dieser Arbeit ermittelt wurden.

Zur Generierung eines umfassenden Verständnisses des Zusammenhangs der Intensitätsverteilung mit den zugrundeliegenden Ionisations- und Absorptionsprozesse sowie der Puls-Plasma-Wechselwirkung, ist die Transmission der Laserstrahlung durch eine erzeugte freie Elektronendichte experimentell gemessen und mithilfe einer Simulation basierend auf eine elektronische Beschreibung der Puls-Plasma-Wechselwirkung reproduziert worden. Dabei wurden Pulsdauern im Bereich von $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs bis 9 ps und Intensitäten bis $I_0 = 10^{15}$ W/cm² verwendet. Die zentralen Forschungsfragen der vorliegenden Arbeit werden im Folgenden beantwortet.

Für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs sind Tunnelionisation und Multiphotonenionisation die dominanten Photoionisationsmechanismen. Für $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps kann Tunnelionisation vernachlässigt werden. Die Puls-Plasma-Wechselwirkung ist vordergründig durch den Anteil der Avalanche-Ionisation im gesamten Ionisationsprozess bestimmt. Für $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und für Intensitäten in der Größenordnung der charakteristischen Intensitätsschwelle ist eine Puls-Plasma-Wechselwirkung schwach ausgeprägt, da weniger als 20% der freien Elektronen durch Avalanche-Ionisation erzeugt werden. Je größer die Pulsdauer τ_{Pump} gewählt wird, desto größer ist der Anteil von Avalanche-Ionisation im gesamten Ionisationsprozess, sodass die Puls-Plasma-Wechselwirkung stärker ausgeprägt ist für größere Pulsdauern. Für $\tau_{\text{Pump}} \geq 1$ ps kann die kritische Elektronendichte für eine hinreichende Absorption der Laserstrahlung nur durch einen signifikanten Beitrag von Avalanche-Ionisation im gesam-

ten Ionisationsprozess erzeugt werden. Die charakteristischen Intensitätsschwellen für das Einsetzen von Absorption ist direkt mit der Puls-Plasma-Wechselwirkung verknüpft und wird kleiner für größere Pulsdauern durch die ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung. Durch die Ausprägung der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch Wahl der Pulsdauer kann die räumliche Energiedeposition gezielt beeinflusst werden.

Die räumliche Energiedeposition im Glasvolumen wird zeitaufgelöst mithilfe von Pump-Probe-Schattenfotografie für die Verwendung eines Gauß-Profiles analysiert. Für eine minimale Puls-Plasma-Wechselwirkung für die Verwendung einer Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs werden Zeitskalen und Intensitätsregime der räumlichen Energiedeposition identifiziert. Dabei werden die Amplitude und die Lokalisierung der Energiedeposition eingeführt, mit denen die Effizienz und räumliche Präzision der Energiedeposition quantifiziert werden. Bei geeigneter Wahl der Intensität I_0 findet eine hoch lokalisierte Energiedeposition im Fokusbereich statt, wobei die Amplitude bzw. Effizienz klein ist. Zur Vergrößerung der Amplitude durch eine Vergrößerung der Intensität I_0 findet die Energiedeposition außerhalb des Fokusbereichs statt. Darüber hinaus treten Selbstfokussierung und Plasmadefokussierung der Laserstrahlung auf, die zu der Entstehung von Filamenten führen, sodass die Lokalisierung der Energiedeposition signifikant verkleinert wird. Durch eine Vergrößerung der Puls-Plasma-Wechselwirkung durch Anpassung der Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} \geq 0,5$ ps kann bei entsprechender Wahl der Intensität I_0 die Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition können durch die kleineren notwendigen Intensitäten zur Erzeugung einer freien Elektronendichte Filamente vermieden werden. Darüber hinaus kann für eine geeignete Wahl von Pulsdauer τ_{Pump} und Intensität I_0 die Energiedeposition auf das Fokusbereich V_F angepasst werden. Eine Vergrößerung der Intensität bedingt durch das räumliche Gauß-Profil stets eine signifikante Verkleinerung der Lokalisierung der Energiedeposition.

Die Limitierungen der räumlichen Energiedeposition für ein Gauß-Profil können durch die Erzeugung eines nicht-beugenden Bessel-Profiles aufgehoben werden. Für die Verwendung einer minimalen Puls-Plasma-Wechselwirkung für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs kann eine Energiedeposition über eine Länge entsprechend der verwendeten Glasdicke $d_{\text{Glas}} = 700 \mu\text{m}$ mit einer transversalen Ausdehnung im Bereich $\sim 1 \mu\text{m}$ erreicht werden, sodass im Bezug zum räumlichen Strahlprofil eine hoch lokalisierte Energiedeposition stattfindet. Für die Vergrößerung der Intensität zur Vergrößerung der Amplitude der Energiedeposition treten analog zur Verwendung eines Gauß-Profiles Plasmadefokussierung und Filamente auf, die eine Verkleinerung der Lokalisierung der Energiedeposition bedingen. Aufgrund dessen wird die Puls-Plasma-Wechselwirkung durch Variation der Pulsdauer vergrößert, um eine hoch lokalisierte und effiziente Energiedeposition zu realisieren. Insgesamt können dabei drei Intensitätsregime der Energiedeposition in Abhängigkeit der Puls-Plasma-Wechselwirkung identifiziert werden. Für eine stark ausgeprägte Puls-Plasma-Wechselwirkung ($\tau_{\text{Pump}} = 7$ und 9 ps) ist Plasmadefokussierung signifikant ausgeprägt bzw. für eine Verkleinerung der Intensität I_0 ist die Energiedeposition unzusammenhängend. Für eine zu kleine Puls-Plasma-Wechselwirkung ($\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und $0,5$ ps) treten sowohl Plasmadefokussierung als auch Filamente auf oder die Amplitude ist für kleinere Intensitäten vergleichsweise gering, sodass keine Materialmodifikation erzeugt werden kann. Für eine moderate Puls-Plasma-Wechselwirkung ($\tau_{\text{Pump}} = 1$ bis 5 ps) kann ein Intensitätsregime für eine effiziente und hoch lokalisierte Energiedeposition für eine entsprechende Wahl der Pulsenergie E_P ermittelt werden.

Auf Grundlage der räumlichen Energiedeposition für die Verwendung eines Bessel-Profiles wird ein laserbasierter Trennprozess für Gläser realisiert. Dazu werden die prozessrelevanten Parameter identifiziert und deren Einfluss auf den Bearbeitungsprozess und das -resultat evaluiert. Somit wird eine Prozesslandkarte erarbeitet, die auftretende Effekte und Phänomene der Materialmodifikation in Abhängigkeit der verwendeten Prozessparameter zusammenfasst. So tritt für eine zu große Puls-Repetitionsrate ($f_{\text{Rep}} \geq 200$ kHz) in Abhängigkeit der Pulsenergie Wärmeakkumulation auf, die zu einer Verkleinerung der Lokalisierung der Energiedeposition und einer starken Ausprägung von Defekten führt. In Abhängigkeit der Pulsenergie E_P und der Anzahl der Pulse N kann darüber hinaus ein ausgeprägter Abtrag der Glasoberflächen stattfinden, die zu einer Abschirmung und Delokalisierung der Energiedeposition und letztlich zur Ausprägung von Defekten führen kann. Ein Prozessfenster für eine ausgeprägte und kontrollierte Erzeugung von Modifikationen im Glasvolumen wird ermittelt und der Trennprozess demonstriert sowie die erzielte Bearbeitungsqualität quantifiziert.

Ausblick

Für eine Homogenisierung der Energiedeposition kann durch weitere räumliche Strahlformung eine im Vergleich zum verwendeten Bessel-Profil homogenere Intensitätsverteilung erzeugt werden. Zur Vermeidung der Bestrahlung des zentralen Bereiches des abgerundeten Axicons, kann anstelle des Gauß-Profiles ein Ringprofil verwendet werden. Beispielsweise kann ein kollimiertes Ringprofil durch die Verwendung von zwei Axicons mit gleichem Öffnungswinkel erzeugt werden [126]. Darüber hinaus kann mithilfe einer zentrischen Blende eine Beleuchtung des Zentralbereichs des Axicons vermieden werden.

Weitere Möglichkeiten der Strahlformung sind durch „Spatial Light Modulatoren“ (SLM) oder diffraktiven optischen Elementen (DOE) [107, 108] gegeben. Mit beiden Methoden können prinzipiell beliebige dreidimensionale räumliche Strahlformen generiert werden. So werden beispielsweise höhere Ordnungen von Bessel-Strahlen erzeugt, die für Volumenstrukturierungen verwendet werden können oder mit denen eine dreidimensionale Analyse der räumlichen Energiedeposition in Gläsern möglich ist [127, 128]. Der zentrale Vorteil von SLM ist eine hohe Flexibilität, da die Phasenfronten mit einer Ortsauflösung im Bereich der Pixelgröße des Sensors prinzipiell beliebig eingestellt werden können. Somit können beispielsweise Aberrationen durch Dejustage der Glasprobe kompensiert oder schräge Kanten für einem Schnittprozess erzeugt werden [123]. Dagegen können aufgrund von thermischen Effekten derzeit Leistungen von circa 50 W von dem SLM reflektiert werden ohne eine thermische Schädigung des Moduls zu bewirken. Der primäre Vorteil von DOE ist insbesondere eine hohe mechanische und thermische Stabilität und aufgrund dessen die Einsetzbarkeit für Anwendungen mit großer Leistung > 50 W. Allerdings sind die Elemente in Hinblick auf die Eingangsstrahlqualität empfindlich sowie weniger flexibel im Vergleich zu SLM.

Neben der räumlichen Strahlformung bietet eine zeitliche Modulation der Laserstrahlung eine weitere Möglichkeit zur Anpassung der Einbringung von Spannungen für einen Trennprozess. Für Pulse mit einem zeitlichen Abstand ~ 20 ns bewirkt eine veränderte Energiedeposition eine ausgeprägte Rissentstehung [65, 122, 129, 130]. Entsprechende Pulse können mithilfe von sogenannter Puls-Bursts von einem geeigneten Lasersystem oder flexibel durch Realisierung eines Michelson-Interferometers erzeugt werden [74].

