

Laserinduzierte Zerstörung in oxidischen Schichtsystemen für den UV Bereich

Von der Fakultät für Mathematik und Physik
der Gottfried Wilhelm Leibniz Universität Hannover

zur Erlangung des Grades
Doktor der Naturwissenschaften
Dr. rer. nat.

genehmigte Dissertation

von

Dipl.-Phys. Lars Jensen

geboren am 28. Februar 1978 in Hildesheim

2014

Referent: Prof.Dr. Detlev Ristau
Koreferent: Prof.Dr. Uwe Morgner
Tag der Promotion: 19.Dezember 2013

Kurzzusammenfassung

Die hohen Intensitäten gepulster Laserstrahlung im ultravioletten Spektralbereich sind mit ihrer Entwicklung eine große Herausforderung für die optischen Materialien. Hochenergetische Photonen und die erhöhte Spitzenleistung gepulster Laserstrahlung initiieren eine Vielzahl von Prozessen in den Optiken, die mitunter auch zur verkürzten Lebensdauer oder Zerstörung von diesen führen. Als ein substantieller Teil der Optiken wurden im Rahmen dieser Arbeit die dielektrischen Funktionsschichten untersucht, um die Prozesse zu identifizieren, die die besagte Schädigung herbeiführen.

Es war aus der Fachliteratur bekannt, dass die Zerstörvorgänge, die von Laserpulsen mit Pulsdauern von wenigen Nanosekunden in den Schichten hervorgerufen werden, in der Wechselwirkung mit einzelnen Mikrodefekten initiiert werden. Man spricht von defektinduzierter Zerstörung. Im besonderen Fall der UV-Strahlung, die mit gütegeschalteten Lasern erzeugt werden kann (im Fall des Nd:YAG-Lasers: $\lambda = 266 \text{ nm}$ & $\lambda = 355 \text{ nm}$), ist dieser Vorgang im Detail untersucht worden. Hauptsächlich anhand eines verfeinerten Messverfahrens nach dem ISO Standard 21254-2 wurden so SiO_2 , HfO_2 und Al_2O_3 als oxidische Beschichtungsmaterialien untersucht.

Im Zentrum standen dabei die in den Schichten vorhandenen Defektensembles und ihr Ansprechverhalten auf die Laserstrahlung. Ebenfalls spielt in UV-Anwendungen die Zweiphotonenabsorption (2PA) eine große Rolle. Auf Basis des speziellen LZH-IBS-Prozesses (Ion Beam Sputtering) konnten konfektionierte Einzelschichten hergestellt werden, die eine Untersuchung des Einflusses der 2PA in Resonanz ermöglichte. Im letzten Schritt wurde dann die Entwicklung der prozessbedingten Defektensembles unter UV-Bestrahlung analysiert.

Während dieser Arbeiten konnte zum ersten Mal 2PA in Ta_2O_5 -Schichtsystemen identifiziert werden, die ebenfalls die Zerstörung der Schichtmatrix (in Ta_2O_5) einleitet. Darüber hinaus konnten Erkenntnisse gesammelt werden, die erläutern, weshalb das Mischen von verschiedenen Dielektrika einen positiven Einfluss auf die Leistungsbeständigkeit von optischen Beschichtungen hat. Am Beispiel von hochreflektierende Spiegeln wurde auf Grund der geänderten Defektensembles eine bis zu 16-fache Erhöhung der Zerstörschwelle gezeigt.

Stichworte: *Laserinduzierte Zerstörung, Defektensembles, nicht-lineare Absorption, strahlungsinduzierte Defekte, Kompositmaterialien, Mischoxide*

Abstract

The high intensities of pulsed laser radiation in the ultraviolet spectral range have been a challenge to the optical materials ever since their introduction. High energetic photons and the increased peak-power of pulsed laser radiation initiate numerous processes within the optics which can lead to shorter lifetime and damage. Representing a substantial part of each optic this work analyzed the dielectric coatings in order to identify the processes which cause these degradations.

Literature acceptedly reports on the interaction of microdefects with laser pulses of a few nanoseconds in pulse duration to be the root cause for damage - this is called defect-induced damage. In the specific case of UV radiation which can be generated with q-switched lasers ($\lambda = 266 \text{ nm}$ & $\lambda = 355 \text{ nm}$), these processes have been studied in detail. This has been done mainly by means of a refined test method according to ISO 21254-2, and as materials for these tests the oxides SiO_2 , HfO_2 , and Al_2O_3 were employed.

In this endeavor, the experimental work was focussed on the defect ensembles present in the coatings and how they react under laser irradiation. Also, two-photon absorption (2PA) plays an important role in UV applications. Based on the particular LZH IBS (ion beam sputtering) process, customized single layer samples were developed to search for 2PA contributions to the damage mechanism in resonance condition. As a final step, the development of the defect ensembles under UV irradiation was determined.

Within this work, 2PA was identified in Ta_2O_5 thin films and also correlated to the damage initiation (in Ta_2O_5) for the first time. Furthermore, technical findings were gathered to offer explanations why composite dielectrics facilitate a positive influence on the power resistivity of optical coatings. This was demonstrated by the example of high reflecting (HR) mirrors. In HR designs a changed defect ensemble resulted in an increased damage threshold with an increment by a factor of 16.

Keywords: *laser-induced damage, defect ensembles, non-linear absorption, radiation-induced defects, composite materials, oxide mixtures*

Inhaltsverzeichnis

Einleitung	1
1 Grundlagen zur laserinduzierten Zerstörung im ultravioletten Spektralbereich	5
1.1 Erste Ansätze	5
1.2 Einschlussinduzierte Zerstörung	8
1.2.1 Modelle	8
1.2.2 Mie-Absorption	12
1.3 Zerstörung auf Grund von Multiphotonenabsorption	15
1.4 Einschlussinduzierte Zerstörung auf Grund von strahlungsinduzierten Defekten	20
1.5 Messverfahren	25
1.5.1 LIDT gemäß ISO 21254-2	25
1.5.2 Laserkalorimetrie zur Absorptionsmessung	32
2 Experimentelle Vorgehensweise	33
2.1 Strahldurchmesserabhängigkeit	34
2.2 Multiphotonenabsorption in SiO ₂ , Al ₂ O ₃ und HfO ₂	35
2.3 Strahlungsinduzierte Defekte	37
2.4 Optimierte HR-Spiegel-Designs	38
3 LIDT als Funktion des Teststrahldurchmessers	39
3.1 Messergebnisse	39
3.2 Erhöhte Defektdichte für kleinere Wellenlängen	44
4 Mehrphotoneneffekte im Zerstörprozess	47
4.1 MPA in SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Einzelschichten	47
4.2 Untersuchungen zur MPA an SiO ₂ /HfO ₂ Einzelschichten	55
4.3 Untersuchungen zur MPA in SiO ₂ /Al ₂ O ₃ Einzelschichten	62
4.4 Schlussfolgerung	66

Inhaltsverzeichnis

5 Strahlungsinduzierte Defekte	67
5.1 Defektensemble	68
5.2 Defektklassen	74
5.3 Zusammenfassung zur Defekterzeugung	75
6 Materialmischungen in HR-Designs	79
6.1 HR-Spiegel für $\lambda = 355\text{nm}$	80
6.2 HR-Spiegel für $\lambda = 266\text{nm}$	82
7 Zusammenfassung und Ausblick	85
Abbildungsverzeichnis	89
Tabellenverzeichnis	93
Literaturverzeichnis	95
Eigene Veröffentlichungen	103
Erklärung	107
Lebenslauf	109
Danksagung	111

Einleitung

Nachdem der Rubinlaser von Theodore Maiman experimentell realisiert wurde, waren zunächst die möglichen Anwendungen für diese Technologie nicht ganz klar. Sehr bald wurden jedoch die zahlreichen Vorteile einer kohärenten Lichtquelle identifiziert und eine Vielzahl von Anwendungen erschlossen. In diesem Zuge wurden weitere laseraktive Medien entwickelt, um zusätzliche Wellenlängen für die Lasertechnik zu eröffnen. In 1970er Jahren wurde der UV-Bereich durch die Excimer-Technologie erschlossen und in der zweiten Hälfte des Jahrzehnts in den kommerziellen Markt eingeführt.

Heutzutage finden frequenzkonvertierte Festkörperlaser immer mehr Anteile im Lasermarkt. Die DPSS-Technik (*Diode Pumped Solid State Laser* - Deutsch: diodengepumpter Festkörperlaser) hat die Betriebskosten deutlich gesenkt. Der Tausch von Pumplampen oder Betriebsgas ist nicht mehr erforderlich. Darüber hinaus verbesserte sich die Strahlqualität und Stabilität der Betriebsparameter mit diesem Lasertyp kontinuierlich. Eine direkte Folge hiervon ist, dass sich das Einsatzgebiet klar vergrößert und der Bedarf solcher Geräte mit stetigem Wachstum gekennzeichnet ist.

Kritische Teile eines solchen Systems sind u.a. die verwendeten Optiken und ihre Funktionsschichten. Im UV-Bereich finden seitens der Festkörperlaser vorwiegend Systeme mit den Emissionswellenlängen $\lambda = 355 \text{ nm}$ und $\lambda = 266 \text{ nm}$ Einsatz am Markt. Zur Effizienzsteigerung ist eine Skalierung hin zu höheren Ausgangsleistungen im Fokus der Entwickler. Anwendungen, die diese Entwicklung treiben, sind u.a. Lithographieprozesse und die jeweilige Wafer- und Maskeninspektionen. Dazu kommen Anwendungen in den Lebenswissenschaften, wie biomedizinische Abbildung und Fluoreszenz- bzw. Ramanspektroskopie. In der Elektronikbranche ist darüber hinaus das Laser Direct Imaging (LDI) und vor allem die Behandlung von Siliziumpanelen in der Displayherstellung zu nennen.

Die herausragenden Eigenschaften von gepulster ultravioletter Laserstrahlung bilden zugleich aber auch die größte Herausforderung für die strahlführenden Optiken. Hohe Intensität durch kurze Laserpulse und hohe Photonenenergien sorgen im Betrieb für verkürzte Lebensdauern der dielektrischen Beschichtungen und optischen Materialien. Bis heute sind die Mechanismen der Wechselwirkung von UV-Laserstrahlung und Dielektrikum nicht

Inhaltsverzeichnis

vollständig verstanden. Im Rahmen dieser Arbeit ist deshalb eine Abfolge an Experimenten entwickelt und durchgeführt worden, die die genauen Zerstörmechanismen für gepulste UV-Strahlung identifizieren sollen. Ein klares Verständnis der fundamentalen Prozesse soll anschließend zur Erhöhung der Zerstörschwelle und evtl. Lebensdauer beitragen.

Seit 1969 werden die fundamentalen Prozesse, die zum Versagen von optischen Materialien und Beschichtungen führen, in einem jährlichem Symposium in Boulder, Colorado [1] von den entsprechenden Experten diskutiert. Ein großer Anteil der Prozesse kann von gegenwärtigen Modellen gut beschrieben werden. Jedoch weisen diese Beschreibungen noch deutliche Lücken auf, wenn es um den UV-Spektralbereich geht. Die einzelnen Prozesse in der Wechselwirkung von UV-Strahlung mit der Beschichtung sind identifiziert und quantifiziert. Wie sie aber tatsächlich in den Zerstörprozess eingebunden sind ist weiterhin offen. Die potentiell beteiligten Mechanismen sind die Zweiphotonenabsorption, die Absorption an bestehenden Defekten mit anschließendem Durchbruch in der Schicht und die Erzeugung neuer, potentiell zerstörender Defekte durch die UV-Strahlung, die durch die jeweilige Optik geführt werden soll. Die Bildung von Farbzentren ist z.B. ein detailliert untersuchtes Phänomen in der Literatur.

An diesem Punkt setzt die vorliegende Arbeit an. Um den Beitrag dieser einzelnen physikalischen Vorgänge innerhalb des Zerstörprozesses separat zu untersuchen, wurden einzelne Experimente entwickelt und durchgeführt. Nach einer Einführung in die Details dieser drei Prozesse und einer Diskussion zu den gegenwärtigen Modellen, werden diese Analysen ausführlich erörtert.

Zunächst soll die defektinduzierte Zerstörung, die im NIR und sichtbaren Bereich dominant vorliegt, als Funktion der Wellenlänge untersucht werden. Um sich auf die Schicht zu beschränken, wurden hochreflektierende Spiegel als Probandesign gewählt. So fällt der Einfluss von Substrat und Politur minimal aus. Im Fall der lokalen Absorption an einzelnen Defekten, die die Zerstörung hervorruft, werden bei verringertem Teststrahldurchmesser nicht mehr repräsentativ viele Defekte vom Laser erwärmt. Sie werden mit verminderter Wahrscheinlichkeit tatsächlich getroffen. Vergleicht man die Ergebnisse einer solchen Messreihe für verschiedene Laserwellenlängen, kann man Aussagen zu den vorliegenden Defektverteilungen und deren Einfluss auf die Zerstörung treffen. Durchgeführt wurde dieses Experiment bei $\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\lambda = 532 \text{ nm}$, $\lambda = 355 \text{ nm}$ und $\lambda = 266 \text{ nm}$.

Für die Untersuchung der Zweiphotonenabsorption (2PA) als Zerstörungsinitiator musste ebenfalls ein bestimmter Probensatz erstellt werden. Nur so konnte dieser Prozess isoliert betrachtet werden. Die Effizienz der 2PA hängt von der eingestrahnten Wellenlänge, der In-

tensität und der zu überwindenden Bandlücke im Probenmaterial ab. Wie auch mit anderen kann mit den im UV transparenten Materialien SiO_2 , Al_2O_3 und HfO_2 über einen IBS-Mischprozess aus jeweils zweien eine Mischung mit beliebigem Mischverhältnis hergestellt werden. Diese Mischung weist dann eine dem Mischverhältnis entsprechende Bandlücke mit zugehörigem Brechungsindex auf. Mit diesem Verfahren kann die Bandlücke innerhalb einer Materialkombination ($\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ & $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$) frei gewählt werden und im Zusammenspiel mit einer festen Laserwellenlänge (in diesem Fall $\lambda = 355 \text{ nm}$) in Resonanz untersucht werden. Da dieser Effekt für den Pulsdauerbereich von wenigen Nanosekunden noch nicht überprüft worden ist, wurde ebenfalls ein Probensatz mit $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ hergestellt. Die Effizienz solcher Prozesse hängt sehr von der spezifischen Bandstruktur eines Materials ab, weshalb eine etwas breitere Auswahl an Materialien analysiert wurde. Wenn im Bereich der 2PA-Resonanz eine Unstetigkeit im Verlauf der Zerstörwelle auftritt, ist gezeigt, dass 2PA die Zerstörung initiiert oder maßgeblich verstärkt.

Als dritte Gruppe von Experimenten soll die Bildung zusätzlicher Defekte durch UV-Bestrahlung untersucht werden. Bilden sich während der Bestrahlung neue oder weitere Defekte, z.B. durch Farbzentren, kann dies in den Messdaten abgelesen werden, aus denen die Zerstörschwelle extrahiert wird. Diese Art von Untersuchung ist natürlich materialspezifisch, so dass sie an Einzelschichten eines Materials oder einer bestimmten Materialmischung durchgeführt werden muss. Mit einem Probensatz von den bereits erwähnten drei reinen Materialien SiO_2 , Al_2O_3 und HfO_2 und jeweils einer Mischung von Zweien (6 Probentypen insgesamt) soll diese Defektbildung bei $\lambda = 355 \text{ nm}$ und $\lambda = 266 \text{ nm}$ überprüft werden.

Mit einer Auswertung dieser drei Messkampagnen wird anschließend der Zerstörvorgang im oxidischen Dielektrikum diskutiert. Es resultiert eine Strategie, die Zerstörschwelle von dielektrischen Beschichtungen für den UV Bereich zu erhöhen. Im Anschluss wird deshalb eine Studie an hochreflektierenden Spiegeln durchgeführt, um die gewonnenen Erkenntnisse in der Praxis zu überprüfen. Auf diesem Weg soll eine verbesserte Leistungsfähigkeit der optischen Beschichtungen insbesondere für $\lambda = 266 \text{ nm}$ erreicht werden. Unter den beiden UV Wellenlängen, die im Fokus dieser Untersuchungen stehen, ist vorwiegend die kürzere gegenwärtig von vielen Ausfällen in den entsprechenden Strahlführungssystemen gekennzeichnet.

Inhaltsverzeichnis

1 Grundlagen zur laserinduzierten Zerstörung im ultravioletten Spektralbereich

1.1 Erste Ansätze

Sobald die Arbeiten zum ersten Laser veröffentlicht waren [2], traten auch die ersten Herausforderungen während des Betriebs auf. Der Ausfall der optischen Beschichtungen auf Grund von Zerstörung war seit dem ein immer wiederkehrendes Problem, und eine Vielzahl von Wissenschaftlern widmet sich seither der Untersuchung und Modellierung der involvierten Prozesse. Keine 10 Jahre nach der Veröffentlichung des Berichts über den ersten Laserbetrieb von Maiman gründete Arthur Guenther zusammen mit Alexander Glass das Boulder Damage Symposium. In den begleitenden Konferenzbänden [1] des seither jährlich stattfindenden Ereignisses sind folglich fast alle relevanten Beiträge zum Thema laserinduzierte Zerstörung gesammelt. Durch die Technologie der Güteschaltung, die schon sehr früh entwickelt wurde [3], haben sich die ersten Arbeiten auf Pulsdauern dieser Technologie konzentriert. Da sich diese Arbeit ebenfalls mit dem Pulsdauerbereich von einigen Nanosekunden beschäftigt, folgt ein Überblick über die Entwicklung der entsprechenden Modelle bis heute.

Zunächst hat man sich in den Untersuchungen den Ionisationsprozessen gewidmet, die unter Annahme eines fehlerfreien Materials auftreten können. Als konkurrierende Vorgänge sind hier vor allem die Avalanche Ionisation (AVI) und die Multiphotonen Ionisation (MPI) genannt worden. Insbesondere Bloembergen [4] beschreibt Ansätze, diese Prozesse in Relation mit den optischen Durchbrüchen in dielektrischen Schichten zu bringen. Er erwähnt bereits den störenden Einfluss der Verunreinigungen, geht aber in seinen Überlegungen von den intrinsischen Eigenschaften des Materials aus. Bereits etwas vor ihm, haben sich u.a. Hopper und Uhlmann [5], Milam et al.[6] und Walker et al.[7] zu den Einschlüssen und

Defekten geäußert und entsprechende Arbeiten veröffentlicht.

Nachdem MPI schon 1930 von M. Göppert-Mayer [8] vorgeschlagen wurde, konnte dieser Effekt durch die Intensitäten, die der Laser bot, nun auch experimentell beobachtet werden. Bereits 1978 hat Smith Absorptionskoeffizienten für die Zwei-Photonen-Absorption (2PA) und die Drei-Photonen-Absorption (3PA) experimentell ermittelt [9]. Seine Arbeiten wurden bei den Wellenlängen 355 nm und 266 nm durchgeführt und sollen darauf hinweisen, dass diese Prozesse maßgeblich an der Laser-induzierten Zerstörung mitwirken. Zusätzlich wird ein abrupter Anstieg der Zerstörschwelle motiviert, der auftritt wenn die Ordnung von der 2PA zu 3PA überschritten wird. Im Bereich der ultrakurzen Pulse konnte dies von Jupé et al. inzwischen nachgewiesen werden [10]. Die Motivation, Zerstörprozesse im UV mit MPI in Verbindung zu bringen liegt darin, dass trotz der moderaten Intensitäten (im Vergleich zum Femtosekunden Bereich) die Photonenenergien bereits relativ hoch sind. Bei $E_{\text{Photon}} = 3.49 \text{ eV}$ (bei 355 nm) bzw. $E_{\text{Photon}} = 4.66 \text{ eV}$ (bei 266 nm) befindet man sich für synthetisches Quarzglas im Bereich der 3PA bzw. 2PA, so dass dieser Effekt im Quarz aber auch in den gängigen optischen Materialien, deren Bandlücke in der selben Größenordnung liegen, wahrscheinlicher wird.

Die erste umfangreiche Übersichtsstudie zum Thema UV-Zerstörmechanismen im Bereich weniger Nanosekunden wurde 1981 von Walker et al. [11, 12] veröffentlicht. Es wurden neben 6 weiteren Materialien auch die 3 Oxide untersucht, die auch Gegenstand der Untersuchungen dieser Arbeit sind: SiO_2 , Al_2O_3 und HfO_2 . Neben der Wellenlängenskalierung wurde auch die Zerstörschwelle als Funktion der Pulsdauer und der Schichtdicke untersucht. Die Morphologie der zerstörten Testpositionen wurde dabei stets in die Analyse mit einbezogen. Basierend auf den experimentellen Ergebnissen wurden 15 Beobachtungen genannt, die dann mit den Modellen abgeglichen wurden. Hier sollen 4 gelistet werden:

1. **Die Zerstörschwelle nimmt generell mit kleinerer Wellenlänge ab.** → einschluß-induzierte Zerstörung (Mie Absorption nimmt zu. Die Anzahl der wechselwirkenden Partikel nimmt mit kleinerer Wellenlänge zu, da naturgemäß die Anzahl der Partikel mit kleinerem Durchmesser steigt.)
2. **Die Zerstörschwelle nimmt bei dickeren Schichten schneller zu kürzeren Wellenlängen hin ab, als bei dünneren Schichten.** → einschluß-induzierte Zerstörung (In dünneren Schichten sind keine der größeren, leichter zu zerstörenden Defekte vorhanden)

3. **Die Größe der zerstörten Testpositionen im Vergleich zum Strahldurchmesser nimmt mit kürzerer Wellenlänge ab. Die Anzahl der Einzelzerstörungen pro Position nimmt zu.** → einschlussinduzierte Zerstörung (kleinere Defekte wechselwirken mit kürzeren Wellenlängen auf Grund der erhöhten Absorption stärker. Zusätzlich nimmt die Anzahl der Einschlüsse naturgemäß mit abnehmender Größe zu (siehe 1.))
4. **Die Morphologie der meisten Testpositionen für 266 nm ist eine zusammenhängende Fläche, während die 3 anderen Wellenlängen vereinzelte Krater verursachen.** → einschlussinduzierte Zerstörung (kleinere Defekte wechselwirken mit kürzeren Wellenlängen. Naturgemäß nimmt die Anzahl der Einschlüsse mit abnehmender Größe zu)

Diese Beobachtungen sind alle mit einem Modell der einschlussinduzierten Zerstörung zu erklären, solange die Mie-Absorption im Modell enthalten ist. Tatsächlich waren in dieser Studie 14 der 15 Beobachtungen mit einem solchen Modell zu erklären, wenngleich ein Modell zur MPA auch einige der Punkte beinhaltete. Basierend auf diesen Ergebnissen und Überlegungen sollen nun die möglichen Zerstörmechanismen aus der heutigen Sicht dargestellt werden. Nach Walker et al. kann die vorher erwähnte AVI als dominierender Prozess ausgeschlossen werden. Mit diesem Ansatz kann weder erklärt werden, dass die Zerstörmorphologie sich mit der Wellenlängen ändert noch dass die Dichte der Einzelzerstörungen zunimmt. Beides sind Ergebnisse, die eindeutig aus Walkers Datensatz hervorgehen. Darüber hinaus fordert die Datenbasis des LZH der letzten Jahre ebenfalls, dass ein gültiges Model diese Beobachtungen abbilden muss.

Folglich sollen in den anschließenden Abschnitten drei Zerstörprozesse erörtert werden, die potentiell zum Zerstörverhalten beitragen:

- Einschlussinduzierte Zerstörung
- Zerstörung aufgrund von Multiphotonenabsorption
- Einschlussinduzierte Zerstörung aufgrund von strahlungsinduzierten Defekten

1.2 Einschlussinduzierte Zerstörung

1.2.1 Modelle

In jedem Teil einer Optik können Einschlüsse und Defekte auftreten. Sowohl in amorphem und kristallinem Bulk Material, in Oberflächen als auch in den optischen Schichten und deren Übergängen kann eine Vielzahl von Partikeln und Fehlstellen eingebaut sein. Im Fall eines optischen Durchbruchs während einer Laserbestrahlung ist die Absorption an diesen Defekten deutlich höher als in der umgebenden Matrix. Der Defekt heizt sich sehr schnell auf, vaporisiert und bildet ein Plasma [13]. Unter diesem Einfluss bilden sich große Materialspannungen im umliegenden Material aus und es kommt zur Zerstörung. Die hierzu entwickelten Modelle setzen Folgendes voraus [14, 15, 16]:

- der Einschluss hat eine sphärische Geometrie
- die Einschlüsse liegen in einer unbekanntem Größenverteilung vor, die sich homogen über eine Fläche oder ein Volumen erstreckt
- alle beteiligten Parameter hängen nicht von der Temperatur ab
- der Energieeintrag wird als gleichmäßig innerhalb des Einschlusses betrachtet

Die einzelnen Ansätze berücksichtigen jeweils die Möglichkeit, unterschiedliche Strahlprofile zur Messung zu verwenden.

Auf Grund des verwendeten Lasers werden die folgenden Ausführungen jeweils unter Annahme eines Gauß'schen Strahlprofils diskutiert. Die entsprechende Energieverteilung $F(r)$ kann als

$$F(r) = F_0 \cdot \exp[-2(r/\omega)^2] \quad (1.1)$$

ausgedrückt werden [15] - r ist hier der Radius des Strahlprofils und ω der Radius, bei dem die Energie auf $1/e^2$ abgesunken ist. Im einfachsten Fall wird angenommen, dass alle Defekte die selbe Zerstörschwelle T haben. Die Wahrscheinlichkeit $P(F)$, an einem solchen Defekt mit der Energiedichte F einen Durchbruch zu erzeugen, ergibt sich aus der Defektdichte d in der Prüffläche und der Teststrahlfläche S_T .

$$\begin{cases} F < T : & P(F) = 0 \\ F \geq T : & P(F) = 1 - \exp[-d \cdot S_T(F)] \end{cases} \quad (1.2)$$

Hier ist S_T der Teil des Strahlflecks, in dem die Energiedichte höher ist als der Schwellwert T . Mit dem Ausdruck $S_T = 0.5S \cdot \ln\left(\frac{F}{T}\right)$ kann Gl.1.2 als

$$P(F) = 1 - \left(\frac{F}{T}\right)^{\left(\frac{-d \cdot S}{2}\right)} \quad (1.3)$$

geschrieben werden. Während der Messung wird der Strahldurchmesser eingestellt und der Schwellwert ist die zu bestimmende Größe für die Probe. Folglich ist die Defektdichte d der Fitparameter für diese Funktion. Oder anders ausgedrückt: Bei gegebener Defektdichte in der Probe ändert sich der Verlauf der analytisch erzeugten Funktion $P(F)$ mit dem Strahldurchmesser. In Abb.1.1 ist dies durch die Variation des Teststrahldurchmessers verdeutlicht. Die in der Literatur zugänglichen Modelle zur defektinduzierten Zerstörung un-

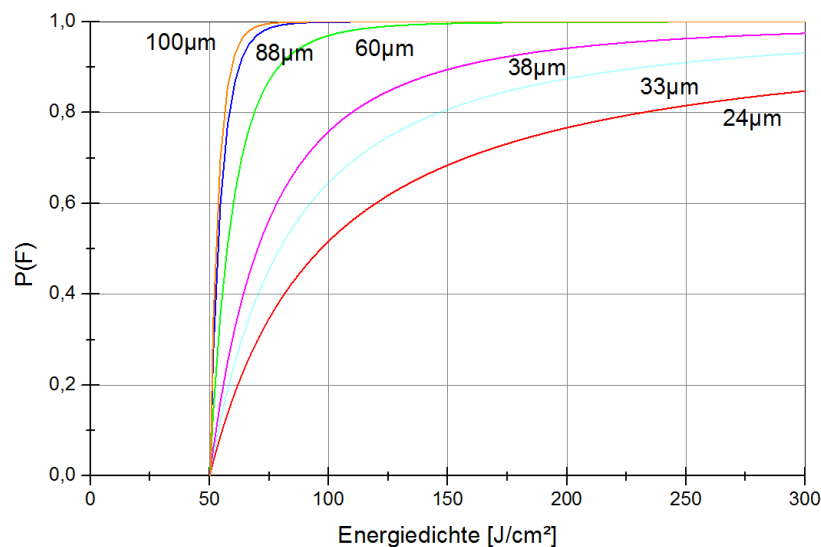


Abbildung 1.1: Einfluss des Strahldurchmessers auf den Verlauf der Zerstörwahrscheinlichkeit P . $d = 7 \cdot 10^3/mm^2$ und $T = 50J/cm^2$

terscheiden sich durch die Beschreibung des Defektensembles $g(T)$, das über die folgende Beziehung mit der Defektdichte verknüpft ist.

$$d(F) = \int_0^F g(T) dT \quad (1.4)$$

Den einfachsten Fall stellt ein entartetes Defektensemble dar. Es wird angenommen, dass alle Defekte bei Bestrahlung mit einer bestimmten Energiedichte F zur Zerstörung des Ma-

1.2. EINSCHLUSSINDUZIERTER ZERSTÖRUNG

terials führen (z.B.[17]). Weitere Ansätze verwenden eine Gauß'sche Verteilung [18] oder ein Potenzgesetz [19, 20], um das Ensemble zu beschreiben. Für die Auswertungen, die in den folgenden Kapiteln erörtert werden, sind ausschließlich Ensemblefunktionen verwendet worden, die einem Powerlaw (engl. für Potenzfunktion) folgen. Deshalb werden hier nur zwei dieser Beschreibungen diskutiert.

Aus der Erfahrung mit Datensätzen von Zerstörschwellenmessungen ergeben sich die Anforderungen an die Fitfunktion für eine Zerstörwahrscheinlichkeit. So kam es zur Verwendung einer Funktion, die aus Analysen der Zerstördichte als Funktion der Fluenz bekannt ist. In Anwendungen, die eine sehr große Apertur verwenden (z.B. NIF am LLNL oder LMJ von CEA)¹, wird die Lebensdauer einer Optik nicht durch eine einzige Zerstörung begrenzt. Besonders die Kristalloptiken für die Frequenzkonversionsstufen stellen einen kostspieligen Teil des Strahlenganges dar und werden verständlicherweise länger als bis zur ersten Zerstörung verwendet. In diesen Fällen ist es notwendig, nicht die Zerstörschwelle als Funktion der Pulsanzahl oder die Zerstörwahrscheinlichkeit in Abhängigkeit von der Fluenz zu bestimmen, sondern die Zerstördichte mit der zugehörigen Fluenz zu kennen. Aus diesen Arbeiten wurde die folgende Beschreibung der Defektverteilung bzw. des Ensembles entnommen [20]:

$$g(T) = \alpha \cdot \beta \cdot T^{\beta-1} \quad (1.5)$$

Integriert man diese Funktion über alle möglichen Schwellwerte T , ergibt sich wiederum die entsprechende Defektdichte $d(F)$:

$$d(F) = \int_0^F \alpha \cdot \beta \cdot T^{\beta-1} dT = \alpha \cdot F^{\beta}. \quad (1.6)$$

α und β stellen hier jeweils Fitparameter dar, deren Kombination zur Defektdichte bei einer bestimmten Fluenz führt ($[d(F)] = 1/cm^2$). Um dem gauß'schen Strahlprofil Rechnung zu tragen, muss diese Defektdichte $d(F)$ mit dem Parameter β gewichtet werden. Die so erhaltene absolute Defektdichte $D(F)$ wird dann in den Auswertungen der experimentellen Ergebnisse in Gl.1.3 übernommen und das Verhalten der Zerstörwahrscheinlichkeit angefitet.

$$D(F) = \beta \cdot d(F) = \beta \cdot \alpha F^{\beta} \quad (1.7)$$

¹Die National Ignition Facility (NIF) ist am Lawrence Livermore National Laboratory (LLNL) in Kalifornien angesiedelt. Le Laser Mégajoule (LMJ) wird vom Commissariat à l'Énergie Atomique (CEA) in Bordeaux, Frankreich errichtet. Bei beiden Einrichtungen handelt es sich um Experimente zur laserbasierten Fusionsforschung

Ein weiterer Ansatz ist der von Porteus und Seitel [19]. In ihrem Model wird ein Faktor p in die Ensemblefunktion eingeführt, mit dem man die Form der Verteilungsfunktion $g(T)$ anpassen kann. Mit einem sehr ähnlichen Ansatz kommt man hier ebenfalls auf die Wahrscheinlichkeit $P(F,p)$ (die Notation wurde hier an die oben verwendeten Bezeichnungen angepasst):

$$P(F, T, N_\omega, p) = \begin{cases} 0 & \text{für } F < T \\ 1 - \exp \left[-N_\omega \int_1^{F/T} du \frac{(u-1)^{p+1}}{u} \right] & \text{für } F > T \end{cases} \quad (1.8)$$

mit

$$N_\omega \equiv \frac{\pi \omega^2 N(F_n)}{\left(\frac{F_n}{T} - 1\right)^{p+1}}. \quad (1.9)$$

Hier ist F_n eine Normierungsfluenz mit $F_n > T$, $N(F_n)$ die kumulative Defektdichte, die bei F_n zur Zerstörung führt, und ω der Strahlradius. Das Integral ist nicht analytisch zu lösen und wird jeweils für einzelne Werte von p errechnet. Im Sonderfall $p=-1$ beschreibt dieses Modell den entarteten Fall. In Abb.1.2 sind zusammenfassend Darstellungen unterschiedlichster Defektverteilungen gezeigt. 3 Verteilungen nach Porteus und Seitel [19] mit $p=-1$, $p=-0.5$ und $p=0$ sind abgebildet, zusammen mit einer Gaußverteilung [18] und dem Powerlaw nach Lamaignere [20]. Für die Übersicht sind leicht unterschiedliche Schwellwerte

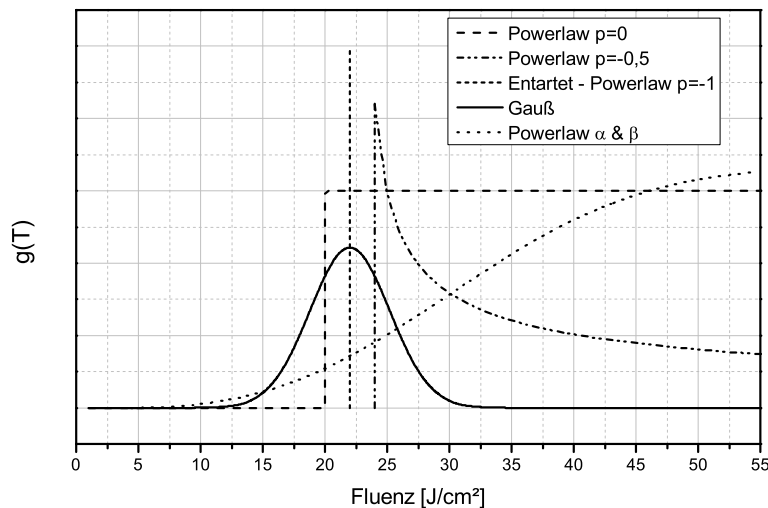


Abbildung 1.2: 5 unterschiedlich geartete Defektensemble, wie sie in den beiden Powerlaw Modellen und dem Gauß-Modell angenommen werden.

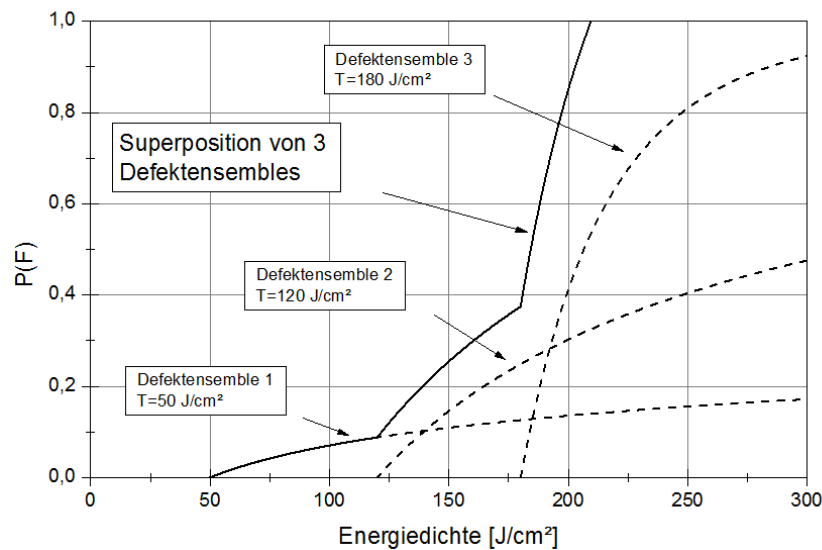


Abbildung 1.3: Zerstörwahrscheinlichkeit $P(F)$ als Superposition von drei unterschiedlichen Defektensembles mit unterschiedlicher Dichte und Schwellwert.

gewählt worden, dies dient lediglich einer Aufteilung auf der Fluenz-Achse.