Literatur

- [1] X. Liu, D. Du, and G. Mourou, “Laser ablation and micromachining with ultrashort laser pulses,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 33, no. 10, pp. 1706–1716, 1997.
- [2] B. Stuart, M. Feit, S. Herman, A. Rubenchik, B. Shore, and M. Perry, “Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics,” *Physical Review B*, vol. 53, no. 4, p. 1749, 1996.
- [3] B. Stuart, M. Feit, A. Rubenchik, B. Shore, and M. Perry, “Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses,” *Physical Review Letters*, vol. 74, no. 12, p. 2248, 1995.
- [4] L. Keldysh *et al.*, “Ionization in the field of a strong electromagnetic wave,” *Sov. Phys. JETP*, vol. 20, no. 5, pp. 1307–1314, 1965.
- [5] A. Vogel, J. Noack, G. Hüttman, and G. Paltauf, “Mechanisms of femtosecond laser nanosurgery of cells and tissues,” *Applied Physics B*, vol. 81, no. 8, pp. 1015–1047, 2005.
- [6] P. K. Kennedy, “A first-order model for computation of laser-induced breakdown thresholds in ocular and aqueous media. I. Theory,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 31, no. 12, pp. 2241–2249, 1995.
- [7] A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek, and G. Simon, “Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses,” *Physical Review B*, vol. 61, no. 17, p. 11437, 2000.
- [8] M. Perry, B. Stuart, P. Banks, M. Feit, V. Yanovsky, and A. Rubenchik, “Ultrashort-pulse laser machining of dielectric materials,” *Journal of Applied Physics*, vol. 85, no. 9, pp. 6803–6810, 1999.
- [9] M. Sun, U. Eppelt, S. Russ, C. Hartmann, C. Siebert, J. Zhu, and W. Schulz, “Numerical analysis of laser ablation and damage in glass with multiple picosecond laser pulses,” *Optics Express*, vol. 21, no. 7, pp. 7858–7867, 2013.
- [10] B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal, and J. Kieffer, “Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime,” *Physical Review B*, vol. 84, no. 9, p. 094104, 2011.
- [11] L. Jiang and H.-L. Tsai, “A plasma model combined with an improved two-temperature equation for ultrafast laser ablation of dielectrics,” *Journal of Applied Physics*, vol. 104, no. 9, p. 093101, 2008.
- [12] Y. T. Lee and R. More, “An electron conductivity model for dense plasmas,” *The Physics of fluids*, vol. 27, no. 5, pp. 1273–1286, 1984.

- [13] M. Feit, A. Komashko, and A. Rubenchik, "Ultra-short pulse laser interaction with transparent dielectrics," *Applied Physics A*, vol. 79, no. 7, pp. 1657–1661, 2004.
- [14] L. Haahr-Lillevang, K. Wædegaard, D. Sandkamm, A. Mouskeftaras, S. Guizard, and P. Balling, "Short-pulse laser excitation of quartz: experiments and modelling of transient optical properties and ablation," *Applied Physics A*, vol. 120, no. 4, pp. 1221–1227, 2015.
- [15] M. Sun, J. Zhu, and Z. Lin, "Modeling of ablation threshold dependence on pulse duration for dielectrics with ultrashort pulsed laser," *Optical Engineering*, vol. 56, no. 1, p. 011026, 2016.
- [16] K. Starke, D. Ristau, H. Welling, T. V. Amotchkina, M. Trubetskov, A. A. Tikhonravov, and A. S. Chirkin, "Investigations in the nonlinear behavior of dielectrics by using ultrashort pulses," in *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2003*, vol. 5273, pp. 501–515, International Society for Optics and Photonics, 2004.
- [17] E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. Luther-Davies, and V. T. Tikhonchuk, "Ablation of solids by femtosecond lasers: Ablation mechanism and ablation thresholds for metals and dielectrics," *Physics of plasmas*, vol. 9, no. 3, pp. 949–957, 2002.
- [18] E. G. Gamaly and A. Rode, "Transient optical properties of dielectrics and semiconductors excited by an ultrashort laser pulse," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 31, no. 11, pp. C36–C43, 2014.
- [19] C. B. Schaffer, A. Brodeur, and E. Mazur, "Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses," *Measurement Science and Technology*, vol. 12, no. 11, p. 1784, 2001.
- [20] I. M. Burakov, N. M. Bulgakova, R. Stoian, A. Mermillod-Blondin, E. Audouard, A. Rosenfeld, A. Husakou, and I. V. Hertel, "Spatial distribution of refractive index variations induced in bulk fused silica by single ultrashort and short laser pulses," *Journal of Applied Physics*, vol. 101, no. 4, p. 043506, 2007.
- [21] P. Polesana, M. Franco, A. Couairon, D. Faccio, and P. Di Trapani, "Filamentation in Kerr media from pulsed Bessel beams," *Physical Review A*, vol. 77, no. 4, p. 043814, 2008.
- [22] T. E. Itina and N. Shcheblanov, "Electronic excitation in femtosecond laser interactions with wide-band-gap materials," *Applied Physics A*, vol. 98, no. 4, pp. 769–775, 2010.
- [23] T. Jia, Z. Xu, R. Li, D. Feng, X. Li, C. Cheng, H. Sun, N. Xu, and H. Wang, "Mechanisms in fs-laser ablation in fused silica," *Journal of Applied Physics*, vol. 95, no. 9, pp. 5166–5171, 2004.
- [24] N. M. Bulgakova, V. P. Zhukov, Y. P. Meshcheryakov, L. Gemini, J. Brajer, D. Rostohar, and T. Mocek, "Pulsed laser modification of transparent dielectrics: what can be foreseen and predicted by numerical simulations?," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 31, no. 11, pp. C8–C14, 2014.

-
- [25] O. Dematteo Caulier, K. Mishchik, B. Chimier, S. Skupin, A. Bourgeade, C. Javaux Léger, R. Kling, C. Hönniger, J. Lopez, V. Tikhonchuk, and G. Duchateau, “Femtosecond laser pulse train interaction with dielectric materials,” *Applied Physics Letters*, vol. 107, no. 18, p. 181110, 2015.
- [26] S. Guizard, S. Klimentov, A. Mouskeftaras, N. Fedorov, G. Geoffroy, and G. Vilmart, “Ultrafast breakdown of dielectrics: Energy absorption mechanisms investigated by double pulse experiments,” *Applied Surface Science*, vol. 336, pp. 206–211, 2015.
- [27] B. Rethfeld, A. Kaiser, M. Vicaneck, and G. Simon, “Excitation and relaxation dynamics of electrons and phonons in solids absorbing subpicosecond laser pulses,” in *High-Power Laser Ablation II*, vol. 3885, pp. 200–212, International Society for Optics and Photonics, 2000.
- [28] B. Rethfeld, “Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics,” *Physical Review Letters*, vol. 92, no. 18, p. 187401, 2004.
- [29] B. H. Christensen and P. Balling, “Modeling ultrashort-pulse laser ablation of dielectric materials,” *Physical Review B*, vol. 79, no. 15, p. 155424, 2009.
- [30] K. Wædegaard, D. B. Sandkamm, L. Haahr-Lillevang, K. G. Bay, and P. Balling, “Modeling short-pulse laser excitation of dielectric materials,” *Applied Physics A*, vol. 117, no. 1, pp. 7–12, 2014.
- [31] J. V. de Aldana, C. Méndez, L. Roso, and P. Moreno, “Propagation of ablation channels with multiple femtosecond laser pulses in dielectrics: Numerical simulations and experiments,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 38, no. 16, p. 2764, 2005.
- [32] A. Q. Wu, I. H. Chowdhury, and X. Xu, “Femtosecond laser absorption in fused silica: Numerical and experimental investigation,” *Physical Review B*, vol. 72, no. 8, p. 085128, 2005.
- [33] U. Eppelt, S. Russ, C. Hartmann, M. Sun, C. Siebert, and W. Schulz, “Diagnostic and simulation of ps-laser glass cutting,” in *ICALEO 31st International Congress on Applications of Lasers & Electro-Optics. Congress proceedings*, vol. 105, 2012.
- [34] N. Brouwer and B. Rethfeld, “Relaxation processes in laser-excited dielectrics,” in *Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing (LAMOM) XXIII*, vol. 10519, p. 105190P, International Society for Optics and Photonics, 2018.
- [35] N. Bloembergen, “Laser-induced electric breakdown in solids,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 10, no. 3, pp. 375–386, 1974.
- [36] E. Hinnov and J. G. Hirschberg, “Electron-ion recombination in dense plasmas,” *Physical Review*, vol. 125, no. 3, p. 795, 1962.
- [37] D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier, and G. Mourou, “Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO₂ with pulse widths from 7 ns to 150 fs,” *Applied Physics Letters*, vol. 64, no. 23, pp. 3071–3073, 1994.