Generell ist es möglich, dass mehrere Defektensembles gleichzeitig vorliegen. Diese sind nur dann zu unterscheiden, wenn sie unterschiedliche Schwellwerte T aufweisen. Ist dieser Fall gegeben, entwickelt sich aus der Funktion $P(F)$ (für $F \geq T$) eine unstetige Superposition einzelner Wahrscheinlichkeitsverteilungen, wie in Abb.1.3 graphisch gezeigt ist. Dieser Ansatz ist vollständig unabhängig von der Beschreibung der Defektensembles und kann auf jede Art angewendet werden.

1.2.2 Mie-Absorption

Grundsätzlich ist die Art der zur Zerstörung führenden Partikel und Einschlüsse nicht bekannt. Jeder Prozessschritt trägt bei der Herstellung einer optischen Beschichtung zur Erweiterung des spezifischen Defektensembles der betreffenden Optik bei. Sei es die Reinigung der Oberfläche, das Polierverfahren mit den entsprechenden Polierlösungen oder das Aufbringen der Beschichtung selbst. In jedem Abschnitt kann Verunreinigung eingebracht werden, eine Veränderung der Phase des Materials auftreten, Politurlösung eingebunden oder bestimmte Cluster nicht vollständig oxidiert werden - um nur einige der Möglichkeiten zu nennen. Es kann sich also um metallische Defekte oder bestimmte Suboxide aus den beteiligten Beschichtungsmaterialien handeln.

Streuung und Absorption an diesen Partikeln werden durch der Mie-Theorie beschrieben [21]. Die Untersuchungen dieser Arbeit zu den Zerstörmechanismen in dielektrischen Schichtsystemen finden hauptsächlich im ultravioletten Spektralbereich statt. Bei typischen Schichtdicken im Bereich von $\lambda/4$ handelt es sich also um Strukturen, die Ausdehnungen von deutlich unterhalb von 100 nm haben, zumindest in einer Dimension. Die aktuellen Beschichtungsprozesse erzeugen sehr homogene Schichten, so dass von Clustergrößen von deutlich unterhalb der Gesamtschichtdicke auszugehen ist. Defekte, die in Hochleistungsoptiken eingebaut wurden, sind nicht mit den herkömmlichen bildgebenden Verfahren vor der Zerstörung zu identifizieren, was ebenfalls eine Abschätzung zur oberen Grenze der geometrischen Abmessungen liefert. Prinzipiell ist zu erwarten, dass die Absorption an solchen Partikeln von der Partikelgröße abhängt [14]. Jedoch ist in Arbeiten zu Nanopartikeleigenschaften ebenfalls gezeigt worden, dass in diesem Regime der Einfluss der Partikelgröße eher gering ist [22].

In jedem Fall muss der Einfluss der Charakteristika einzelner Elemente berücksichtigt werden. Creighton et al. [22] haben über 50 metallische Elemente mit Partikelgrößen um die 10 nm bezüglich ihrer spektralen Absorption untersucht. Bei einigen relevanten Materialien wie Hafnium, Aluminium oder auch Zirkon oder Tantal werden signifikante Zunahmen des Absorptionsquerschnitts im UV, aber insbesondere von 355 nm hin zu 266 nm berichtet.

Feit and Rubenchik haben einige Arbeiten zur partikelbasierten Zerstörung veröffentlicht [14], die sich speziell mit Einschlüssen in KDP beschäftigen. In dem hier behandelten Fall sind die relevanten Partikelgrößen auf Grund der Schichtdicken deutlich kleiner als die maximalen Abmessungen von Clustern in KDP, aber die grundlegenden Überlegungen erörtern die maßgeblichen Parameter. Es wird davon ausgegangen, dass bei einer Partikeltemperatur von 2500 K die Zerstörung auftritt, weil die Bandstruktur von synthetischem Quarzglas in diesem Bereich kollabiert. Als obere Grenze ist dies deshalb ebenfalls für die folgenden Untersuchungen eine sinnvolle Abschätzung.

Um die Energiedichte eines Laserpulses zu ermitteln, die benötigt wird, um die kritische Temperatur zu erreichen, muss eine geeignete Wärmeleitungsgleichung gelöst werden.

Mit der Annahme, dass die Wärmeleitung des Partikels im Vergleich zur Umgebung hoch ist, ergibt sich für die Änderung der Partikeltemperatur in Abhängigkeit von der thermischen Diffusivität D_0 :

$$\frac{\partial T}{\partial t} = D_0 \Delta_r T \quad (1.10)$$

1.2. EINSCHLUSSINDUZIERTER ZERSTÖRUNG

Mit der Randbedingung $r=a$ beschreiben Feit und Rubenchik die absorbierte Intensität, die den Partikel heizt, wie folgt:

$$\alpha I(t) = -4\kappa \frac{\partial T}{\partial r} + \frac{4}{3}\rho C a \frac{\partial T}{\partial t} \quad (1.11)$$

In dieser Differentialgleichung steht α für den Absorptionsgrad, $I(t)$ für die eingestrahelte Intensität, κ für die thermische Leitfähigkeit der umgebenden Matrix und ρ und C für die Dichte und Wärmekapazität des Partikels. Mit einem zeitlich rechteckigen Laserpuls löst sich dies zu

$$T = T_0 \left(1 - \exp\left[-\frac{4Dr}{a^2}\right] \right) \quad \text{mit} \quad T_0 = \frac{\alpha F a}{4\kappa\tau} \quad \text{und} \quad D = \frac{3\kappa}{4\rho C} \quad (1.12)$$

Mit der effektiven thermischen Diffusivität, der Energiedichte F und der Pulsdauer τ berechnen Feit und Rubenchik einen Partikeldurchmesser, der die maximale Erwärmung bei Bestrahlung mit einem zeitlichen Rechteckpuls bewirkt. Dieser Wert ergibt sich, weil zwei Prozesse in Konkurrenz treten. Sind die Partikel zu klein ist das Aspektverhältnis von Oberfläche und Volumen so groß, dass eine sehr gute Wärmeableitung an die Umgebung gegeben ist. Ist der Partikel zu groß, ist die Masse zu hoch, als dass die kritische Temperatur erreicht werden kann. Mit diesem Partikeldurchmesser höchster Absorption $2a=3.6\sqrt{D\tau}$ reduziert sich die kritische Temperatur zu

$$T = \frac{0.13\alpha F\sqrt{D}}{\kappa\sqrt{\tau}} \quad \rightarrow \quad F_S = \frac{7.6T_C\kappa\sqrt{\tau}}{\alpha\sqrt{D}} \quad (1.13)$$

Der Schwellwert F_S wird gemäß Gl.1.13 und der Bedingung $T_C=2500\text{K}$ berechnet und hängt folglich von der Diffusivität, der Pulsdauer, der Wärmeleitung des Partikels und der Absorptivität ab. Diese kann nun zum einen mit der Partikelgröße variieren, aber auch auf Grund des Materials, da unterschiedliche Elemente auch unterschiedliche Absorptionsquerschnitte aufweisen [22]. Diese Beziehung quantitativ auszuwerten, stellt ein Problem dar, weil dazu das Defektensemble mit seinen thermischen Eigenschaften detailliert bekannt sein muss. Sowohl die Größenverteilung als auch die Materialzusammensetzung müssen bekannt sein, um die Absorptivität im Bereich des Laserpulses korrekt zu berechnen. Aus den aktuellen Messverfahren geht jedoch lediglich eine Defektdichte hervor, so dass für eine quantitative Beschreibung noch zahlreiche weitere Untersuchungen notwendig sind.

1.3 Zerstörung auf Grund von Multiphotonenabsorption

Lange bevor der Laser experimentell realisiert wurde [23], hat Maria Göppert-Mayer bereits die Simultanabsorption in ihrer Dissertation behandelt [8]. Die simultane Absorption von mehreren Photonen wird beschrieben als Möglichkeit, eine Bandlücke zu überwinden, wofür mehr Energie benötigt wird als sie von nur einem Photon zur Verfügung gestellt wird. Ihre Berechnungen zeigten aber auch deutlich, dass hohe Lichtintensitäten notwendig sind, um diese Effekte zu beobachten. Seitdem der Laser die erforderlichen Leistungsdichten monochromatisch zur Verfügung stellt, sind die Multiphotonenübergänge häufig beobachtet und studiert worden.

Die Abschwächung von elektromagnetischer Strahlung in einem Medium wird durch das Absorptionsgesetz nach Lambert-Beer beschrieben [24]:

$$I(z) = I_0 \cdot \exp(-\alpha z) \quad (1.14)$$

Der Absorptionskoeffizient² α beschreibt die Abschwächung der einfallenden Intensität I_0 entlang der Ausbreitungsrichtung z . Die Wahrscheinlichkeit, Absorptionsvorgänge höherer Ordnung zu beobachten, nimmt stark mit der Anzahl der dazu notwendigen Photonen ab (Tab.1.1). Die höheren Ordnungen der MPA können in der entsprechenden Differentialgleichung berücksichtigt werden [25].

$$\frac{\partial I(z)}{\partial z} = -\alpha I - \beta I^2 - \gamma I^3 - \delta I^4 - \dots \quad (1.15)$$

Auf Grund der unterschiedlichen Potenzen der Intensitäten in den einzelnen Termen, weisen die jeweiligen Absorptionskoeffizienten nicht dieselbe Dimension auf. Deshalb scheint es nicht vernünftig, die Zahlenwerte der unterschiedlichen Koeffizienten miteinander zu vergleichen. In diesem Zusammenhang stellt die Rate R_x von MPA Prozessen eine sinnvolle Größe dar. Diese setzt sich aus dem Absorptionsquerschnitt σ_x und dem Photonenfluss zusammen [25]:

$$R_x = \sigma_x \cdot \frac{I^x}{\hbar\omega} \quad (1.16)$$

Hierbei gibt der Querschnitt die charakteristische Größe für den MPA Prozess an, der durch die absorbierenden Teilchen N_s im Medium definiert wird. Der zweite Term gibt den Photonenfluss als Quotienten zwischen Intensität und Photonenenergie an, und der Index x steht für die jeweilige Ordnung der Mehrphotonenabsorption. Den Zusammenhang zwischen Ab-

²nicht zu verwechseln mit dem Absorptionsgrad von Feit und Rubenchikin Kap.1.2.2

1.3. ZERSTÖRUNG AUF GRUND VON MULTIPHOTONENABSORPTION

sorptionskoeffizient und -Querschnitt stellt die folgende Gleichung her:

$$\alpha_x = \frac{N_s}{E^{(x-1)}} \sigma_x \quad (1.17)$$

Hier wird ein weiteres Mal deutlich, dass die Prozesse höherer Ordnung bei höherer Intensität bzw. höheren Feldstärken E auftreten. Um nun die Raten der ersten 6 Ordnungen der Absorption relativ zueinander zu vergleichen, sind diese tabellarisch für eine repräsentative Intensität im Bereich von 10^9W/cm^2 in Tab.1.1 gelistet. Diese Intensität ist der Bereich in

R_1	R_2	R_3	R_4	R_5	R_6
$1.86 \cdot 10^{26}$	$6.5 \cdot 10^{20}$	$1.45 \cdot 10^{16}$	$7.44 \cdot 10^{11}$	$2.31 \cdot 10^7$	$8.7 \cdot 10^3$

Tabelle 1.1: Berechnete Ionisationsrate R_x in $1/\text{cm}^3\text{s}$ für die Multi-Photonen-Ionisation in Synthetischem Quarzglas; 1.-6. Ordnung. Diese Werte beziehen sich auf eine eingestrahlte Intensität von $1 \cdot 10^9 \text{W/cm}^2$

dem sich Oberflächen- oder Schichtzerstörung im ns-Bereich einstellt. Diese Werte stammen aus einer numerischen Berechnung für synthetisches Quarzglas mit der angenommenen Bandlücke von 8.3 eV [26]. Basierend auf der Lösung der Ratengleichungen für Photoionisation nach Keldysh [27] und separat gerechnet für repräsentative Wellenlängen aus jeder Ordnung ergibt sich eine Rate als Funktion der Intensität, die in Abb.1.4 dargestellt wird. Unter Verwendung der Ionisationsrate ist nun die Vergleichbarkeit der MPA-Ordnungen gewährleistet. Zwischen jedem einzelnen Schritt (z.B. von 2PA zu 3PA) liegen einige Größenordnungen, in denen sich die entsprechende Rate verringert. Gleichzeitig ändert sich auch die Energie der eingestrahlten Photonen, da MPA höherer Ordnung im identischen Material natürlich durch Absorption von Photonen größerer Wellenlänge auftritt.

Es gibt nun zwei Möglichkeiten, Mehrphotonenabsorption experimentell zu beobachten. Zum einen kann die Intensität so hoch gewählt werden, dass auch Prozesse mit geringem Wechselwirkungsquerschnitt stattfinden können. Dies ist z.B. möglich im Bereich der ultrakurzen Laserpulse. Bei geringerer Intensität, kann als zweite Möglichkeit bei kürzeren Wellenlängen ebenfalls simultane Absorption stattfinden. Hier sind nur Prozesse niedriger Ordnung notwendig. Selbst in optischen Materialien mit großer Bandlücke ist MPA im UV möglich, weil hier auf Grund der hohen Photonenergie lediglich Vorgänge 2. oder 3. Ordnung erforderlich sind. Beide Fälle treten in der Wechselwirkung von Laserstrahlung mit dielektrischen Schichten auf.

Im Rahmen dieser Arbeit wird die Wechselwirkung von gepulster UV Laserstrahlung mit optischen Beschichtungen untersucht. Daher soll hier gezeigt werden, dass in Anwendun-

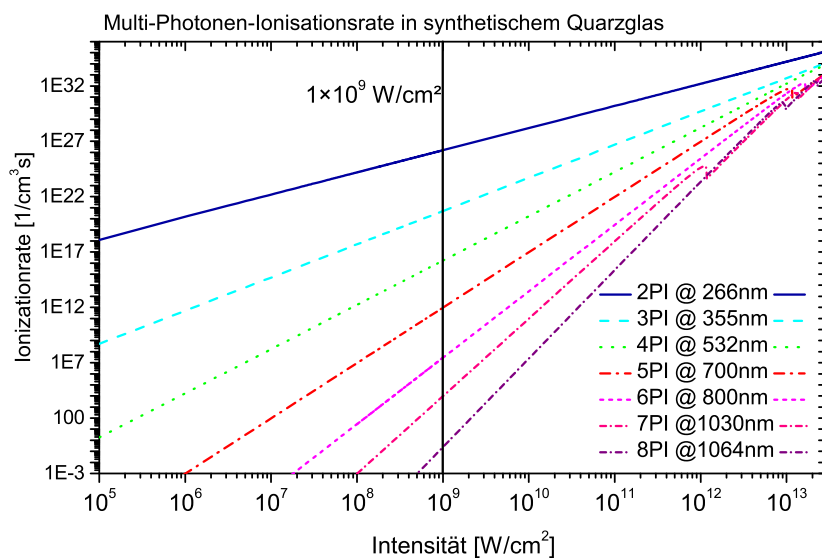


Abbildung 1.4: Berechnete MPI-Rate in synthetischem Quarzglas - angenommene Bandlücke: 8.3 eV [26].

gen von Excimer Lasern oder Frequenz konvertierten Festkörperlaseren, mit Wellenlängen von z.B. 193 nm bis 266 nm oder 355 nm, nichtlineare Effekte zu beobachten sind. Hier liegt in Quarzglas eine Abschwächung vor, die dem Term zur 2.Ordnung zugeschrieben wird [28, 29, 30, 31].

Wenn Elektronen anhand dieser Prozesse vom Valenzband in das Leitungsband angeregt werden, nimmt die Dichte der freien Elektronen im Leitungsband zu. Diese können durch weitere Bestrahlung geheizt werden und weitere Atome und Moleküle der Matrix in Kaskadenprozessen ionisieren. Wird eine kritische Elektronendichte von ungefähr $10^{21} \frac{\text{Elektronen}}{\text{cm}^3}$ überschritten, tritt ein optischer Durchbruch ein[10, 26]. Folglich hängen Zerstörvorgänge, die entscheidend durch MPA initiiert werden, nur von der eingestrahlt Intensität ab. Wie bereits erwähnt, sind diese Mechanismen für den Bereich ultrakurzer Pulse gezeigt worden[10, 32].

Ebenfalls bereits in Abs.1.1 erwähnt, sind die Absorptionskoeffizienten zur MPA in den vergangenen Jahren mehrfach und immer genauer insbesondere bei einzelnen UV Laserwellenlängen bestimmt worden [9, 33]. Eine Konsequenz, wenn MPA die Zerstörung bewirkt, ist die abrupte Änderung der Zerstörschwelle als Funktion der Wellenlänge, wenn man einen Ordnungswechsel der MPA überschreitet. Dies hat Smith[9] angedeutet und Jupé et al.[10] für 130 fs experimentell bestätigt. Einen Versuch im Bereich der Nanosekunden haben hierzu

1.3. ZERSTÖRUNG AUF GRUND VON MULTIPHOTONENABSORPTION

Carr et al. an DKDP unternommen [34]. Die Wellenlänge wurde mit einer durchstimmbaren Laserquelle über den weiten Bereich von der 2.Ordnung bis zur 4.Ordnung variiert. Als Resultat der Zerstörschwellenmessungen ergab sich die Kurve in Abb.1.5 (Graphik ist [35] entnommen). Wie postuliert, zeigt die Kurve zwei Sprünge im Verlauf der Zerstörschwellen-

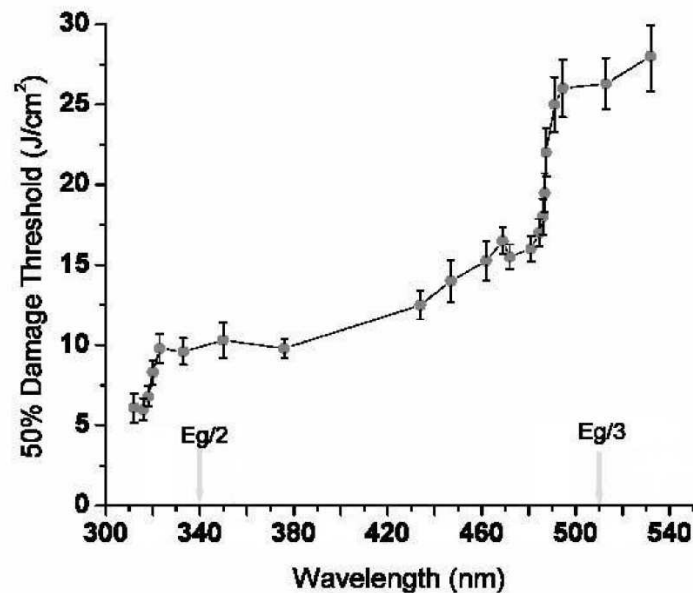


Abbildung 1.5: 50% Zerstörwahrscheinlichkeit eines DKDP Kristalls, gemessen von 312 nm - 530 nm. (entnommen von [35])

le, der auf den Einfluss von MPA hindeutet. Anders als erwartet sind diese Stufen leicht blauverschoben. Die Autoren schlagen ein Model zum Defekt-unterstützten Multiphoton-Stufenverhalten vor. Dabei sollen einzelne Defekte durch Einbauen in die Matrix die Bandlücke des Materials verschieben.

Carr et al. haben einen Kristall untersucht. In dieser Arbeit hingegen werden Untersuchungen an amorphen Schichten diskutiert. Inwieweit diese Methode übertragbar ist, wird anhand der experimentellen Ergebnisse später erörtert werden.

Einen weiteren Hinweis auf MPA als Bestandteil des Zerstörprozesses im UV geben Kuzuu et al. [36]. Sie haben unterschiedlichste Sorten von synthetischem Quarzglas bezüglich der Zerstörschwelle untersucht. Diese Untersuchungen sind bei 4 Wellenlängen durchgeführt worden (1064 nm, 532 nm, 355 nm und 266 nm - Pulsdauer 1.1 ps-0.75 ps), um eine spektrale Skalierung der laserinduzierten Zerstörschwelle (LIDT - Laser induced Damage Threshold) zu finden. Ihrer Veröffentlichung ist die Grafik in Abb.1.6 entnommen. Die

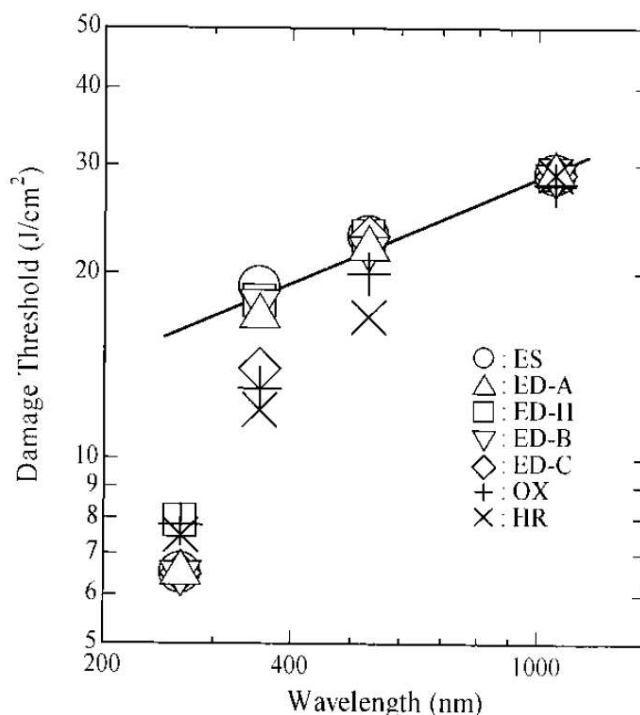


Abbildung 1.6: Wellenlängen-abhängige LIDT bei 1064 nm, 532 nm, 355 nm und 266 nm gemessen (entnommen von [36]).

Zerstörschwelle bei drei längeren Wellenlängen kann gut durch eine Potenzfunktion in Zusammenhang gesetzt werden. Die Messwerte, die bei 266 nm erzeugt wurden, folgen dieser Gesetzmäßigkeit laut den Autoren jedoch nicht. Dies wird von ihnen als Wechsel im Mechanismus gedeutet und MPA als Prozess vorgeschlagen, der im tieferen UV für die noch geringeren Zerstörschwellen verantwortlich ist. Genau betrachtet, wird deutlich, dass sich einige der Quarzgläser bzgl. der Wellenlänge doch stetig verhalten. So zeigt z.B. die mit × gekennzeichnete Sorte ein Abfallen der Zerstörschwelle unterhalb des linearen Fits, der in der logarithmischen Darstellung das Potenzgesetz repräsentiert. Inwiefern dabei material-spezifische Mechanismen zur laserinduzierte Zerstörung beitragen, soll in dieser Arbeit im Bereich der Beschichtung untersucht werden.

1.4 Einschlussinduzierte Zerstörung auf Grund von strahlungsinduzierten Defekten

Neben der Möglichkeit eines gegebenen Defektensembles und der simultanen Absorption von zwei bis drei Photonen zur Erhöhung der Elektronendichte im Leitungsband, gibt es ebenfalls die Möglichkeit, dass sich ein Defektensemble während der Beaufschlagung mit UV-Strahlung ändert. Erhöht sich die Defektdichte während des Tests, wird sich auch die Zerstörwahrscheinlichkeit ändern und sich möglicherweise auch die Zerstörschwelle senken. Natoli et al. berichten über diesen Effekt in synthetischen Quarzglas [37]. Hier wurde die LIDT Messung im Mehrpulsmodus S-on-1 durchgeführt, der im folgenden Kapitel noch detailliert erörtert wird. Während dieser Untersuchungsmethode wird jede Testposition mit mehreren Pulsen gleicher Energiedichte bestrahlt. Dadurch wird nicht nur die Zerstörschwelle ermittelt, sondern auch das Verhalten über mehrere Pulse hinweg, wie es in der Anwendung von Interesse ist. Wenn man die Zerstörwahrscheinlichkeit P für eine unterschiedliche Anzahl von Pulsen bestimmt, kann ebenfalls eine Defektdichte d für die jeweilige Pulsanzahl extrahiert werden. Nimmt diese mit der Anzahl der Pulse zu, so ist davon auszugehen, dass die

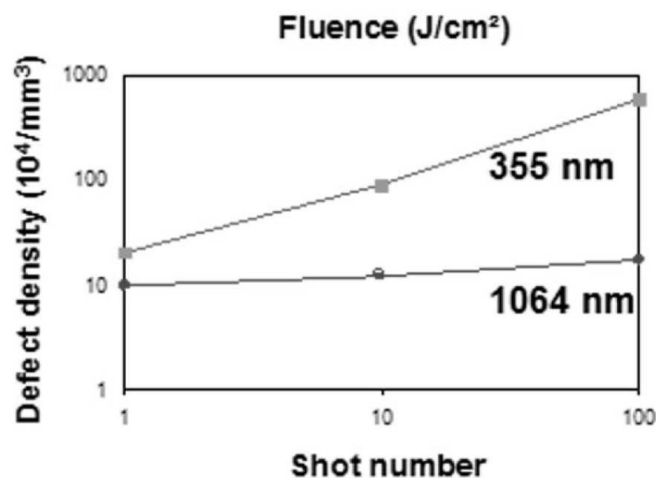


Abbildung 1.7: Entwicklung der Defektdichte mit der Anzahl der beaufschlagten Laserpulse bei 1064 nm und 355 nm in synthetischem Quarzglas (entnommen von [37]).

Testpulse weitere Defekte generiert haben, die zum Zerstörverhalten beitragen. Natoli et al. haben diesen Effekt für zwei Wellenlängen untersucht. Mit Analysen bei 1064 nm und 355 nm sollte der Einfluss von UV-Strahlung auf das Material (in diesem Fall: synthetisches Quarzglas) herausgearbeitet werden. Eines der Ergebnisse, die sie vorstellen ist in Abb.1.7

1.4. EINSCHLUSSINDUZIERTER ZERSTÖRUNG AUF GRUND VON STRAHLUNGSINDUZIERTEN DEFECTEN

als Kopie aus dieser Veröffentlichung gezeigt. Die Photonen höherer Energie haben demnach für eine erhöhte Defektdichte im Probenmaterial gesorgt. Im erwähnten Fall bewirkte dies dann eine verringerte Zerstörschwelle des Bulk Materials. Die Oberfläche schien unberührt.

In diesem Abschnitt sollen für eine solche Annahme die Farbzentren- und Fehlstellenbildung in einigen oxidischen Dielektrika erörtert werden, die für dieses Modell in Frage kommen. Das am häufigsten verwendete niedrig brechende Schichtmaterial SiO_2 , gehört auf Grund seiner Verbreitung zu einer aussagekräftigen Untersuchung dazu. Mit Al_2O_3 liegt ein Material mit einer großen Bandlücke vor, das im UV dennoch als hochbrechendes Material verwendet werden kann. Zusätzlich sind an Schichtsystemen aus $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{SiO}_2$ im UV hohe Zerstörschwellen gemessen worden, was jedoch bisher nur ein empirisches Ergebnis darstellt. Mit HfO_2 ist ein Schichtmaterial gegeben, welches Untersuchungen zu Skalierungsgesetzen sehr gut ermöglicht. Trotz der hohen Transparenz bis unterhalb von $\lambda=266\text{ nm}$ weist es einen hohen Brechwert auf, so dass bis ins NIR qualitativ hochwertige Beschichtungen realisiert werden können. Da die Untersuchungen insbesondere bei der dritten und vierten Harmonischen durchgeführt werden, sind in der Gruppe der oxidischen Dielektrika nur wenige weitere Kandidaten vertreten. Die meisten weisen im tieferen UV bereits signifikante Absorption auf. Aus diesen Gründen widmen sich die Untersuchungen dieser Arbeit den Materialien SiO_2 , Al_2O_3 und HfO_2 .

SiO₂

Die Erfahrungen mit SiO_2 als optisches Material und dessen Wechselwirkung mit Laserstrahlung beruhen auf zahlreichen Untersuchungen sowohl an Bulk Material (synthetisches Quarzglas als Substratmaterial höchster Qualität) als auch an amorphen oder teil-kristallinen Schichten. Im Bereich der oxidischen, optischen Beschichtungen wird SiO_2 als niedrigbrechendes Material in fast allen Schichtdesigns verwendet. Folglich ist die Datenbasis zur Charakterisierung von SiO_2 in allen spektralen Sektoren sehr ergiebig. In Tab.1.2 sind zunächst die meist genannten Defekte und Farbzentren aufgelistet:

Für eine genaue Beschreibung der Erzeugung dieser Fehlstellen, sei auf die Ausführungen der zitierten Quellen verwiesen [29, 38, 39, 40, 41]. Für die Thematik der strahlungsinduzierten Defekte sind die Typen dieser Liste relevant, deren Erzeugung oder Absorptionsband mit den applizierten Laserwellenlängen in Verbindung stehen. Bei einer Photonenenergie $E_{Ph} = 4.66\text{ eV} \rightsquigarrow 266\text{ nm}$ und $E_{Ph} = 3.49\text{ eV} \rightsquigarrow 355\text{ nm}$ kommen dementsprechend die NBOHC, STE und ODC in Frage.

1.4. EINSCHLUSSINDUZIERTER ZERSTÖRUNG AUF GRUND VON STRAHLUNGSINDUZIERTEN DEFECTEN

Typ	Emission	Absorption	Literatur
NBOHC	1.9 eV	2.0 eV & 4.8 eV	[38, 39, 40, 29]
STE	2.3 eV	4.6 eV & 5.7 eV	[38, 39]
ODC	2.7 eV & 4.4 eV	3.15 eV, 5.0 eV, 6.9 eV	[38, 39, 41]
E'		5.85 eV	[38, 40, 29]
O ₂	0.97 eV	0.98 eV	[38]

Tabelle 1.2: Defekte und Farbzentren in SiO₂

Bei einem **Non-Bridging Oxygen Hole Center** liegt die Absorptionsbande von 4.8 eV sehr nahe bei der Wellenlänge der 4. Harmonischen des Nd:YAG Lasers (4ω). Folglich gibt es eine gewisse Wahrscheinlichkeit, die Flanken des entsprechenden schmalen Absorptionsbanden zu treffen. Somit liegt bei einer erhöhten NBOHC-Dichte auch eine erhöhte Dichte an absorbierenden Defekten vor. Diese Defekte können dann als Vorläufer für eine Laser induzierte Zerstörung auftreten.

Die **Self-Trapped-Excitons** werden bei Kucheyev [39] auch als Laser induzierter Defekt bezeichnet. Es wurde nachgewiesen, dass sich die Dichte der STE Zentren mit dem Quadrat der Laserintensität erhöht. Die Vermutung der Zwei-Photonen-Absorption als Mechanismus zur Erzeugung liegt daher nahe. Mit 4.6 eV ist die Absorption nahezu im Maximum bei einer Bestrahlung mit 4ω .

Oxygen Deficiency Centers sind gerade in einer Beschichtung zu erwarten. Während des Beschichtungsprozesses kann eine lokale Unterstöchiometrie leicht erzeugt werden. Wenn beim reaktiven Aufwachsen der Schicht nicht alle Moleküle und Cluster vollständig oxidieren, treten Sauerstoffdefizite auf (daher der englische Name). Mit Absorptionsbanden bei 3.15 eV und 5.0 eV kann 3ω und 4ω Strahlung zur Aufheizung der Matrix an diesen Defekten führen.

In den zitierten Veröffentlichungen wird diesen 3 Typen von Farbzentren zusätzlich eine Dichte zugeordnet. Diese kann aus Untersuchungen mittels Elektronenspinresonanz (ESR) extrahiert werden. Die Werte schwanken zwischen $10^{14} - 10^{17} 1/cm^3$. Da diese aber um ca. 8-12 Größenordnungen oberhalb der Werte liegen, die später aus den Zerstörwahrscheinlichkeiten ermittelt werden, sind einzeln auftretende Zentren nicht als potentieller zerstörender Defekt zu werten. Zusätzlich ist die Defektgröße, die man aus den Ausführungen in Abs.1.2 erhält, sicher deutlich oberhalb von einzelnen Farbzentren anzusiedeln.

Al₂O₃

Im Vergleich zu SiO₂ wird Al₂O₃ deutlich weniger in der Beschichtungstechnik verwendet. Als niedrig brechendes Material bietet Siliziumdioxid einen geringeren Brechwert und wird deshalb in der Regel vorgezogen (1.53 anstatt von 1.73 bei 300nm). Als hoch brechendes Material hingegen zeigt es erst im UV ausreichend Brechwertkontrast zu SiO₂, um anwendungsrelevante Schichtdesigns umsetzen zu können. Im tiefen UV, unterhalb von ca. 200 nm, ist aus mehreren Gründen (optische Verluste, Lebensdauer und Degradation, etc.) die Verwendung von fluoridischen Materialien etabliert.

Ungeachtet dessen haben Heber et al. einige Daten zur Defektbildung in Aluminiumoxid Schichten veröffentlicht [42]. Andere Untersuchungen basieren üblicherweise auf kristallinem Aluminiumoxid [43, 44]. Beide Quellen sind nicht vollständig auf diese Arbeit anwendbar, geben aber eine Grundlage für mögliche Fehlstellen und Defekte in Al₂O₃. In allen Fällen wird von F-Zentren als Überbegriff gesprochen, die oft einem Photolumineszenzband zugeordnet werden können. In der Regel sind die Untersuchungen an kristallinem oder polykristallinem Al₂O₃ nicht für optische Anwendungen gedacht. In diesen Fällen werden die F-Zentren thermisch und durch Ionen- oder Neutronenbeschuss erzeugt. Deshalb werden hier nur die genannt, die mit moderaten Neutronenenergien erzeugt werden können.

Das F-Zentrum bzw. F⁺-Zentrum ist eine Sauerstoff-Vakanz, die durch 1 bzw. 3 eingeschlossene Elektronen (trapped electrons) im Gitter definiert ist [42]. Tab.1.3 gibt die charakteristischen Emissions- bzw. Absorptionslinien basierend auf Heber und Itou[44] an.

	α -Al ₂ O ₃		Schicht	
	Absorption	PL	Absorption	PL
F-Zentrum				
F	205 nm 6.1 eV	410 nm 3.0 eV	207 nm 6.0 eV	414 nm 3.0 eV
F ⁺	232 nm & 256 nm 5.3 eV & 4.8 eV	330 nm 3.8 eV	197 nm 6.3 eV	276 nm 4.5 eV

Tabelle 1.3: Charakteristische Absorption und Lumineszenz von kristallinem Al₂O₃ und einer amorphen Schicht.

Die meisten der F-Zentren wirken abseits der 3 ω und 4 ω Strahlung absorbierend. Lediglich im kristallinen Fall fällt das F⁺-Zentrum in den zu prüfenden Bereich. Wie sich diese geringe Anzahl an möglichen elektronischen Defekten auf das Zerstörverhalten auswirken, werden die experimentellen Ergebnisse und deren Diskussion zeigen.

1.4. EINSCHLUSSINDUZIERTE ZERSTÖRUNG AUF GRUND VON STRAHLUNGSINDUZIERTEN DEFEKTEN

HfO₂

Im Gegensatz zu SiO₂ und Al₂O₃ zeigt die Literatur zu HfO₂ keine Kandidaten zur zusätzlichen Defektbildung. Für dieses Material wird über eine Anzahl von prozess- und materialbedingten Vakanzen und Zwischengitteratomen berichtet, die bereits ohne Bestrahlung eine Vielzahl von Interbandzuständen erzeugen. Innerhalb der Matrix von Hafniumdioxid Molekülen zeigt sich insbesondere der Sauerstoff als häufige Fehlstelle bzw. als regelmäßiges Zwischenatom. Zur elektronischen Bandstruktur von HfO₂ haben Foster et al. ausführliche Berechnungen [45] angestellt. Vor allem das elektronische Zusammenspiel von Vakanzen und Zwischenatom wurde für die unterschiedlichsten Wertigkeiten untersucht und in den entsprechenden Zwischenniveaus ausgedrückt. Die Darstellung aus der betreffenden Veröffentlichung ist in Abb.1.8 gezeigt. Über die gesamte Bandlücke hinweg bilden sich Zwi-

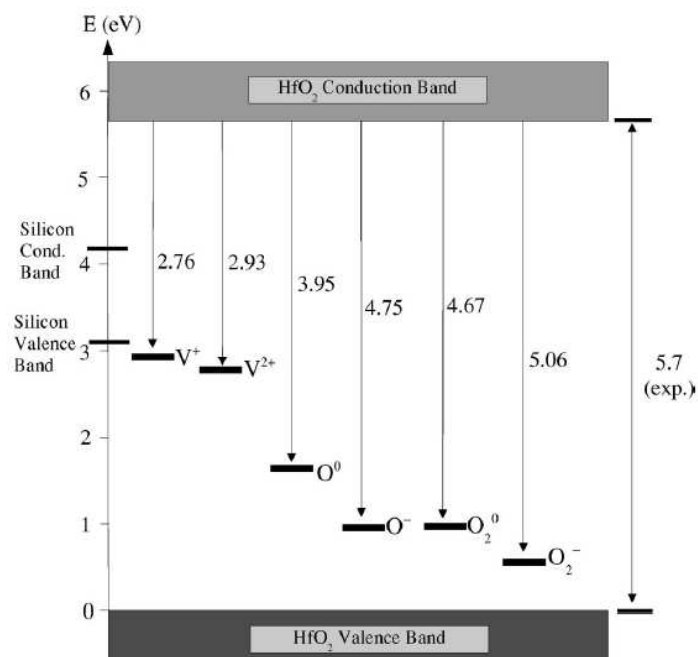


Abbildung 1.8: Berechnete Zwischenzustände für HfO₂ nach Foster et al.. Basierend auf Sauerstoffvakanzen und -Zwischenatomen sind die betreffenden Niveaus zwischen Valenzband und Leitungsband aufgezeigt (entnommen von [45]).

schenniveaus aus den möglichen elektronischen Kombinationen aus. Über diese Vielzahl an Zwischenzuständen mit ihren korrespondierenden Halbwertsbreiten ist ein breites spektrales Band für die Überwindung der Bandlücke gegeben. Allerdings berichtet Robertson [46], dass die Koppelung an das Gitter sehr gut ist. Die Wellenfunktionen der Defekte sind auf Grund

der ionischen Bindung stark auf die metallischen Atome lokalisiert, so dass angeregte Zwischenzustände sehr gut relaxieren können. Trotz der hohen Dichte an unterschiedlichsten Zwischenzuständen wird also eine Überwindung der gesamten Bandlücke dennoch selten vorkommen. Mit einem Experiment sehr nahe an der hier behandelten Fragestellung haben Ciapponi et al. die Lumineszenz von HfO_2 Schichten bei Anregung durch 266 nm untersucht [47]. Die breite Emissionsbande von 1.5 eV–4.5 eV kann in 4 Gaußsche Emissionsbanden zerlegt werden, die ihr Maximum bei 4.0 eV, 3.4 eV, 2.8 eV und 2.4 eV haben. Diese finden sich nicht alle direkt als Übergang zwischen Leitungsband und Zwischenzustand wieder, aber mit Ausnahme des Bandes bei 3.4 eV kann man jeweils einen Übergang aus Fosters Berechnungen gut zuordnen.

Diese hohe Dichte an Zwischenzuständen findet sich zudem in der räumlichen Defektverteilung wieder [48]. Aus einer Zerstörschwellenmessung heraus und der damit einhergehenden Auswertung konnte experimentell ermittelt werden, dass in einem $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Wechselschichtsystem weder Schichtübergang noch SiO_2 Anteil bei der Initiierung einer Zerstörung eine Rolle spielen. Sie findet an lokalisierten Absorptionszentren im HfO_2 statt, welche infolge der eingekoppelten Strahlungsleistung weiter in das gesamte Schichtsystem expandieren. Wie später in den experimentellen Abschnitten dieser Arbeit zu sehen sein wird, bestätigen die Morphologien der zerstörten Prüfstellen dieses Ergebnis. Es ist in der Regel immer eine sehr dichte Packung von Einzelzerstörungen zu sehen, die sich innerhalb der Fläche des Strahlprofils auf der Optik ausbreiten. So zeigt sich ebenfalls experimentell, dass innerhalb von Hafniumdioxid-Schichten Defekte maßgeblich von Kristallisationsclustern oder lokal erhöhten Dichten von elektronischen Defekten bestimmt werden [48].

1.5 Messverfahren

1.5.1 LIDT gemäß ISO 21254-2

Zur experimentellen Bestimmung der laserinduzierten Zerstörschwelle ist bereits 2001 von der International Standardization Organization (ISO) eine Norm veröffentlicht worden (ISO 11254). Seitdem ist diese überarbeitet worden und unter ISO 21254 neu publiziert [49]. In diesem Abschnitt soll kurz erörtert werden, wie die Zerstörschwellentests auf Basis dieser Norm im Rahmen dieser Arbeit durchgeführt wurden.

Als Ergebnis einer solchen Messung soll ein Wert einer Energiedichte bzw. Fluenz stehen, der als Schwellwert fungiert. Die Wahrscheinlichkeit für eine laserinduzierte Zerstörung soll

für eine bestimmte Wellenlänge, Pulsdauer und Repetitionsrate bis zu diesem Wert Null sein und oberhalb ansteigen. Die Messprozedur für Dauerstrichlaser soll hier nicht behandelt werden, ist aber derselben Norm zu entnehmen. Der Schwellwert wird international als LIDT (Laser induced Damage Threshold) bezeichnet. Grundsätzlich muss zwischen zwei Messmodi unterschieden werden. Im Einzelschussverfahren (1-on-1) wird jede Testposition mit einem einzelnen Puls bestrahlt und anschließend bzgl. des Status (zerstört oder nicht-zerstört bzw. überlebt) ausgewertet. Im S-on-1 Modus wird jede Position mit der festen Anzahl S von Pulsen bestrahlt. Auf diese Weise kann ermittelt werden, wie sich das Mehrpulsverhalten einer Optik gestaltet, und evtl. Vorhersagen für den tatsächlichen Betrieb getroffen werden. Wie in den allermeisten Anwendungen erforderlich, wird in dieser Arbeit das Verhalten der Beschichtungen im Mehrpulsbetrieb untersucht. Hier wird dennoch zunächst die Einzelpulsmessung als Bestandteil der S-on-1 Prozedur erläutert.

Datenaufnahme

Während der Messung zur Bestimmung der Zerstörschwelle wird die Testoptik im Einzelschussmodus mit einem Puls pro Prüfstelle bestrahlt. Die Energiedichte wird über alle Testpositionen innerhalb eines Bereiches variiert. Für eine statistisch aussagekräftige Auswertung muss sich dieser Bereich über 3 Teilbereiche erstrecken. Es muss ein Fluenzintervall verwendet werden, das zu einer sicheren Zerstörung der Optik führt, eines, in dem sowohl Zerstörung als auch Fortbestand auftritt, und ein Bereich, in dem keine Zerstörung auftritt. Gemäß Norm soll eine statistische Sicherheit dadurch erreicht werden, dass für jede Fluenz mindestens 10 Positionen bestrahlt werden. Diese Anforderung wurde am LZH leicht angepasst, indem eine kontinuierliche Abdeckung des Fluenzbereiches angestrebt wird. Eine solche Datenaufnahme ist in Abb.1.9 dargestellt. In dieser Darstellung repräsentiert jeder Datenpunkt eine Messposition. Der Status bzw. die Wahrscheinlichkeit 1 steht für eine zerstörte Position und 0 für nicht-zerstört. Im Intervall von 2 J/cm^2 - 6 J/cm^2 tritt keine Zerstörung auf, und die Zerstörwahrscheinlichkeit ist für alle Positionen mit 0 eingetragen. Oberhalb von 6 J/cm^2 bis 11 J/cm^2 tritt beides auf. In diesem Fall kann die Beschichtung zerstört werden, aber auch den Laserpuls unbeschadet überstehen. Jenseits der 11 J/cm^2 wird die Schicht in jedem Fall zerstört.

An diesem Beispiel wird deutlich, weshalb eine kontinuierliche Abdeckung der Fluenzskala gewählt wird. Da die Anzahl der zu bestrahlender Positionen auf einer Optik begrenzt ist, wird die Schrittweite bei der Variation der Fluenz durch den erforderlichen Messbereich limitiert. Für diesen Fall muss der Bereich von 2 J/cm^2 bis 20 J/cm^2 geprüft werden, um die

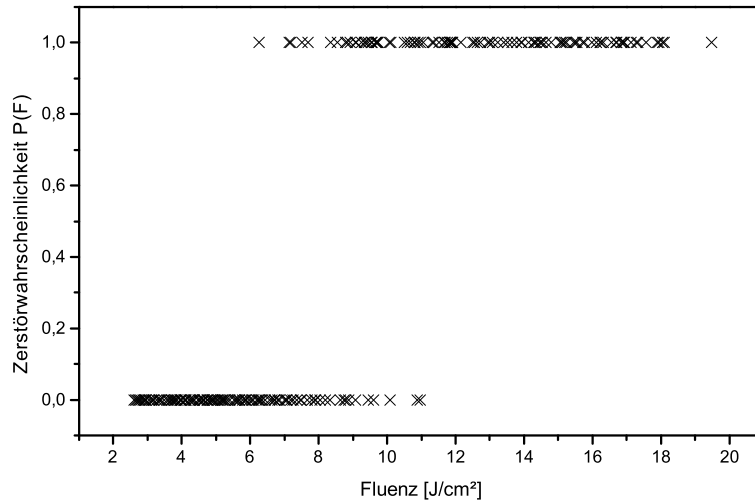


Abbildung 1.9: Rohdaten einer Zerstörungsschwellenmessung. Einzelne Messpunkte sind mit 1 (zerstört) und 0 (nicht zerstört) als Funktion der eingestrahlten Fluenz aufgetragen.

Probe hinreichend genau zu charakterisieren. Bei der üblichen Anzahl von annähernd 160 Testpositionen (siehe Abb.1.10 einer Probe mit Durchmesser \varnothing 25 mm), wäre die Schrittweite für die 10 geforderten Messpunkte pro Fluenzwert mehr als 1 J/cm^2 . Mit Rücksicht auf den Schwellwert bei ca. 6 J/cm^2 ist dies keine besonders feine Eingrenzung. Aus diesem Grund wird am LZH der kontinuierliche Modus verwendet, dessen Auswertung hier erläutert werden wird. Die Norm ermöglicht die Option der nicht-diskreten Datenaufnahme für den Fall von weniger stabilen Strahlquellen, aber die folgende Datenreduktion zeigt auch für den normalen Fall ein besseres Ergebnis.

Um die exakte Zerstörungswahrscheinlichkeit zu extrahieren, müssen nun die zerstörten Positionen mit der Anzahl an Prüfstellen für ein bestimmtes Fluenzintervall ins Verhältnis gesetzt werden. Die Anzahl der Intervalle kann, mit Rücksicht auf die Anzahl der Messpunkte pro Intervall, frei gewählt werden. Das folgende Beispiel verwendet 10 Intervalle. Der Bereich zwischen dem Wert der niedrigsten Fluenz mit Zerstörung und der höchsten Fluenz ohne Zerstörung wird genau in diese 10 Teile unterteilt. Die Daten in diesem Intervall liefern dann im Verhältnis die Wahrscheinlichkeit P_i für eine Zerstörung bei der Zentralfluenz des Intervalls.

$$P_i(F) = \frac{n_{i,z}}{n_{i,z} + n_{i,o}}, \quad (1.18)$$

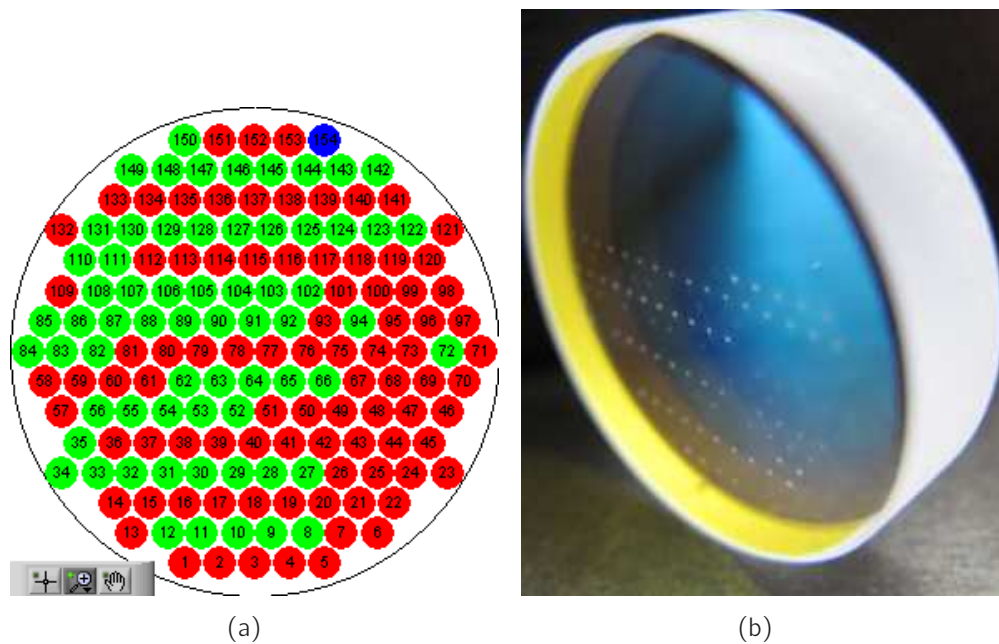


Abbildung 1.10: Matrix der Messpositionen während eines S-on-1 Zerstörschwellentests (a) in der Messsoftware und (b) auf einer Optik nach der Messung.

mit der Anzahl $n_{i,z}$ der zerstörten und $n_{i,o}$ der nicht zerstörten Positionen. Als erstes und letztes Intervall wird mit der gleichen Schrittweite eine Fluenzklasse mit der Wahrscheinlichkeit 0 bzw. 1 angefügt, um eine gute Basis für einen Datenfit dieser Verteilung zu bekommen. Auf den vorliegenden Datensatz angewendet, ergibt sich die Darstellung in Abb.1.11. Gemäß Norm wird diese Verteilung mit einem linearen Fit angepasst, um den Schwellwert zu extrahieren. Dieser ergibt sich aus dem Schnittpunkt der Fitfunktion mit der X- bzw. Fluenzachse ($P(F)=0$). An dieser Stelle des Experiments kann ein weiterführendes Modell angewendet werden, wie es in Kap.1.2.1 eingeführt wurde.

Die Unschärfe aus der Intervallbildung auf der Fluenzskala ist in Abb.1.12 als Fehlerbalken dargestellt. Es ist unschwer zu erkennen, dass die so reduzierten Daten, keine optimale Basis für das Anpassen der Fitfunktion bieten. Mit zwei Annahmen kann die Erzeugung der Wahrscheinlichkeit P_i für jedes Intervall effektiver gestaltet werden:

- Positionen, die bei der Fluenz F überleben, werden auch bei der Fluenz $F-\Delta F$ nicht zerstört.
- Positionen die bei der Fluenz F zerstört werden, werden auch bei der Fluenz $F+\Delta F$ zerstört.

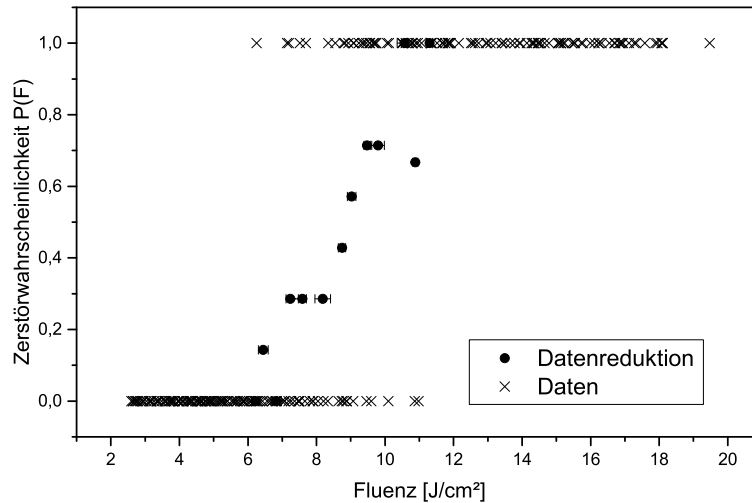


Abbildung 1.11: Reduzierte Messdaten einer LIDT Messung gemäß der Standardmethode.

Auf diese Weise kann der statistische Fehler deutlich verringert werden, weil die Gesamtanzahl der relevanten Datenpunkte sich in jedem Intervall stark erhöht. Man kann sogar die Anzahl der Intervalle erhöhen und somit die Unschärfe in der Fluenz minimieren [50]. In diesem Beispiel wurde die Intervallanzahl konstant gehalten und die Wahrscheinlichkeit gemäß

$$P_i(F) = \frac{\sum_{m=0}^i n_{m,z}}{\sum_{m=i}^M n_{m,o} + \sum_{m=0}^i n_{m,z}} \quad (1.19)$$

errechnet. Hier ist $M=10$ die Gesamtanzahl der Intervalle. Mit dieser Ermittlung der Wahrscheinlichkeit erfährt der Verlauf der einzelnen Datenpunkte eine Änderung, wie in Abb.1.12 aufgeführt. Auf Basis eines eindeutigeren Verlaufs der experimentellen Zerstörwahrscheinlichkeit kann das beste Modell für die einzelne Messung deutlich zuverlässiger ausgewählt werden. Da für die meisten Messungen dieser Arbeit mit dem Powerlaw $\alpha \cdot T^\beta$ (Gl.1.6) gearbeitet wurde, ist in Abb.1.13 ein Vergleich des linearen Fits mit diesem Modell gezeigt.

Für den Vergleich dieser beiden Anpassungsmöglichkeiten muss zunächst die Bestimmung des Schwellwertes durch das Powerlaw-Modell definiert werden. durch eine mögliche asymptotische Annäherung an die Wahrscheinlichkeit 0 kann sich ein Schwellwert der Fluenz aus der Fitfunktion ergeben, der deutlich unterhalb der Zerstörung kleinster Fluenz (ZkF) liegt. Um diesen Effekt zu umgehen, wird für den Schwellwert dieser Fitfunktion im Folgenden die Fluenz verwendet, der die Wahrscheinlichkeit 0.002 zugeordnet wird. Aus den später

1.5. MESSVERFAHREN

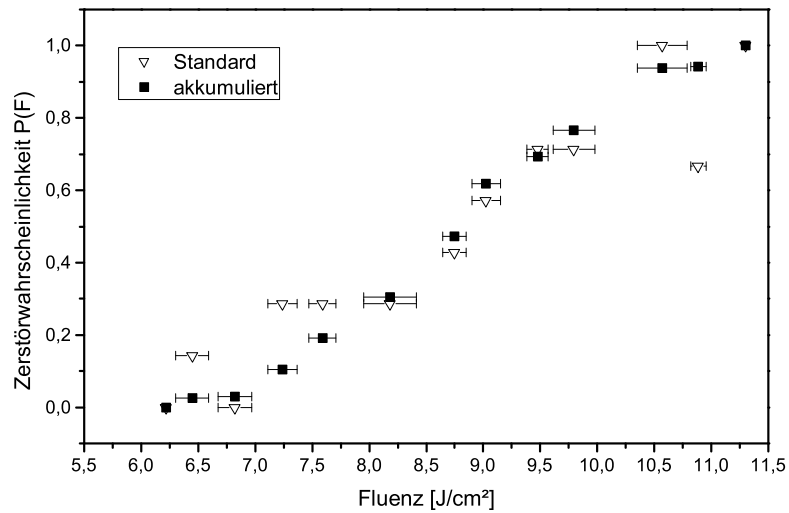


Abbildung 1.12: Reduzierte Messdaten einer LIDT Messung gemäß der Akkumulationsmethode.

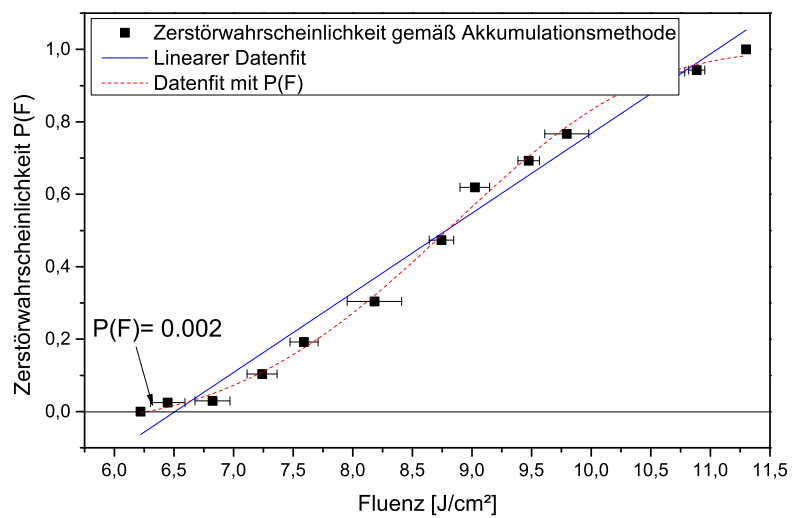


Abbildung 1.13: Zwei mögliche Fitfunktionen für die Anpassung der experimentell ermittelten Zerstörwahrscheinlichkeit.

berichteten Messungen wird hervorgehen, dass der 0.2% Wert stets leicht unterhalb der Zerstörung kleinster Fluenz liegt und somit einen guten Ansatz für das Experiment darstellt.

Abschließend ist zur linearen Fitfunktion zu erwähnen, dass sie grundsätzlich die Zerstörschwelle stark unter- bzw. überschätzen kann. Wenn der Übergangsbereich zwischen der Wahrscheinlichkeit 0 und 1 sehr breit ist, kann die geringe Steigung im Extremfall sogar zu negativen Schwellwerten führen [51]. Basierend auf dieser Argumentation werden die Messungen der folgenden Kapitel stets mit der Kombination der Akkumulationsmethode und des Powerlaw Fits dargestellt werden.

Mehrpulsverhalten

Das Ergebnis der bisherigen Ausführungen in Abb.1.13 gibt die Zerstörschwelle der Messung mit einem Puls pro Messposition wieder. Im S-on-1 Messprotokoll wird nun jede Position mit S Pulsen bestrahlt. Tritt eine Zerstörung auf, bevor die volle Anzahl S an Pulsen auf die Position gebracht wurde, wird dies mittels eines Streulichtdetektors ermittelt und die Bestrahlung dieser Position sofort abgebrochen. In den Messungen zu dieser Arbeit wurde in der Regel mit $S=10.000$ gearbeitet. Die Erfahrung hat gezeigt, dass dies ein repräsentativer Wert ist, bei dem keine weitere Degradation mit weiteren Pulsen innerhalb einer Zerstörschwellenmessung zu rechnen ist. An dieser Stelle sei aber darauf hingewiesen, dass die Erfahrung ebenfalls zeigt, ein Lebensdauertest kann nicht durch einen Zerstörschwellentest ersetzt werden. Insbesondere im UV werden Langzeiteffekte nicht durch die hier behandelte Methode hinreichend gut beschrieben.

Zur Auswertung des Datensatzes einer S-on-1 Messung wird S in n logarithmisch äquidistante Schritte geteilt. So gilt es, n Auswertungen nach der beschriebenen Methode anzufertigen, die jeweils einen Schwellwert bei einer bestimmten Anzahl von Pulsen beisteuert. Als Endergebnis werden diese ermittelten Fluenzen in Abhängigkeit von der Pulsanzahl aufgetragen und somit das Mehrpulsverhalten graphisch dargestellt. Eine Beispielkurve ist in Abb.1.14 gezeigt. Mit der zunächst abfallenden Schwelle, die sich dann aber zu einem Level stabilisiert, ist hier ein typisches Verhalten dargestellt. Zusätzlich zu dem bereits erläuterten 0.2% Wert ist jeweils der 50% Wert gezeigt, der einer Wahrscheinlichkeit von 0.5 aus der Funktion $P_i(F)$ entspricht und aus der selben Kurve wie der 0.2% Wert ermittelt wird.

Diese Kurve kann laut Norm mit einem empirischen Model gefittet werden, welches dann auch eine Extrapolation zu höheren Pulszahlen bietet. Dies sei an dieser Stelle lediglich der Vollständigkeit halber erwähnt, wird aber im Folgenden nicht weiter verwendet. Es sollen

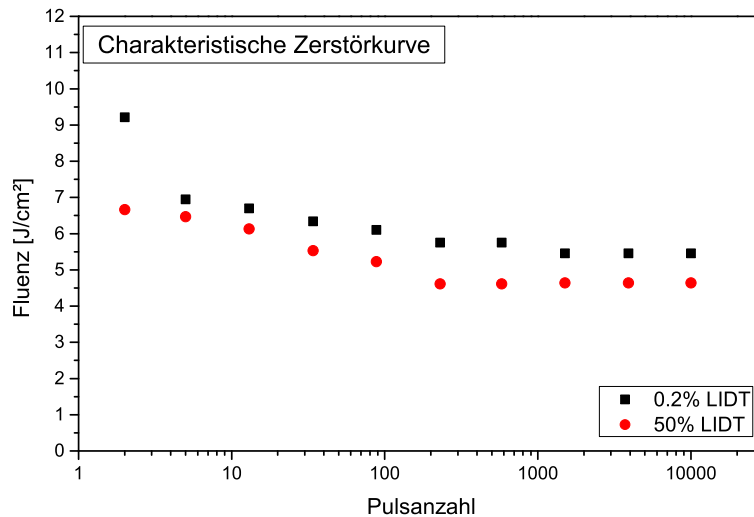


Abbildung 1.14: Charakteristische Zerstörkurve: Zerstörschwelle als Funktion der Pulsanzahl als 0.2% und 50% Wert.

jeweils die gemessenen Werte bei 10.000 Pulsen miteinander verglichen werden.

1.5.2 Laserkalorimetrie zur Absorptionsmessung

Für die Analyse des Beitrages der MPA zum Zerstörvorgang ist es wichtig, die Absorption direkt zu messen. Für dieses Vorhaben ist die Laserkalorimetrie gewählt worden, das in der ISO 11551:2003 standardisiert wurde [52, 53]. Die absolute Absorption wird bestimmt, indem man den Temperaturanstieg der Optik misst, die mit einem Testlaserstrahl bestrahlt wird. Wenn die verwendete Laserleistung und die Wärmekapazität der Probe bekannt sind, kann so die Absorption berechnet werden. Soll nun zusätzlich die nicht-lineare, intensitätsabhängige Absorption bestimmt werden, muss die Leistung variiert werden. Damit kann anhand von mehreren Einzelmessungen bei unterschiedlichen Leistungen (und konstanten Strahldurchmesser auf der Probe) die nicht-lineare Absorption in Schichten und Bulkmaterialien ermittelt werden.

2 Experimentelle Vorgehensweise

Ziel dieser Arbeit ist es, das Verständnis der Zerstörmechanismen in UV Laserbeschichtungen voranzutreiben. Unter der Vielzahl an Untersuchungen, die auf diesem Gebiet bereits veröffentlicht wurden, soll hier insbesondere an die Arbeiten von Walker und Guenther [11, 12] angeknüpft werden. Wie schon in Kap.1.1 ausgeführt wurde, führen ein Reihe an Ergebnissen zu der Annahme, dass sich die maßgeblichen Mechanismen für den in dieser Arbeit behandelten ns-Bereich zu kürzeren Wellenlängen erweitern. Die Annahme, dass die Zerstörschwelle mit kleinerer Wellenlänge abnimmt, kann mit den gängigen Modellen zur defektinduzierten Zerstörung hinreichend gut beschrieben werden. Die resultierenden Skalierungsgesetze sind jedoch nicht in der Lage, Zerstörfestigkeiten gegenüber der Wellenlänge im DUV (deep UV) ebenfalls korrekt abzubilden. In der Regel handelt es sich hier um Wellenlängen unterhalb der 3. Harmonischen.

Als Instrumentarium zur genauen Betrachtung dieses Sachverhaltes wurde aus den in Tab.2.1 gezeigten Möglichkeiten ein frequenzkonvertierter Nd:YAG Laser als Strahlquelle gewählt.

Walker et al. haben in ihren Studien einen extensiven Satz von Einzelschichten unter-

Laserkristall	1ω	2ω	3ω	4ω
Nd:YAG	1064 nm	532 nm	355 nm	266 nm
Nd:Glas	1054 nm	527 nm	351 nm	263 nm
Yb:YAG	1030 nm	515 nm	343 nm	257 nm
...

Tabelle 2.1: Einige laseraktive Kristalle und die Wellenlängen der ersten 4 Harmonischen.

schiedlichster Beschichtungsmaterialien untersucht und die Ergebnisse mit den bestehenden Modellen detailliert in Verbindung gebracht [11, 12]. Diese Arbeit orientiert sich am gegenwärtigen Wissenstand anhand gezielt konfektionierter Probensätze, um die Gewichtung der möglichen Mechanismen während des Zerstörprozesses weiter einzugrenzen. Diese Ansätze mit den entsprechenden Probensätzen werden in diesem Kapitel erläutert.

Prinzipiell widmen sich alle Überlegungen und Vergleiche dem Pulsdauerregime von wenigen

2.1. STRAHLDURCHMESSERABHÄNGIGKEIT

Nanosekunden (effektive Pulsdauer: $4 \text{ ns} \leq \tau \leq 10 \text{ ns}$) und werden mit einer Wiederholrate des Lasers von bis zu 100 Hz durchgeführt.

2.1 Strahldurchmesserabhängigkeit

Eines der Hauptmerkmale Einschluss induzierter Zerstörung ist der Einfluss des Teststrahldurchmessers auf den gemessenen Wert der LIDT. Wenn der Strahldurchmesser kleiner wird, verringert sich die Prüffläche jedes Pulses quadratisch mit dem zugehörigen Radius. Bei konstanter Anzahl der Testpositionen wird dementsprechend der geprüfte Anteil der Fläche stark reduziert. Bei einem gegebenen Defektensemble und der korrespondierenden Defektdichte gibt es dann einen Strahldurchmesser, der, wenn weiter verringert, nicht mehr bei jeder beliebigen Position einen zerstörenden Defekt treffen wird. Und folglich wird die LIDT im Vergleich zur Bestrahlung mit anwendungsrelevanten Strahldurchmessern überschätzt.

Man kann diesem Effekt kompensieren, indem man die Anzahl der Prüfpositionen in der Art erhöht, dass die Abdeckung konstant bleibt. Über die deutlich erhöhte Datenbasis kann so weiterhin eine ausreichende Prüfung des Defektensembles gewährleistet werden. Dies ist jedoch mit einer deutlich erhöhten Messzeit verbunden. In jedem Fall kann diese Vorgehensweise genutzt werden, um eine Aussage zu den eventuell unterschiedlichen Defektensembles für unterschiedliche Wellenlängen zu treffen. Um für ein Material quantitative Angaben zu machen, wurden entsprechende Untersuchungen an einem speziellen Probensatz bei vier Wellenlängen durchgeführt. Die Tests basieren auf Messungen bei den Wellenlängen 1064 nm, 532 nm, 355 nm und 266 nm.

An den Probensatz sind die folgenden Ansprüche gestellt worden. Um die Vergleichbarkeit zwischen den Wellenlängen zu gewährleisten, sollten alle Schichten aus dem selben Material hergestellt sein. Da bis ins UV hinein getestet wurde, kamen unter den Oxiden eine Mehrzahl an hochbrechenden Materialien auf Grund ihrer Irrelevanz in der Anwendung nicht in Frage. Verbleibende Kandidaten unter den typischen Materialien sind Al_2O_3 und HfO_2 . Zusätzlich sollte der Einfluss des Substrates minimiert werden. Bei transparenten Optiken kann der Beitrag der Politur und der Schichtübergänge nicht genau angegeben werden. Die Ergebnisse sollten jedoch die Defektensembles der dielektrischen Schichten widerspiegeln. Deshalb wurden HR-Spiegel Designs gewählt. Da Al_2O_3 mit SiO_2 keinen großen Brechwertkontrast bildet, wären für Spiegel bei 1064 nm und 532 nm eine hohe Anzahl an Wechselschichten notwendig. Die Schichtsysteme würden eine hohe physikalische Gesamtdicke aufweisen und eine

stark erhöhte Defektdichte allein durch die große Menge an Schichtmaterial könnte nicht ausgeschlossen werden. Folglich wurden die Proben aus einer Kombination von $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ hergestellt. Alle vier Spiegelsorten wurden in einem Elektronenstrahlverdampfungsprozess hergestellt, und als Substrate wurden plane Fenster aus synthetischem Quarzglas mit einem Durchmesser von 25 mm verwendet. Die relevanten Daten sind in Tab.2.2 aufgelistet.

In vier separaten Beschichtungsläufen wurden so jeweils 30 Stück der $\lambda/4$ HR-Spiegel hergestellt, um die Untersuchungen zur Strahldurchmesserabhängigkeit vom NIR bis hin zum UV durchzuführen. Die Ergebnisse zu dieser Studie werden in Kap.3 diskutiert.

Wellenlänge [nm]	Material	Design	Phys. Gesamtdicke [μm]
1064	$\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$	HL ¹² H	4
532	$\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$	HL ¹² H	1.97
355	$\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$	HL ¹² H	1.29
266	$\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$	HL ¹² H	0.94

Tabelle 2.2: Designs der verwendeten HR Spiegel zur Untersuchung der Strahldurchmesserabhängigkeit.

2.2 Multiphotonenabsorption in SiO_2 , Al_2O_3 und HfO_2

Als nicht-lineare Vorgänge hängt die Effizienz von Multiphotonenprozesse sehr stark von der eingestrahnten Intensität ab. Das wurde bereits in Gl.1.15 dargestellt. Zudem muss die Energiedifferenz zwischen den beiden involvierten Niveaus einem Vielfachen der eingestrahnten Photonenenergie entsprechen. Die Übergänge weisen eine gewisse energetische Breite auf, so dass es bzgl. dieser Energie eine Anregungsbreite gibt. Laserpulse mit Pulsdauern im ns-Bereich weisen bzgl. der Mehrphotonenprozesse nur moderaten Intensitäten auf. Daher sind diese Anregungsbreiten für diese Pulsdauern nicht sehr groß.(z.B. $\tau=240\mu\text{s}$ für Nd:YAG (ca.1% dotiert) entspricht einer energetischen Linienbreite von 2.7×10^{-12} eV)[54].

Solche Übergänge müssen also in Resonanz angeregt und nachgewiesen werden. Hierzu sind zwei Ansätze möglich: Erstens, bei einer gegebenen Probe mit fester Bandstruktur wird die Laserwellenlänge durchgestimmt. Somit nähert man sich mit der Testwellenlänge energetisch der Resonanz und kann die Mehrphotonenabsorption (MPA) möglichst effizient beobachten. Oder zweitens, man variiert bei fester Laserwellenlänge die Bandlücke der Probe und stellt so die Resonanz her. Den ersten Ansatz haben Jupé et al. [10] für die Arbeiten im fs-Bereich verfolgt. Eine möglichst fein durchstimmbare Laserquelle stand für die

2.2. MULTIPHOTONENABSORPTION IN SiO_2 , Al_2O_3 UND HfO_2

Untersuchungen im ns-Sektor des Puls Dauerspektrums nicht zur Verfügung. Aber anhand des IBS Beschichtungsprozesses (Ion Beam Sputtering) können am Laser Zentrum Hannover e.V. (LZH) Beschichtungen frei einstellbarer Bandlücke hergestellt werden, indem zwei Beschichtungsmaterialien während des Sputterns in einem frei wählbaren Verhältnis gemischt werden [55, 56]. Der Dynamikbereich dieses freien Einstellens erstreckt sich dabei natürlich von der Bandlücke des verwendeten niedrig brechenden Materials bis hin zum hoch brechenden Material. Mit den gegebenen Bereichen wurden dann Probensätze erstellt, die möglichst niedrige Ordnungen der MPA voraussetzen.