- [38] M. Sun, U. Eppelt, W. Schulz, and J. Zhu, "Ultrafast reflection and secondary ablation in laser processing of transparent dielectrics with ultrashort pulses," *Optical Engineering*, vol. 53, no. 5, p. 051512, 2014.
- [39] A. Mermillod-Blondin, I. M. Burakov, Y. P. Meshcheryakov, N. M. Bulgakova, E. Audouard, A. Rosenfeld, A. Husakou, I. V. Hertel, and R. Stoian, "Flipping the sign of refractive index changes in ultrafast and temporally shaped laser-irradiated borosilicate crown optical glass at high repetition rates," *Physical Review B*, vol. 77, no. 10, p. 104205, 2008.
- [40] X.-L. Liu, X. Lu, X. Liu, T.-T. Xi, F. Liu, J.-L. Ma, and J. Zhang, "Tightly focused femtosecond laser pulse in air: from filamentation to breakdown," *Optics Express*, vol. 18, no. 25, pp. 26007–26017, 2010.
- [41] W. Kautek, J. Krüger, M. Lenzner, S. Sartania, C. Spielmann, and F. Krausz, "Laser ablation of dielectrics with pulse durations between 20 fs and 3 ps," *Applied Physics Letters*, vol. 69, no. 21, pp. 3146–3148, 1996.
- [42] M. Lenzner, J. Krüger, S. Sartania, Z. Cheng, C. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz, "Femtosecond optical breakdown in dielectrics," *Physical Review Letters*, vol. 80, no. 18, p. 4076, 1998.
- [43] B. Rethfeld, "Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics," *Physical Review B*, vol. 73, no. 3, p. 035101, 2006.
- [44] M. Fox, *Optical Properties of Solids*, vol. 3. Oxford University Press, 2010. pp. 29–33.
- [45] D. X. Hammer, E. D. Jansen, M. Frenz, G. D. Noojin, R. J. Thomas, J. Noack, A. Vogel, B. A. Rockwell, and A. J. Welch, "Shielding properties of laser-induced breakdown in water for pulse durations from 5 ns to 125 fs," *Applied Optics*, vol. 36, no. 22, pp. 5630–5640, 1997.
- [46] N. Varkentina, N. Sanner, M. Lebugle, M. Sentis, and O. Utéza, "Absorption of a single 500 fs laser pulse at the surface of fused silica: Energy balance and ablation efficiency," *Journal of Applied Physics*, vol. 114, no. 17, p. 173105, 2013.
- [47] B. N. Chichkov, C. Momma, S. Nolte, F. Von Alvensleben, and A. Tünnermann, "Femtosecond, picosecond and nanosecond laser ablation of solids," *Applied Physics A*, vol. 63, no. 2, pp. 109–115, 1996.
- [48] C. Kalupka, *Zeitaufgelöste in-situ Untersuchung des fs-laserinduzierten Abtrags von Graphit*. Masterarbeit, RWTH Aachen University, 2013. pp. 5–9.
- [49] J.-T. Finger, *Puls-zu-Puls-Wechselwirkungen beim Ultrakurzpuls-Laserabtrag mit hohen Repetitionsraten*. Dissertation, RWTH Aachen University, 2017. pp. 10–12.
- [50] A. Salimnia, N. T. Nguyen, S. L. Chin, and R. Vallée, "Densification of silica glass induced by 0.8 and 1.5 μm intense femtosecond laser pulses," *Journal of Applied Physics*, vol. 99, no. 9, p. 093104, 2006.

-
- [51] L. B. Fletcher, J. J. Witcher, N. Troy, S. T. Reis, R. K. Brow, and D. M. Krol, "Direct femtosecond laser waveguide writing inside zinc phosphate glass," *Optics Express*, vol. 19, no. 9, pp. 7929–7936, 2011.
- [52] C. W. Ponader, J. F. Schroeder, and A. M. Streltsov, "Origin of the refractive-index increase in laser-written waveguides in glasses," *Journal of Applied Physics*, vol. 103, no. 6, p. 063516, 2008.
- [53] K. Mishchik, C. D'Amico, P. K. Velpula, C. Mauclair, A. Boukenter, Y. Ouerdane, and R. Stoian, "Ultrafast laser induced electronic and structural modifications in bulk fused silica," *Journal of Applied Physics*, vol. 114, no. 13, p. 133502, 2013.
- [54] A. M. Streltsov and N. F. Borrelli, "Study of femtosecond-laser-written waveguides in glasses," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 19, no. 10, pp. 2496–2504, 2002.
- [55] D. J. Little, M. Ams, P. Dekker, G. D. Marshall, and M. J. Withford, "Mechanism of femtosecond-laser induced refractive index change in phosphate glass under a low repetition-rate regime," *Journal of Applied Physics*, vol. 108, no. 3, p. 033110, 2010.
- [56] G. Lin, F. Luo, F. He, Q. Chen, D. Chen, Y. Cheng, L. Zhang, J. Qiu, and Q. Zhao, "Different refractive index change behavior in borosilicate glasses induced by 1 kHz and 250 kHz femtosecond lasers," *Optical Materials Express*, vol. 1, no. 4, pp. 724–731, 2011.
- [57] M. Sakakura, M. Terazima, Y. Shimotsuma, K. Miura, and K. Hirao, "Thermal and shock induced modification inside a silica glass by focused femtosecond laser pulse," *Journal of Applied Physics*, vol. 109, no. 2, p. 023503, 2011.
- [58] K. Mishchik, G. Cheng, G. Huo, I. M. Burakov, C. Mauclair, A. Mermillod-Blondin, A. Rosenfeld, Y. Ouerdane, A. Boukenter, O. Parriaux, and R. Stoian, "Nanosize structural modifications with polarization functions in ultrafast laser irradiated bulk fused silica," *Optics Express*, vol. 18, no. 24, pp. 24809–24824, 2010.
- [59] K. Mishchik, A. Ferrer, A. R. de la Cruz, A. Mermillod-Blondin, C. Mauclair, Y. Ouerdane, A. Boukenter, J. Solis, and R. Stoian, "Photoinscription domains for ultrafast laser writing of refractive index changes in BK7 borosilicate crown optical glass," *Optical Materials Express*, vol. 3, no. 1, pp. 67–85, 2013.
- [60] D. Esser, D. Mahlmann, D. Wortmann, and J. Gottmann, "Interference microscopy of femtosecond laser written waveguides in phosphate glass," *Applied Physics B*, vol. 96, no. 2-3, pp. 453–457, 2009.
- [61] D. Beckmann, D. Esser, and J. Gottmann, "Characterization of channel waveguides in Pr:YLiF₄ crystals fabricated by direct femtosecond laser writing," *Applied Physics B*, vol. 104, no. 3, pp. 619–624, 2011.
- [62] A. A. Manenkov, "Fundamental mechanisms of laser-induced damage in optical materials: today's state of understanding and problems," *Optical engineering*, vol. 53, no. 1, p. 010901, 2014.

- [63] A. Mouskeftaras, S. Guizard, N. Fedorov, and S. Klimentov, “Mechanisms of femtosecond laser ablation of dielectrics revealed by double pump–probe experiment,” *Applied Physics A*, vol. 110, no. 3, pp. 709–715, 2013.
- [64] L. Gallais, D.-B. Douti, M. Commandre, G. Batavičiūtė, E. Pupka, M. Ščiuka, L. Smalakys, V. Sirutkaitis, and A. Melninkaitis, “Wavelength dependence of femtosecond laser-induced damage threshold of optical materials,” *Journal of Applied Physics*, vol. 117, no. 22, p. 223103, 2015.
- [65] F. Hendricks, V. Matylytsky, M. Domke, and H. P. Huber, “Time-resolved study of femtosecond laser induced micro-modifications inside transparent brittle materials,” in *Frontiers in Ultrafast Optics: Biomedical, Scientific, and Industrial Applications XVI*, vol. 9740, p. 97401A, International Society for Optics and Photonics, 2016.
- [66] D. Grossmann, M. Reininghaus, C. Kalupka, M. Jenne, and M. Kumkar, “In-situ microscopy of front and rear side ablation processes in alkali aluminosilicate glass using ultra short pulsed laser radiation,” *Optics Express*, vol. 25, no. 23, pp. 28478–28488, 2017.
- [67] C. Kalupka, M. Schmalstieg, and M. Reininghaus, “Ultrashort pulse processing of transparent ceramics: The role of electronic and thermal damage mechanisms,” *Journal of Laser Micro Nanoengineering*, vol. 13, no. 2, pp. 126–130, 2018.
- [68] Y. Ito, R. Shinomoto, K. Nagato, A. Otsu, K. Tatsukoshi, Y. Fukasawa, T. Kizaki, N. Sugita, and M. Mitsuishi, “Mechanisms of damage formation in glass in the process of femtosecond laser drilling,” *Applied Physics A*, vol. 124, no. 2, p. 181, 2018.
- [69] M. Niemz, “Threshold dependence of laser-induced optical breakdown on pulse duration,” *Applied Physics Letters*, vol. 66, no. 10, pp. 1181–1183, 1995.
- [70] D. Grossmann, M. Reininghaus, C. Kalupka, M. Kumkar, and R. Poprawe, “Transverse pump-probe microscopy of moving breakdown, filamentation and self-organized absorption in alkali aluminosilicate glass using ultrashort pulse laser,” *Optics Express*, vol. 24, no. 20, pp. 23221–23231, 2016.
- [71] M. Bhuyan, P. K. Velpula, J.-P. Colombier, T. Olivier, N. Faure, and R. Stoian, “Single-shot high aspect ratio bulk nanostructuring of fused silica using chirp-controlled ultrafast laser Bessel beams,” *Applied Physics Letters*, vol. 104, no. 2, p. 021107, 2014.
- [72] P. K. Velpula, M. K. Bhuyan, C. Maclair, J.-P. Colombier, and R. Stoian, “Role of free carriers excited by ultrafast Bessel beams for submicron structuring applications,” *Optical Engineering*, vol. 53, no. 7, p. 076108, 2014.
- [73] P. K. Velpula, M. Bhuyan, F. Courvoisier, H. Zhang, J.-P. Colombier, and R. Stoian, “Spatio-temporal dynamics in nondiffractive Bessel ultrafast laser nanoscale volume structuring,” *Laser & Photonics Reviews*, vol. 10, no. 2, pp. 230–244, 2016.