Es galt, den Übergang von der Zwei-Photonenabsorption (2PA) zur Drei-Photonenabsorption (3PA) zu beobachten. Wenn MPA Teil des Zerstörungsprozesses ist, sollte eine drastische Erhöhung der LIDT direkt an dem Übergang von 2PA zu 3PA zu beobachten sein. Oder eine Absorptionsmessung kann eine intensitätsabhängige Absorption detektieren wenn Bandlücke und Wellenlänge sich in Resonanz befinden. Die Bandlücken der Materialien von Interesse sind in Tab.2.3 gelistet [26]. Mit einer Photonenenergie von 4.66 eV ist die 4ω Strahlung

Material	Bandlücke
Ta_2O_5	3.8 eV
HfO_2	5.1 eV
Al_2O_3	6.5 eV
SiO_2	8.3 eV

Tabelle 2.3: Bandlücke einiger Beschichtungsmaterialien.

bereits bei SiO_2 schon im 2PA Bereich und somit ist lediglich ein Übergang zur direkten 1-Photonenabsorption möglich. Aus diesem Grund werden die Versuche mit 3ω Strahlung durchgeführt. Mit der Photonenenergie von 3.49 eV und SiO_2 ist ein Probensatz möglich, der genau den Übergang von 2PA zu 3PA beinhaltet. MPA Übergänge höherer Ordnung werden nicht angestrebt, weil zum Zeitpunkt der Probenerstellung nicht einmal klar ist, ob 3PA mit den ns-Pulsen zu beobachten ist. Prozesse noch höherer Ordnung weisen so geringe Absorptionsquerschnitte auf, dass sie für das geplante Experiment nicht in Frage kommen. Bei den Proben handelt es sich um Einzelschichten der Schichtdicke $2\lambda/4 @ 1064 \text{ nm}$ für alle Proben. Mit den beiden reinen Materialien (SiO_2 & Al_2O_3 bzw. SiO_2 & HfO_2) sind 10 Proben hergestellt worden, bei denen eine stufenweise Verringerung der Bandlücke von SiO_2 hin zu Al_2O_3 bzw. HfO_2 realisiert wurde. Die jeweiligen Bandlücken wurden mittels Spektralphotometrie und der Tauc-Methode experimentell ermittelt [57, 58, 59, 60]. Der MPA Einfluss wird anhand von LIDT Messungen und der laserkalorimetrischen Absorpti-

onsmessung überprüft, die beide bei 355 nm durchgeführt werden.

2.3 Strahlungsinduzierte Defekte

Für den Fall, dass sich das Defektensemble durch UV-Bestrahlung verändert und weitere Fehlstellen induziert werden, lässt sich das Modell zur Einschluss induzierten Zerstörung verwenden. Dieses geänderte Defektensemble würde aus der Auswertung der LIDT-Messung deutlich werden, wenn sich die Defektdichte mit der Pulsanzahl ändert. Wird die LIDT-Messung im S-on-1 Modus durchgeführt (siehe Abs.1.2.1), würde jeder Prüfstelle mit mehreren Pulsen bestrahlt, in den meisten Fällen 10.000. Wird nun die Defektdichte für unterschiedliche Anzahlen von Pulsen bestimmt, kann man erkennen, ob sich das Defektensemble erweitert hat und somit die Zerstörung auch für kleinere Fluenzen wahrscheinlicher wird. Bei diesem Ansatz kommt es nicht nur auf die Defektdichte an, es bleibt ebenfalls zu prüfen, ob aus den Wahrscheinlichkeitskurven zusätzlich weitere Defektklassen zum Vorschein kommen, wie in Abs.1.3 diskutiert.

Der Probensatz, der einen Zugang zu diesem Sachverhalt liefern soll, besteht wieder aus Einzelschichten, um Informationen zu den spezifischen Materialien und Materialmischungen zu bekommen. Es sollen jeweils die drei reinen Oxide und eine Mischung von jeweils 2 Materialien auf Defektwachstum geprüft werden. Die Systematik dieser 6 Proben ist in Abb.2.1 schematisch dargestellt. Wertet man die Überlebenskurven der LIDT-Messungen jeweils für unterschiedliche Pulsanzahlen aus, ist ersichtlich, ob sich das Defektensemble auf Grund der Bestrahlung weiterentwickelt hat. In diesem Zusammenhang sind drei Varianten möglich. Erstens, die Schicht ist stabil gegenüber die gepulsten Laserstrahlung und bildet keine

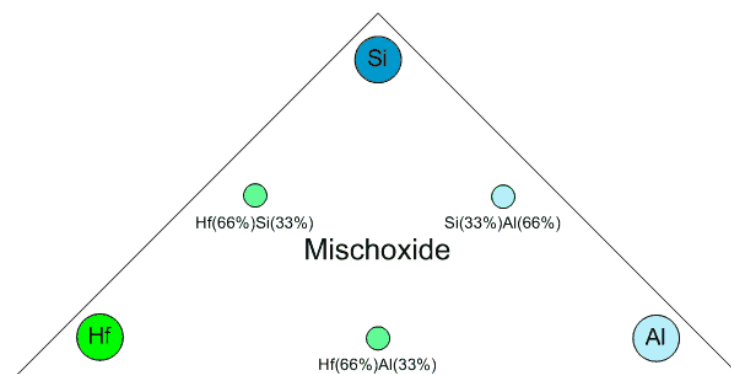


Abbildung 2.1: 6 Proben zur Überprüfung der strahlungsinduzierten Defektbildung in SiO_2 , Al_2O_3 und HfO_2 .

weiteren oder neuen Defekte. Zweitens, die Anzahl der vorhandenen Fehlerstellen nimmt zu, oder als dritte Möglichkeit werden neue Defekte gebildet, die in dieser Zusammensetzung vorher nicht in der Schicht vorhanden waren. Wie sich diese Möglichkeiten auf die Messkurve auswirken, ist in Kap.1.2 beschrieben.

2.4 Optimierte HR-Spiegel-Designs

Im Anschluss an die Diskussion der Ergebnisse zu den Probensätzen, die jeweils der Untersuchung eines bestimmten Effektes gewidmet sind, werden einige Ansätze in die Anwendung getragen. Basierend auf den Mischoxiden unterschiedlichen Mischverhältnisses und den Ergebnissen an den drei Probensätzen werden in Kap.6 einige Schichtdesigns vorgestellt, die eine erhöhte LIDT aufweisen sollen. Sowohl die Arbeiten zur defektinduzierten Zerstörung, als auch zu MPA und strahlungsinduzierten Defekten werden analysiert und auf die Herstellung von HR-Spiegeln angewendet. Dazu werden die entsprechenden Messungen der Zerstörschwelle bei 355 nm und 266 nm gezeigt.

3 LIDT als Funktion des Teststrahldurchmessers

3.1 Messergebnisse

Nachdem in Kap.2.1 erörtert wurde, nach welchen Kriterien der Probensatz der HR-Spiegel für die 4 Harmonischen des Nd:YAG Lasers untersucht werden soll, werden in diesem Abschnitt die Ergebnisse dargestellt und diskutiert. In den Darstellungen werden jeweils die Messergebnisse für 10.000 Pulse pro Position angegeben. Als Auswertung wurde das Powerlaw mit dem Defektensemble aus Gl.1.5 & Gl.1.6 verwendet. Die Energiedichten mit der Zerstörwahrscheinlichkeit von 2% sind als Schwellwert gewählt worden, und die Daten mit der Bezeichnung ZkF repräsentieren die Zerstörungen, für die die kleinste Fluenz notwendig war. Als Fehler sind die relativen Fehler angegeben, da der absolute Fehler der Kalibration für dieses Experiment nur eine untergeordnete Bedeutung hat.

1064nm

Abb.3.1 zeigt die Abhängigkeit der LIDT vom Strahldurchmesser im NIR. Dargestellt ist die Zerstörschwelle von HR-Spiegeln im $\lambda/4$ Design, hergestellt in einem Verdampfungsprozess mittels Elektronenstrahl unter Verwendung von HfO_2 als hochbrechendes und SiO_2 als niedrigbrechendes Material. Beide Datenreihen von LIDT und ZkF zeigen eine gute Übereinstimmung, und für größere Strahldurchmesser ist die ermittelte Zerstörschwelle im Rahmen des Messfehlers als konstant anzusehen. Unterhalb eines Strahldurchmessers von ca. $150\ \mu\text{m}$ erhöht sich der Schwellwert und steigt monoton zu immer kleineren Strahldurchmessern an. Dieses Ergebnis bestätigt die Erwartungen und bietet eine Untergrenze für den Teststrahldurchmesser an, den man für eine Messung bei dieser Wellenlänge im Standardmodus (moderate Anzahl von Testpositionen und damit eine optimierte Messdauer) nicht unterschreiten sollte.

Die beiden kleinsten Strahldurchmesser unterhalb von $50\ \mu\text{m}$ zeigen ein konstantes Level an

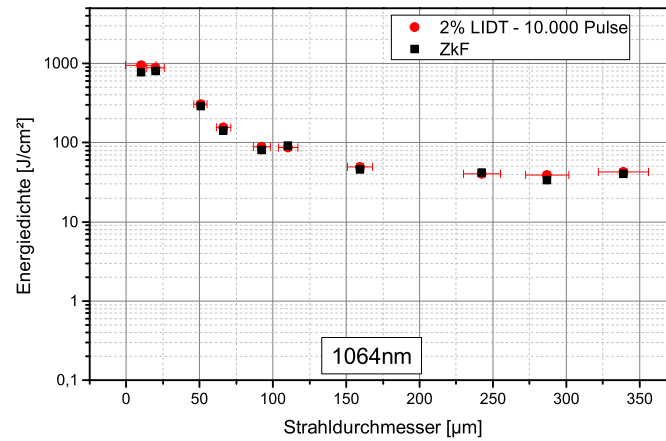


Abbildung 3.1: LIDT eines SiO₂/HfO₂ HR-Spiegels für 1064 nm in Abhängigkeit vom Teststrahldurchmesser und konstanter Anzahl an Testpositionen

Zerstörschwelle an. Es ist möglich, dass man hier in einen Bereich vorgestoßen ist, der die intrinsische Zerstörschwelle des Materials angibt, weil mit dieser Strahlgröße nur noch eine extrem geringe Wahrscheinlichkeit gegeben ist, einen relevanten Defekt zu treffen.

532nm

Die Messungen bei $\lambda = 532$ nm zeigen in Abb.3.2 ein sehr ähnliches Bild. Der Absolutwert der Zerstörschwelle für diese HR-Spiegel ist gegenüber den Messungen bei $\lambda = 1064$ nm abgesenkt, und der Anstieg der LIDT bei kleineren Strahldurchmessern setzt bei einem etwas kleineren Wert ein. Ab ca. 120 µm wird ein steigender Schwellwert gemessen und ist oberhalb dieses Strahldurchmessers konstant.

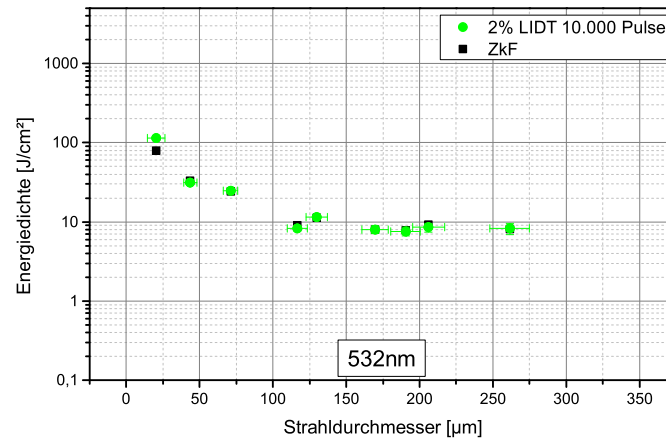


Abbildung 3.2: LIDT eines SiO₂/HfO₂ HR-Spiegels für 532 nm in Abhängigkeit vom Teststrahldurchmesser und konstanter Anzahl an Testpositionen

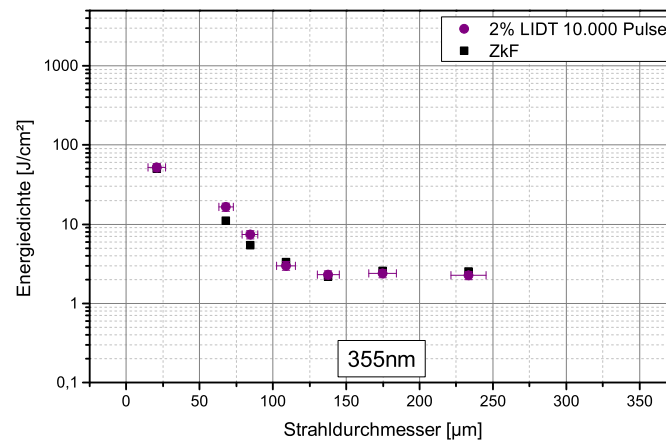


Abbildung 3.3: LIDT eines SiO₂/HfO₂ HR-Spiegels für 355 nm in Abhängigkeit vom Teststrahldurchmesser und konstanter Anzahl an Testpositionen

355nm

Auch bei dieser Wellenlänge zeigt sich das gleiche Verhalten (siehe Abb.3.3). Wieder ist der Absolutwert der LIDT etwas geringer als bei den längeren Wellenlängen und wieder ist der kritische Strahldurchmesser, unterhalb dessen sich die Zerstörschwelle erhöht, geringfügig verkleinert. Bei $\lambda = 355$ nm liegt er etwa bei 100 µm.

266nm

Bei dieser Wellenlänge zeigen sich leichte Veränderungen im Ergebnis. Es fällt auf, dass die Schwellwerte im Plateaubereich hier ein deutlich größeres Rauschen aufweisen als bei den 3 längeren Wellenlängen. Dies ist wahrscheinlich auf die schlechtere Puls-zu-Puls Stabilität (ca. 7% rms) und das schlechtere räumliche Strahlprofil des Lasers zurückzuführen. Die ersten drei Harmonischen werden im verwendeten Laser deutlich stabiler erzeugt. Sowohl das räumliche Strahlprofil als auch die Schwankung der Pulsenergie zeigen ein hohes Maß an Konstanz. Die räumliche Verteilung der Energie in der vierten harmonischen hingegen zeigt auf Grund der Wechselwirkung der energiereichen Photonen mit dem nichtlinearen Kristall erhöhte Schwankungen. Dennoch sind die Schwankungen nicht so groß, dass der Anstieg zu kleineren Strahldurchmessern hin nicht mehr deutlich ist, wenn gleich sich lediglich zwei Messwerte aus dem Plateau abheben. Bei 8 μm und bei 14 μm konnten deutlich erhöhte Schwellwerte beobachtet werden. Wie erwartet ergibt dies zunächst einen kleineren kritischen Strahldurchmesser als bei $\lambda = 1064 \text{ nm}$, $\lambda = 532 \text{ nm}$ oder $\lambda = 355 \text{ nm}$. Dennoch ist dieser Schritt deutlich kleiner als die beiden Übergänge von $\lambda = 1064 \text{ nm} \rightarrow \lambda = 532 \text{ nm}$ und $\lambda = 532 \text{ nm} \rightarrow \lambda = 355 \text{ nm}$ vermuten ließen. Hier hat sich die Messung bei 34 μm noch nicht aus dem Plateau abgehoben, so dass der kritische Strahldurchmesser als $\leq 34 \mu\text{m}$ angenommen werden muss.

Bei der Inspektion der Oberfläche nach der Messung, ist kein Unterschied zwischen den

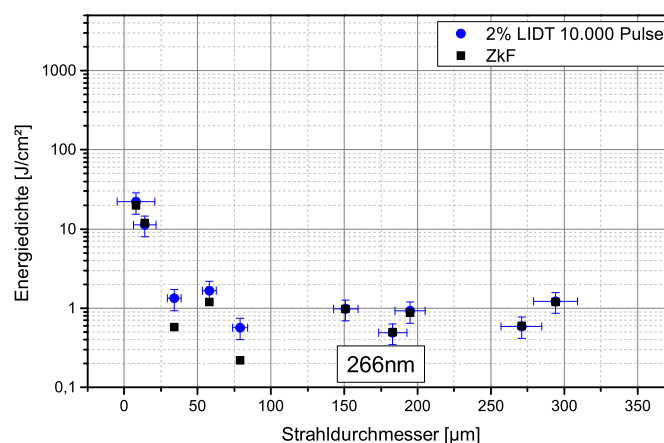


Abbildung 3.4: LIDT eines $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ HR-Spiegels für 266 nm in Abhängigkeit vom Teststrahldurchmesser und konstanter Anzahl an Testpositionen

Morphologien, die durch unterschiedliche Wellenlängen erzeugt wurden, zu erkennen. Alle, auch die bei $\lambda = 266 \text{ nm}$ untersuchten Proben, zeigen klare Anzeichen der Einschluss induzierten Zerstörung. Exemplarisch sind dazu Bilder von Zerstörungen der Messungen bei $\lambda = 355 \text{ nm}$ und $\lambda = 266 \text{ nm}$ in Abb.3.5 gezeigt. In beiden Aufnahmen sind die einzelnen lo-

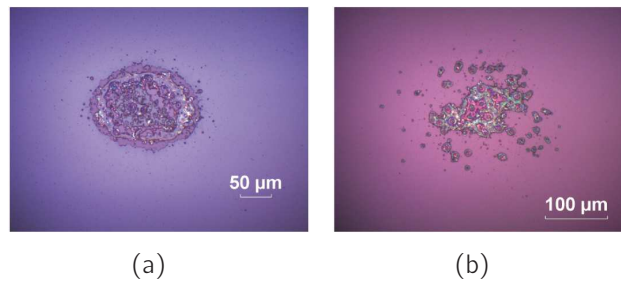


Abbildung 3.5: Zerstörte Testpositionen, die durch einen Einzelschuss erzeugt wurden: a) 355nm - 154µm, b) 266nm - 340µm

kalen Zentren als Initiierung des Durchbruchs in der Schicht zu erkennen. Diese treten in einer Fläche auf, die der Abdeckung durch den Teststrahl entspricht.

Zusammenfassend sind in Abb.3.6 alle Messergebnisse im Vergleich gezeigt. Relativ zu einander ist generell ein ähnliches Verhalten bei den 4 Wellenlänge zu erkennen, natürlich

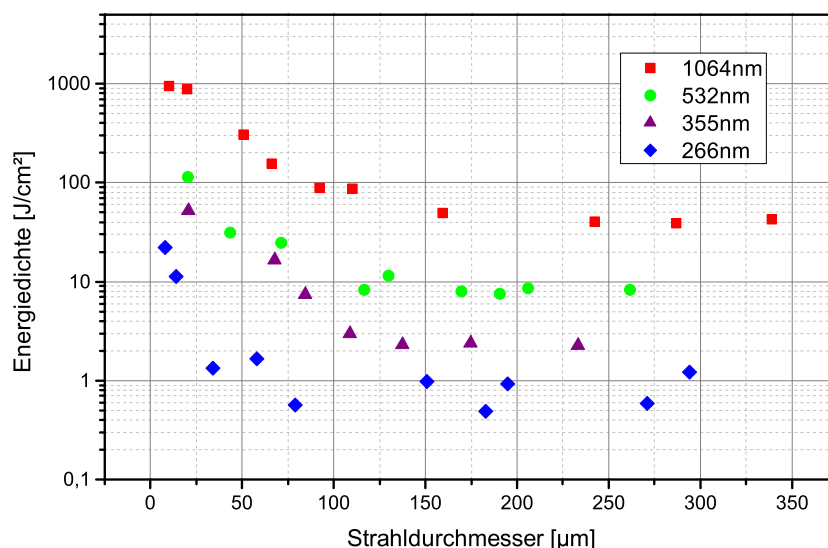


Abbildung 3.6: Übersicht der Messungen zur Strahldurchmesserabhängigkeit der LIDT bei 4 Wellenlängen.

3.2. ERHÖHTE DEFEKTDICHTE FÜR KLEINERE WELLENLÄNGEN

mit einer Verschiebung der entsprechenden Energiedichten zu kleineren Werten, wenn die Wellenlänge verringert und somit die Photonenenergie erhöht wird. Zusätzlich zum Absolutwert der Energiedichte, die die Zerstörschwelle angibt, entwickelt sich der kritische Strahldurchmesser, ab dem die gemessene LIDT zu kleineren Strahldurchmessern hin ansteigt, zu kleineren Abmessungen hin. Dieses Ergebnis kann für eine empirische Abschätzung der für die Zerstörung verantwortliche Defektdichte genutzt werden.

3.2 Erhöhte Defektdichte für kleinere Wellenlängen

Wie in Kap.2.1 bereits erwähnt wurde, deutet ein mit der Wellenlänge verringerter kritischer Strahldurchmesser auf geänderte Defektensembles hin. Je kleiner der kritische Strahldurchmesser, desto höher die Defektdichte. Ob dabei kürzere Wellenlängen mit einer neuen Art von Defekten wechselwirken, die in erhöhter Dichte vorliegen, oder lediglich kleinere Größen der selben Art das spezifische Ensemble erweitern, geht nicht aus diesen Messungen hervor. Der Trend, der die einschussinduzierte Zerstörung bestätigt, wird jedoch aus der Messreihe eindeutig gezeigt.

Mit Hilfe dieser kritischen Strahldurchmesser kann man rein empirisch eine Abschätzung über die den Zerstörungen zu Grunde liegenden Defektdichten machen, die zusammen in Tab.3.1 gelistet sind. Unter der Annahme, dass bei dem jeweiligen kritischen Strahldurchmesser mindestens ein zerstörungsrelevanter Defekt innerhalb der Strahlfläche vorliegt, ergibt sich eine Fläche pro Defekt. Diese kann dann zu einer mittleren Defektdichte erweitert werden. Nachdem alle Messungen mit dem Powerlaw Modell gefittet wurden, müsste auch aus den Fits eine Defektdichte zu extrahieren sein. Diese Bemühungen zeigen aber keine konsistente Entwicklung über die vier Wellenlängen hinweg, wie ebenfalls in Tab.3.1 zu sehen ist. Zusätzlich taucht auch eine Abweichung in der Größenordnung auf. Zum Einen

Wellenlänge [nm]	krit. Strahldurchmesser [μm]	Defektdichte	
		emp.[$1/\text{cm}^2$]	gefittet[$1/\text{cm}^2$]
1064	150	5.658	662
532	120	8.841	1.480
355	100	12.732	980
266	<34	110.141	2.362

Tabelle 3.1: Kritischer Strahldurchmesser und die daraus abgeleitete Defektdichten (emp. Defektdichte) im Vergleich zur Defektdichte aus dem Powerlaw Fit für alle vier untersuchten Wellenlängen.

3.2. ERHÖHTE DEFEKTDICHTE FÜR KLEINERE WELLENLÄNGEN

wird der empirischen Variante eine sehr einfache Überlegung zu Grunde gelegt. Zum Anderen muss die Möglichkeit in Erwägung gezogen werden, dass sich das Defektensemble bezogen auf die unterschiedlichen Wellenlängen nicht nur erweitert, sondern auch komplett ändert. So können Defekte, die im NIR dominant beitragen, eventuell durch den sehr geringen Gesamtenergieeintrag im UV gar nicht im Ensemble berücksichtigt sein. Dies sind Ansätze, die in Kap.5 weiter verfolgt werden. Weitere Beobachtungen und Anmerkungen aus den Untersuchungen zur Strahldurchmesserabhängigkeit der Zerstörschwelle sollen hier ebenfalls kurz Erwähnung finden. Der hier untersuchte Probensatz besteht aus den genannten Gründen aus eine Materialkombination, die in einem Verdampfungsprozess aufgebracht wurde. Sowohl die abgeschätzten und aus dem Fit gewonnen Defektdichten als auch der kritische Strahldurchmesser sind natürlich als spezifisch für diese Parameter anzusehen. In einem anderen Beschichtungsprozess mag sich die Defektdichte stark unterscheiden. Auch das Aufwuchsverhalten und die damit verbundene spezifische Defektbildung von $\text{HfO}_2/\text{SiO}_2$ ist nicht direkt auf andere Beschichtungsmaterialien übertragbar. Oxidationslevel und Clusterbildung werden sehr durch Material und Prozess bestimmt. Auch die Schichtdicke gibt natürlich eine obere Grenze für die Defektgröße an. Da die $\lambda/4$ Schichten im UV deutlich dünner sind als im NIR, ändert sich auch diese Randbedingung. In Kap.1.2.2 wurde aber bereits erörtert, dass die relevanten Defekte deutlich unterhalb dieser Größenordnung liegen müssen. Folglich muss den Schichtübergängen eine große Bedeutung zugemessen werden. Schichtübergänge werden innerhalb dieser Arbeit nicht separat untersucht. Hier soll dies lediglich erwähnt werden, um auf diesen Sachverhalt hinzuweisen und keine Aspekt außer Acht zu lassen. Auch die Feldstärkeverteilung innerhalb der einzelnen Schichtdesigns (z.B. HR gegenüber AR Schicht) spielt im Zusammenhang mit den Defektdichten an den Schichtübergängen eine bedeutende Rolle.

Im Fall der Messungen bei $\lambda = 1064 \text{ nm}$, gezeigt in Abb.3.1, ist ein zweites Plateau bei den kleinsten Strahldurchmessern durch zwei Messpunkte angedeutet. Wenn $\varnothing_{\text{Strahl}} \rightarrow 0$ und im Mittel kein Defekt mehr durch den kleinen Strahl bestrahlt wird, kann so die intrinsische Zerstörschwelle des verwendeten Materials gemessen werden. In der Anwendung wird dieser Wert Herstellungsprozess bedingt aber sicher nicht erreicht werden.

Zu dieser Messreihe der Strahldurchmesserabhängigkeit ist im Resume zu sagen, dass alle 4 Wellenlängen eine deutliche einschussinduzierte Natur zeigen. Im tieferen UV bei $\lambda = 266 \text{ nm}$ liegen in den untersuchten HR-Spiegeln Defektensembles vor, die eine sehr hohe Dichte aufweisen, und somit erst bei sehr kleinen Strahldurchmessern eine erhöhte Zerstörschwelle zeigen.

3.2. ERHÖHTE DEFEKTDICHTE FÜR KLEINERE WELLENLÄNGEN

4 Mehrphotoneneffekte im Zerstörprozess

In der Absicht zu überprüfen, ob Mehrphotonenprozesse in dielektrischen Schichten zur Zerstörung beitragen, wurden Einzelschichten bestimmter Materialkombinationen diesbezüglich untersucht. In diesem Kapitel werden Ergebnisse dieser Messungen dargestellt und diskutiert. Obwohl Ta_2O_5 kein Material für den UV Bereich ist, werden hier zunächst Ergebnisse an der Kombination mit SiO_2 gezeigt, weil diese die Idee des Experiments hervorragend wiedergeben. Auf Grund der kleineren Bandlücke des Tantalpentoxids¹, ist ein möglicher Übergang von 2PA zu 3PA bei $\lambda = 532 \text{ nm}$ und $\lambda = 355 \text{ nm}$ zu beobachten. Da die lineare Absorption ohne die Berücksichtigung der MPA bei $\lambda = 355 \text{ nm}$ bereits relativ hoch ist, wurden die Messungen mit der grünen Laserstrahlung durchgeführt.

4.1 MPA in $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Einzelschichten

Mit dem IBS Prozess (Ion Beam Sputtering) des LZH ist eine Reihe an Einzelschichten mit variiertem Brechwert und Bandlücke hergestellt worden. Dabei ist mittels konstanter optische Dicke in allen Proben der Feldstärkeverlauf ebenfalls konstant. Ein entscheidendes Merkmal von Mischoxiden, die in diesem IBS-Prozess hergestellt werden, ist die kontinuierliche Erhöhung der Bandlücke bzw. Verringerung des Brechwertes, wenn dem hochbrechenden Material SiO_2 beigemischt wird [55, 56]. Die Transmissionsspektren und Bandlücke als Funktion des Brechwertes sind in Abb.4.1(a) & Abb.4.1(b) gezeigt.

Außerdem ist in Abb.4.1(b) mit aufgeführt mit welcher Bandlücke in der dazugehörigen Probe sich die MPA-Ordnung ändert. Insgesamt überstreicht der Probensatz den Bereich der 2PA, 3PA und 4PA. Es sind zur Zeit keine Werte aus der Literatur bekannt, die die 2PA oder 3PA Absorptionskoeffizienten von Ta_2O_5 beschreiben. Generell ist zu erwarten, dass der Wirkungsgrad der 3PA bereits so gering ist [61], dass sie mit den Intensitäten von

¹im Vgl. zu HfO_2 und Al_2O_3 , die Gegenstand der Untersuchungen in dieser Arbeit sind

4.1. MPA IN $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ EINZELSCHICHTEN

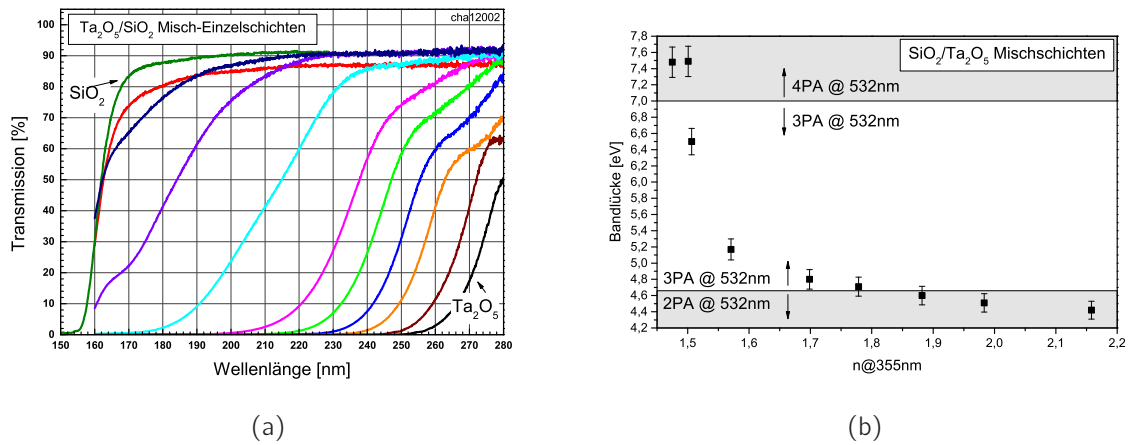


Abbildung 4.1: (a) Spektrale Transmission der unterschiedlichen Materialmischungen von SiO_2 und Ta_2O_5 und (b) die nach Tauc ermittelte Bandlücke der einzelnen Proben (rechts).

Laserpulsen im Bereich von wenigen Nanosekunden nicht messbar ist. Der 2PA Prozess hingegen ist mit signifikanten Wahrscheinlichkeiten zu erwarten. Anhand der Laserkalorimetrie ist die lineare und nicht-lineare Absorption gemessen worden. Der Laser, der hier zur Verfügung stand, liegt in einem leicht anderen Pulsdauerregime. Für die Absorptionsmessung ist es notwendig, die Probe mit möglichst viel Leistung zu bestrahlen, um eine empfindliche Messung durchführen zu können. Je höher die Leistung, desto geringer absorbierende Proben können auch tatsächlich im Detektionsbereich der Temperaturmessung erwärmt werden. Bei der Zerstörungsschwellenmessung hingegen ist die Pulsenergie der wichtige Parameter. Die Absorptionsmessung soll eine zerstörungsfreie Messmethode sein und wird somit mit möglichst hoher Repetitionsrate und kleiner Pulsenergie durchgeführt. Daher unterscheiden sich die Pulsintensitäten beider Verfahren um Größenordnungen. Als Überblick für die Messung bei $\lambda = 532\text{ nm}$ und die später notwendigen Messungen im UV an weiteren Materialkombinationen ist in Tab.4.1 der Messbereich von Absorptionsmessung (LCA) und Zerstörungsschwellenmessung aufgezeigt. Prinzipiell liegen also ca. 3 Größenordnungen zwischen den Intensitäten der beiden Messmethoden, aber in Resonanz konnte ein intensitätsabhängiger Anteil experimentell gezeigt werden. Die Resultate zur Absorption sind in Abb.4.2 wiedergegeben. Eine Probe des gesamten Probensatzes zeigte eine zunehmende Absorption bei erhöhter Intensität. Die Wiederholbarkeit dieses Effektes wird anhand der beiden Messpunkte bei der höchsten Intensität deutlich. Als jeweils erster und letzter Messpunkt der Messreihe liegen sie innerhalb der Fehlermarge in gleicher Höhe, so dass es sich hier

Wellenlänge [nm]	Methode	Pulsdauer	Rep.-Rate Hz	Intensität W/cm ²
532	LCA	10 ps	160×10^6	10^6
532	LIDT	5 ns	100	10^9
355	LCA	10 ps	160×10^6	10^6
355	LIDT	5 ns	100	10^9

Tabelle 4.1: Intensitäten, die bei der Absorptionsmessung (LCA) und Zerstörschwellenmessung auftreten. Eine notwendige Abschätzung für evtl. beteiligte nicht-lineare Prozesse.

nicht um eine dauerhafte Änderung des Materials handelt. Alle anderen Proben zeigten diesen Anstieg nicht. Als Beispiel ist die Messung von SiO_2 zusätzlich gezeigt. Mit dem Wert von 4.5 eV für die Bandlücke dieser Probe, die den nichtlineare Anteil zeigt, liegt sie sehr nahe an der Resonanz von 4.66 eV für die 2PA bei $\lambda = 532$ nm. Diese Differenz kann auf die Unsicherheit bei der Bestimmung der Bandlücke zurückgeführt werden. Die verwendete Extrapolationsmethode im Tauc-Bereich der Bandlücke kann durchaus ein Fehler von ein oder zwei Zehntel Elektronenvolt liefern. Diesem Ergebnis zufolge, ist 2PA bei Ta_2O_5 in Resonanz messbar. Nun gilt es zu prüfen, ob dieser Effekt Einfluss auf die Laser induzierte Zerstörung hat.

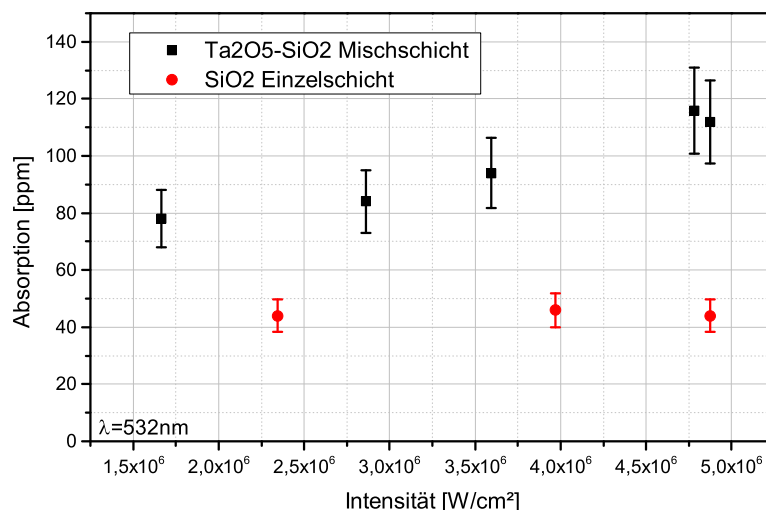


Abbildung 4.2: Absorption der $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischprobe als Funktion der Intensität. Als Vergleich: die Messung der SiO_2 Probe, die keinen Anstieg zeigte.

4.1. MPA IN $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ EINZELSCHICHTEN

Dazu ist an allen Proben eine LIDT Messung im 10.000-on-1 Modus durchgeführt worden. Die Pulsdauer für diese und alle folgenden Messungen (auch bei $\lambda = 355 \text{ nm}$) sind in Tab.4.1 angegeben. In Kap.3 wurde bereits dargestellt, wie sich der Einfluss des Strahldurchmessers auf das Messergebnis der LIDT-Messung gestaltet. Für alle folgenden Messungen, wenn nicht anders motiviert oder angegeben, sind Werte oberhalb des kritischen Strahldurchmessers gewählt worden (siehe Tab.3.1). Ziel war es, die MPA als einen über die defektinduzierte Zerstörung hinaus dominanten Effekt zu identifizieren. Deshalb waren Strahldurchmesser oberhalb dieser Grenzen notwendig.

Alle Messungen, die bzgl. der MPA durchgeführt wurden, sind nach dem Powerlaw Model ausgewertet worden, das mit der Potenzfunktion $\alpha \cdot T^\beta$ gefittet wird. Mit allen Auswertungen nach diesem Muster, wurde die Zerstörschwelle (Definition: 0.2% Zerstörwahrscheinlichkeit) über der Bandlücke aufgetragen. Die aufgeführten Werte entsprechen den Daten für die Pulsanzahl von 10.000 und sind in Abb.4.3 aufbereitet. Direkt am Übergang von 2PA

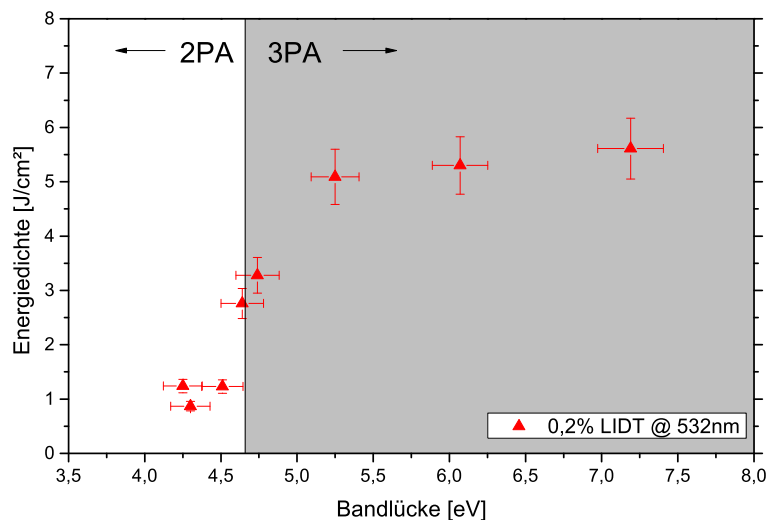


Abbildung 4.3: Laser induzierte Zerstörung von $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischungen als Funktion der Bandlücke. Dargestellt für 10.000 Pulse als 0.2%LIDT und Zerstörung kleinster Fluenz.

zu 3PA ist ein abrupter Anstieg der Zerstörschwelle um den Faktor 5 zu beobachten. Proben mit Bandlücken oberhalb von 4.5 eV^2 weisen eine deutlich höhere Zerstörschwelle auf. Im Bereich der 3PA verhält sich die Zerstörschwelle innerhalb der Messgenauigkeit konstant.

²die Probe, die auch bei kleinen Intensitäten ein nicht-lineares Verhalten gezeigt hat

Die Herstellung dieser Schichten erfolgt durch Abtragen von Silizium und Tantal von einem metallischen Target mit einem Ionenstrahl. Jedes Oxid weist einen bestimmten Sauerstoffbedarf auf, der benötigt wird, um eine optimale Oxidation und Stöchiometrie zu erreichen. Da für eine solche Mischschicht aber Metalle bzw. Halbmetalle unterschiedlicher Wertigkeit und O_2 -Affinität mit einem festen Sauerstofffluss oxidiert werden, kann es hier zu suboptimalen Oxidationsniveaus in der Mischphase kommen. Folglich wird ebenfalls ein geändertes Defektensemble erzeugt. Da aber nahe der 2PA Resonanz nicht-lineare Absorption dominant agiert, kann bei dem Ordnungswechsel der MPA dennoch eine deutliche Stufe beobachtet werden.

Als Fazit zu den Messungen an $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischungen lässt sich zusammenfassen, dass Tantalpentoxid eine Zwei-Photonenabsorption zeigt, deren Wirkungsgrad deutlichen Einfluss auf die Zerstörprozesse im Bereich weniger Nanosekunden bei $\lambda = 532 \text{ nm}$ hat [62]. Dieses Ergebnis dient als Beispiel für einen solchen Fall und wird hier in Vorbereitung auf die Messungen an den UV Materialien erwähnt.

Morphologie

Abschließend zu den Arbeiten an $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ -Mischungen werden hier die Zerstörmorphologien des untersuchten Probensatzes dargestellt und diskutiert werden. Mit der entsprechenden Probenbezeichnung sind diese im Folgenden aufgelistet. Generell deuten die Morphologien auf eine defektinduzierte Zerstörung hin. In jedem Falle haben einzelne, lokale Defekte zu einem Durchbruch geführt. Diese Vorgänge sind in der Regel mehrmals an einer Testposition zu beobachten. Folglich ist die 2PA, die bei einigen Proben den Zerstörvorgang beeinflusst hat, ebenfalls ein lokaler Vorgang, der ebenfalls an einzelnen Defekten auftritt. Dementsprechend ist es sehr wahrscheinlich, dass auch Zwischenzustände Teil des 2PA Anregungsprozesses sind.

Eine weitere Beobachtung ist ein Unterschied in der Morphologie der Proben im 2PA Bereich und im 3PA Bereich. Alle Bilder sind mit einem Differentialinterferenzkontrast-Mikroskop (DIC) aufgenommen worden, in den meisten Fällen mit einer Vergrößerung mit dem Faktor 200. Beginnend mit der Einzelschicht in Abb.4.4 ist eine Verfärbung innerhalb der einzelnen zerstörten Krater zu beobachten und ein Verlauf des Brechungsindex vom Rand des Kraters hin zum umgebenden, unveränderten Schichtmaterial. Dies setzt sich über die insgesamt ersten 4 Proben mit steigender Bandlücke fort, wenn man von der Ta_2O_5 Einzelschicht ausgeht. Probe 4 in Abb.4.7 ist genau die Probe, deren Bandlücke der 2PA Resonanz für Photonen der Wellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ am nächsten liegt. Alle folgenden Proben bis hin zu sehr geringen SiO_2 Anteilen zeigen klar abgetrennt, defektinduzierte Zerstörung, ohne wie-

4.1. MPA IN $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ EINZELSCHICHTEN

derkehrende Verfärbung innerhalb des Kraters oder eines Brechwertverlaufes am Rand des selben (Abbn.4.8-4.11).

So können hier im Fall der experimentell bestätigten 2PA basierten Zerstörung an $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischungen zwei Erkenntnisse extrahiert werden. Der Bereich der 2PA ist ebenfalls in der Morphologie identifizierbar und auch 2PA ist innerhalb dieser oxidischen, amorphen Dielektrika ein lokalisierter, defektbezogener Prozess.

Abbildung 4.4: Tantalpentoxid Einzelschicht mit der Bandlücke 4.25 eV - 2PA.

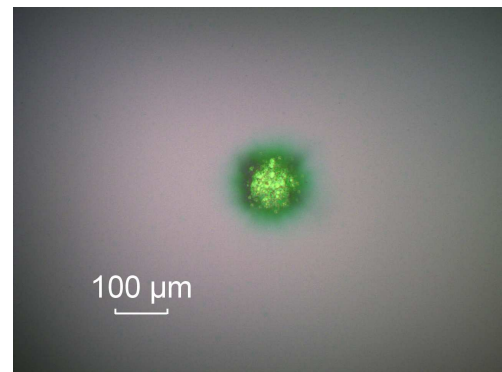


Abbildung 4.5: $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischschicht mit der Bandlücke 4.3 eV - 2PA.

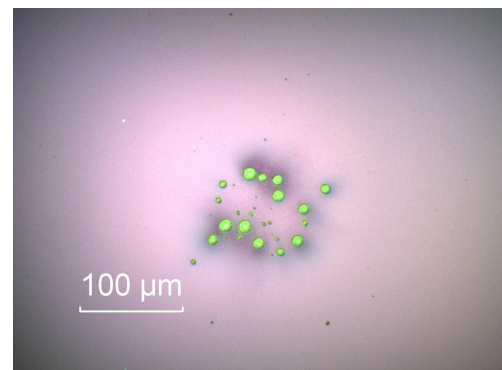


Abbildung 4.6: $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischschicht mit der Bandlücke 4.5 eV - 2PA.

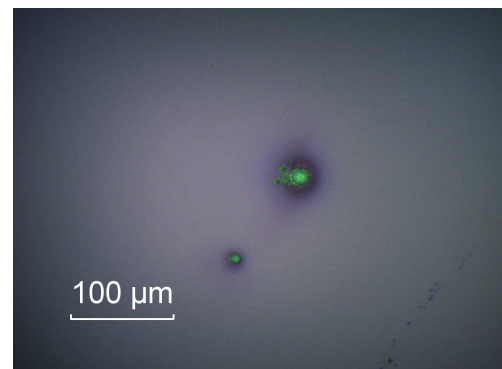


Abbildung 4.7: $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischschicht mit der Bandlücke 4.64 eV - 2PA.

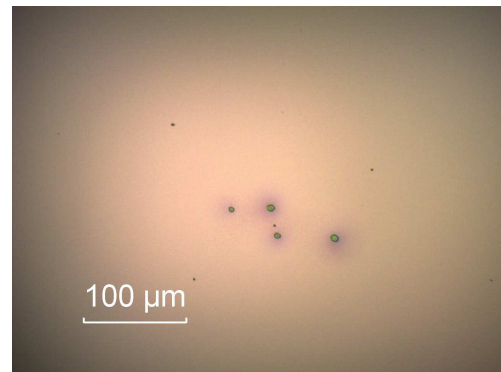


Abbildung 4.8: $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischschicht mit der Bandlücke 4.74 eV - 3PA.

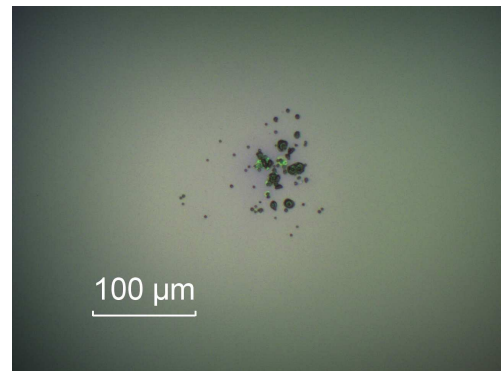


Abbildung 4.9: $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischschicht mit der Bandlücke 5.2 eV - 3PA.

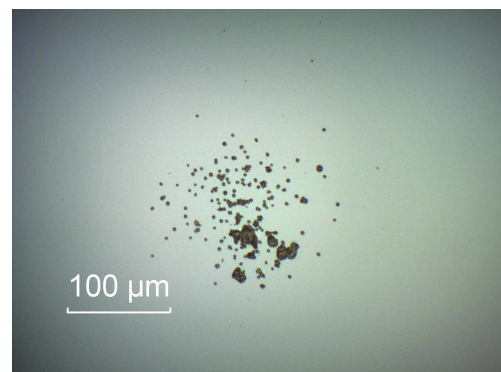


Abbildung 4.10: $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischschicht mit der Bandlücke 6.1 eV - 3PA.



4.1. MPA IN $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ EINZELSCHICHTEN

Abbildung 4.11: $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Mischschicht mit der Bandlücke 7.2 eV - 3PA.



4.2 Untersuchungen zur MPA an $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Einzelschichten

Zur Untersuchung des 2PA Einflusses auf die Zerstörschwelle in HfO_2 , wurde ein Probensatz in Analogie zu den Arbeiten mit Ta_2O_5 angefertigt. Hier sind die beiden reinen Materialien als Einzelschicht vorgesehen, zusammen mit 8 Zwischenschritten mit unterschiedlichen Mischverhältnissen - 10 Proben, die bzgl. Absorption und Zerstörschwelle untersucht wurden. Wie in Kap.2.2 erwähnt wurde, müssen die Tests an HfO_2 auf Grund der Lage der Bandlücke mit $\lambda = 355 \text{ nm}$ durchgeführt werden. So wird der Ordnungswechsel von 2PA zu 3PA erfasst und eine Auswertung diesbezüglich ist möglich. In Abb.4.12 sind die Transmissionspektren (auf

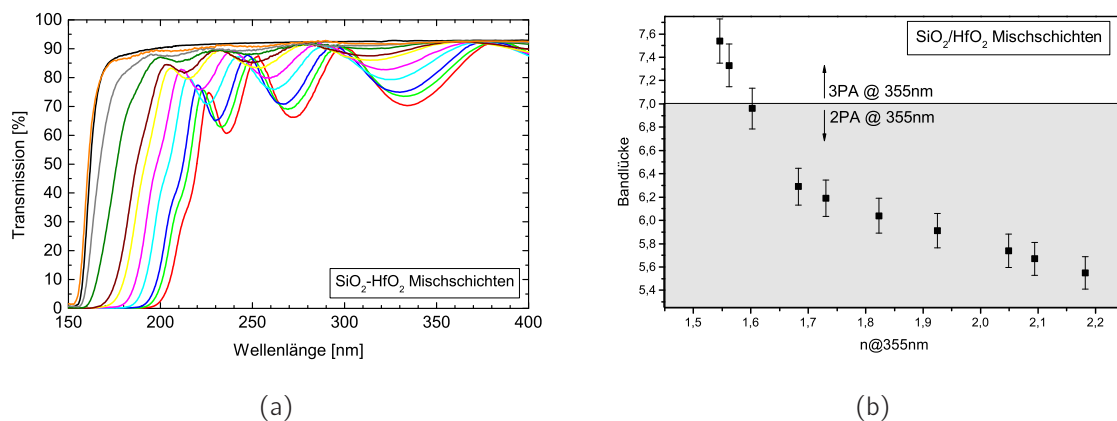


Abbildung 4.12: (a) Spektrale Transmission der unterschiedlichen Materialmischungen von SiO_2 und HfO_2 und (b) die nach Tauc ermittelte Bandlücke der einzelnen Proben (rechts).

den UV Bereich beschränkt) und die zugehörigen Bandlücken der $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischungen gezeigt. Da die Bandlücke von HfO_2 deutlich größer ist als die des Ta_2O_5 , verringert sich folglich der Dynamikbereich, der mit einer solchen Mischung eingestellt werden kann. Dies zusammen mit der kürzeren Testwellenlänge ermöglicht nur noch einen Ordnungswechsel der MPA, was aber aus bereits erörterten Gründen nicht hinderlich ist.

Zunächst sind alle Proben in ihrer Absorption vermessen worden. Dies beinhaltet eine Prüfung von nicht-linearen Anteilen durch Variation der eingestrahnten Intensität. An diesem Probensatz konnte dieser Effekt an keiner Probe beobachtet werden. Die Absorption in Abhängigkeit von der Bandlücke ist in Abb.4.13(a) gezeigt. Im Rahmen eines anderen Experimentes wurden HR-Spiegel für 266 nm mit dem Lasersystem (siehe Tab.4.1), das für

4.2. UNTERSUCHUNGEN ZUR MPA AN $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ EINZELSCHICHTEN

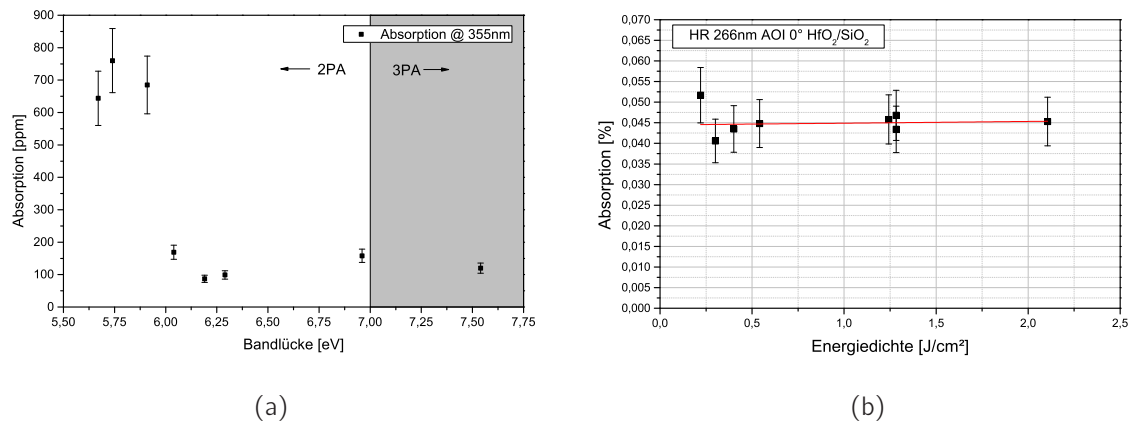


Abbildung 4.13: (a) Absorption der $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischungen in Abhängigkeit von der Bandlücke. Keine Probe zeigte einen nicht-linearen Anteil. (b) Intensitätsabhängige Absorption an einem HR-Spiegel aus $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ für 266 nm.

LIDT-Messungen verwendet wird, bezüglich ihrer Absorption geprüft. Aus dem bereits bekannten Grund der starken Intensitätsunterschiede zwischen der Absorptionsmessung und der LIDT-Messung (vgl. Tab.4.1) wurde dieses Experiment durchgeführt. Zusätzlich zur Intensitätserhöhung ist die Photonenenergie durch Verwendung der 4. Harmonischen erhöht, um die Wahrscheinlichkeit, diesen Effektes zu beobachten, zu erhöhen. Ziel war es, unmittelbar im Bereich der Zerstörschwelle nicht-lineare Anteile in der Absorption zu ermitteln. Die Ergebnisse hierzu sind ebenfalls in Abb.4.13 in Teil (b) dargestellt. Auch hier konnte kein Anstieg der Absorption beobachtet werden.

Es stand weiterhin aus, die Mischproben der Zerstörschwellenmessung zu unterziehen. Hier wurden ebenfalls Messungen mit einer maximalen Pulsanzahl von 10.000 durchgeführt. Pulsdauer, Strahldurchmesser und Repetitionsrate sind vergleichbar mit den Messungen an den $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ Proben. Das Resultat dieser Serie ist in Abb.4.14 gezeigt. Diesen Proben kann keine abrupte Änderung der Zerstörschwelle zugeordnet werden. Vielmehr handelt es sich um einen stetigen Anstieg des Schwellwertes mit der Bandlücke. Obwohl auch die Ergebnisse dieser Messung nicht auf MPA Anteile hindeuten, ist der Zuwachs der Zerstörschwelle signifikant. Insgesamt hat sich die Leistungsverträglichkeit der Einzelschichten vom reinen HfO_2 über die Mischungsstufen hin zum reinen SiO_2 fast verdoppelt. Diese Zunahme ließe sich linear approximieren, aus Mangel an einem Modell für diese Beschreibung ist davon hier aber Abstand genommen worden.

In der Literatur konnten Hinweise gefunden werden, die die Vermutung untermauern, dass

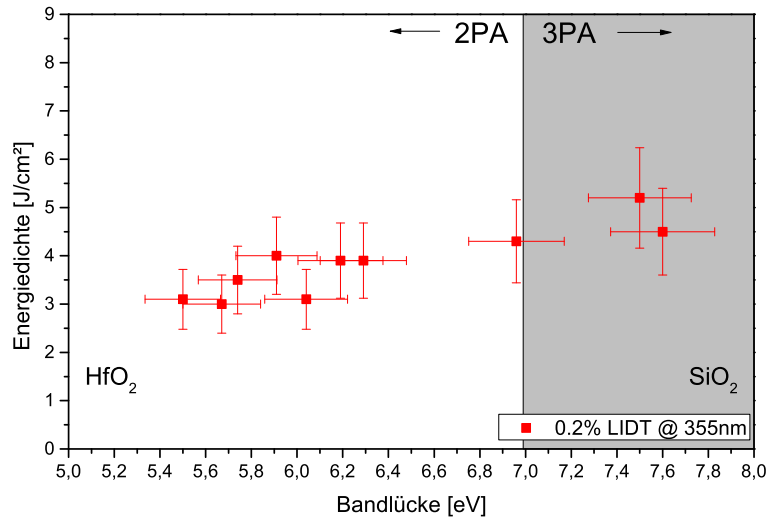


Abbildung 4.14: Laser induzierte Zerstörung von $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischungen als Funktion der Bandlücke. Dargestellt für 10.000 Pulse als 0.2%LIDT und Zerstörung kleinster Energiedichte.

HfO_2 als gesputtertes Schichtmaterial grundsätzlich keine nicht-lineare Absorption zeigt. Für SiO_2 oder Al_2O_3 hingegen wurde dies für Schicht oder Bulk Material schon häufig berichtet [29, 30, 63, 64, 65]. Nach weiterer Literaturrecherche im Anschluss an das Experiment und den Ausführungen aus Kap.1.4 gibt es für dieses Verhalten folgende Erklärungen:

- Wie von Robertson beschrieben [46], sind die Hf-Ionen mit ihrer ionischen Bindung so gut aneinander gekoppelt, dass eine Relaxation jedes besetzten Zwischenzustandes durch die starke Kopplung an die umliegende Matrix extrem schnell möglich ist. Wenn hier keine signifikanten Lebensdauern vorherrschen, kann auch die Absorption eines weiteren Photons nicht zur Überbrückung der Bandlücke führen. Somit ist 2PA auch mittels eines Zwischenschrittes nur sehr unwahrscheinlich.
- Foster et al. [45] berichten über eine Vielzahl an Zwischenzuständen in Hafniumdioxid. Über die Bandlücke von 5.7 eV sind nach deren Analyse mindestens 6 Zustände verteilt, die auf Grund von Fehlstellen und besetzten Zwischengitterplätzen unterschiedlicher Wertigkeiten zu Stande kommen. Mit einer derartigen Vielzahl an Niveaus kann sich in der Bestrahlung keine einzelne Resonanz oder Stufe ausbilden, was den graduellen Anstieg der LIDT ohne Stufe erklären kann.

4.2. UNTERSUCHUNGEN ZUR MPA AN $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ EINZELSCHICHTEN

Die Kombination dieser beiden Eigenschaften scheint MPA in HfO_2 mit den verwendeten Laserparametern auszuschließen. Die hier geprüften Intensitäten reichen nicht aus, um direkte Übergänge in das Leitungsband zu erzeugen. Der Durchbruch im Material an den lokalen Defekten tritt ein bevor ausreichende Intensitäten erreicht werden können. Da im Bereich der Ultrakurzpulslaser auch HfO_2 mit den elektronischen Modellen bzgl. der Zerstörschwelle beschrieben werden kann [26], scheint sich diese Erkenntnis nicht auf geringere Photonenenergien mit deutlich erhöhter Intensität zu übertragen.

Morphologie

Um die Untersuchungen an den $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschichten abzuschließen, werden hier die Morphologien der zerstörten Testpositionen verglichen. Genauso, wie bei der ermittelten Zerstörschwelle, ist in den folgenden Abbildungen (Abb.4.15-4.24) ein gradueller Übergang von sehr vereinzelt Kratern zu einer engen Verbindung von einzelnen Defekten zu einer größeren Fläche zu beobachten. Die Defektdichte nimmt mit dem Gehalt an Hafnium in den Kompositschichten zu. Eine grundsätzliche Veränderung der einzelnen Krater ist nicht ersichtlich. Es ist zu erwähnen, dass die Abschaltung der Bestrahlung bei jeder Messposition nach detektierter Zerstörung mitunter nicht sofort erfolgt sein muss. Nachdem eine Zerstörung aufgetreten ist, können noch 1-3 Laserpulse auf die bereits beschädigte Stelle getroffen sein. Die Aufnahme in Abb.4.20 kann als Beispiel für diesen Sachverhalt angenommen werden. Da das Streulicht Niveau, das für die Monitorierung während der Messung verwendet wird, keinen abrupten Anstieg bei der ersten minimalen Zerstörung zeigt, kann dieser Tatsache oft nicht abgestellt werden. Die Analyse der Morphologien ist natürlich davon beeinträchtigt. Auf den Proben dieser Untersuchung kann jedoch in der Morphologie neben der defektinduzierten Zerstörung keine weitere mögliche Zerstörungsursache identifiziert werden.

Da sich die Mischungen von $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ und $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ in ihrem Verhalten bzgl. der MPA als Teil des Zerstörungsprozesses stark unterschiedliche Verhalten haben, soll ein kurzer Vergleich der Zerstörmorphologien angestellt werden. Beide Probensätze basieren auf der Mischung mit SiO_2 und bei den Zerstörungen in den Schichten mit hohem SiO_2 Gehalt können sehr ähnliche Strukturen beobachtet werden. In beiden Fällen besteht die Zerstörung trotz unterschiedlicher Messwellenlänge in den Schichten mit hohem SiO_2 Anteil aus einzelnen kleinen Punktdefekten, die aus der Schichtmatrix herausgelöst wurden. Wie in Abb.4.11 und Abb.4.24 gezeigt, liegen die für Zerstörung verantwortlichen Defekte in SiO_2 sowohl für sichtbare ($\lambda = 532 \text{ nm}$) als auch UV Strahlung ($\lambda = 355 \text{ nm}$) vereinzelt mit ge-

4.2. UNTERSUCHUNGEN ZUR MPA AN $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ EINZELSCHICHTEN

ringer Dichte vor.

Im Übergang zu reinem Ta_2O_5 bzw. HfO_2 hingegen sind Unterschiede zu erkennen. Die Defektdichte innerhalb der Mischschichten wächst zum HfO_2 hin deutlich stärker an, als dies bei Ta_2O_5 der Fall ist. Wie diskutiert, sind die hohen Defektdichten für Ta_2O_5 in der Morphologie nicht zu erwarten, da hier der andere Zerstörmechanismus vorliegt. MPA war an lokalen Durchbrüchen in der Schicht zu beobachten. HfO_2 hingegen zeigte die in der Literatur dokumentierte hohe Anzahl an Defekten in der Schicht.

Abbildung 4.15: Hafniumdioxid Einzelschicht mit der Bandlücke 5.55 eV.

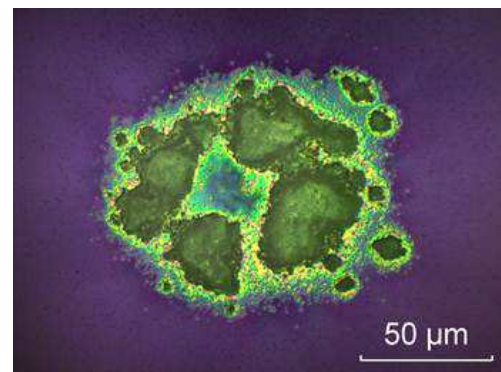


Abbildung 4.16: $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 5.67 eV.

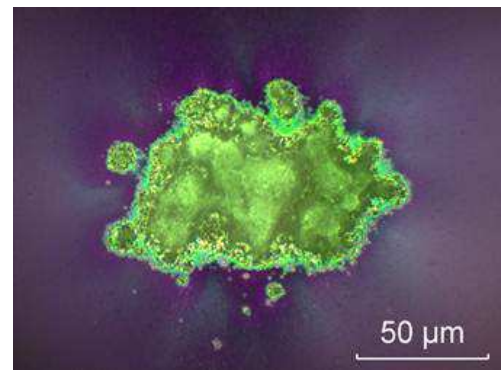
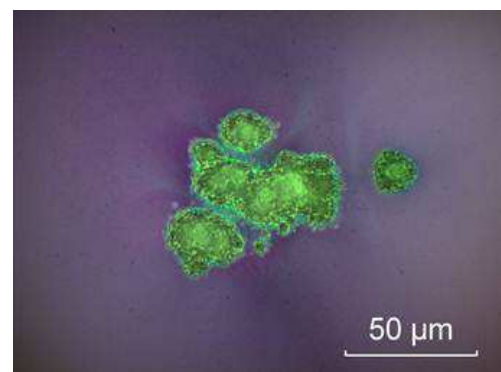


Abbildung 4.17: $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 5.74 eV.



4.2. UNTERSUCHUNGEN ZUR MPA AN $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ EINZELSCHICHTEN

Abbildung 4.18: $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 5.91 eV.

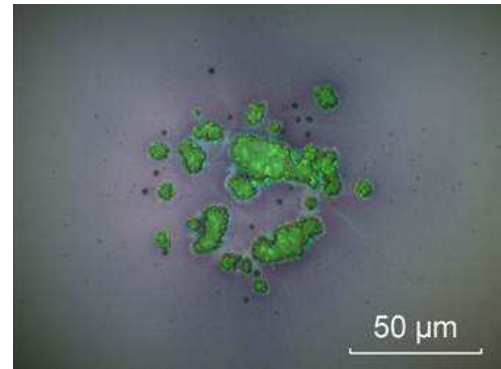


Abbildung 4.19: $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 6.04 eV.

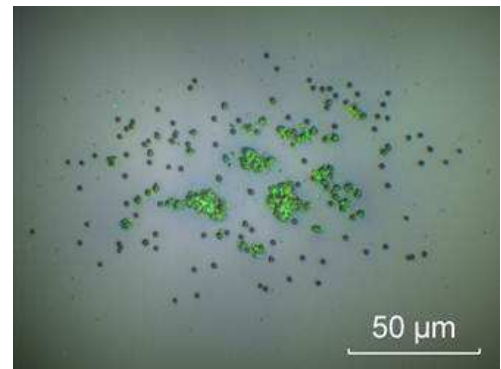


Abbildung 4.20: $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 6.19 eV.

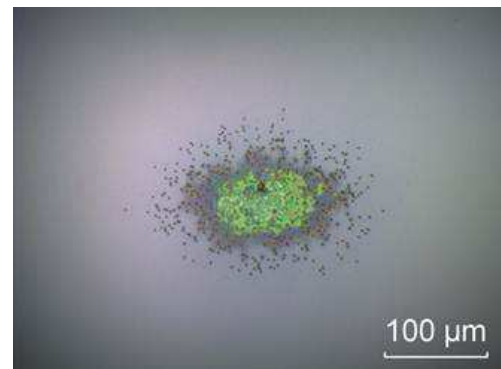
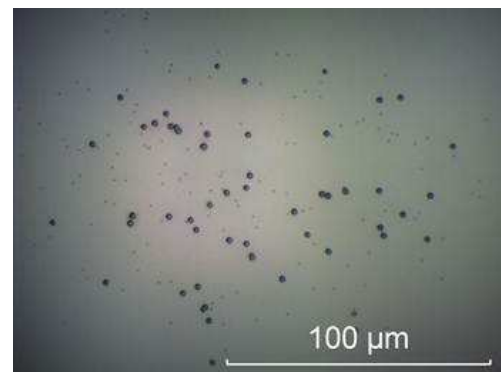


Abbildung 4.21: $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 6.29 eV.



4.2. UNTERSUCHUNGEN ZUR MPA AN $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ EINZELSCHICHTEN

Abbildung 4.22: $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 6.96 eV.

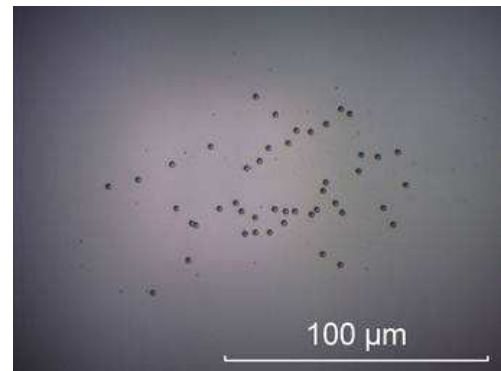


Abbildung 4.23: $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 7.33 eV.

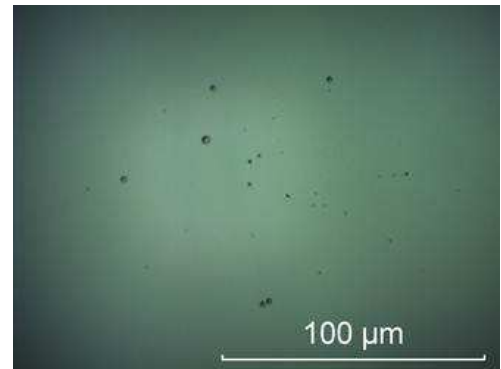
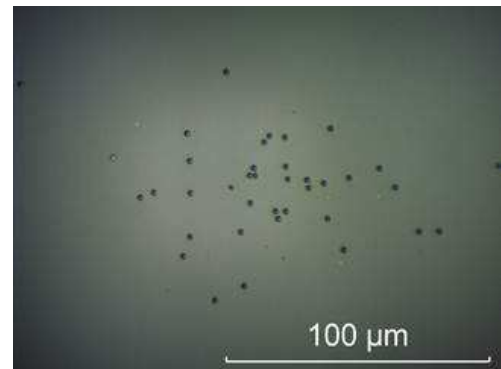


Abbildung 4.24: SiO_2 Einzelschicht mit nahezu keinem Anteil an HfO_2 .



4.3 Untersuchungen zur MPA in $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ Einzelschichten

Aluminiumoxid als hochbrechendes Material verhält sich als Testmaterial nicht so eindeutig wie die beiden vorher behandelten Materialien. Insgesamt wurden 3 Probensätze angefertigt, jeweils als Mischeinzelschichten in Kombination mit Siliziumdioxid. Jeder Probensatz stammt aus einer anderen IBS Beschichtungsanlage, so dass die jeweiligen Defektensembles nicht nur die Signatur der Materialkombination tragen. Dennoch ergibt sich so eine gewisse Statistik, aus der auf Basis von unterschiedlichen Defektensembles ersichtlich werden soll, ob in der Schichtmaterialkombination $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ ein Beitrag von 2PA zum Zerstörmechanismus bei Pulsdauern weniger Nanosekunden zu extrahieren ist. Zunächst wird analog zu den beiden vorherigen Abschnitten zu Ta_2O_5 und HfO_2 die geänderte spektrale Transmission auf Grund der Beimischung von SiO_2 in Abb.4.25(a) zusammen mit der jeweils ermittelten Bandlücke in Abb.4.25(b) gezeigt.

Auf Grund der Absorptionskante von Aluminiumoxid, die deutlich unterhalb von $\lambda = 200$ nm liegt, ist der Dynamikbereich, den man mit der Kombination mit Siliziumdioxid erhalten kann, der geringste von den für diese Arbeit untersuchten Materialien. Die Bandlücken für die jeweiligen Einzelschichten reichen von ca. 6.4 eV (Al_2O_3) bis ca. 7.5 eV (SiO_2). Der Übergang von 2PA zu 3PA für Bestrahlungen mit $\lambda = 355$ nm liegt für diese Probensätze demnach fast zentral bei ca. 7 eV. In Vorbereitung auf die Zerstörschwelenmessung wurden die Ein-

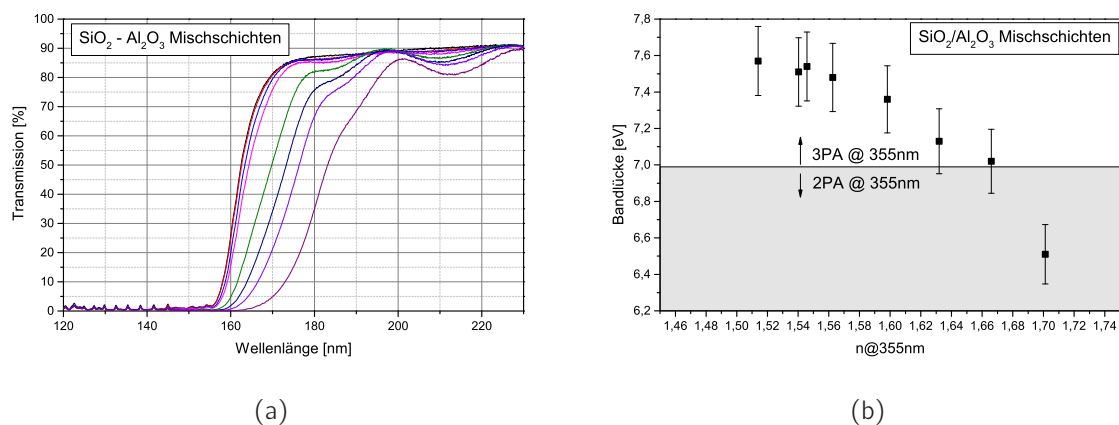


Abbildung 4.25: (a) Spektrale Transmission der unterschiedlichen Materialmischungen von SiO_2 und Al_2O_3 und (b) die nach Tauc ermittelte Bandlücke der einzelnen Proben (rechts).

4.3. UNTERSUCHUNGEN ZUR MPA IN $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ EINZELSCHICHTEN

zelschichten bzgl. ihrer Absorption bei $\lambda = 355 \text{ nm}$ vermessen. Dabei wurde durch Variation der Laserleistung die Intensität geregelt, um mögliche 2PA zu identifizieren. Zunächst wurde angenommen, dass 2PA bei der Probe, die die Resonanzbedingung mit einer Bandlücke von 7 eV erfüllt, am wahrscheinlichsten ist. Dies konnte aber experimentell nicht bestätigt werden. Bei der Analyse der übrigen Proben konnte aber gefunden werden, dass die reinen Al_2O_3 ohne SiO_2 -Anteil eine erhöhte Absorption bei erhöhter eingestrahelter Intensität aufweisen. Dargestellt sind diese Ergebnisse exemplarisch an zwei Proben in Abb.4.26(a). Auch hier liegt die Intensität während der Messung ca. 3 Größenordnungen unterhalb des Wertes, der bei einer Zerstörschwellenmessung erreicht wird. Demnach sind hier lediglich Zwei-Photonenprozesse hoher Effizienz zu beobachten.

Wie bei den Untersuchungen zu $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ wurde auch zu dieser Materialkombination eine Absorptionsmessung bei $\lambda = 266 \text{ nm}$ mit Intensitäten um 10^9 W/cm^2 an einem HR-Spiegel durchgeführt. Ebenfalls abseits der Resonanz für zwei-Photonen Übergänge, aber bei höheren Photonenenergien, konnte im Gegensatz zu der Spiegelschicht mit HfO_2 eine Zunahme der Absorption mit erhöhter Intensität gemessen werden. Dieses Ergebnis ist in Abb.4.26(b) dargestellt.