-
- [74] D. Schäfer, *Ursächliche Prozesse der Brechungsindexmodifikation bei der Femtosekunden-Laserstrukturierung von Wellenleitern in Dielektrika*. Dissertation, RWTH Aachen University, 2012.
- [75] J. Liu, “Simple technique for measurements of pulsed Gaussian-beam spot sizes,” *Optics Letters*, vol. 7, no. 5, pp. 196–198, 1982.
- [76] L. Jiang and H.-L. Tsai, “Prediction of crater shape in femtosecond laser ablation of dielectrics,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 37, no. 10, p. 1492, 2004.
- [77] D. Rayner, A. Naumov, and P. Corkum, “Ultrashort pulse non-linear optical absorption in transparent media,” *Optics Express*, vol. 13, no. 9, pp. 3208–3217, 2005.
- [78] C. Kalupka, T. Holtum, and M. Reininghaus, “Damage mechanisms of ultrashort pulsed laser processing of glass in dependency of the applied pulse duration,” in *LIM – Lasers in Manufacturing Conference 2017*, 2017.
- [79] E. Louzon, Z. Henis, S. Pecker, Y. Ehrlich, D. Fisher, M. Fraenkel, and A. Zigler, “Reduction of damage threshold in dielectric materials induced by negatively chirped laser pulses,” *Applied Physics Letters*, vol. 87, no. 24, p. 241903, 2005.
- [80] G. Petrov and J. Davis, “Interaction of intense ultra-short laser pulses with dielectrics,” *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics*, vol. 41, no. 2, p. 025601, 2008.
- [81] E. G. Gamaly, L. Rapp, V. Roppo, S. Juodkazis, and A. V. Rode, “Generation of high energy density by fs-laser-induced confined microexplosion,” *New Journal of Physics*, vol. 15, no. 2, p. 025018, 2013.
- [82] M. Reininghaus, C. Kalupka, O. Faley, T. Holtum, J. Finger, and C. Stampfer, “Dynamics of ultrashort pulsed laser radiation induced non-thermal ablation of graphite,” *Applied Physics A*, vol. 117, no. 4, pp. 1873–1878, 2014.
- [83] N. Sanner, O. Utéza, B. Bussiere, G. Coustillier, A. Leray, T. Itina, and M. Sentis, “Measurement of femtosecond laser-induced damage and ablation thresholds in dielectrics,” *Applied Physics A*, vol. 94, no. 4, pp. 889–897, 2009.
- [84] M. Lebugle, N. Sanner, N. Varkentina, M. Sentis, and O. Utéza, “Dynamics of femtosecond laser absorption of fused silica in the ablation regime,” *Journal of Applied Physics*, vol. 116, no. 6, p. 063105, 2014.
- [85] U. Fuchs, *Fokussierung ultrakurzer Laserpulse*. Dissertation, Friedrich Schiller Universität Jena, 2010. pp. 22–26.
- [86] M. D. Feit, A. M. Rubenchik, and B. W. Shore, “Unique aspects of laser energy deposition in the fs pulse regime,” in *Lasers in Dentistry II*, vol. 2672, pp. 243–250, International Society for Optics and Photonics, 1996.
- [87] P. Rajeev, M. Gertsvolf, P. Corkum, and D. Rayner, “Field dependent avalanche ionization rates in dielectrics,” *Physical Review Letters*, vol. 102, no. 8, p. 083001, 2009.

- [88] D. Grojo, M. Gertsvolf, S. Lei, T. Barillot, D. Rayner, and P. Corkum, "Exciton-seeded multiphoton ionization in bulk SiO₂," *Physical Review B*, vol. 81, no. 21, p. 212301, 2010.
- [89] M. Hornung, *Mosaik-Gitter-Kompressor für Femtosekunden-Laserimpulse hoher Energie*. Dissertation, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2010. pp. 23–26.
- [90] I. Chowdhury, A. Wu, X. Xu, and A. Weiner, "Ultra-fast laser absorption and ablation dynamics in wide-band-gap dielectrics," *Applied Physics A*, vol. 81, no. 8, pp. 1627–1632, 2005.
- [91] D. Puerto, J. Siegel, W. Gawelda, M. Galvan-Sosa, L. Ehrentraut, J. Bonse, and J. Solis, "Dynamics of plasma formation, relaxation, and topography modification induced by femtosecond laser pulses in crystalline and amorphous dielectrics," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 27, no. 5, pp. 1065–1076, 2010.
- [92] T. Kumada, H. Akagi, R. Itakura, T. Otobe, and A. Yokoyama, "Femtosecond laser ablation dynamics of fused silica extracted from oscillation of time-resolved reflectivity," *Journal of Applied Physics*, vol. 115, no. 10, p. 103504, 2014.
- [93] S. Mao, F. Quéré, S. Guizard, X. Mao, R. Russo, G. Petite, and P. Martin, "Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics," *Applied Physics A*, vol. 79, no. 7, pp. 1695–1709, 2004.
- [94] Q. Sun, H. Jiang, Y. Liu, Z. Wu, H. Yang, and Q. Gong, "Measurement of the collision time of dense electronic plasma induced by a femtosecond laser in fused silica," *Optics Letters*, vol. 30, no. 3, pp. 320–322, 2005.
- [95] C. Kalupka, D. Grossmann, and M. Reininghaus, "Evolution of energy deposition during glass cutting with pulsed femtosecond laser radiation," *Applied Physics A*, vol. 123, no. 5, p. 376, 2017.
- [96] I. Mingareev, *Ultrafast dynamics of melting and ablation at large laser intensities*. Dissertation, RWTH Aachen University, 2009. pp. 54–57.
- [97] Y.-H. Chen, S. Varma, T. Antonsen, and H. Milchberg, "Direct measurement of the electron density of extended femtosecond laser pulse-induced filaments," *Physical Review Letters*, vol. 105, no. 21, p. 215005, 2010.
- [98] J. Marburger, "Self-focusing: Theory," *Progress in Quantum Electronics*, vol. 4, pp. 35–110, 1975.
- [99] M. Grehn, T. Seuthe, W.-J. Tsai, M. Höfner, A. W. Achtstein, A. Mermillod-Blondin, M. Eberstein, H. J. Eichler, and J. Bonse, "Nonlinear absorption and refraction of binary and ternary alkaline and alkaline earth silicate glasses," *Optical Materials Express*, vol. 3, no. 12, pp. 2132–2140, 2013.
- [100] A. Rosenfeld, D. Ashkenasi, H. Varel, M. Wähmer, and E. Campbell, "Time resolved detection of particle removal from dielectrics on femtosecond laser ablation," *Applied surface science*, vol. 127, pp. 76–80, 1998.

-
- [101] A. Couairon and A. Mysyrowicz, “Femtosecond filamentation in transparent media,” *Physics reports*, vol. 441, no. 2-4, pp. 47–189, 2007.
- [102] Y. P. Raizer, “Breakdown and heating of gases under the influence of a laser beam,” *Physics-Uspokhi*, vol. 8, no. 5, pp. 650–673, 1966.
- [103] F. Docchio, P. Regondi, M. R. Capon, and J. Mellerio, “Study of the temporal and spatial dynamics of plasmas induced in liquids by nanosecond Nd:YAG laser pulses. 1: Analysis of the plasma starting times,” *Applied Optics*, vol. 27, no. 17, pp. 3661–3668, 1988.
- [104] R. Kammel, R. Ackermann, J. Thomas, J. Götte, S. Skupin, A. Tünnermann, and S. Nolte, “Enhancing precision in fs-laser material processing by simultaneous spatial and temporal focusing,” *Light: Science & Applications*, vol. 3, no. 5, p. e169, 2014.
- [105] F. Ahmed, M. S. Lee, H. Sekita, T. Sumiyoshi, and M. Kamata, “Display glass cutting by femtosecond laser induced single shot periodic void array,” *Applied Physics A*, vol. 93, no. 1, p. 189, 2008.
- [106] J. Arlt and K. Dholakia, “Generation of high-order Bessel beams by use of an axicon,” *Optics Communications*, vol. 177, no. 1-6, pp. 297–301, 2000.
- [107] J. Turunen, A. Vasara, and A. T. Friberg, “Holographic generation of diffraction-free beams,” *Applied Optics*, vol. 27, no. 19, pp. 3959–3962, 1988.
- [108] D. G. Grier, “A revolution in optical manipulation,” *Nature*, vol. 424, no. 6950, p. 810, 2003.
- [109] J. Durnin, J. Miceli Jr, and J. Eberly, “Diffraction-free beams,” *Physical Review Letters*, vol. 58, no. 15, p. 1499, 1987.
- [110] R. Leitgeb, M. Villiger, A. Bachmann, L. Steinmann, and T. Lasser, “Extended focus depth for fourier domain optical coherence microscopy,” *Optics Letters*, vol. 31, no. 16, pp. 2450–2452, 2006.
- [111] F. O. Fahrbach, P. Simon, and A. Rohrbach, “Microscopy with self-reconstructing beams,” *Nature Photonics*, vol. 4, no. 11, p. 780, 2010.
- [112] P. Wu, C. Sui, and W. Huang, “Theoretical analysis of a quasi-Bessel beam for laser ablation,” *Photonics Research*, vol. 2, no. 3, pp. 82–86, 2014.
- [113] S. Akturk, B. Zhou, B. Pasquiou, M. Franco, and A. Mysyrowicz, “Intensity distribution around the focal regions of real axicons,” *Optics Communications*, vol. 281, no. 17, pp. 4240–4244, 2008.
- [114] O. Brzobohatý, T. Čižmár, and P. Zemánek, “High quality quasi-Bessel beam generated by round-tip axicon,” *Optics Express*, vol. 16, no. 17, pp. 12688–12700, 2008.
- [115] S. Mitra, M. Chanal, R. Clady, A. Mouskeftaras, and D. Grojo, “Millijoule femtosecond micro-Bessel beams for ultra-high aspect ratio machining,” *Applied Optics*, vol. 54, no. 24, pp. 7358–7365, 2015.

- [116] C. Kalupka, T. Holtum, and M. Reininghaus, "Ultrafast dynamics of material excitation of dielectrics with ultrashort pulsed Bessel beams," in *Laser-based Micro-and Nanoprocessing XII*, vol. 10520, p. 105200G, International Society for Optics and Photonics, 2018.
- [117] D. Von der Linde and H. Schüler, "Breakdown threshold and plasma formation in femtosecond laser–solid interaction," *Journal of the Optical Society of America B*, vol. 13, no. 1, pp. 216–222, 1996.
- [118] W.-J. Tsai, C.-J. Gu, C.-W. Cheng, and J.-B. Horng, "Internal modification for cutting transparent glass using femtosecond Bessel beams," *Optical Engineering*, vol. 53, no. 5, p. 051503, 2013.
- [119] M. Bhuyan, O. Jedrkiewicz, V. Sabonis, M. Mikutis, S. Recchia, A. Aprea, M. Bollani, and P. Di Trapani, "High-speed laser-assisted cutting of strong transparent materials using picosecond Bessel beams," *Applied Physics A*, vol. 120, no. 2, pp. 443–446, 2015.
- [120] K. Mishchik, B. Chassagne, C. Javaux-Léger, C. Hönninger, E. Mottay, R. Kling, and J. Lopez, "Dash line glass-and sapphire-cutting with high power USP laser," in *Frontiers in Ultrafast Optics: Biomedical, Scientific, and Industrial Applications XVI*, vol. 9740, p. 97400W, International Society for Optics and Photonics, 2016.
- [121] J. Dudutis, P. Gečys, and G. Račiukaitis, "Modification of glass using an axicon-generated non-symmetrical Bessel-Gaussian beam," in *Laser Applications in Microelectronic and Optoelectronic Manufacturing (LAMOM) XXII*, vol. 10091, p. 100910N, International Society for Optics and Photonics, 2017.
- [122] K. Mishchik, R. Beuton, O. D. Caulier, S. Skupin, B. Chimier, G. Duchateau, B. Chassagne, R. Kling, C. Hönninger, E. Mottay, and J. Lopez, "Improved laser glass cutting by spatio-temporal control of energy deposition using bursts of femtosecond pulses," *Optics Express*, vol. 25, no. 26, pp. 33271–33282, 2017.
- [123] M. Jenne, D. Flamm, T. Ouaj, J. Hellstern, J. Kleiner, D. Grossmann, M. Koschig, M. Kaiser, M. Kumkar, and S. Nolte, "High-quality tailored-edge cleaving using aberration-corrected Bessel-like beams," *Optics Letters*, vol. 43, no. 13, pp. 3164–3167, 2018.
- [124] C. Weingarten, E. Uluz, A. Schmickler, K. Braun, E. Willenborg, A. Temmler, and S. Heidrich, "Glass processing with pulsed CO₂ laser radiation," *Applied Optics*, vol. 56, no. 4, pp. 777–783, 2017.
- [125] I. Miyamoto, K. Cvecek, and M. Schmidt, "Evaluation of nonlinear absorptivity in internal modification of bulk glass by ultrashort laser pulses," *Optics Express*, vol. 19, no. 11, pp. 10714–10727, 2011.
- [126] B. Chebbi, S. Minko, N. Al-Akwaa, and I. Golub, "Remote control of extended depth of field focusing," *Optics Communications*, vol. 283, no. 9, pp. 1678–1683, 2010.

-
- [127] C. Xie, V. Jukna, C. Milián, R. Giust, I. Ouadghiri-Idrissi, T. Itina, J. M. Dudley, A. Couairon, and F. Courvoisier, “Tubular filamentation for laser material processing,” *Scientific Reports*, vol. 5, p. 8914, 2015.
- [128] K. Bergner, D. Flamm, M. Jenne, M. Kumkar, A. Tünnermann, and S. Nolte, “Time-resolved tomography of ultrafast laser-matter interaction,” *Optics Express*, vol. 26, no. 3, pp. 2873–2883, 2018.
- [129] R. R. Gattass, L. R. Cerami, and E. Mazur, “Micromachining of bulk glass with bursts of femtosecond laser pulses at variable repetition rates,” *Optics Express*, vol. 14, no. 12, pp. 5279–5284, 2006.
- [130] K. Bergner, M. Müller, R. Klas, J. Limpert, S. Nolte, and A. Tünnerman, “Scaling ultrashort laser pulse induced glass modifications for cleaving applications,” *Applied Optics*, vol. 57, no. 21, pp. 5941–5947, 2018.
- [131] Corning. Product Information Sheet, https://www.corning.com/content/dam/corning/microsites/csm/gorillaglass/PI_Sheets/CGG_PI_Sheet_Gorilla%20Glass%203.pdf.
- [132] V. Garzillo, V. Jukna, A. Couairon, R. Grigutis, P. Di Trapani, and O. Jedrkiewicz, “Optimization of laser energy deposition for single-shot high aspect-ratio microstructuring of thick BK7 glass,” *Journal of Applied Physics*, vol. 120, no. 1, p. 013102, 2016.

Symbolverzeichnis

A	Absorptionsvermögen
\hat{A}	Amplitude der Energiedeposition
α	Absorptionskoeffizient
α_{AI}	Avalanche-Ionisationskoeffizient
c_0	Lichtgeschwindigkeit in Vakuum
c	Lichtgeschwindigkeit im Medium
$D_{x,y}$	Raumgröße in x - bzw. y -Richtung
D_t	Zeitintervall
d_A	Mittlerer atomarer Abstand
d_{Auf}	Räumliches Auflösungsvermögen
d_{Glas}	Glasdicke
d_{Mod}	Räumlicher Abstand zweier Modifikationen
d_t	Zeitschrittweite
$d_{x,y}$	Kantenlänge Ortseinheitszelle in x - bzw. y -Richtung
ΔE_{ee}	Energieverlust eines freien Elektrons durch einen Stoß
Δs	Differenz Propagationsstrecke des Probe-Pulses relativ zum Pump-Puls
Δt_{Aufbau}	Zeitdauer bis zum vollständigen Aufbau der freien Elektronendichte
Δt_{Burst}	Zeitlicher Abstand zweier Puls-Züge
Δt_{Gate}	Gesamte zeitliche Dauer eines Puls-Zugs
Δt_{Puls}	Zeitlicher Abstand zweier aufeinanderfolgender Pulse
$\Delta G_{\text{-RR}}$	Räumlicher Abstand Reflexionsgitter und Retroreflektor
δ_{abs}	Absorptionstiefe
δ_z	Schichtdicke in Propagationsrichtung
E	Energie
E_{av}	Mittlere kinetische Energie der freien Elektronen
E_{crit}	Kritische Energie für das Einsetzen von Stoß-Ionisation
E_{Gap}	Bandlücke
$E_{\text{Gap}}^{\text{eff}}$	Effektive Bandlücke
E_{γ}	Photonenenergie
E_P	Pulsenergie
E_P^{trans}	Transmittierte Pulsenergie
E_P^{ein}	Eingestrahlte Pulsenergie
e	Elementarladung
ϵ_0	Dielektrizitätskonstante des Vakuums
ϵ	Dielektrische Funktion
ϵ_{LB}	Beitrag Leitungsbandelektronen zur Dielektrische Funktion
ϵ_{VB}	Beitrag Valenzbandelektronen zur Dielektrische Funktion
η_{Rek}	Rekombinationskoeffizient
F^{trans}	Transmittierte Fluenz
F^{ein}	Eingestrahlte Fluenz
f	Brennweite

f_{Rep}	Puls-Repetitionsrate
γ	Photon
γ_K	Keldysh-Parameter
h	Planck'sches Wirkungsquantum
\hbar	Reduziertes Planck'sches Wirkungsquantum
I	Intensität
I_0	Spitzenintensität
I_R	Intensität mit transienter Reflektivität
I_T	Intensität mit transienter Reflektivität und Absorption
I_{thr}	Intensitätsschwelle
$I_{\text{Probe}}^{\text{CMOS}}$	Gemessener Pixel-Intensitätswert ohne Pump-Puls
$I_{\text{Pump}}^{\text{CMOS}}$	Gemessener Pixel-Intensitätswert mit Pump-Puls
J	Elliptisches Integral
K	Elliptisches Integral
κ	Imaginärteil Brechungsindex
k_B	Boltzmann-Konstante
\vec{k}	Wellenvektor
k_{\parallel}	Wellenvektor parallel zur Einfallrichtung
\hat{L}	Lokalisierung der Energiedeposition
l_{ρ}	Longitudinale Ausdehnung der freien Elektronendichte
l_{τ}	Longitudinale Ausdehnung Laserpuls mit Pulsdauer τ
λ	Wellenlänge
λ_{Probe}	Wellenlänge Probe-Pulse
λ_{Pump}	Wellenlänge Pump-Pulse
M^2	Beugungsmaßzahl
m_e	Elektronenmasse
m^*	Effektive Elektronenmasse
N	Anzahl Pulse pro Fläche
N_a	Atomdichte
N_{γ}	Anzahl Photonen notwendig für Multiphotonenionisation
N_{γ}^{eff}	Anzahl Photonen notwendig für Multiphotonenionisation für Bandlücke $E_{\text{Gap}}^{\text{eff}}$
$N_{\text{Messungen}}$	Anzahl Messungen
NA	Numerische Apertur
n	Komplexer Brechungsindex
n_0	Linearer Brechungsindex
n_2	Nicht-linearer Anteil des Brechungsindex aufgrund des Kerr-Effektes
n_{PD}	Anteil Plasmadefokussierung des Brechungsindex
n_{Luft}	Brechungsindex Luft
n_{Ax}	Brechungsindex Axicon
n_{eff}	Effektiver Brechungsindex
n_r	Realteil Brechungsindex
ν_{min}	Minimale Elektronen-Stoßfrequenz bei Raumtemperatur
ν_{max}	Maximale Elektronen-Stoßfrequenz
ν_{Verluste}	Verlustrate der freien Elektronendichte
P	Mittlere Leistung

P_{\max}	Maximale mittlere Leistung
P_0	Pulsspitzenleistung
P_{crit}	Kritische Pulsspitzenleistung für das Einsetzen von Selbstfokussierung
$P\ddot{U}$	Räumlicher Pulsüberlapp
Φ	Dawson-Integral
Q	Elliptisches Integral
R	Reflektivität
R_a	Mittenrauwert
R_z	Gemittelte Rautiefe
r	Radialkoordinate
$r_{\text{Gauß}}$	Rohstrahlradius Gauß-Profil
$r_{0,x,y}$	Rohstrahlradius Gauß-Profil in x - bzw. y -Richtung
ρ	Freie Elektronendichte
ρ_{AI}	Freie Elektronendichte erzeugt durch Avalanche-Ionisation
ρ_{PI}	Freie Elektronendichte erzeugt durch Photoionisation
ρ_{crit}	Kritische Elektronendichte
ρ_{\max}	Maximale freie Elektronendichte
$\rho_{\text{Stoß}}$	Freie Elektronendichte erzeugt durch Stoß-Ionisation
σ_{AI}	Avalanche-Ionisationsrate
σ_{PI}	Photoionisationsrate
σ_{MPI}	Multiphotoionisationsrate
σ_{t_D}	Toleranz eingestellter Zeitpunkt t_D
$\sigma_{\mathcal{T}_{\text{Pump}}}$	Toleranz eingestellte Pulsdauer des Pump-Pulses
T	Transmission
T_{\min}	Minimum der Transmission
T_e	Elektronentemperatur
T_{Raum}	Raumtemperatur
t	Zeit
t_D	Zeitpunkt nach initialer Erzeugung einer freien Elektronendichte
τ_e	Mittlere Elektronstoßzeit
$\tau_{e,\text{const}}$	Grenzwert Elektronstoßzeit für große freie Elektronendichten
$\tau_{e,\text{eff}}$	Effektive Elektronstoßzeit
$\mathcal{T}_{\text{Probe}}$	Pulsdauer Probe-Puls
$\mathcal{T}_{\text{Pump}}$	Pulsdauer Pump-Puls
θ_{Ax}	Basiswinkel Axicon
U	Spannung
V	Vergrößerung
V_F	Fokusvolumen
v_e	Mittlere Geschwindigkeit der freien Elektronen
v_{Feed}	Vorschubgeschwindigkeit
w	Strahlradius
w_ρ	Transversale Ausdehnung freie Elektronendichte
w_0	Fokusradius
w_B	Transversaler Radius des verkleinerten Bessel-Profiles
$w_{B,\text{Pri}}$	Transversaler Radius des Bessel-Profiles hinter dem Axicon