Basierend auf direkten Absorptionsmessungen kann Al_2O_3 als ein Material identifiziert werden, welches 2PA unter UV Bestrahlung zeigt. Selbst bei nur gering verringerter Bandlücke wird dies bei moderaten Intensitäten aber nicht mehr beobachtet. Der Einfluss von 2PA auf die Zerstörschwelle wird im Folgenden ebenfalls über die Resonanzbedingung bei $\lambda = 355 \text{ nm}$

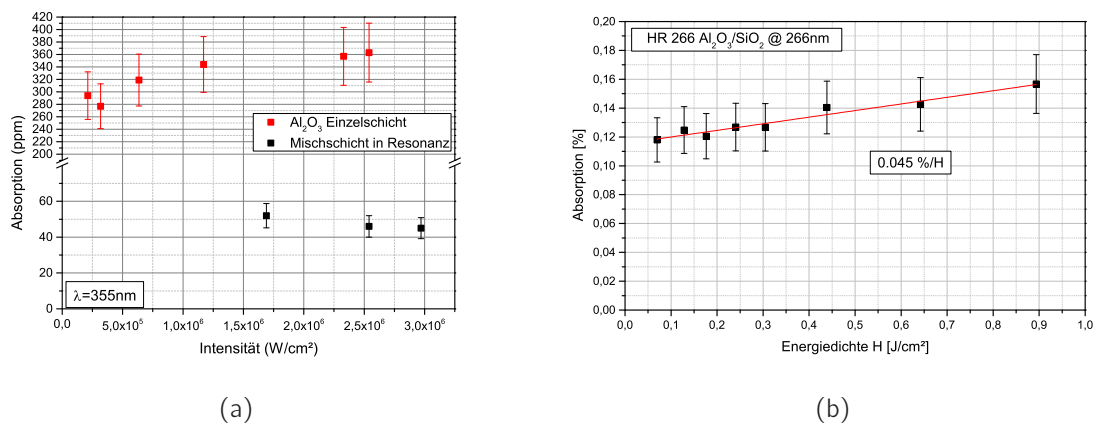


Abbildung 4.26: Absorption als Funktion der Intensität einer (a) $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ Mischschicht in Resonanz für 2PA sowie einer Al_2O_3 Einzelschicht und (b) in einem HR Spiegel für $\lambda = 266 \text{ nm}$ bestehend aus $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ bei $\lambda = 266 \text{ nm}$.

4.3. UNTERSUCHUNGEN ZUR MPA IN $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ EINZELSCHICHTEN

überprüft. SiO_2 in Kombination mit Al_2O_3 wurde an insgesamt 3 Probensätzen bzgl. der Zerstörschwelle analysiert. Die Ergebnisse sind den folgenden Graphiken (Abb.4.27) gezeigt. Wie in den Darstellungen der vorherigen Abschnitte, sind die Bereiche, die der 3PA zugeord-

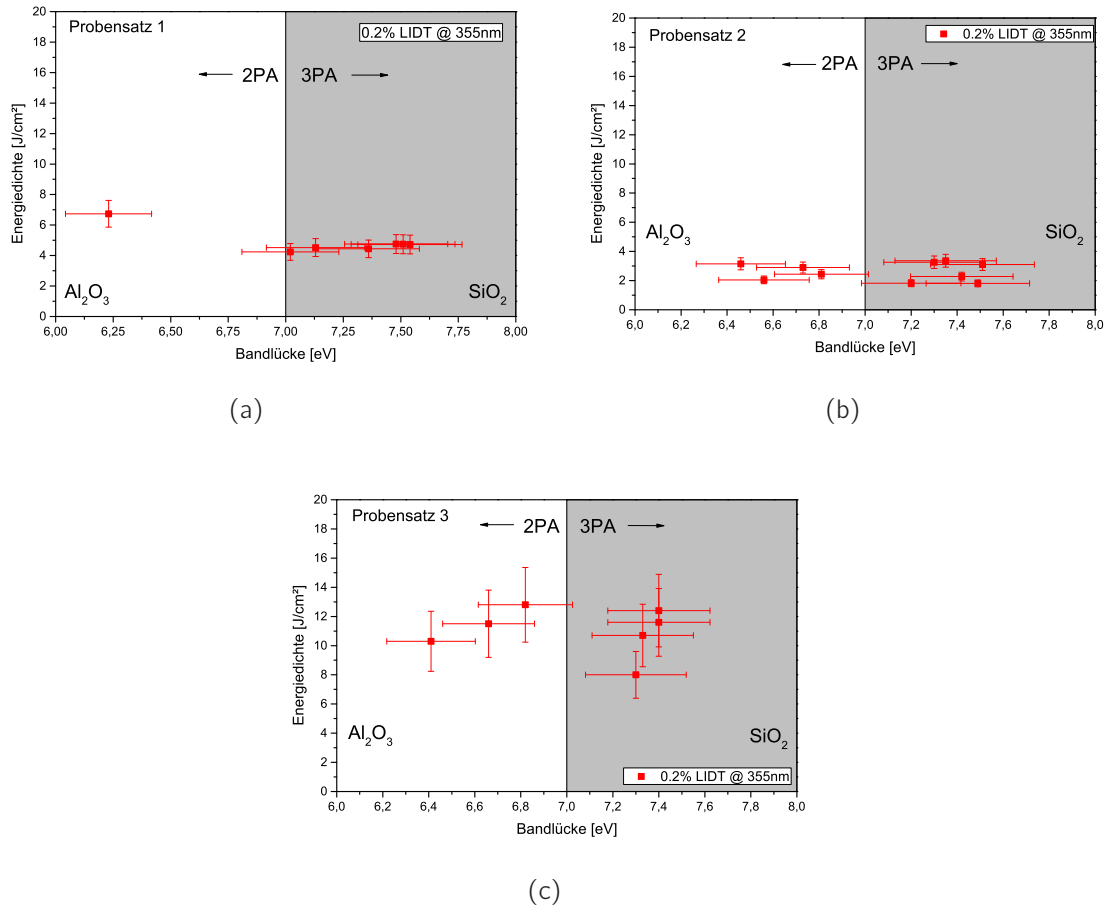


Abbildung 4.27: Zerstörschwelle (355 nm) als Funktion der Bandlücke der Mischmaterialien. (a) Probensatz 1, (b) Probensatz 2, (c) Probensatz 3.

net werden können, grau unterlegt. Die Messwerte für die Proben, die einen 2PA Prozess unterliegen, sind weiß gezeigt. Wir sehen unterschiedlichste Absolutwerte (von 1.8 J/cm² bis annähernd 13 J/cm²) und auch unterschiedliche Trends in der Gesamtmessung für eine Kampagne. In Abb.4.27(a) ist ein leichter Anstieg von SiO_2 zum Al_2O_3 zu erkennen, wohingegen sowohl Abb.4.27(b) und Abb.4.27(c) keinen Trend zeigen und innerhalb der Toleranz eine konstante Zerstörschwelle aufweisen, unabhängig von der Zusammensetzung der Beschichtung. Ohne abruptes Erhöhen oder Verringern der Zerstörschwelle, kann demnach auch hier kein Einfluss von 2PA auf die Zerstörschwelle experimentell beobachtet werden.

Für HfO_2 konnte dieses Ergebnis mit Berichten aus der Literatur bestätigt werden. Für Al_2O_3 hingegen war dies nicht möglich. Im UV zeigt diese Materialkombination zwar nicht-lineare Anteile in der Absorption, ein Zusammenhang zur Zerstörschwelle kann jedoch nicht hergestellt werden. Da allerdings drei Probensätze aus unterschiedlichen Beschichtungsprozessen (alle IBS) untersucht wurden und an keinem ein Beitrag von 2PA im Experiment bestätigt wurde, soll dies als Bestätigung an dieser Stelle angenommen werden. Darüber hinaus waren 2PA Anteile der Absorption abseits des reinen Al_2O_3 , also selbst mit geringem SiO_2 nicht evident. Ohne Unterstützung aus der Literatur für diese Schlussfolgerung, könnte ein Mischprozess für die Kombination dieser beiden Materialien ebenfalls eine erhöhte Anzahl an Zwischenniveaus und Relaxationskanälen in die Schicht einbringen.

Morphologie

Anders als bei der vorherigen Materialkombination beobachtet, zeigen die Morphologien der zerstörten Prüfstellen dieser Materialkombination keine systematische Entwicklung. Auch für $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ liegt eine defektinduzierte Zerstörung vor, sehr ähnlich zu den Beobachtungen auf den $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Proben mit großem SiO_2 -Anteil. Sehr vereinzelt bilden sich Krater in der Fläche aus, die vom Laserstrahl bedeckt wurde. Dieses Bild stellt sich aber für alle Materialmischungen ein und exemplarisch soll die Aufnahme einer Testposition von einer Probe mit sehr geringem Al_2O_3 Anteil in Abb.4.28 an dieser Stelle ausreichen.

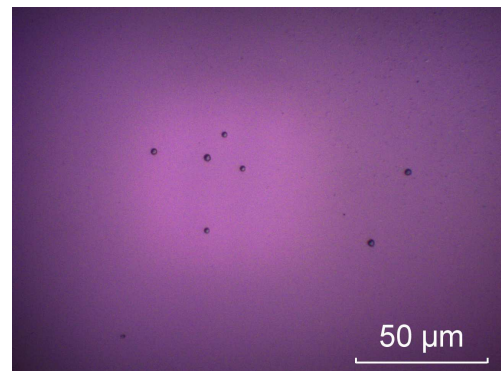


Abbildung 4.28: Zerstörung auf $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ Einzelschicht nach LIDT Test bei 355nm.

4.4 Schlussfolgerung

In diesem Kapitel ist anhand entsprechend hergestellter Probensätze der Einfluss von Mehrphotonenabsorption auf den laserinduzierten Zerstörvorgang in dielektrischen Schichten untersucht worden, die sich aus SiO_2 , HfO_2 , und Al_2O_3 Mischungen zusammensetzen. Als Beispiel wurde Tantalpentoxid in Kombination mit Siliziumdioxid angeführt. Ta_2O_5 ist im UV nicht transparent und kann somit nicht für diesen Spektralbereich genutzt werden. Es wurde jedoch als Beispiel für ein von Zweiphotonenabsorption stark beeinflusstes Zerstörverhalten herangezogen. Ebenfalls hat die direkte Absorptionsmessung eine nichtlineare Komponente gezeigt, die trotz niedriger Intensität nahe der Resonanzbedingung detektiert werden konnte.

Nach dieser Einführung sind die Messergebnisse der UV Materialien diskutiert worden. Im Fall von HfO_2 in Kombination mit SiO_2 konnte bei keiner Prüfwellenlänge nichtlineare Absorption beobachtet werden. Weder Absorptionsmessungen noch die Zerstörschwellenuntersuchungen konnten einen Hinweis auf MPA als Teil des Zerstörvorganges oder zumindest als zu beobachtenden Effekt liefern. Dennoch konnten Arbeiten aus der Literatur zur Halbleiterforschung herangezogen werden, um dieses Verhalten als spezifische Eigenschaft von HfO_2 zu erklären.

Für Aluminiumoxid hingegen sind die Resultate noch nicht vollständig verstanden. Auch hier konnte 2PA nicht als signifikant für die Zerstörvorgänge identifiziert werden. Lediglich als Bestätigung haben mehrere Probensätze diese Eigenschaft in Übereinstimmung gezeigt. Dennoch konnte bei Einzelschichten aus Al_2O_3 (gemessen bei $\lambda = 355$ nm) und einem hochreflektierenden Spiegel für $\lambda = 266$ nm bestehend aus $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ (gemessen bei $\lambda = 266$ nm) eine intensitätsabhängige Absorption experimentell gezeigt werden. Konzeptbedingt wurden die LIDT Experimente aber ausschließlich bei $\lambda = 355$ nm durchgeführt, da die berechnete Resonanzbedingung für die 2PA nur bei dieser etwas längerwelligen UV Strahlung erfüllt ist. Somit bleibt die Fragestellung nach dem dominanten Zerstörmechanismus in Al_2O_3 anhand von diesen unterschiedlichen Resultaten für $\lambda = 266$ nm und $\lambda = 355$ vorerst unbeantwortet.

5 Strahlungsinduzierte Defekte

Nachdem grundlegend die defektinduzierte Natur der Zerstörung von $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Beschichtungen in Kap.3 gezeigt wurde und im darauf folgenden Kap.4 Ergebnisse zum Einfluss der Zweiphotonenabsorption auf die Zerstörschwelle diskutiert worden sind, soll in diesem Abschnitt die Erzeugung zusätzlicher oder neuer Defekte in den Beschichtungen behandelt werden. Wie für synthetisches Quarzglas bereits von Natoli et al. [37] untersucht worden ist, stellt sich die Frage, ob zusätzliche Defekte durch UV Laserstrahlung erzeugt werden. Wenn solche zusätzlichen Defekte erzeugt werden, bewirken sie den Durchbruch im Material während einer späteren Zerstörung? Hierzu sind wiederum die drei vorher verwendeten Materialien SiO_2 , Al_2O_3 und HfO_2 untersucht worden. Bei der Bildung neuer Defekte in Form von Fehlstellen, Farbzentren oder verschobener Ladungsträger ist die applizierte Wellenlänge und das spezifische Material ausschlaggebend. Die elektronische Einordnung in die umgebende Matrix und die dadurch erzeugte lokalisierte Absorption ist als sehr spezifisch für die jeweiligen Dielektrika einzuordnen. Einen Überblick zu dieser Thematik für die drei in dieser Arbeit relevanten Materialien ist in Kap.1.4 gegeben.

Prinzipiell ist im Rahmen dieser Untersuchung keine Analyse der quantitativen elektronischen Struktur ausgeführt worden, wie es z.B. mittels Elektronenspinresonanz gemacht wird [38]. Stattdessen wurden anhand der aus der Einführung (Kap.1.2.1) bekannten Modelle zur defektinduzierten Zerstörung in dielektrischen Schichten die experimentell ermittelten Defektensembles analysiert und in Relation gesetzt. Dazu sind Daten für jedes Material und deren Kombination so ausgewertet worden, dass das Mehrpulsverhalten von Defektensembles in einer S-on-1 Zerstörschwellenmessung herangezogen werden konnte. Aus den Überlebenskurven unterschiedlicher Pulsanzahlen von Messungen an einer Probe kann die Entwicklung der einzelnen Defekte verfolgt werden. Zum einen liefert die Fitfunktion der Zerstörwahrscheinlichkeit über deren Koeffizienten eine Defektdichte [37, 20], und zum anderen kann bei der Auswertung dieser Wahrscheinlichkeiten ggf. das Auftreten neuer Defektklassen beobachtet werden [18].

Auf diese Weise werden Daten aus S-on-1 Messungen der Zerstörschwelle für 10 und 10.000 Pulse verglichen. Darüber hinaus ist es das Ziel, die Quantität der induzierten Defekte zu

vergleichen, wenn identische Proben mit Laserstrahlung bei 355 nm und 266 nm bestrahlt wurden [66]. Auch für diese Untersuchungen sind Einzelschichten als Probenmaterial gewählt worden. Es wurden jeweils die 3 reinen Oxide mit der Schichtdicke $8\lambda/4$ bei 266 nm und 3 Mischungen von jeweils 2 der Materialien mit derselben Schichtdicke auf synthetischem Quarzglas vermessen. Die Mischungen sind in einem Verhältnis 70/30 beschichtet worden, immer das hochbrechende Material mit dem höheren Anteil. Als Parameter für die Messung sind die Ergebnisse von Kap.3 herangezogen worden. Bei 266 nm wurde ein Strahldurchmesser von 60 μm und bei 355 nm von 120 μm verwendet. Beide Tests sind bei einer Repetitionsrate von 100 Hz durchgeführt worden, und die Halbwertsbreite der Pulsdauer lag bei 6 ns (355 nm) bzw. 5 ns (266 nm). Alle Proben wurden nach der Messung mittels DIC Mikroskopie untersucht und die Daten mit dem vorher verwendeten Modell nach Lamaignere [20] ausgewertet.

Für die Analyse zusätzlich generierter Defekte sind vor allem die reinen Materialien interessant. Für die reinen Oxide sind die reaktiven Sputterprozesse bzgl. der Oxidation der amorphen Schicht optimiert. In einem Mischprozess zur Herstellung der Kompositschichten kann nur mit einem festen Sauerstofffluss gearbeitet werden. Beide Materialien haben aber eine spezielle Sauerstoffaffinität und ggf. auch -Wertigkeit. Deshalb wird jedes reine Material, wenn für sich alleine beschichtet, mit einem speziellen Sauerstofffluss aufgebracht. Wie in Kap.1.4 erläutert wurde, sind die Mehrzahl der in den untersuchten Materialien auftretenden Materialfehler, sauerstoffbasierte Defekte. Es wird deshalb erwartet, dass nicht optimal oxidierte Beschichtungsmaterialien, wie es potentiell bei den hier untersuchten Mischschichten der Fall ist, keine minimale Defektdichte aufweisen. Ob und wie sich diese Tatsache auf die Zerstörschwelle auswirkt, wird mit den Ergebnissen im Folgenden diskutiert.

5.1 Defektensemble

Passt man die Zerstörwahrscheinlichkeit gemäß Gl.1.3 an, kann über die Fitparameter α und β eine Defektdichte extrahiert werden, die sich auf eine bestimmte Energiedichte bezieht (vgl. Gl.1.6). Für die Darstellung der Ergebnisse zu den UV induzierten Defekten sind 3 Messpunkte der Überlebenskurve verwendet worden, um eine Defektdichte zu errechnen. Da die Zerstörwahrscheinlichkeit $P(F)$ im Bereich kleiner Energiedichten (wenn $P(F)=0$) und im Bereich großer Energiedichten (wenn $P(F)=1$) einen verschwinden Dynamikbereich zeigt und nicht notwendigerweise durch die Fitfunktion beschrieben wird, sind jeweils Werte aus dem Bereich $2\% < P(F), < 98\%$ verwendet worden - explizit bei $P(F)=2\%$,

$P(F)=50\%$ und $P(F)=98\%$. Mit dem oben beschriebenen Ansatz des Vergleiches von Defektdichten für 10 und 10.000 Pulse, ist die entsprechende Darstellung für 355 nm und 266 nm, wie in Abb.5.1 gezeigt, zusammengestellt worden. In dieser Darstellung ist eine

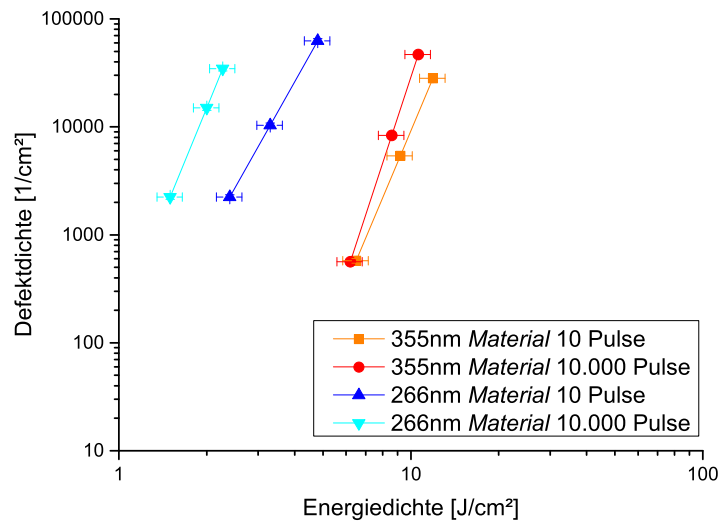


Abbildung 5.1: Defektdichte als Funktion der Energiedichte extrahiert aus der Fitfunktion zum Powerlaw-Modell nach Lamaignere [20]. Dargestellt sind Defektdichten für 10 und 10.000 Pulse aus Messungen bei 355 nm und 266 nm.

doppelt-logarithmische Skalierung gewählt. Als Fehlerbalken ist für die Energiedichte-Achse die Stabilität des Lasers angesetzt (Schwankungen auf Grund von Strahlagestabilität und Puls-zu-Puls Fluktuationen). Kalibrationsfehler der Pulsenergiemessung sind in diesem Fall nicht berücksichtigt worden, weil derselbe Fehler für alle Messungen eingehen würde und so lediglich einen konstanten Versatz für alle Daten bewirkt. Die Unsicherheit für die Defektdichte basiert auf der mittleren Korrelation von Messdaten mit der Fitfunktion, die mit 5% Unsicherheit eingeht. Die beiden rötlichen Datensätze geben das Verhalten für 355 nm wieder (orange - 10 Pulse & rot - 10.000 Pulse) und liegen für dieses Beispiel aufeinander. Es hat demnach für die verschiedenen Pulsanzahlen keine Veränderung der Defektdichte gegeben und man kann annehmen, dass 355 nm Strahlung keine zusätzlichen Defekte in diesem Material erzeugt. Zumindest sind keine zu beobachten, die einen Einfluss auf die Zerstörschwelle mit einem Pulshorizont von 10.000 Pulsen haben. Die bläulichen Kurven, geben das Verhalten für die Bestrahlung mit 266 nm wieder (dunkel - 10 Pulse & hell - 10.000 Pulse). In diesem Fall ist die jeweilige Defektdichte für 10.000 Pulse für alle drei

5.1. DEFECTENSEMBLE

Punkte bereits bei deutlich kleineren Energiedichten auf dem selben Level wie sie es für 10 Pulse bei höheren Energiedichten ist. Dieser Unterschied ist deutlich größer als das ange-setzte Fehlerbudget und kann somit als signifikant eingestuft werden. Im Folgenden sind nun die Ergebnisse für die drei reinen Oxide SiO_2 , Al_2O_3 und HfO_2 und deren Mischungen gezeigt, siehe Abb.5.2-5.7.

Abbildung 5.2: Defektdichte in SiO_2 Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.

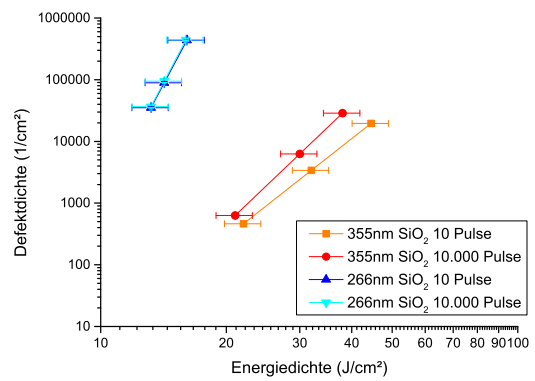


Abbildung 5.3: Defektdichte in $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.

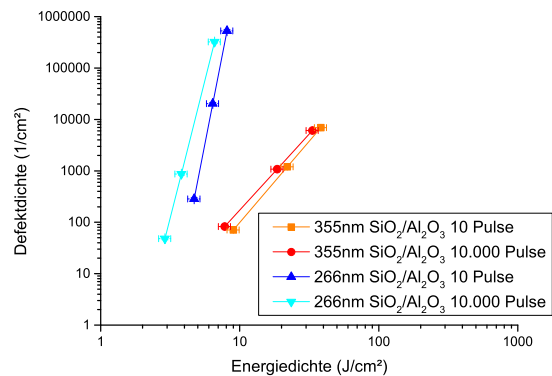


Abbildung 5.4: Defektdichte in Al_2O_3 Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.

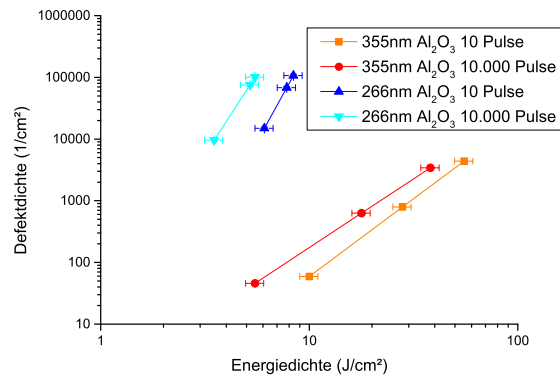
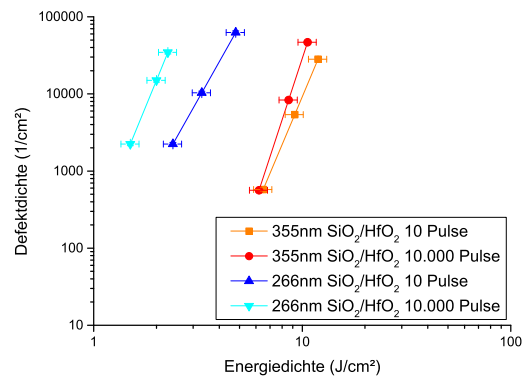


Abbildung 5.5: Defektdichte in $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.



Mit den Auswertungen der Entwicklung der Defektdichte als Funktion der eingestrahnten Energiedichte sollen zwei Punkte diskutiert werden.

- Gibt es einen signifikanten Abstand der Verläufe der Defektdichten für 10 und 10.000 Pulse?
- Zeigen die verschiedenen Materialien ein unterschiedliches Verhalten für 355 nm und 266 nm?

Liegen die linearen Verläufe (in doppel-logarithmischer Darstellung) für 10 und 10.000 Pulse innerhalb der Fehlergrenzen aufeinander, sind die Defektensembles durch die Laserbestrahlung unverändert. Das betreffende Schichtmaterial bildet keine weiteren Defekte, die die laserinduzierte Zerstörschwelle beeinflussen. Für SiO_2 (Abb.5.2) ist dies der Fall. Beide Verläufe zeigen sehr ähnliche bis identische Werte. Im Fall von HfO_2 (Abb.5.7) liegen die Defektensembles ebenfalls ähnlich für 10 und 10.000 Pulse bzgl. der Energiedichte. Die absolute Defektdichte hingegen hat sich für 10.000 Pulse deutlich verringert. Da es sich

5.1. DEFECTENSEMBLE

Abbildung 5.6: Defektdichte in $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2$ Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.

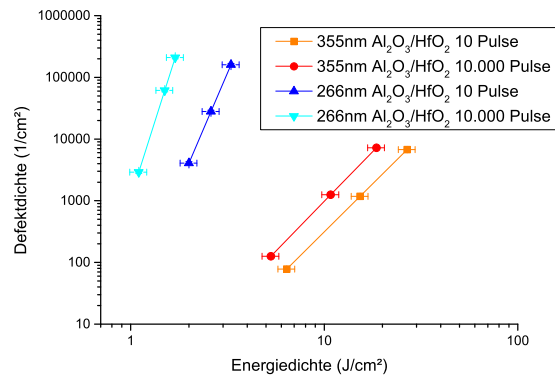
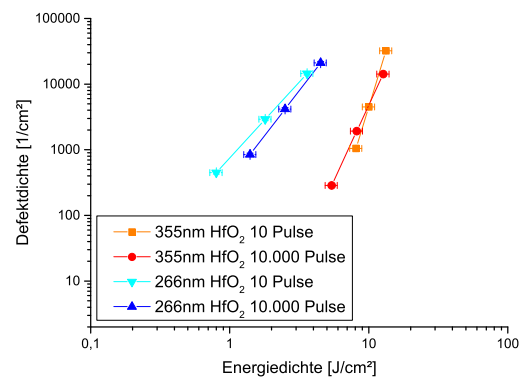


Abbildung 5.7: Defektdichte in HfO_2 Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.



hier um die Defekte handelt, die zur Zerstörung beitragen, ist dies jedoch zunächst kein Ergebnis, welches der Modellannahme entspricht. Dieses Resultat kann durch die Erzeugung einer neuen Art von Defekten erklärt werden, die dann mit geringerer Dichte aber auch bei geringerer Energiedichte zur Zerstörung führt. Dies wird im folgenden Abschnitt (Kap.5.2) diskutiert.

Bei Al_2O_3 (Abb.5.4) und dessen Mischung mit HfO_2 (Abb.5.6) ist das gegenteilige Verhalten zu beobachten. Für beide Wellenlängen ist eine Veränderung der Defektdichte zu erkennen. Ähnliche Werte werden bereits bei deutlich geringeren Energiedichten erreicht, wenn die Schicht mit 10.000 Pulsen an Stelle von 10 Pulsen bestrahlt wurde. Die Bestrahlung mit UV Laserstrahlung bewirkt demnach eine Erhöhung der Defektdichte, die maßgeblich für die Zerstörung der Schichtmatrix ist. Da dies für beide Wellenlängen zu beobachten ist, muss die notwendige Photonenenergie für die Erzeugung der zusätzlichen Einschlüsse unterhalb von 3.5 eV liegen. In Kap.1.4 sind die Defektsorten aufgeführt, die aus der Literatur heraus als relevant eingestuft wurden. Für Aluminiumoxid scheinen die bekannten F-Zentren auf Grund der Bildungsenergie (siehe Tab.1.3), nicht die verantwortlichen Defekte für laserin-

duzierte Zerstörung bei 355 nm und 266 nm zu sein. Dennoch bilden sich weitere Defekte heraus. Um diese nun zu identifizieren, sind weitere Untersuchungen erforderlich.

Bei der Mischung mit HfO_2 hingegen kann man einige Kandidaten identifizieren, die mit moderaten Photonenenergien (≤ 3.5 eV) angeregt werden können. Besonders ein Kompositschichtmaterial kann eine unterstöchiometrische Oxidation aufweisen. Da Hafniumdioxid u.a. mit Sauerstoff basierten Defekten durchsetzt sein kann, kann in einem Mischmaterial, das u.a. aus HfO_2 besteht, auch dieser Defekt vermehrt auftreten. Auch für $\text{Al}_2\text{O}_3/\text{HfO}_2$ ist für 266 nm eine verringerte Defektdichte zu beobachten, was ebenfalls im folgenden Abschnitt thematisiert wird.

Als dritte Kategorie von Materialien ist nun die Mischung $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ (Abb.5.3) und $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ (Abb.5.5) zu nennen. Diese Materialien zeigen keine signifikante Veränderung der Defektdichte für 355 nm, dennoch aber für 266 nm. Während die Veränderung der Defektdichten bei 355 nm innerhalb der Breite der Fehlerbalken liegt, zeigt die Defektdichte bei 266 nm eine deutliche Verschiebung zu kleineren Energiedichten. Während die reinen Materialien dies nicht zeigten, ist nun bei den Mischungen ein Einfluss der Pulsanzahl auf die Defektdichte zu beobachten. Auch SiO_2 ist z.B. mit ODCs (Oxygen Deficiency Center) von Sauerstoff-basierten Fehlstellen oder Defekten durchsetzt. Demnach kann hier ebenfalls ein Stöchiometrieproblem für den Fall der Mischung auftreten. Allerdings sei bereits hier erwähnt, dass das Beimischen von SiO_2 zu HfO_2 als hochbrechende Schicht einen deutlich positiven Einfluss auf die Zerstörschwelle zeigt. Dies wird im folgenden Kapitel erörtert werden.

Zusammenfassend kann für diese Auswertung gesagt werden, dass die reinen Materialien Al_2O_3 und HfO_2 eine Abhängigkeit der Defektdichte von der applizierten Dosis zeigen. Ersteres ist durch eine ähnliche Defektdichte bei bereits kleinerer Energiedichte gekennzeichnet, wenn eine höhere Dosis eingestrahlt wurde. HfO_2 hingegen zeigt Hinweise auf die Bildung einer neuen Klasse von Defekten.

In Tab.5.1 sind die Größen der Defektdichten aufgeführt. Zunächst wird deutlich, dass die Anzahl der Defekte nicht die Zerstörschwelle bestimmt. Al_2O_3 liegt mit seinen Einschlüssen deutlich unterhalb der Werte von SiO_2 . Auch zeigt Al_2O_3 einen sehr deutlichen Zuwachs an Defekten, auf Grund der höheren Photonenenergien. Mit einem Zuwachs von mehr als 2 Größenordnungen ist dies die deutlichste Charakteristik für diesen Vergleich. Dennoch zeigen HR-Spiegel, die mit $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ hergestellt werden, tendenziell eine höhere Zerstörschwelle als solche mit $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ (laut LZH Datenbank für Zerstörschwellenwerte von UV HR-Spiegeln, z.B.[67]).

5.2. DEFEKTKLASSEN

Material	Defektdichte [$1/\text{cm}^2$]	
	355 nm @ 10 Pulse	266 nm @ 10 Pulse
SiO ₂	460	35230
HfO ₂	1060	840
Al ₂ O ₃	60	14940

Tabelle 5.1: Gerundete Defektdichten für die drei reinen Oxide bei 355 nm und 266 nm-errechnet anhand der Energiedichte der 2% LIDT und 10 eingestrahlenen Pulsen.

5.2 Defektklassen

Aus Kap.3 ist ersichtlich geworden, weshalb in der Norm [49] ein nicht zu unterschreitender minimaler Strahldurchmesser gefordert wird. Da eine Messung zur Bestimmung der laserinduzierten Zerstörschwelle nur einen sehr begrenzten Anteil der Gesamtoberfläche einer Optik prüft, muss der Strahldurchmesser so gewählt sein, dass die speziell vorhandene Defektdichte durch den Prüfstrahl repräsentativ abgedeckt ist. Bei einer Probe mit dem Durchmesser 25 mm und einer Standardmessung bei einem Strahldurchmesser von 200 μm beträgt die Abdeckung ca. 1 %. Bei halbiertem Strahldurchmesser muss die vierfache Anzahl an Prüfpositionen bestrahlt werden, um die gleiche Abdeckung zu erreichen. Mit diesem Ansatz ist dennoch nicht gewährleistet, dass das vorliegende Defektensemble mit dem Strahl hinreichend abgedeckt ist.

Es wurde ebenfalls bereits erläutert (siehe Kap.1.2 in Abb.1.3), dass die Modelle zur defektinduzierten Zerstörung u.U. verschiedene Defektklassen in der Darstellung der Zerstörungswahrscheinlichkeit als Funktion der Energiedichte aufdecken. Arbeiten, die Ergebnisse zu diesem Thema behandelt haben, sind in der Regel mit einem kleinen Strahldurchmesser durchgeführt worden. Dies soll eine hohe Sensitivität für unterschiedlichste Defektarten ermöglichen, da große Strahldurchmesser mit ihrer Abdeckung von vielen Defekten nur ein gefaltetes Ergebnis wiedergeben [15, 68]. Für eine solche Analyse können die Messdaten der bereits diskutierten Zerstörschwellenmessung herangezogen werden. Dennoch sind die innerhalb dieser Arbeit ermittelten Daten mit größeren Strahldurchmessern erzeugt worden. Basierend auf den Ergebnissen in Kap.3 wurden die Strahldurchmesser mit Bedacht gewählt.

Eine komplette Analyse der Daten, die zur Erzeugung zusätzlicher Defekte in den Einzelschichten des vorherigen Abschnitts diskutiert wurden, sollte prüfen, ob diese Daten ggf. eine Entwicklung der Defektklassen zeigen. Mit den verwendeten Strahldurchmessern von 60 μm (bei 266 nm) und 120 μm (bei 355 nm) war dies nicht zu erwarten. Nachdem die Entwicklung

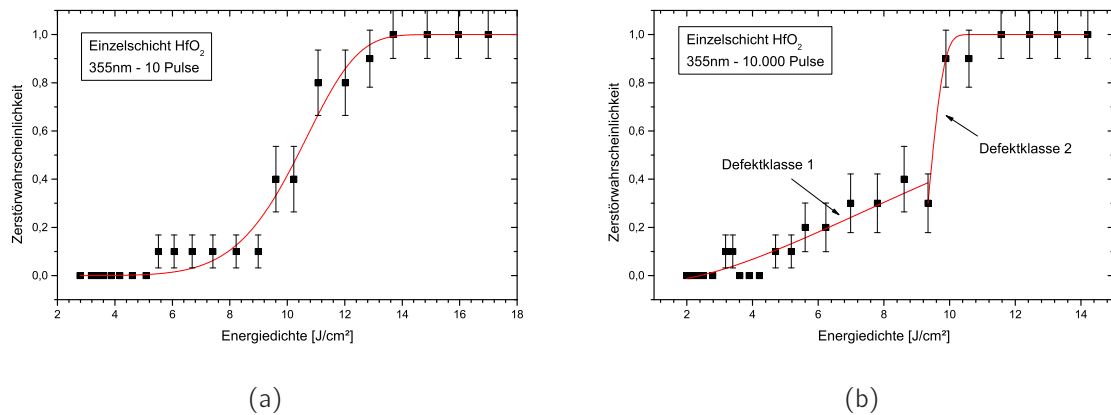


Abbildung 5.8: Zerstörwahrscheinlichkeit der HfO₂ Einzelschicht bei 355 nm. (a) nach 10 Pulsen ist die Charakteristik stetig und deutet auf eine Klasse von Defekten hin während nach 10.000 Pulsen (b) sich eine zweite Defektklasse herausgebildet hat.

der Defektdichten mit der Bestrahlungsdosis einige Hinweise auf eine zusätzliche Defektklasse gegeben hat (HfO₂ für 355 nm und 266 nm & SiO₂/Al₂O₃ und HfO₂/Al₂O₃ bei 266 nm), konnte dies nur für HfO₂ in den Überlebenskurven der Messungen bei 355 nm bestätigt werden. Diese sind in Abb.5.8 aufgeführt. Während nach 10 Pulsen (siehe Abb.5.8(a)) ein Fit den gesamten Messbereich sehr gut beschreibt (Korrelation von 97,8%), wird für die Daten nach 10.000 Pulsen eine zweite Funktion benötigt, um die Daten in ähnlicher Übereinstimmung zu beschreiben (siehe Abb.5.8(b)). Über diesen einen Fall hinaus konnte mit den verwendeten Strahldurchmessern keine weitere Aufspaltung der Defektklassen beobachtet werden. Nur für Hafniumdioxid zeigen sowohl die ermittelten Defektdichten als auch die Defektklassen der Überlebenskurven neu formierte Defekte, die während der Bestrahlung generiert werden und das Zerstörverhalten beeinflussen.

5.3 Zusammenfassung zur Defekterzeugung

In den Arbeiten zu strahlungsinduzierten Defekten sind die drei oxidischen Dielektrika SiO₂, Al₂O₃ und HfO₂ und deren Mischungen als Einzelschichten untersucht worden. Inwieweit die drei Materialien bei erhöhter Dosis eine erhöhte Defektdichte zeigen, ist diskutiert worden. Möchte man alle 6 Materialien in Relation setzen, sollte dies über den Parameter der Bandlücke geschehen. Absolutzahlen von Defektdichten sind sehr materialspezifisch und müssen

5.3. ZUSAMMENFASSUNG ZUR DEFEKTERZEUGUNG

nicht notwendigerweise mit dem Level der Zerstörschwelle korrelieren. Es kann eine hohe Anzahl an Defekten vorliegen, bei denen eine hohe Energiedichte nicht zu einem Durchbruch führt. Hingegen kann eine relativ geringe Anzahl an Defekten, je nach Beschaffenheit, dennoch zu einer geringen Zerstörschwelle führen. Dementsprechend sind die absoluten Werte jeweils für ein spezielles Material und seinen Herstellungsprozess zu bewerten.

In Abb.5.9 sind die Zerstörschwellen der 6 unterschiedlichen Einzelschichten für beide Wellenlängen als Funktion der Bandlücke aufgetragen. In beiden Fällen sind die Verläufe für 10 und 10.000 Pulse in die Graphik aufgenommen. Bei beiden Wellenlängen und Pulsanzahlen ist generell ein Anstieg der Zerstörschwelle vom Material kleinster Bandlücke (HfO_2) hin zu SiO_2 (größte Bandlücke) zu beobachten. Der maßgebliche Unterschied ist aber, dass bei 355 nm alle Materialien bis auf Siliziumdioxid auf einem Niveau liegen. Innerhalb des angesetzten Fehlerbudgets sind keine signifikanten Abweichungen vom Mittelwert (ca. 6.1 J/cm^2 für 10 Pulse & ca. 4.5 J/cm^2 für 10.000 Pulse) zu erkennen. Die Schichten sind als Einzelschichten für die Prüfstrahlung weitestgehend transparent, so dass das Substrat signifikant beitragen kann. Wenn die Politur bzw. das Substratmaterial nicht von höchster Qualität sind, kann dies die Ergebnisse auf das Niveau der Oberfläche herabsetzen. In diesem Fall zeigen die superpolierten Substrate eine eigene Zerstörschwelle von mehr als 40 J/cm^2 bei 355 nm. Somit kann dieser Effekt für die vorliegenden Messungen ausgeschlossen werden. Anders als bei 355 nm zeigen die Ergebnisse für 266 nm einen stetig ansteigenden Verlauf zu größeren Bandlücken hin. Obwohl in den vorhergehenden Kapiteln in Resonanz keine Zweiphotonenabsorption als treibender Mechanismus für den Zerstörprozess identifiziert werden

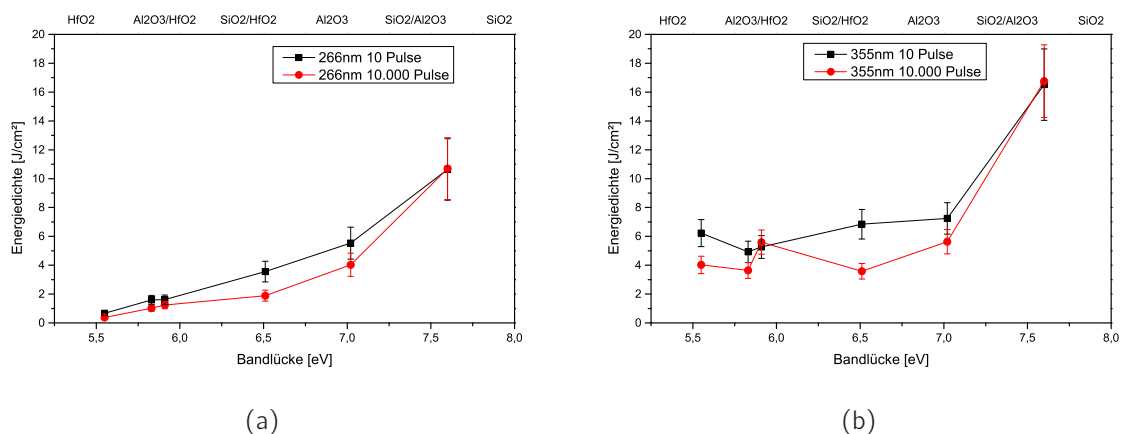


Abbildung 5.9: Laserinduzierte Zerstörschwelle als Funktion der Bandlücke bei (a) 266 nm und (b) 355 nm.

5.3. ZUSAMMENFASSUNG ZUR DEFEKTERZEUGUNG

konnte, zeigen diese Materialien bei 266 nm ein Verhalten, das mit deren elektronischen Strukturen korreliert.

5.3. ZUSAMMENFASSUNG ZUR DEFEKTERZEUGUNG

6 Materialmischungen in HR-Designs

In den vorangegangenen Kapiteln sind einige grundlegende Eigenschaften der laserinduzierten Zerstörung von dielektrischen, optischen Beschichtungen untersucht worden. SiO_2 , HfO_2 und Al_2O_3 wurden bzgl. ihres Leistungsvermögens bei der Wechselwirkung mit gepulster UV Laserstrahlung im Bereich von wenigen Nanosekunden überprüft. Es wurde ein starker Einfluss der in den Schichten lokalisierten Defekte festgestellt, und obwohl zwei der drei Materialien nichtlineare Absorption zeigen, konnte diese nicht als maßgeblicher Beitrag zum Zerstörprozess identifiziert werden. Diese Defekte sind entweder durch den Herstellungsprozess bereits vorhanden, oder sie werden durch die applizierte Laserstrahlung in der Matrix induziert. Bis auf eine Messreihe wurden alle Untersuchungen an Einzelschichten durchgeführt. Deshalb sind einige unterschiedliche Schichtdesigns ermittelt und hergestellt worden, um diese Ergebnisse in die Anwendung zu tragen. Für diesen Schritt wurden im Rahmen des Forschungsprojekts Tailor [69] hochreflektierende Spiegel gewählt. Für beide Wellenlängen, die in dieser Arbeit für die Untersuchungen herangezogen wurden, sind 3 Proben hergestellt worden, die die drei Materialien im Schichtsystem enthalten. Darüber hinaus wurde die Möglichkeit der Mischung von zwei Oxiden ausgenutzt, um die Zerstörschwelle zu optimieren. Alle Schichtstapel wurden auf synthetischem Quarzglas aufgebracht und vermessen.

Als Ausgangspunkt für diesen Test wurden HR-Spiegel in einem $\lambda/4$ -Design bestehend aus SiO_2 und HfO_2 in einem IBS-Prozess hergestellt. Zur Optimierung wurde die hochbrechende Schicht variiert. Konkret wurde dem HfO_2 entweder SiO_2 oder Al_2O_3 beigemischt. Ziel war es, die Charakteristika aus Kap.4 auszunutzen und darüber hinaus die Defektensembles dahingehend zu verändern, dass sie erst bei höheren Energiedichten eine Zerstörung in der Schicht hervorrufen. Dieser Ansatz wurde für 355 nm und 266 nm verfolgt, und die Resultate werden im Folgenden gezeigt.

6.1 HR-Spiegel für $\lambda = 355\text{nm}$

Mit HfO_2 als sehr gängiges hochbrechendes Material für dielektrische Wechselschichtsysteme soll die Referenz erstellt werden, auf die sich eine Optimierung auf Grund der Einzelschichtuntersuchungen beziehen. Alle HR Spiegel für diesen Abschnitt sind in der gleichen IBS Beschichtungsanlage hergestellt worden und beinhalten somit u.a. das Defektensemble, welches für diese Maschine charakteristisch ist. Erzielte Unterschiede können dementsprechend auf die Veränderung des Materials und der Schichtabfolge zurückgeführt werden. Für die Darstellung der Ergebnisse kann je nach Perspektive ein unterschiedlicher Wert von Interesse sein. Natürlich hat maßgeblich die Anwendung ein Interesse an einem angewandten Schichtdesign und seiner Leistungsfähigkeit. Somit ist die Energiedichte, die die 0% Zerstörschwelle (oder annähernd 0%) repräsentiert, der relevante Wert. Da einzelne Datenpunkte die Wahrscheinlichkeitswerte 0 und 1 stark beeinflussen können, zeigen sich Werte zwischen 0 und 1 für diese weniger anfällig. Durch einzelne Messpunkte kann sich die Wahrscheinlichkeit leicht von 0 bzw. 1 verändern. Leichte Varianzen von Werten zwischen 0 und 1 sind für das Anpassen der Modellfunktion an die Messdaten hingegen nur von geringer Auswirkung. Speziell hat dies Einfluss auf die Stetigkeit der charakteristischen Zerstörkurve. Wird die 0% (bzw. 0.2%) Zerstörwahrscheinlichkeit dargestellt, kann auf Grund der statistischen Natur des Messverfahrens eine geringere Energiedichte als Schwellwert für eine bestimmte Pulsanzahl auftreten, als dies für eine Klasse von Messdaten höherer Pulsanzahl der Fall ist. Aus diesem Grund wird für die Ergebnisse nicht nur die 0.2% Zerstörschwelle, sondern zusätzlich der 50% Wert dargestellt. Diese Werte sind ebenfalls von Carr et al. [34] zur Diskussion gewählt worden.

Ziel ist es nun, durch eine Veränderung des hochbrechenden Materials das intrinsische Defektensemble so zu verändern, dass das gesamte Schichtsystem eine erhöhte Zerstörschwelle aufzeigt. Da insbesondere im UV die Zerstörschwelle nicht zwangsläufig mit der Lebensdauer korreliert, soll so dennoch zumindest ein Ansatz geschaffen werden, der Optiken höchster Lebensdauer für Hochleistungslaser im UV ermöglichen könnte. Die Veränderung der hochbrechenden Schicht muss sich jedoch so gestalten werden, dass gleiche optische Übertragungseigenschaften gegeben sind. Deshalb werden an dieser Stelle zwei Varianten geprüft. Zum einen wird Al_2O_3 dem HfO_2 beigemischt und zum anderen SiO_2 . Natürlich sind deshalb mehr Schichtpaare erforderlich, um dieselbe Reflektivität zu erreichen. Alle drei Proben wurden wie zuvor in dieser Arbeit in einem 10.000-on-1 Verfahren bzgl. der Zerstörschwelle vermessen. Die charakteristische Zerstörkurve ist für 0.2% in Abb.6.1(a) und 50% in Abb.6.1(b) gezeigt. Nach einem Ausgangswert von 3.7 J/cm^2 bei 10.000 Pulsen für

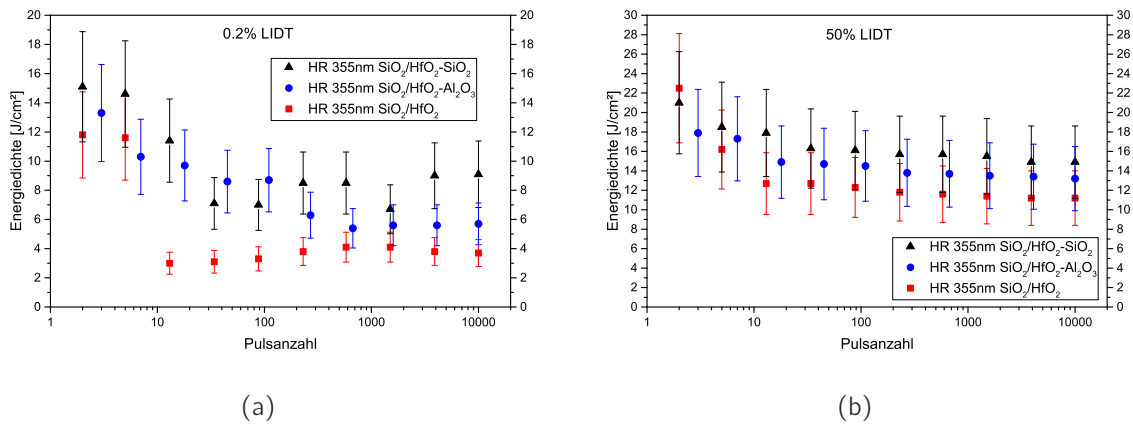


Abbildung 6.1: Charakteristische Zerstörkurve für 3 HR-Spiegel Designs. Jeweils die hochbrechende HfO_2 -Schicht wurde durch Beimischung von Al_2O_3 und SiO_2 verändert. Gezeigt ist die Energiedichte (a) zur 0.2% und (b) zur 50% Zerstörwahrscheinlichkeit.

den HR-Spiegel mit reinem HfO_2 konnte über die Mischung mit Al_2O_3 und $5.7 \text{ J}/\text{cm}^2$ eine Zerstörschwelle von $9.1 \text{ J}/\text{cm}^2$ für die Mischung mit SiO_2 erreicht werden. Dies entspricht einer Erhöhung um den Faktor 2.5. Entgegen den Ergebnissen in Kap.5 zeigen die unterschiedlichen Mischungen im Verbund des Mehrschichtsystems sehr wohl eine veränderte Zerstörschwelle. Als gravierender Unterschied ist dazu zu bemerken, dass bei Einzelschichtuntersuchungen keine Schichtübergänge zu berücksichtigen sind. Übergänge sind auf Grund der Prozessführung in der Beschichtungsanlage und des Materialwechsels eine prädestinierter Ort für zusätzlich Defektbildung. Es ist gut möglich, dass die Materialmischungen eine Verbesserung des Materialüberganges ermöglichen und die Anwachszone des Übergangs homogener gestaltet wird.

Generell ist ein deutlicher Zuwachs der Zerstörschwelle zu verzeichnen. Die Defektensamples sind durch die Mischung der Dielektrika derart verändert worden, dass der Durchbruch im Material erst bei deutlich höheren Energiedichten auftritt. Wo die Veränderung des Ensembles lokalisiert ist, wird Gegenstand weiterer Untersuchungen sein müssen.

Morphologie

In der Analyse der zerstörten Positionen und deren Morphologie konnte kein signifikanter Unterschied unter den drei Proben festgestellt werden (siehe Abb.6.2). Es handelt sich prinzipiell um eine Defekt-induzierte Zerstörung, die aber auf Grund der Dichte der Defekte

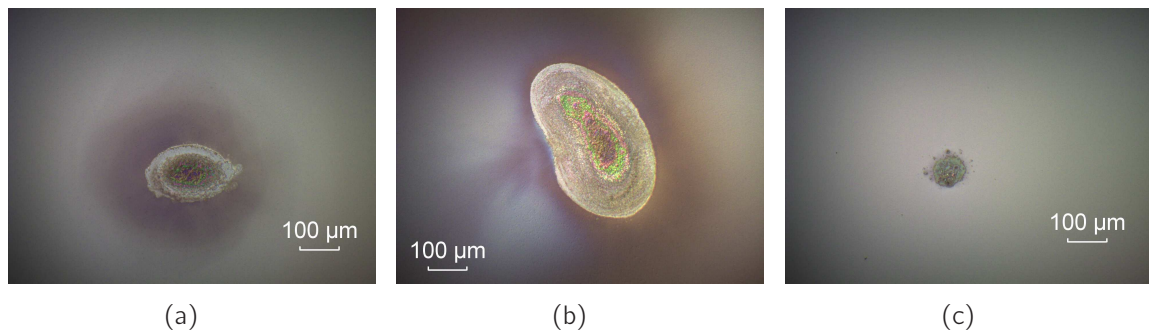


Abbildung 6.2: Charakteristische Zerstörungen an den Testpositionen der HR 355nm Proben. (a) $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$, (b) $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ und (c) $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2\text{-SiO}_2$.

als ein zusammenhängender Bereich erscheint. Diese bildgebende ex-situ Analyse eröffnet zudem keinerlei Tiefeninformation. Zur Überprüfung des Einflusses der Schichtübergänge müsste ein spezieller Probensatz erstellt oder weitere Verfahren hinzugezogen werden.

6.2 HR-Spiegel für $\lambda = 266\text{nm}$

Der gleich Probensatz von HR-Spiegeln wurde zusätzlich für 266 nm hergestellt und vermessen. Es handelt sich ebenfalls um drei Designs, von denen jeweils 2 mit einer Beimischung von Al_2O_3 bzw. SiO_2 im hochbrechenden HfO_2 hergestellt wurden. Die Untersuchungen an Einzelschichten haben keine Zweiphotonenabsorption als Bestandteil des Zerstörprozesses ergeben. Dennoch wurde 2PA an einzelnen Proben bei 266 nm nachgewiesen. Da als Nachweis für die 2PA eine Resonanzbedingung ausgenutzt werden sollte, konnten diese Experimente nicht bei der höheren Photonenenergie bei 266 nm durchgeführt werden. Außerdem hat sich während der Untersuchung zu strahlungsinduzierten Defekten gezeigt, dass die Zerstörschwelle der Einzelschichten bei 266 nm mit deren Bandlücke skaliert. Folglich hat die Herstellung dieser Testspiegel nicht nur auf die Veränderung des Defektensembles abgezielt. Da HfO_2 das Material mit der geringsten Bandlücke ist, bedeutet eine Beimischung der anderen beiden Dielektrika eine Erhöhung der Bandlücke. Setzt sich der Effekt auf die Zerstörschwelle für Mehrschichtsysteme fort, ist der Einfluss von elektronischen Prozessen auf die Zerstörung bei 266 nm wieder in Betracht zu ziehen. Die Messergebnisse sind in Abb.6.3 ebenfalls mit der 0.2 % und 50 % Wahrscheinlichkeit gezeigt. Bei dieser kürzeren Wellenlängen fällt der Zuwachs an Energiedichte, die zur Zerstörung führt, noch deutlicher aus. Ausgehend von 0.3 J/cm^2 bewirkt das Beimischen von Al_2O_3 einen Anstieg um mehr als das 7-fache auf 2.3 J/cm^2 . Ersetzt man Al_2O_3 mit SiO_2 ergibt sich ein Gesamtzuwachs

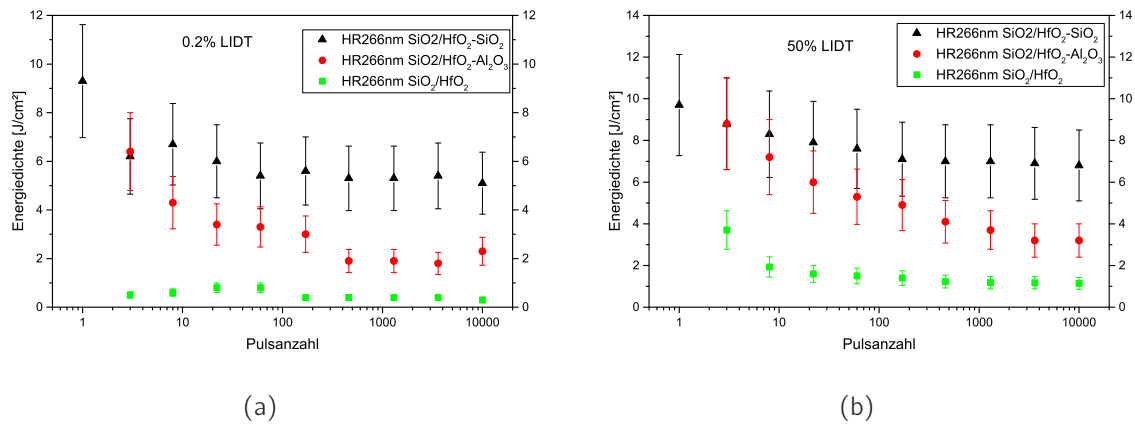


Abbildung 6.3: Charakteristische Zerstörkurve für 3 HR-Spiegel Designs. Jeweils die hochbrechende HfO_2 -Schicht wurde durch Beimischung von Al_2O_3 und SiO_2 verändert. Gezeigt ist die Energiedichte (a) zur 0.2% und (b) zur 50% Zerstörwahrscheinlichkeit.

um den Faktor 16 auf $5.1 \text{ J}/\text{cm}^2$. Um dies auch in der Quantität einordnen zu können, sollen die Ergebnisse der vorangegangenen Kapitel hinzugezogen werden:

Über HfO_2 ist bekannt, dass innerhalb der Bandlücke eine Vielzahl von Defekten zu Zwischenzuständen führen, die eine schnelle und effiziente Relaxation von jeder Anregung ermöglichen [45, 46]. Bevor 2-Photonenprozesse stattfinden können, ist eine Alternative zugänglich, die über einen 1-Photonenprozess stattfindet, und sofort wieder relaxieren kann. Dies wurde ebenfalls experimentell mit Absorptionsmessungen mit Intensitäten im Bereich der Zerstörschwelle bestätigt.

Wird nun einer reinen HfO_2 Schicht ein für das UV besser geeignetes Material (bzgl. der Zerstörschwelle) beigemischt, reduziert sich die Anzahl der Defekte und Zwischenzustände. Es können dementsprechend zwei Prozesse dazu beitragen, dass die Schichtmatrix eine höhere Energiedichte führen kann, ohne eine Zerstörung zu erfahren. Erstens, wird die Anzahl der Defekte verringert, einschließlich der, die für die Zerstörung verantwortlich sind. Zweitens ist die dichte Ansammlung an Zwischenzuständen verringert, die eine schnelle Relaxation aller Anregungen in diese Zustände ermöglicht. Die Kopplung dieser Zustände an entsprechende Relaxationskanäle ist verschlechtert. Mit der Kombination beider Effekte in der Kompositschicht werden weniger lokale Defekte durch die Absorption von Laserstrahlung aufgeheizt, und die Bandlücke von nur 5.91 eV (im Fall der Mischschicht) kann mit den Photonen von 4.6 eV leicht über einen beliebigen Zwischenzustand überwunden werden. Da 2PA aber dennoch ein Prozess ist, der von der Intensität abhängt, treten beide

Zerstörprozesse nur bei höheren Energiedichten zusammen auf. Anhand dieser Ergebnisse wird also vorgeschlagen, dass bei $\lambda = 266\text{ nm}$ eine Kombination von elektronisch bedingter und Defekt-induzierter Vorgänge zur Zerstörung in diesen oxidischen Materialien führt. Für das Kristallmaterial DKDP haben Carr et al. eine ähnliche Möglichkeit erörtert [34]. In HfO_2 scheinen allerdings die defektinduzierten Vorgänge dominant zu sein.

Morphologie

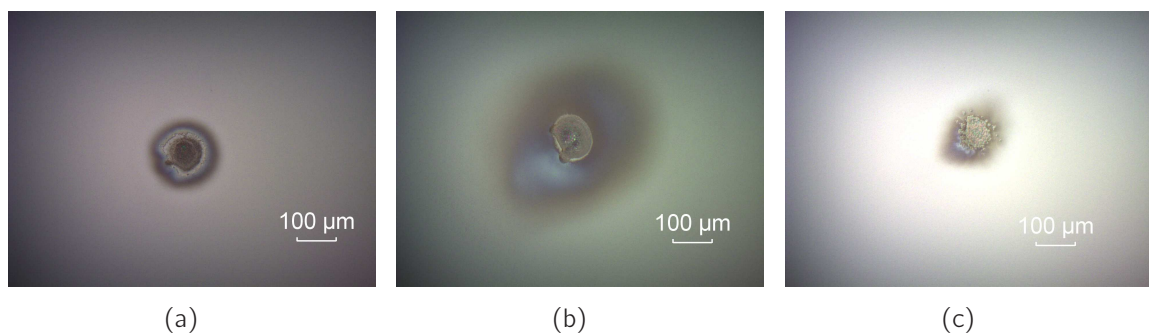


Abbildung 6.4: Charakteristische Zerstörungen an den Testpositionen der HR 266nm Proben. (a) $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$, (b) $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2\text{-Al}_2\text{O}_3$ und (c) $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2\text{-SiO}_2$.

Trotz einer differenzierteren Argumentation zum Zerstörprozess bei 266 nm als bei 355 nm zeigen die Morphologien ebenfalls keine signifikanten Unterschiede für die drei Testdesigns. In Abb.6.4 ist anhand der beispielhaften Prüfpositionen zu erkennen, dass sich ein sehr ähnliches Bild bei allen drei Proben zeigt. Bei einem Strahldurchmesser von knapp unterhalb von 200 μm (effektiv), zeigen sich die Zerstörungen durchweg deutlich kleiner. Allerdings ist dies auch für das reine HfO_2 der Fall. Von diesen Bildern kann daher kein weiterer Hinweis abgeleitet werden.

7 Zusammenfassung und Ausblick

Die vorliegende Arbeit beschreibt aktuelle Modelle und Experimente zu Zerstörmechanismen in oxidischen, dielektrischen Schichten. Die Ausführungen beziehen sich insbesondere auf die Betrachtung der Wechselwirkung mit gepulster UV Laserstrahlung im Bereich von wenigen Nanosekunden. Am Ende der Arbeiten steht ein Vorschlag, wie die gegenwärtigen Zerstörschwellen der optischen Beschichtungen erhöht werden können. Basis für die Untersuchungen war jeweils die 3. und 4. Harmonische der Nd:YAG Wellenlänge. Insgesamt wurden dazu 3 grundlegende Untersuchungen durchgeführt.

Zunächst wurde ein Merkmal der defektinduzierten Zerstörung für 4 Wellenlängen überprüft. Ist der Strahlfleck während der Bestimmung der Zerstörschwelle auf der Prüfoberfläche zu klein, wird das spezielle Defektensemble nicht mehr ausreichend abgedeckt und eine zu hohe Zerstörschwelle gemessen. Die Ergebnisse zeigen, dass sich der Wert des Strahldurchmessers, für den die Zerstörschwelle zu steigen beginnt, mit kleinerer Wellenlänge verringert. Diese Tatsache bestätigt, dass gleiche Materialien aus identischen Beschichtungsprozessen verschiedenartige Defektensembles für unterschiedliche Bestrahlungswellenlängen aufweisen. Eine solche systematische Untersuchung auf Basis des standardisierten ISO-Messverfahrens ist in der Literatur in diesem Umfang vorher nicht veröffentlicht worden. Ein Resultat ist, dass für die 4. Harmonische ($\lambda = 266 \text{ nm}$) kein eindeutiger Anstieg der Zerstörschwelle für die geprüfte Materialabfolge zu verzeichnen ist. Ein grundsätzlich geändertes Defektensemble für die kürzeste der 4 Prüfwellenlängen oder ein wechselnder Mechanismus, der die Zerstörung initiiert, muss also angenommen werden.

Die zweite Untersuchung war der Zweiphotonenabsorption (2PA) gewidmet. Da bei kurzen Wellenlängen die Photonenenergie in Bereiche vorstößt, die Zwei- und Dreiphotonenanregungen in den untersuchten Materialien ermöglichen, wurde im Anschluss geprüft, ob nicht-lineare Absorption Teil des Zerstörungsprozesses im UV ist. An Einzelschichten mit variierter Bandlücke, die jeweils aus zwei Materialien durch geändertes Mischverhältnis hergestellt wurden, sind LIDT Messungen durchgeführt worden. Materialbedingt decken diese Probenätze mit ihren Bandlücken den Bereich der Zwei- und Dreiphotonenabsorption (2PA und 3PA) ab. Ziel war es, in Resonanz eine abrupte Veränderung der Zerstörschwelle zu sehen,

und zu diesem Zweck wurden Mischungen von $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$, $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ und $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ untersucht. Tantalpentoxid wurde an dieser Stelle mit diskutiert, weil in diesem Material im Zuge dieser Untersuchungen erstmals genau dieser Effekt bei der Wechselwirkung mit der Wellenlänge $\lambda = 532 \text{ nm}$ identifiziert wurde. Nicht-lineare Absorption wurde in Ta_2O_5 als verantwortlicher Prozess für die Zerstörung vorher noch nicht identifiziert. Neben der Beobachtung an $\text{SiO}_2/\text{Ta}_2\text{O}_5$ konnte jedoch an keiner der beiden anderen Materialkombination ein direkter Einfluss der 2PA auf die Höhe der Zerstörschwelle identifiziert werden. Trotz der Beobachtung dieses Effekts ist aber klarzustellen, dass die Defekte immer noch eine Rolle im Zerstörungsprozess spielen. Der Bereich der intrinsischen Zerstörung wird immer noch von der Präsenz der Defekte in Schicht und Schichtübergängen überdeckt und die stattfindenden Prozesse entsprechen einer Faltung von MPA und defektinduzierter Zerstörung. Am Ende dieser Untersuchungen steht, dass nicht-lineare Absorption in SiO_2 und Al_2O_3 Schichten unter Bestrahlung von $\lambda = 266 \text{ nm}$ beobachtet wird, sie aber nicht detektierbar zur Zerstörung beiträgt.

Mit der Erkenntnis, dass auch im UV eine defektinduzierte Zerstörung vorliegt, sollten die in den Schichten vorhandenen Defektensembles bzgl. einer Veränderung unter Bestrahlung untersucht werden. Dies musste nach Material aufgeschlüsselt werden, weshalb wieder jeweils ein Probensatz von Einzelschichten herangezogen wurde. Insbesondere sollte ermittelt werden, ob die Bestrahlung mit höherer Photonenenergie ($\lambda = 266 \text{ nm}$) zusätzliche Defekte im Material erzeugt. Ist dies der Fall, sollte ein Vergleich mit identischen Messungen bei $\lambda = 355 \text{ nm}$ Aufschluss über die vom Modell abweichenden Mechanismen bei $\lambda = 266 \text{ nm}$ geben. Neben den reinen Oxiden wurden auch Materialmischungen untersucht. Im Gegensatz zu SiO_2 haben HfO_2 und Al_2O_3 unter Bestrahlung ein verändertes Defektensemble entwickelt, was durch die Analyse der Zerstörwahrscheinlichkeitsverteilung nach 10 bzw. 10.000 applizierten Laserpulsen herausgearbeitet wurde. Aluminiumoxid bildete weitere Defekte der bereits vorhandenen Defektklasse. Für Hafniumdioxid hingegen wurde beobachtet, dass eine neue Art von Defekten entstanden ist, die die Zerstörschwelle signifikant beeinflusst. Dieses Verhalten ist bei $\lambda = 266 \text{ nm}$ stärker ausgebildet als bei $\lambda = 355 \text{ nm}$. Ein ähnliches Verhalten konnte in synthetischem Quarzglas bereits gemessen werden. Klare Hinweise, dass Defektverteilungen in dielektrischen Schichten einer Entwicklung unterliegen, sind jedoch vorher nicht experimentell gezeigt worden.

Zusammenfassend sind die Ergebnisse anhand von speziellen Designs für HR-Spiegel umgesetzt worden. Mit der Verwendung von Materialmischungen wird zum einen das Defektensemble verändert und zum anderen die Bandlücke vergrößert. Beides hat positiven

Einfluss auf die Zerstörschwelle, wobei der Effekt der erhöhten Bandlücke für die Wellenlänge $\lambda = 266$ nm effizienter eingestuft wird. Ausgehend von HR-Spiegeln im QWOT-Design (Schichtstapel mit einer Abfolge von wechselnden Schichten mit einer optischen Schichtdicke von $\lambda/4$), hergestellt mit SiO_2 und HfO_2 , wurden der hochbrechenden Schicht jeweils separat Al_2O_3 und SiO_2 beigemischt. Dieser Ansatz hatte eine Erhöhung der Zerstörschwelle um den Faktor 2.5 bei $\lambda = 355$ nm und um den Faktor 16 bei $\lambda = 266$ nm zur Folge.

Basierend auf den Resultaten zu HfO_2 und Al_2O_3 jeweils in Kombination mit SiO_2 sind große Fortschritte erzielt worden. Mit dem erreichten Faktor von 16 ist hier ein deutlicher Anstieg der Leistungsfähigkeit der Gesamtbeschichtung verwirklicht worden. Da die Größe der zerstörungsrelevanten Defekte für UV Strahlung als sehr klein angesehen werden muss (Schichtdicke und Wechselwirkungsquerschnitt lassen eine Abschätzung zu), stellen die Substratoberflächen und Schichtübergänge Bestandteile der Optik dar, deren exakter Einfluss noch nicht vollständig verstanden und deren Präparation noch Optimierungsbedarf zeigt. Auch wurden die Mischverhältnisse bis dato relativ frei gewählt, um erhöhte Zerstörschwellen in den HR-Spiegeln zu erreichen. In weiteren Schritten kann man die Anzahl der zur Zerstörung führenden Defekte demnach innerhalb der Schichtübergänge und des Überganges von Substrate zur Schicht optimieren. Darüber hinaus muss das optimale Mischverhältnis für das jeweilige Schichtdesign mit einer entsprechenden Parameterstudie noch erarbeitet werden.