ω	Kreisfrequenz der Laserstrahlung
ω_P	Plasmafrequenz
x	Ortskoordinate in x -Richtung, senkrecht zur Propagationsrichtung
y	Ortskoordinate in y -Richtung, senkrecht zur Propagationsrichtung
z	Ortskoordinate in z -Richtung, in Propagationsrichtung
z_0	Fokusposition auf der optischen Achse
z_B	Longitudinale Ausdehnung verkleinertes Bessel-Profil
$z_{B,\text{eff}}$	Effektive longitudinale Ausdehnung verkleinertes Bessel-Profil
z_F	Fokuslänge
z_{Pri}	Longitudinale Ausdehnung Bessel-Profil hinter Axicon
z_R	Rayleigh-Länge
AI	Avalanche-Ionisation
CCD	Charge-coupled device
CMOS	Complementary metal-oxide-semiconductor
CPA	Chirped pulse amplification
DOE	Diffraktives optisches Element
EOM	Elektrooptischer Modulator
fs	Femtosekunde
FWHM	Full width half maximum
MPI	Multiphotonenionisation
MRE	Multi-Ratengleichung
nm	Nanometer
ns	Nanosekunde
PI	Photoionisation
ps	Pikosekunde
SLM	Spatial Light Modulator
SRE	Einfache Ratengleichung
TI	Tunnelionisation

A Anhang

A.1 Ergänzende Beschreibung der Photoionisationsmechanismen

Die Photoionisationsrate wird in der Beschreibung nach Keldysh [4] hergeleitet. Die effektive elektronische Bandlücke für das durch die Laserstrahlung verzerrte Atompotential wird mithilfe von Gleichung A.1 beschrieben.

$$E_{\text{Gap}}^{\text{eff}} = \frac{2}{\pi} E_{\text{Gap}} \frac{\sqrt{1+\gamma^2}}{\gamma} J \left(\frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right) \quad (\text{A.1})$$

Darüber hinaus wird Q über Gleichung A.2 ermittelt.

$$\begin{aligned} Q(\gamma, N_\gamma) &= \left[\pi / 2K \left(\frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right) \right]^{1/2} \\ &\cdot \sum_{n=0}^{\infty} \exp \left(-\pi \left[K \left(\frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. - J \left(\frac{\gamma}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right) n / J \left(\frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right) \right] \right) \\ &\cdot \Phi \left(\left[\pi^2 (2\langle N_\gamma + 1 \rangle - 2N_\gamma + n) / 2K \left(\frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right) \right. \right. \\ &\quad \left. \left. \cdot J \left(\frac{1}{\sqrt{1+\gamma^2}} \right) \right]^{1/2} \right) \end{aligned} \quad (\text{A.2})$$

Die Größen K und J bezeichnen elliptische Integrale, die mithilfe der Identität in Gleichungen A.3 ermittelt werden.

$$K(x)J(\sqrt{1-x^2}) + K(\sqrt{1-x^2})J(x) - K(x)K(\sqrt{1-x^2}) = \pi/2 \quad (\text{A.3})$$

In dem Modell nach Kennedy wird das Dawson-Integral Φ über Gleichung A.4 berechnet.

$$\Phi = \frac{1}{2} \sqrt{\pi} \exp(-x^2) \operatorname{erf}(x) \quad (\text{A.4})$$

Mit erf als sogenannte Fehlerfunktion.

A.2 Verwendetes Glas

Das im Rahmen dieser Arbeit verwendete Glas ist ungehärtetes Alkali-Aluminosilikatglas der Firma Corning®, das als „Gorilla® Glass 3“ bezeichnet wird [131]. Das Glas wurde in Hinblick auf Displayanwendungen im Bereich der Unterhaltungselektronik entwickelt und

weist aufgrund dessen eine hohe Kratzbeständigkeit sowie niedrige Defektanfälligkeit auf. Der vom Hersteller angegebene Brechungsindex liegt bei $n = 1,50$ für eine Wellenlänge von 590 nm. Ausgewählte zentrale Eigenschaften des Glases sind in Tabelle A.1 dargestellt.

Bezeichnung	Wert	Einheit
Brechungsindex für 590 nm	1,50	-
Dichte	2,39	g/cm ³
Elastizitätsmodul	69,3	GPa
Torsionsmodul	28,5	GPa
Expansionskoeffizient	$75,8 \cdot 10^{-7}$	1/°C

Tabelle A.1 – Ausgewählte Eigenschaften des im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Glases [131].

A.3 Literaturwerte für die Elektronstoßzeit

Die Elektronstoßzeit τ_e aus verschiedenen Literaturquellen unterscheiden sich für Quarzglas um mehr als eine Größenordnung. In Abb. A.1 und in Tabelle A.2 ist eine Auswahl von τ_e aus verschiedenen Literaturquellen zusammengefasst.

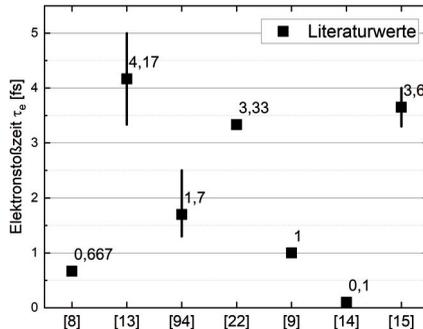


Abbildung A.1 – Graphische Darstellung der verwendeten Elektronstoßzeit τ_e aus verschiedenen Literaturquellen.

Wert	Material	Anmerkung	Quelle
0,67 fs	Quarz	Für Elektronen mit $E_{\text{kin}} < 100 \text{ eV}$	[8]
3,3 – 5,0 fs	-	Kalibrationsparameter	[13]
1,7 fs	Quarz	Mittelwert; transient.	[94]
3,3 fs	Quarz	-	[22]
1,0 fs	-	-	[9]
0,1 fs	Quarz	Verwendet werden weitere Werte; nicht weiter beschrieben.	[14]
3,7 fs	Quarz	Für $\tau_{\text{Pump}} = 140 \text{ fs}$ Übereinstimmung	[15]

Tabelle A.2 – Tabellarischer Überblick der Elektronstoßzeit τ_e aus verschiedenen Literaturquellen.

A.4 Literaturwerte für die Rekombination

Im Folgenden sind Werte für die Rekombinationsrate η_{Rek} bzw. der von der freien Elektronendichte unabhängigen Rekombinationszeit τ_{Rec} aus verschiedenen Literaturquellen in Tabelle A.3 zusammengefasst.

Wert	Material	Anmerkung	Quelle
170 fs	BK7	-	[94]
$2 \cdot 10^9 \text{ cm}^3/\text{s}$	Quarz	Aus Plasmalumineszenz von Wasser ermittelt.	[15]
10 - 100 ps	-	-	[22]
$1 \cdot 10^{10} \text{ cm}^3/\text{s}$	Quarz	Kalibrationsparameter	[9]
150 fs	Quarz	-	[31]

Tabelle A.3 – Rekombinationsrate η_{Rek} bzw. Rekombinationszeit τ_{Rec} aus verschiedenen Literaturquellen.

A.5 Lasersystem Libra

Das Lasersystem basiert auf dem CPA-Prinzip. Das System besteht aus einem Pump- und einen Seedlaser, wobei die ultrakurzen Pulse ($\tau_{\text{Pump}} = 80 \text{ fs}$) des Seedlasers durch ein Reflexionsgitter zunächst zeitlich verlängert werden, um durch die großen Intensitäten Schäden an optischen Komponenten im Lasersystem zu vermeiden. Nach der zeitlichen Verlängerung der Pulsdauer werden die Pulse in den Resonator des regenerativen Verstärkers eingekoppelt. Die emittierte Laserstrahlung des Pumplasers (ns-Pulsdauer) wird direkt in den Resonator des regenerativen Verstärkers eingekoppelt. Mithilfe des „Synchronization and Delay Generator“ (SDG) werden die Pulse synchronisiert und nach mehreren Umläufen durch das elektronische Schalten einer Pockelszelle ausgekoppelt. Mithilfe eines weiteren Reflexionsgitters werden die verstärkten Pulse zeitlich komprimiert. So können prinzipiell Pulsdauern in einem Intervall von 80 fs bis 9 ps eingestellt werden.

A.6 Bestimmung Fokusradius für Messungen der Transmission

Um den Fokusradius zu bestimmen, wird die Methode vorgeschlagen von Liu [75] verwendet. Dazu werden für eine Fokussierung der Laserstrahlung an der Glasoberfläche Abtragskrater mit verschiedenen Pulsenergien E_P hergestellt. Repräsentative Abtragskrater sind in Abb. A.2 (a) dargestellt.

Die Abtragsfläche D^2 des Abtragskrater ist dabei mit dem Fokusradius w_0 über Gleichung A.5 korreliert.

$$D^2 = 2w_0^2 \cdot \ln\left(\frac{F}{F_{\text{thr}}}\right) = a \cdot \ln(b \cdot E_P) \quad (\text{A.5})$$

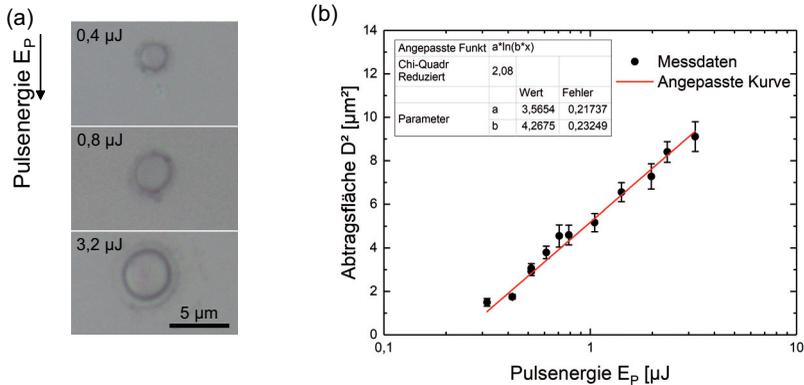


Abbildung A.2 – Experimentelle Ermittlung des Fokusradius. (a) Abtragskrater auf einer Glasoberfläche für verschiedene Pulsenergien ($\tau_{\text{Pump}} = 0,5$ ps, Einzelpulse). (b) Abtragsfläche D^2 als Funktion der Pulsenergie E_P zu Ermittlung des Fokusradius.

Somit wird der Durchmesser der Abtragskrater D zur Bestimmung des Fokusradius w_0 für die verwendeten Pulsenergien E_P ermittelt. Im nächsten Schritt wird eine logarithmische Anpassung nach Gleichung A.5 an die Messwerte durchgeführt, siehe Abb. A.2 (b). Aus den ermittelten Parametern wird der Fokusradius nach Gleichung A.6 berechnet.

$$w_0 = \sqrt{\frac{a}{2}} \quad (\text{A.6})$$

Für die in Abb. A.2 (b) ermittelten Werte für a und b resultiert ein Fokusradius von $w_0 \approx 1,3 \pm 0,1 \mu\text{m}$.

A.7 Messung transmittierte Energie mithilfe der Ulbrichtkugel

Eine einzelne Messung der transmittierten Pulsenergie mit der eingesetzten Photodiode ist in Abb. A.3 (a) für die Verwendung eines einzelnen Pulses mit einer Pulsenergie $E_P = 7 \mu\text{J}$ dargestellt. Das Signal wird in Form einer Spannung U in Abhängigkeit der Zeit ermittelt. Der Messbereich der Photodiode ermöglicht Messungen von Spannungen bis 5 V.

Das Messsignal ist insbesondere durch den Maximalwert der Spannung charakterisiert. Nach Erreichen der maximalen Spannung klingt das Messsignal ab und ein zeitliches Plateau der Spannung wird ermittelt. Dies kann auf die rücklaufenden freien Ladungsträger der Photodiode zurückgeführt werden. Aufgrund dessen wird zur Auswertung der Maximalwert der Spannung verwendet.

Die Maximalspannung wird für verschiedene Pulsenergien E_P gemessen und ist in Abb. A.3 (b) exemplarisch dargestellt. Der Kalibrationsfaktor wird durch eine lineare Anpassung ermittelt. Somit ist eine Umrechnung der ermittelten Spannung U in eine Pulsenergie E_P möglich.

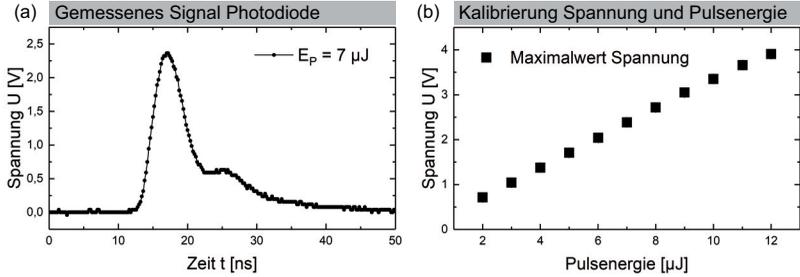


Abbildung A.3 – (a) Durch die Photodiode ermitteltes Spannungssignal in Form einer Spannung als Funktion der Zeit. (b) Kalibrierung der Photodiode zur Umrechnung einer gemessenen Spannung U in eine Pulsenergie E_P .

A.8 Ermittlung Bandlücke

Die Bandlücke wird mithilfe eines sogenannten Tauc-Plots ermittelt. Dabei wird mithilfe von UV-Vis-NIR-Spektroskopie in einem Spektralbereich von 300 nm bis 2000 nm das Reflexions- sowie Transmissionsvermögen des verwendeten Glases ermittelt. Daraus kann der Absorptionskoeffizient α bestimmt werden. Insbesondere für Photonenergien E_γ in der Nähe der elektronischen Bandlücke wird der Absorptionskoeffizient $\alpha > 0$. Durch Auftragung von $(\alpha \cdot E_\gamma)^{1/2}$ als Funktion der Photonenergie E_γ kann mithilfe einer linearen Anpassung die Bandlücke ermittelt werden, siehe Abb. A.4.

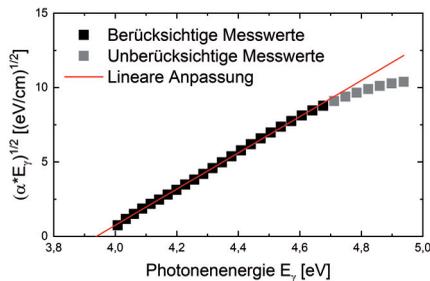


Abbildung A.4 – Mithilfe von spektralen Reflexions- und Transmissionsmessungen ermittelter Tauc-Graph zur Ermittlung der Bandlücke.

Durch die lineare Anpassung an die Messdaten wird der Schnittpunkt der ermittelten Gerade mit der Abszissenachse ermittelt, welcher dem Wert der Bandlücke entspricht. Für die in Abb. A.4 dargestellte Anpassung ergibt sich eine Bandlücke von $E_{\text{Gap}} = 3,94 \text{ eV}$.

A.9 Literaturwerte für die effektive Elektronenmasse

Eine Auswahl von Werten für die effektive Elektronenmasse m^* aus verschiedenen Literaturquellen ist in Tabelle A.4 zusammengefasst.

Wert	Material	Anmerkung	Quelle
$0,86m_e$	Quarz	-	[32]
$0,50m_e$	Quarz	Ohne Begründung angenommen.	[22]
$0,50m_e$	-	-	[9]
$1,00m_e$	Quarz	-	[8]
$0,50m_e$	Quarz	-	[14]

Tabelle A.4 – Effektive Elektronenmasse m^* aus verschiedenen Literaturquellen.

A.10 Literaturwerte für die Valenzbandelektronendichte

Im Folgenden sind die Werte für die Valenzbandelektronendichte N_a aus verschiedenen Literaturquellen zusammengefasst.

Wert	Material	Anmerkung	Quelle
$2,1 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$	BK7	-	[132]
$3,2 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$	Quarz	-	[14]
$6,6 \cdot 10^{22} \text{ cm}^{-3}$	Quarz	-	[22]
$1,5 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$	-	-	[9]
$0,7 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$	Quarz	-	[17]
$1,4 \cdot 10^{23} \text{ cm}^{-3}$	Quarz	-	[31]

Tabelle A.5 – Valenzbandelektronendichte N_a aus verschiedenen Literaturquellen.

A.11 Bestimmung der Absorptionstiefe

Zur Ermittlung der pulsdauerabhängigen Absorptionstiefe der ultrakurz gepulsten Laserstrahlung in Glas, wird das Vorgehen wie in [82] beschrieben verwendet. Mithilfe des Lambert-Beert'schen Absorptionsgesetz kann der Zusammenhang zwischen der Absorptionstiefe δ_{abs} , der Abtragstiefe pro Puls L und der verwendeten Pulsenergie E_P bzw. Fluenz F über Gleichung A.7 ermittelt werden.

$$L = \delta_{\text{abs}} \cdot \ln \left(\frac{F}{F_{\text{thr}}} \right) \quad (\text{A.7})$$

Für eine ausgewählte Pulsdauer τ_{Pump} werden Abtragskrater für Fokussierung der Laserstrahlung auf die Glasoberfläche für verschiedene Pulsenergien E_P und Anzahl der Pulse N erzeugt. Repräsentative Abtragskrater sind für drei verschiedene Pulsenergien E_P sowie drei verschiedene Anzahl der Pulse N in Abb. A.5 (a) dargestellt. Die Abtragtiefe h_z wird für jeden Krater mittels Laser-Scanning-Mikroskopie gemessen. Ausgewählte Höhenprofile sind in Abb. A.5 (b) dargestellt.

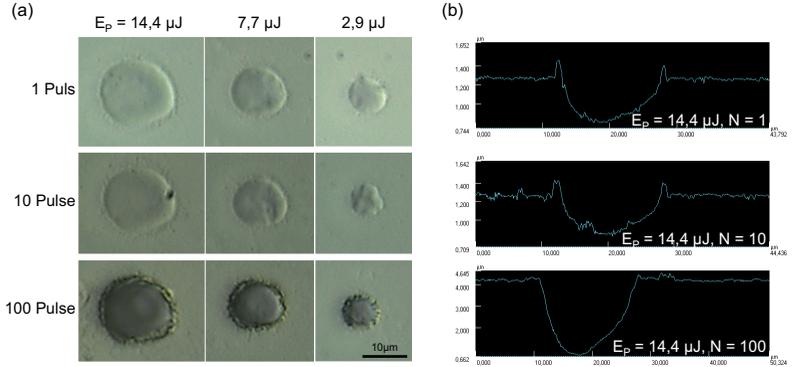


Abbildung A.5 – (a) Abtragskrater auf einer Glasoberfläche für verschiedene Pulsenergien E_P und Anzahl der Pulse N für die Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs und $\lambda = 800$ nm. (b) Höhenprofile für $E_P = 14,4 \mu\text{J}$ in von N .

Für jede Parameterkombination von Pulsenergie E_P und Anzahl der Pulse N werden mindestens fünf erzeugte Krater vermessen und der arithmetische Mittelwert sowie die Standardabweichung der Abtragtiefe h_z ermittelt. Unter der Annahme, dass die Abtragtiefe h_z linear abhängig von der verwendeten Anzahl der Pulse N ist, kann die Abtragtiefe pro Puls über $L = h_z/N$ ermittelt werden. Durch eine logarithmischen Anpassung der Form $L = a \cdot \ln(b \cdot E_P)$, kann mithilfe des Anpassungsparameters a direkt die Absorptionstiefe δ_{abs} bestimmt werden. Die ermittelten Abtragstiefen pro Puls L sind für Pulsdauern von 80 fs bis circa 10 ps in Abb. A.6 (a) zusammen mit den angepassten Kurven dargestellt. Die ermittelten Absorptionstiefen δ_{abs} sind in Abb. A.6 (b) zusammengefasst.