Abbildungsverzeichnis

1.1	Einfluss des Strahldurchmessers auf den Verlauf der Zerstörwahrscheinlichkeit P . $d = 7 \cdot 10^3 / mm^2$ und $T = 50 J/cm^2$	9
1.2	5 unterschiedlich geartete Defektensembles, wie sie in den beiden Powerlaw Modellen und dem Gauß-Modell angenommen werden.	11
1.3	Zerstörwahrscheinlichkeit $P(F)$ als Superposition von drei unterschiedlichen Defektensembles mit unterschiedlicher Dichte und Schwellwert.	12
1.4	Berechnete MPI-Rate in synthetischem Quarzglas - angenommene Bandlücke: 8.3 eV [26].	17
1.5	50% Zerstörwahrscheinlichkeit eines DKDP Kristalls, gemessen von 312 nm - 530 nm. (entnommen von [35])	18
1.6	Wellenlängen-abhängige LIDT bei 1064 nm, 532 nm, 355 nm und 266 nm gemessen (entnommen von [36]).	19
1.7	Entwicklung der Defektdichte mit der Anzahl der beaufschlagten Laserpulse bei 1064 nm und 355 nm in synthetischem Quarzglas (entnommen von [37]).	20
1.8	Berechnete Zwischenzustände für HfO_2 nach Foster et al.. Basierend auf Sauerstoffvakanz und -Zwischenatomen sind die betreffenden Niveaus zwischen Valenzband und Leitungsband aufgezeigt (entnommen von [45]).	24
1.9	Rohdaten einer Zerstörschwellenmessung. Einzelne Messpunkte sind mit 1 (zerstört) und 0 (nicht zerstört) als Funktion der eingestrahlten Fluenz aufgetragen.	27
1.10	Matrix der Messpositionen während eines S-on-1 Zerstörschwellentests (a) in der Messsoftware und (b) auf einer Optik nach der Messung.	28
1.11	Reduzierte Messdaten einer LIDT Messung gemäß der Standardmethode. .	29
1.12	Reduzierte Messdaten einer LIDT Messung gemäß der Akkumulationsmethode.	30
1.13	Zwei mögliche Fitfunktionen für die Anpassung der experimentell ermittelten Zerstörwahrscheinlichkeit.	30

1.14	Charakteristische Zerstörkurve: Zerstörschwelle als Funktion der Pulsanzahl als 0.2% und 50% Wert.	32
2.1	6 Proben zur Überprüfung der strahlungsinduzierten Defektbildung in SiO ₂ , Al ₂ O ₃ und HfO ₂	37
3.1	LIDT eines SiO ₂ /HfO ₂ HR-Spiegels für 1064 nm in Abhängigkeit vom Teststrahldurchmesser und konstanter Anzahl an Testpositionen	40
3.2	LIDT eines SiO ₂ /HfO ₂ HR-Spiegels für 532 nm in Abhängigkeit vom Teststrahldurchmesser und konstanter Anzahl an Testpositionen	41
3.3	LIDT eines SiO ₂ /HfO ₂ HR-Spiegels für 355 nm in Abhängigkeit vom Teststrahldurchmesser und konstanter Anzahl an Testpositionen	41
3.4	LIDT eines SiO ₂ /HfO ₂ HR-Spiegels für 266 nm in Abhängigkeit vom Teststrahldurchmesser und konstanter Anzahl an Testpositionen	42
3.5	Zerstörte Testpositionen, die durch einen Einzelschuss erzeugt wurden: a) 355nm - 154µm, b) 266nm - 340µm	43
3.6	Übersicht der Messungen zur Strahldurchmesserabhängigkeit der LIDT bei 4 Wellenlängen.	43
4.1	(a) Spektrale Transmission der unterschiedlichen Materialmischungen von SiO ₂ und Ta ₂ O ₅ und (b) die nach Tauc ermittelte Bandlücke der einzelnen Proben (rechts).	48
4.2	Absorption der SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Mischprobe als Funktion der Intensität. Als Vergleich: die Messung der SiO ₂ Probe, die keinen Anstieg zeigte.	49
4.3	Laser induzierte Zerstörung von SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Mischungen als Funktion der Bandlücke. Dargestellt für 10.000 Pulse als 0.2%LIDT und Zerstörung kleinster Fluenz.	50
4.4	Tantalpentoxid Einzelschicht mit der Bandlücke 4.25 eV - 2PA.	52
4.5	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Mischschicht mit der Bandlücke 4.3 eV - 2PA.	52
4.6	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Mischschicht mit der Bandlücke 4.5 eV - 2PA.	52
4.7	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Mischschicht mit der Bandlücke 4.64 eV - 2PA.	53
4.8	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Mischschicht mit der Bandlücke 4.74 eV - 3PA.	53
4.9	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Mischschicht mit der Bandlücke 5.2 eV - 3PA.	53
4.10	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Mischschicht mit der Bandlücke 6.1 eV - 3PA.	53
4.11	SiO ₂ /Ta ₂ O ₅ Mischschicht mit der Bandlücke 7.2 eV - 3PA.	54

4.12	(a) Spektrale Transmission der unterschiedlichen Materialmischungen von SiO_2 und HfO_2 und (b) die nach Tauc ermittelte Bandlücke der einzelnen Proben (rechts).	55
4.13	(a) Absorption der $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischungen in Abhängigkeit von der Bandlücke. Keine Probe zeigte einen nicht-linearen Anteil. (b) Intensitätsabhängige Absorption an einem HR-Spiegel aus $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ für 266 nm.	56
4.14	Laser induzierte Zerstörung von $\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischungen als Funktion der Bandlücke. Dargestellt für 10.000 Pulse als 0.2%LIDT und Zerstörung kleinster Energiedichte.	57
4.15	Hafniumdioxid Einzelschicht mit der Bandlücke 5.55 eV.	59
4.16	$\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 5.67 eV.	59
4.17	$\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 5.74 eV.	59
4.18	$\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 5.91 eV.	60
4.19	$\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 6.04 eV.	60
4.20	$\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 6.19 eV.	60
4.21	$\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 6.29 eV.	60
4.22	$\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 6.96 eV.	61
4.23	$\text{SiO}_2/\text{HfO}_2$ Mischschicht mit der Bandlücke 7.33 eV.	61
4.24	SiO_2 Einzelschicht mit nahezu keinem Anteil an HfO_2 .	61
4.25	(a) Spektrale Transmission der unterschiedlichen Materialmischungen von SiO_2 und Al_2O_3 und (b) die nach Tauc ermittelte Bandlücke der einzelnen Proben (rechts).	62
4.26	Absorption als Funktion der Intensität einer (a) $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ Mischschicht in Resonanz für 2PA sowie einer Al_2O_3 Einzelschicht und (b) in einem HR Spiegel für $\lambda = 266$ nm bestehend aus $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ bei $\lambda = 266$ nm.	63
4.27	Zerstörschwelle (355 nm) als Funktion der Bandlücke der Mischmaterialien. (a) Probensatz 1, (b) Probensatz 2, (c) Probensatz 3.	64
4.28	Zerstörung auf $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ Einzelschicht nach LIDT Test bei 355nm.	65
5.1	Defektdichte als Funktion der Energiedichte extrahiert aus der Fitfunktion zum Powerlaw-Model nach Lamaignere [20]. Dargestellt sind Defektdichten für 10 und 10.000 Pulse aus Messungen bei 355 nm und 266 nm.	69
5.2	Defektdichte in SiO_2 Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.	70
5.3	Defektdichte in $\text{SiO}_2/\text{Al}_2\text{O}_3$ Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.	70
5.4	Defektdichte in Al_2O_3 Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.	71

5.5	Defektdichte in SiO ₂ /HfO ₂ Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.	71
5.6	Defektdichte in Al ₂ O ₃ /HfO ₂ Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm.	72
5.7	Defektdichte in HfO ₂ Einzelschicht bestimmt bei 355 nm und 266 nm. . . .	72
5.8	Zerstörwahrscheinlichkeit der HfO ₂ Einzelschicht bei 355 nm. (a) nach 10 Pulsen ist die Charakteristik stetig und deutet auf eine Klasse von Defekten hin während nach 10.000 Pulsen (b) sich eine zweite Defektklasse herausgebildet hat.	75
5.9	Laserinduzierte Zerstörschwelle als Funktion der Bandlücke bei (a) 266 nm und (b) 355 nm.	76
6.1	Charakteristische Zerstörkurve für 3 HR-Spiegel Designs. Jeweils die hochbrechende HfO ₂ -Schicht wurde durch Beimischung von Al ₂ O ₃ und SiO ₂ verändert. Gezeigt ist die Energiedichte (a) zur 0.2% und (b) zur 50% Zerstörwahrscheinlichkeit.	81
6.2	Charakteristische Zerstörungen an den Testpositionen der HR 355nm Proben. (a) SiO ₂ /HfO ₂ , (b) SiO ₂ /HfO ₂ -Al ₂ O ₃ und (c) SiO ₂ /HfO ₂ -SiO ₂	82
6.3	Charakteristische Zerstörkurve für 3 HR-Spiegel Designs. Jeweils die hochbrechende HfO ₂ -Schicht wurde durch Beimischung von Al ₂ O ₃ und SiO ₂ verändert. Gezeigt ist die Energiedichte (a) zur 0.2% und (b) zur 50% Zerstörwahrscheinlichkeit.	83
6.4	Charakteristische Zerstörungen an den Testpositionen der HR 266nm Proben. (a) SiO ₂ /HfO ₂ , (b) SiO ₂ /HfO ₂ -Al ₂ O ₃ und (c) SiO ₂ /HfO ₂ -SiO ₂	84

Tabellenverzeichnis

1.1	Berechnete Ionisationsrate R_x in $1/cm^3s$ für die Multi-Photonen-Ionisation in Synthetischem Quarzglas; 1.-6. Ordnung. Diese Werte beziehen sich auf eine eingestrahlte Intensität von $1 \cdot 10^9 W/cm^2$	16
1.2	Defekte und Farbzentren in SiO_2	22
1.3	Charakteristische Absorption und Lumineszenz von kristallinem Al_2O_3 und einer amorphen Schicht.	23
2.1	Einige laseraktive Kristalle und die Wellenlängen der ersten 4 Harmonischen.	33
2.2	Designs der verwendeten HR Spiegel zur Untersuchung der Strahldurchmesserabhängigkeit.	35
2.3	Bandlücke einiger Beschichtungsmaterialien.	36
3.1	Kritischer Strahldurchmesser und die daraus abgeleitete Defektdichten (emp. Defektdichte) im Vergleich zur Defektdichte aus dem Powerlaw Fit für alle vier untersuchten Wellenlängen.	44
4.1	Intensitäten, die bei der Absorptionsmessung (LCA) und Zerstörschwellenmessung auftreten. Eine notwendige Abschätzung für evtl. beteiligte nicht-lineare Prozesse.	49
5.1	Gerundete Defektdichten für die drei reinen Oxide bei 355 nm und 266 nm errechnet anhand der Energiedichte der 2% LIDT und 10 eingestrahlten Pulsen.	74

Literaturverzeichnis

- [1] *Laser-induced Damage in Optical Materials*. ASTM, Nat.Bur.Stand., NIST Spec.Pub., SPIE, 1969-2012.
- [2] T.H. Maiman. Stimulated Optical Radiation in Ruby. *Nature*, 187:493–494, August 1960.
- [3] F.J. McClung and R.W. Hellwarth. Giant Optical Pulsations from Ruby. *Journal of Applied Physics*, 33(3):828–829, 1962.
- [4] N. Bloembergen. Laser-induced Electric Breakdown in Solids. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, QE-10(3):375–386, March 1974.
- [5] R.W. Hopper and D.R. Uhlmann. Mechanism of Inclusion Damage in Laser Glass. *Appl.Phys.*, 41(10):4023–4037, September 1970.
- [6] D. Milam, R.A. Bradbury, and M. Bass. Laser damage threshold for dielectric coatings as determined by inclusions. *Appl.Phys.Lett*, 23(12):654, December 1973.
- [7] T.W. Walker, A. Vaidyanathan, A.H. Guenther, and P. Nielsen. Impurity breakdown in thin films. *Nat.Bur.Stand.*, 568:479–497, 1979.
- [8] M. Göppert-Mayer. Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen. Dissertation, John Hopkins University, Dezember 1930.
- [9] W.Lee Smith. Laser-Induced Breakdown in Optical Materials. *Opt.Eng.*, 17(5):489–502, September-October 1978.
- [10] M. Jupé, L. Jensen, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, and D. Ristau. Calculations and experimental demonstration of multi-photon absorption governing fs laser-induced damage in titania. *Opt.Ex.*, 17(15):12269–12278, 2009.

- [11] T.W. Walker, A.H. Guenther, and P.E. Nielsen. Pulsed Laser-Induced Damage to Thin-Film Optical Coatings - Part I: Experimental. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 17(10):2041–2052, 1981.
- [12] T.W. Walker, A.H. Guenther, and P.E. Nielsen. Pulsed Laser-Induced Damage to Thin-Film Optical Coatings - Part II: Theory. *IEEE Journal of Quantum Electronics*, 17(10):2053–2065, October 1981.
- [13] S. Papernov and A.W. Schmid. Two mechanisms of crater formation in ultraviolet-pulsed-laser irradiated SiO₂ thin films with artificial defects. *Appl.Phys.*, 97:114906, 2005.
- [14] M.D.Feit and A.M.Rubenchik. Implications of nanoabsorber initiators for damage probability curves, pulselengths scaling and laser conditioning. *Proc. of SPIE 5273*, 2003.
- [15] J.-Y. Natoli, L. Gallais, H. Akhouayri, and C. Amra. Laser-induced damage of materials in bulk, thin-film, and liquid forms. *Appl.Opt.*, 41(16):3156–3166, 2002.
- [16] L. Gallais, J. Capoulade, J.-Y. Natoli, and M. Commandré. Investigation of nanodeflect properties in optical coatings by coupling measured and simulated laser damage statistics. *Journal of Applied Physics*, 104:053120, 2008.
- [17] S.R. Foltyn. Spotsize Effects in Laser Damage Testing. *Damage in Laser Materials: 1982*, Nat. Bur.Stand., 1984. Editors: H.E.Bennett; A.H.Guenther; D.Milam and B.E.Newnam.
- [18] H. Krol, L. Gallais, C. Crèzes-Besset, J.-Y. Natoli, and M. Commandré. Investigation of nanoprecursors threshold distribution in laser-damage testing. *Opt.Comm.*, 256:184–189, 2005.
- [19] J.O. Porteus and S.C. Seitel. Absolute onset of optical surface damage using distributed defect ensembles. *Appl.Opt.*, 23(21):3796–3805, November 1984.
- [20] L. Lamainère, S. Bouillet, R. Courchinoux, T. Donval, M. Josse, J.-C. Ponetta, and H. Bercegol. An accurate, repeatable, and well characterized measurement of laser damage density of optical materials. *Rev.Sci.Inst.*, 78:103105, 2007.
- [21] G. Mie. Beiträge zur Optik trüber Medien, speziell kolloidaler Metallösungen. *Annalen der Physik*, 25(4):377–445, 1908.

-
- [22] J.A. Creighton and D.G. Eadon. Ultraviolet-Visible Absorption Spectra of the Colloidal Metallic Elements. *J.Chem.Soc. Faraday Trans.*, 87(24):3881–3891, 1991.
- [23] W. Kaiser and C.G.B. Garrett. Two-Photon Excitation in CaF₂:Eu²⁺. *Phys.Rev.Lett.*, 7(6):229–231, 1961.
- [24] Vaidya Nathan, A.H. Guenther, and S.S. Mitra. Review of multiphoton absorption in crystalline solids. *J. Opt. Soc. Am. B*, 2(2):294–317, 1985.
- [25] Robert W. Boyd. *Nonlinear Optics*. Academic Press, 2003.
- [26] M. Mero, J. Liu, W. Rudolph, D. Ristau, and K. Starke. Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films. *Phys. Rev. B*, 71:115109, 2005.
- [27] L.V. Keldysh. Ionization in the field of a strong electromagnetic wave. *Sov.Phys. JETP*, 20:1307, 1965.
- [28] R. Schenker, P. Schermerhorn, and W.G. Oldham. Deep-ultraviolet damage to fused silica. *J.Vac.Sci Technol. B*, 16(6):3275–3279, Nov/Dec 1994.
- [29] Christian Mühlig. Zur Absorption gepulster ArF-Laserstrahlung in hochtransparenten optischen Materialien. Dissertation, Friedrich-Schiller-Universität Jena, 2005.
- [30] Oliver Apel, Klaus Mann, Alfons Zoeller, Rainer Goetzelmann, and Eric Eva. Nonlinear absorption of thin Al₂O₃ films at 193nm. *Appl.Opt.*, 39:3165–3199, 2000.
- [31] I. Balasa, H. Blaschke, I. Jensen, and D. Ristau. Impact of SiO₂ and CaF₂ surface composition on absolute absorption at 193nm. *Proc. of SPIE*, 8190:81901T, 2011.
- [32] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry. Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics. *Phys*, 53:1749, 1996.
- [33] E.W.Van Stryland, M.Sheik-Bahae, A.A.Said, D.J.Hagan, and M.-J. Soileau. Characterization of nonlinear optical materials. *Laser-Induced Damage in Optical Materials:1993*, SPIE 2114, 1993.
- [34] C.W. Carr, H.B. Radousky, and S.G. Demos. Wavelengths dependence of laser-induced damage: Determining the damage initiation mechanisms. *Phys.Rev.Let.*, 91(12):127402, September 2003.

- [35] C.W. Carr, H.B. Radousky, and S.G. Demos. Experimental study of wavelength dependent damage threshold in DKDP. *Laser-Induced Damage in Optical Materials:2002*, SPIE 4932, 2002.
- [36] Nobu Kuzuu, Kunio Yoshida, Hidetsugu Yoshida, Tomozumi Kamimura, and Naoyoshi Kamisugi. Laser-induced bulk damage in various types of vitreous silica at 1064, 532, 355, and 266nm: evidence of different damage mechanisms between 266nm and longer wavelengths. *Appl.Opt.*, 38(12):2510, April 1999.
- [37] J.-Y. Natoli, B. Berussi, and M. Commandré. Effect of multiple laser irradiations on silica at 1064 and 355nm. *Opt.Lett.*, 30(11):1315–1317, 2005.
- [38] M.A. Stevens-Kalceff, A. Stesmans, and J. Wong. Defects induced in fused silica by high fluence ultraviolet laser pulses at 355 nm. *Appl.Phys.Lett.*, 80(5):758–760, 2002.
- [39] S.O. Kucheyev and S.G. Demos. Optical defects produced in fused silica during laser-induced breakdown. *Appl.Phys.Lett.*, 82(19):3230–3232, 2003.
- [40] Charlene M. Smith, Nicholas F. Borelli, and Roger J. Araujo. Transient absorption in excimer-exposed silica. *Appl.Opt.*, 39(31):5778, 2000.
- [41] K.Arai and H.Imai. Two-photon processes in defect formation by excimer lasers in synthetic silica glass. *Appl.Phys.Lett.*, 53(20):1891, 1988.
- [42] J. Heber, C. Mühlig, W. Triebel, N. Danz, R. Thielsch, and N. Kaiser. Deep UV induced luminescence in oxide thin films. *Appl.Phys.B*, 75:637–640, 2002.
- [43] Yasushi Aoki, Nguyen T. My, Shunya Yamamoto, and Hiroshi Naramoto. Luminescence of sapphire and ruby induced by He and Ar ion irradiation. *Nucl.Instrum. Methods B*, 114:276–280, 1996.
- [44] M. Itou, A. Fujiwara, and T. Uchino. Reversible Photoinduced Interconversion of Color Centers in alpha-Al₂O₃ Prepared under Vacuum. *J.Phys.Chem.C*, 113:20949–20957, 2009.
- [45] A.S. Foster, F. Lopez Gejo, A.L. Shluger, and R.M. Nieminen. Vacancy and interstitial defects in hafnia. *Phys. Rev. B*, 65:174117, 2002.
- [46] J. Robertson. High dielectric constant gate oxides for metal oxide Si transistors. *Rep.Prog.Phys.*, 69:327–396, 2005.

- [47] Alessandra Ciapponi, Frank R. Wagner, Stéphanie Palmier, Jean-Yves Natoli, and Laurent Gallais. Study of luminescent defects in hafnia thin films made with different deposition techniques. *J.Lumin.*, 129:1786–1789, 2009.
- [48] S. Papernov, A. Tait, W. Bittle, A.W. Schmid, J.B. Oliver, and P. Kupinski. Near-ultraviolet absorption and nanosecond-pulsed-laser damage in HfO₂ monolayers studied by submicrometer-resolution photothermal heterodyne imaging and atomic force microscopy. *Appl.Phys.*, 109:113106, 2011.
- [49] Lasers and laser-related equipment-Test methods for laser-induced damage threshold Part 2:-Threshold determination, ISO21254-2. Beuth, 2011. International Organization for Standardization.
- [50] S.Schrameyer, M.Jupé, L. Jensen, and D.Ristau. Algorithm for cumulative damage probability calculations in S-on-1 Laser damage testing. *Veröffentlichung in Proc. of SPIE*, 8885, 2013.
- [51] Alexis V. Kudryashov, Alan H. Paxton, Vladimir s. Ilchenko, Adolf Giesen, Detlef Nickel, Stehen J. Davis, Michael C. Heaven, and J. Thomas Schriempf, editors. *Scaling law investigations in spot size dependence in the ns regime*, volume SPIE 6101 of *Laser Beam Control and Applications*, 2006.
- [52] Uwe Willamowski, Detlev Ristau, and Eberhard Welsch. Measuring the absolute absorptance of optical laser components. *Appl.Opt.*, 37(36):8362, 1998.
- [53] Optics and optical instruments Lasers and laser-related equipment Test method for absorptance of optical laser components ISO11551. Beuth, 2003. International Organization for Standardization.
- [54] Kneubühl and Sigrist. *Laser*. Teubner-Studienbücher: Physik, 1999. 5. überarb.Auflage.
- [55] Marc Lappschies, Marco Jupé, and Detlev Ristau. Extension of Ion Beam Sputtered Oxide Mixtures into the UV Spectral Range. *OSA Techn.Digest Optical Interference Coatings (OIC)*, page TuA7, 2007.
- [56] Mathias Mende, Stefan Günster, Henrik Ehlers, and Detlev Ristau. Optical Properties of Ion Beam Sputtered Oxide Mixtures Coatings. *OSA Techn.Digest Optical Interference Coatings (OIC)*, page ThA4, 2010.

- [57] B. v. Blanckenhagen, D. Tonova, and J. Ullmann. Application of the Tauc-Lorentz formulation to the interband absorption of optical coating materials. *Appl.Opt.*, 41(16):3137, 2002.
- [58] Frank Kühnlenz. Vakuuum-UV-Spektroskopie an synthetischem Quarzglas unter UV-Pulslaserbestrahlung. Dissertation, Friedrich-Schiller-Universität Jena, November 2003.
- [59] G.D. Cody, T. Tiedje, B. Abeles, B. Brooks, and Y. Goldstein. Disorder and the Optical-Absorption Edge of Hydrogenated Amorphous Silicon. *Phys. Rev. Lett.*, 47:1480–1483, 1981.
- [60] J. Tauc, R. Grigorovici, and A. Vancu. Optical properties and Electronic Structure of Amorphous Germanium. *Phys. Stat. Sol.*, 15:627, 1966.
- [61] P. Simon, H. Gerhardt, and S. Szatmari. Intensity-dependent loss properties of window materials at 248nm. *Opt.Lett.*, 14:1207, 1989.
- [62] Lars Jensen, Stefan Schrameyer, Mathias Mende, Marco Jupé, and Detlev Ristau. Role of two-photon absorption in Ta₂O₅ thin films in nanosecond laser-induced damage. *Optics Letters*, 37:4329–4331, 2012.
- [63] P. Liu, R. Yen, and N. Bloembergen. Two-photon absorption coefficients in UV window and coating materials. *Appl.Opt.*, 18:1015–1018, 1979.
- [64] A.J. Taylor, R.B. Gibson, and J.P. Roberts. Two-photon absorption at 248nm in ultraviolet window materials. *Opt.Lett.*, 13:814–816, 1988.
- [65] Adrian Dragomir, John G. McInerney, and David N. Nikogosyan. Femtosecond measurements of two-photon absorption coefficients at $\lambda=264\text{nm}$ in glasses, crystals, and liquids. *Appl.Opt.*, 41:4365, 2002.
- [66] Lars Jensen, Frank Wagner, Mathias Mende, Céline Gouldieff, Holger Blaschke, Jean-Yves Natoli, and Detlev Ristau. Defect Formation in Oxide Thin Films. *Proc. of SPIE*, 8190, 2011.
- [67] Lars Jensen, Marco Jupé, and Detlev Ristau. UV Damage Mechanisms in Oxide High Reflectors. *Proc. of SPIE*, 7132, 2008.

- [68] J.Y.Natoli, P.Volto, M.Pommies, G.Albrand, and C.Amra. Localized Laser Damage Test Facility at LOSCM: Real Time Optical Observation and Quantitative AFM Study. *Proc. of SPIE*, 3244(11), 1998.
- [69] Mathias Mende, Henrik Ehlers, and Detlev Ristau. Tailor - Maßgeschneiderte Nanokompositschichten für die Optik - Abschlussbericht, 2012. Förderkennzeichen: 16IN0667.

Eigene Veröffentlichungen

1. Lars O. Jensen, Stefan Schrameyer, Marco Jupé, Detlev Ristau, Non-Linear Absorption in Nanosecond Laser-Induced Damage, In OSA Technical Digest, vol. Opt. Interfer. Coatings, pp. FB.6, 2013.
2. J. Steinlechner, L. Jensen, C. Krüger, N. Lastzka, S. Steinlechner, R. Schnabel, The photothermal self-phase modulation technique for absorption measurements on high-reflective coatings, In Appl.Opt., vol. 51, pp. 1156-1161, 2012.
3. S. Schrameyer, M. Jupé, L. Jensen, D. Ristau, Parallel use of detection channels for LIDT testing in the UV range, In Proc. of SPIE, vol. 8530, 2012.
4. M. Mende, L. Jensen, H. Ehlers, S. Bruns, M. Vergöhl, P. Burdack, D. Ristau, Applying Hafnia Mixtures to Enhance the Laser-Induced Damage Threshold for Third Harmonic Generation Optics, In Proc. of SPIE, vol. 8530, 2012.
5. B. Mangote, L. Gallais, M. Commandré, M. Mende, L. Jensen, H. Ehlers, M. Jupé, D. Ristau, A. Melninkaitis, J. Mirauskas, V. Sirutkaitis, S. Kicas, T. Tolenis, R. Drazdys, Femtosecond laser damage resistance of oxide and mixture oxide optical coatings, In Opt. Lett., vol. 37, pp. 1478-1480, 2012.
6. Lars Jensen, Stefan Schrameyer, Mathias Mende, Marco Jupé, Detlev Ristau, Role of two-photon absorption in Ta₂O₅ thin films in nanosecond laser-induced damage, In Opt. Lett., vol. 37, pp. 4329-4331, 2012.
7. L. Jensen, D. Ristau, Coatings of oxide composites, In Proc. of SPIE, vol. 8530, 2012.
8. L. Jensen, H. Mädebach, J. Maula, K. Gürtler, D. Ristau, Laser-induced damage Threshold and optical properties of TiO₂ and Al₂O₃-coatings prepared by Atomic Layer Deposition, In Proc. of SPIE, vol. 8530, 2012.
9. C. Gouldieff, F. Wagner, L. Jensen, M. Mende, J.-Y. Natoli, D. Ristau, Oxide mixtures for UV coatings, In Proc. of SPIE, vol. 8530, 2012.

10. L. Gallais, B. Mangote, M. Commandré, M. Mende, L. Jensen, H. Ehlers, M. Jupé, D. Ristau, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, S. Kicas, T. Tolenis, R. Drazdys, An exhaustive study of laser damage in ion beam sputtered pure and mixture oxide thin films at 1030 nm with 500 fs pulse durations, In Proc. of SPIE, vol. 8530, 2012.
11. M. Mende, L. Jensen, H. Blaschke, H. Ehlers, W. Riggers, D. Ristau, Laser-induced damage of pure and mixture material high reflectors for 355-nm and 1064-nm wavelength, In Proc. of SPIE, vol. 8168, pp. 816821, 2011.
12. C. Stolz, L. Jensen, H. Mädebach, D. Ristau, Excimer mirror laser damage competition, In Proc. of SPIE, vol. 8190, pp. 819006, 2011.
13. Lars Jensen, Frank Wagner, Mathias Mende, Céline Gouldieff, Holger Blaschke, Jean-Yves Natoli, Detlev Ristau, Defect Formation in Oxide Thin Films, In Proc. of SPIE, vol. 8190, 2011.
14. I. Balasa, H. Blaschke, L. Jensen, D. Ristau, Impact of SiO₂ and CaF₂ surface composition on the absolute absorption at 193nm, In Proc. of SPIE, vol. 8190, pp. 81901T, 2011.
15. M. Jupé, L. Jensen, M. Mende, D. Ristau, L. Emmert, W. Rudolph, D. Nguyen, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, Calculation and Measurement of fs-LIDT of T_xSi_{1-x}O₂-Mixtures, In Proc. of SPIE, vol. 7842, 2010.
16. M. Jupé, L. Jensen, S. Malobabic, D. Ristau, K. Starke, Linear and Nonlinear absorption of T_xSi_{1-x}O₂-Mixtures, In Proc. of SPIE, vol. 7842, pp. 78421S, 2010.
17. L. Jensen, M. Mende, H. Blaschke, D. Ristau, D. Nguyen, L. Emmert, W. Rudolph, Investigations on SiO₂/HfO₂ mixtures for nanosecond and femtosecond pulses, In Proc. of SPIE, vol. 7842, 2010.
18. M. Turowski, M. Jupé, L. Jensen, D. Ristau, Laser-induced damage and nonlinear absorption of ultra-short laser pulses in the bulk of fused silica, In Proc. of SPIE, vol. 7504, 2009.
19. M. Jupé, L. Jensen, K. Starke, D. Ristau, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, Analysis in wavelength dependence of electronic damage, In Proc. of SPIE, vol. 7504, 2009.

20. M. Jupé, L. Jensen, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, D. Ristau, Calculations and experimental demonstration of multi-photon absorption governing fs laser-induced damage in titania, In *Opt. Ex.*, vol. 17, no. 15, pp. 12269-12278, 2009.
21. L. O. Jensen, I. Balasa, H. Blaschke, D. Ristau, Novel technique for the determination of hydroxyl distributions in fused silica, In *Opt. Ex.*, vol. 17, pp. 17144-17149, 2009.
22. L. Jensen, S. Schrameyer, M. Jupé, H. Blaschke, D. Ristau, Spotsizes dependence of the LIDT from the NIR to the UV, In *Proc. of SPIE*, vol. 7504, 2009.
23. W. Riede, P. Allenspacher, L. Jensen, M. Jupé, Analysis of the air-vacuum effect in dielectric coatings, In *Proc. of SPIE*, vol. 7132, pp. 71320F, 2008.
24. Lars Jensen, Marco Jupé, Detlev Ristau, UV Damage Mechanisms in Oxide High Reflectors, In *Proc. of SPIE*, vol. 7132, 2008.
25. K. Starke, I. Balasa, H. Blaschke, L. Jensen, M. Jupé, D. Ristau, Standardized Characterization of Optical Losses from the Ultraviolet to Near-Infrared Range, In *OSA Technical Digest*, vol. *Opt. Interfer. Coatings*, pp. ThA1, 2007.
26. M. Jupé, M. Lappschies, L. Jensen, K. Starke, D. Ristau, Laser Induced Damage in Gradual Index Layers and Rugate Filters, In *Proc. of SPIE*, vol. 6720, 2007.
27. M. Jupé, M. Lappschies, L. Jensen, K. Starke, D. Ristau, Application of Mixture Oxide Materials for fs Optics, In *OSA Technical Digest*, vol. *Opt. Interfer. Coatings*, pp. TuA6, 2007.
28. M. Jupé, L. Jensen, K. Starke, D. Ristau, A. Melninkaitis, V. Sirutkaitis, Mixed oxide coatings for advanced fs-laser applications, In *Proc. of SPIE*, vol. 6720, 2007.
29. L. Jensen, M. Jupé, K. Starke, D. Ristau, W. Riede, P. Allenspacher, Comparison of Gaussian and Top-Hat Beam Profiles in LIDT Testing, In *Proc. of SPIE*, vol. 6720, 2007.
30. L. Jensen, I. Balasa, K. Starke, D. Ristau, Spectral Resolved Laser-calorimetric Absorptance Measurements, In *Proc. of SPIE*, vol. 6720, 2007.
31. K. Starke, M. Jupé, L. Jensen, H. Mädebach, M. Lappschies, D. Ristau, A. Ostendorf, Nonlinear laser-induced Damage and Absorptance Effects Dielectric Coatings by using Ultra-short Pulses, In *Proc. of SPIE*, vol. 6400, pp. 640008 ff, 2006.

32. K. Starke, H. Blaschke, L. Jensen, S. Nevas, D. Ristau, R. Lebert, C. Wies, A. Bayer, F. Barkusky, K. Mann, Novel compact Spectrophotometer for EUV-optics Characterization, In Proc. of SPIE, vol. 6317, pp. 631701 ff, 2006.
33. B. Wu, U. Bartch, M. Jupé, L. Jensen, M. Lappschies, K. Starke, D. Ristau:, Morphology investigations of laser induced damage, In Proc. of SPIE, vol. 6403, pp. 640319 ff, 2006.
34. M. Jupé, M. Lappschies, L. Jensen, K. Starke, D. Ristau, Improvement in laser irradiation resistance of fs-dielectric optics using silica mixtures, In Proc. of SPIE, vol. 6403, pp. 64031A ff, 2006.
35. M. Jupé, M. Lappschies, L. Jensen, K. Starke, D. Ristau, Laser Induced damage in Gradual Index Layers in Rugate Filters, In Proc. of SPIE, vol. 6403, pp. 640311ff, 2006.
36. M. Jupé, L. Jensen, H. Mädebach, K. Starke, D. Ristau, Y. Lien, D. Wernham:, Scaling Laws investigations in spot sizes dependence in the ns regime, In Proc. of SPIE, vol. 6101, pp. 349-359, 2006.
37. L. Jensen, M. Jupé, H. Mädebach, H. Ehlers, K. Starke, D. Ristau, W. Riede, P. Al-lenspacher, H. Schroeder, Damage threshold investigations of high power laser optics under atmospheric and vacuum conditions, In Proc. of SPIE, vol. 6403, pp. 64030U, 2006.
38. M. Jupé, K. Starke, L. Jensen, H. Mädebach, D. Ristau, High resolution video based inspection method for LIDT investigations of thin disc laser crystals, In Proc. of SPIE, vol. 5963, pp. 583-593, 2005.
39. M. Jupé, L. Jensen, K. Starke, D. Ristau, A. Melninkaitis, R. Grigonis, V. Sirutkaitis:, Quantized behavior of fs-LIDT in dielectric layers, In Proc. of SPIE, vol. 5647, pp. 53-60, 2005.

Erklärung

Hiermit erkläre ich, dass ich die Arbeit selbstständig verfasst habe, alle verwendeten Quellen und Hilfsmittel vollständig angegeben habe sowie Hilfsleistungen anderer Institutionen kenntlich gemacht habe. Darüber hinaus ist diese Dissertation zuvor nicht als Diplomarbeit oder Masterarbeit verwendet worden.

Hannover, den 04.11.2013

Lebenslauf

Name:		Lars Ole Jensen
Geboren:		28.Februar 1978 in Hildesheim
Familienstand:		verheiratet - 2 Kinder
Nationalität:		Deutsch
Schulbildung:	1986-1990	Grundschule Nordstemmen
	1990-1992	Orientierungsstufe Nordstemmen
	1992-1997	Gymnasium Sarstedt
Hochschulbildung:	2000-2005	Physik-Studium an der Universität Hannover - Studienrichtung: Techn.Physik
	2002	Physik-Vordiplom
	2004-2005	Diplomarbeit am Laser Zentrum Hannover e.V. Titel: Optikcharakterisierung im nahen und mittleren infraroten Spektralbereich
	Sep. 2005	Physik-Diplom
	2005-2013	Doktorand an der Fakultät für Mathematik und Physik der Leibniz Universität Hannover
Arbeitstätigkeit:	2005-2011	Wissenschaftlicher Mitarbeiter in der Abtei- lung Laserkomponenten am Laser Zentrum Hannover e.V.
	2011-heute	Gruppenleiter der Gruppe Charakterisie- rung/Abteilung Laserkomponenten am Laser Zentrum Hannover e.V.
Weitere Tätigkeiten:	1997-1999	Ehrenamtlicher Missionsdienst in Ontario/Canada
	1999-2000	Wehrdienst: 2.PzArtBtl 325/Schwanewede

Danksagung

Die vorliegende Arbeit wurde in der Abteilung Laserkomponenten des Laser Zentrum Hannover e.V. angefertigt. Besonders danke ich Herrn Prof.Dr. Detlev Ristau für die Möglichkeit, dieses Thema in seiner Abteilung zu bearbeiten. Über die gesamte Zeit war er stets für jede Diskussion bereit, was die Entwicklung des Themas besonders vorantrieb.

Darüber hinaus danke ich Herrn Prof.Dr. Uwe Morgner für die Übernahme des Koreferats und die angenehme Zusammenarbeit. Trotz der Entfernung, die die tägliche Arbeit zwischen LZH und Universität hat, war so immer eine direkte und hilfsbereite Verbindung gegeben. Den Mitarbeiterinnen und Mitarbeitern der Abteilung Laserkomponenten gilt mein Dank für die positive und kollegiale Arbeitsumgebung. Die gute Zusammenarbeit zwischen den verschiedenen Gruppen und die stete Hilfsbereitschaft sowie die Diskussionen im Labor, im Büro und in der Kaffeepause sind ein grundlegender Bestandteil für das Zustandekommen dieser Arbeit.

Namentlich erwähnen möchte ich die unmittelbar beteiligten Kollegen. Danke an Herrn Matthias Mende für die Diskussionen während der Planung der richtigen Probensätze und die zahllosen Beschichtungen, an denen die Untersuchungen durchgeführt wurden. Ein Teil der Proben wurden dabei innerhalb des BMBF-Projektes Tailor hergestellt. Besonders erwähnen möchte ich Herrn Stefan Schrameyer und Herrn Heiner Mädebach, mit denen sich die Diskussionen zur Messung und Auswertung und zum Messverfahren immer sehr angenehm und produktiv gestaltet haben. Danke für die Hilfe im Labor, die guten Gedanken und die Unterstützung mit den vielen Fragestellungen der letzten Jahre. Mein Dank gilt Herrn Istvan Balasa für die exzellente Bürogemeinschaft, das immer offene Ohr und die Denkanstöße.

Mein Dank geht außerdem an Herrn Holger Blaschke, der immer für eine freundschaftliche Arbeitsatmosphäre gesorgt hat und selbst nach Verlassen des LZH mit sehr kurzen Reaktionszeiten bzgl. des Textsatzsystems hilfreich zur Seite stand. Danke an Herrn Dr. Marco Jupé, der schon seit der Betreuung meiner Diplomarbeit immer höchstes Interesse gezeigt hat und immer eine konstruktive Idee beisteuern konnte. Speziellen Dank an die Mitglieder der Gruppe Charakterisierung, die immer eine enge Zusammenarbeit ermöglicht haben und dafür gesorgt haben, dass die Arbeit auch Spaß macht.

Abschließend, mein größter Dank an meine Frau Miriam und unsere Töchter Leni und Mila, die mich immer unterstützt haben und für die notwendige Balance gesorgt haben, um mich stets wieder auf diese Arbeit konzentrieren zu können. Danke für eure Geduld und Ermutigung.