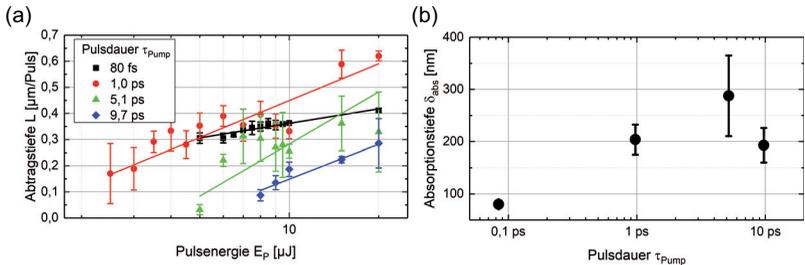


Abbildung A.6 – (a) Ermittelte Abtragstiefe pro Puls L in Abhängigkeit der verwendeten Pulsenergie E_P für vier verschiedene Pulsdauern τ_{Pump} und zugehörige logarithmische Anpassungen an die Messdaten (Kurven). (b) Mithilfe der Regressionen bestimmte Absorptionstiefen δ_{abs} für die verwendeten Pulsdauern τ_{Pump} .

A.12 Erzeugung eines Luftplasmas

Wie in Kapitel 3 für eine Pulsdauer $\tau_{\text{Pump}} = 80$ fs dargestellt ist, wird für Intensitäten in der Größenordnung $I \sim 10^{14}$ W/cm² ein Luftplasma erzeugt. Für Fokussierung in Luft ist in Abbildung A.7 (a) der zeitliche Aufbau des Luftplasmas mittels coaxialer Pump-Probe-Transmissionsmikroskopie zeitaufgelöst dargestellt. Die verwendete Spitzenintensität beträgt $I_0 = 4,2 \cdot 10^{14}$ W/cm².

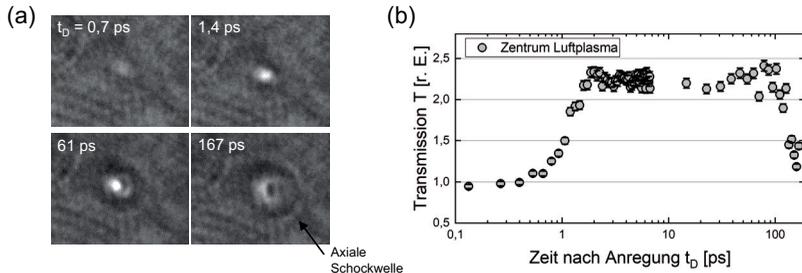


Abbildung A.7 – (a) Axiale Pump-Probe-Mikroskopie der zeitlichen Entwicklung eines laserinduzierten Luftplasmas. (b) Zeitliche Entwicklung der gemessenen Reflexion des Luftplasmas.

Im Zentralbereich des Plasmas wird eine starke Zunahme der Transmission festgestellt, was durch die starke Emission des Luftplasmas erklärt werden kann¹⁷. Nach etwa 60 ps entsteht eine zylindersymmetrische, axiale Luftschockwelle, die radial nach außen propagiert. Die ermittelte Transmission bzw. Emission des Plasmaleuchtens wird nach circa 100 ps kleiner, siehe Abb. A.7 (b). Demnach liegt die Plasmalebensdauer im Bereich ~ 100 ps.

Mit weiteren zeitaufgelösten Messungen der Transmission mit einer Intensität von $I_0 = 1,8 \cdot 10^{14}$ W/cm² wird eine vergleichbare Dynamik des Luftplasmas ermittelt. Für eine kleinere Intensität $I_0 = 1,6 \cdot 10^{14}$ W/cm² ist die Transmissionsänderung durch das Luftplasma vergleichsweise schwach und nach circa $t_D = 10$ ps nicht mehr detektierbar, sodass davon ausgegangen wird, dass kein hinreichend dichtes Plasma erzeugt werden konnte, das eine Elektronendichte größer als die kritische Elektronendichte induziert. Somit wird die Schwelle für die Erzeugung eines Luftplasmas zu $I_{\text{thr}} = 1,7 \pm 0,1 \cdot 10^{14}$ W/cm² ermittelt.

A.13 Amplitude und Lokalisierung der Energiedeposition für ein Gauß-Profil

In Abb. A.8 sind die quantitativen Auswertungen der Amplitude und der Lokalisierung der Energiedeposition bzw. der Elektronendichte für Pulsdauern von 0,5 ps bis 9 ps in Abhängigkeit der verwendeten Pulsenergie E_P dargestellt.

¹⁷Für $t_D > 2$ ps wird der Messbereich der CCD-Kamera überschritten. Eine weitere Vergrößerung der detektierten Intensität kann demnach von der Kamera nicht aufgelöst werden, was für die vordergründige Aussage im Rahmen dieser Arbeit aber nicht notwendig ist.

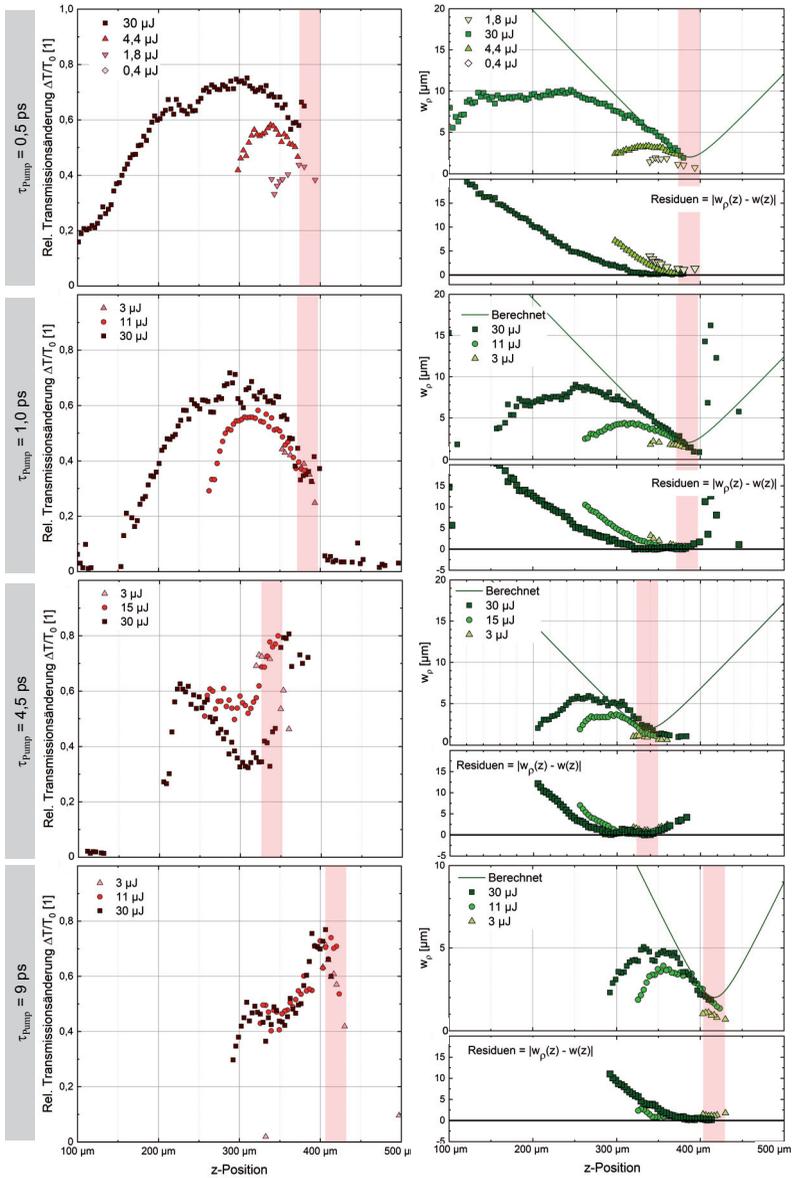


Abbildung A.8 – Quantitative Darstellung der Energiedeposition für die Verwendung eines Gauß-Profiles für Pulsdauern von 0,5 ps bis 9 ps für verschiedene Pulsenergien E_P .

Danksagung

Diese Dissertation wurde parallel während meiner Tätigkeit als wissenschaftlicher Mitarbeiter am Lehrstuhl für Lasertechnik der RWTH Aachen University unter anderem im Rahmen des Forschungscampus Digital Photonic Production und am Fraunhofer Institut für Lasertechnik ILT angefertigt.

Ich danke Herrn Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Reinhart Poprawe für die Betreuung dieser Arbeit, die konstruktiven Gespräche und das Vermitteln der stetigen Motivation, sich auch komplexesten Fragestellungen anzunehmen. Herrn Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Stefan Nolte danke ich für die Übernahme des Koreferats und Herrn Univ.-Prof. Dr. rer. nat. Werner Karl Schomburg für den Vorsitz.

Darüber hinaus gilt mein Dank Arnold Gillner für die kontinuierliche Unterstützung und dem hohen Interesse an den erarbeiteten grundlegenden Erkenntnissen. Ein ganz entscheidender Dank gilt Martin Reininghaus, Johannes Finger und Dagmar Schaefer, ohne deren Unterstützung und Vertrauen ich wohl niemals am LLT und ILT so weit gegangen und vermutlich auch gar nicht gekommen wäre. Allen weiteren Kollegen danke ich nicht weniger ebenfalls von ganzem Herzen. Das Arbeiten mit dem gesamten Team hat die Zeit im Fluge vergehen lassen. Allen studentischen Mitarbeitern, die unser Team über die Jahre mit Spaß, Freude, neuen Ideen, Diskussionen und guter Laune unterstützt haben, danke ich natürlich ebenso.

Meiner Familie, allen voran meinen Eltern, gilt ein ganz besonderer Dank, da sie mich fortwährend schon immer unterstützt, an mich geglaubt sowie das Studium überhaupt erst ermöglicht haben. Vielen Dank.

Meiner Freundin Christina danke ich von ganzem Herzen, die mich bei der Anfertigung der Arbeit mit viel Geduld begleitet und unterstützt hat. Insbesondere der Ausblick auf gemeinsame Laufstunden nach der Arbeit am Schreibtisch hat mich immer wieder motiviert und damit maßgeblich zu einem erfolgreichen (akademischen) Zieleinlauf beigetragen.

Aachen, März 2019

Christian Kalupka

