

Brechungsindexmodifikation von PMMA mittels Femtosekundenlaserpulsen

Inauguraldissertation
zur Erlangung des Doktorgrades
der Naturwissenschaften
(Dr. rer. nat.)

von

Tobias Lind

geboren am 26. September 1985 in Lich

August 2018

betreut durch

Prof. Dr. Peter J.Klar

Prof. Dr. Thomas Sure

I. Physikalisches Institut
AG Mikro- und Nano-
strukturphysik
Justus-Liebig-Universität
Gießen

Institut für Optik und
Mikrosysteme
Technische Hochschule
Mittelhessen

Abstract

Due to high intensities of ultra short laser pulses, it is possible to use them for modification of the refraction index of PMMA. This theory led to the idea of reducing the aberration of optical components. In a first step, the component has to be examined with an interferometer. In a next step, the negative of the found aberration, of the interference fringes from the optimum, are written on a PMMA disc by modifying the refractive index. Combining the disc and the optical component should lead to an improvement of the interference pattern. Object of this dissertation was to develop a process for the modification of the refractive index by ultra short laser pulses while examining these modifications at the same time. Therefore, an experimental setup consisting of two parts was built. With the first part, a modification of the PMMA disc with an accuracy of a micrometer was possible. The main constituent of the second part of the experimental setup, for the detection of the modifications, was an interferometer. It is possible to detect the resulting optical path differences. These differences were then analyzed by a software. Through proper arrangement of both parts of the experimental setup, it is possible to modify and analyse the material at the same time.

After a successful test of the setup it was attempted to modify the refractive index with different parameters. In the first experimental series with low repetition rates of the laser, a scanning method was used. In the process a volume of $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$ was scanned in a meandering fashion. Because of lack of change in the refractive index, the system was changed to a point by point method. In this setup, every single spot in the volume was irradiated for a given time, through which it was possible to control the energy input for every spot. Even with this mode, no change was detected. For the last experimental series the pulse repetition rate was increased to 76 MHz. However in this mode the refractive index was changed by thermal destruction of the material.

It remains to be noted, that there was no breakthrough for the correction of optical components by ultra short laser pulses. The cause of the failed experiments with low repetition rates can be traced back to low intensities of the laser pulses. It has to be further investigated whether it is because of the low laser power or the losses in the experimental setup, why the experiments failed.

Zusammenfassung

Durch die hohen Intensitäten von Femtosekundenlaserpulsen ist mit solchen Pulsen die gezielte Modifikation des Brechungsindex von PMMA möglich. Dies führte zur Idee die Abbildungsfehler optischer Komponenten zu reduzieren. Dafür muss die Komponente zunächst mittels Interferometer untersucht werden. Die detektierten Abweichungen des Streifenmusters vom Optimum sollen anschließend durch gezielte Modifikation des Brechungsindex als Negativ in eine PMMA-Scheibe geschrieben werden. Eine anschließende Kombination der optischen Komponente und der Scheibe soll so zu einer verbesserten Abbildung führen. Ziel dieser Arbeit war es dabei einen Prozess zur Brechungsindexmodifikation zu entwickeln, bei welchem gleichzeitig die verursachten Schäden detektiert werden können. Dazu wurde ein aus zwei Teilen bestehender Versuchsstand aufgebaut. Mit dem ersten Teil des Aufbaus war eine Mikrometer genaue Bearbeitung der PMMA-Scheiben möglich. Der Hauptbestandteil des Versuchsstands zur Detektion der Schäden besteht aus einem Interferometer, mit welchem die entstehenden Differenzen der optischen Weglängen detektiert werden können. Diese können dann von einer Software ausgewertet werden. Durch geschickte Anordnung der beiden Teile, konnten Bearbeitung und Untersuchung gleichzeitig stattfinden.

Nach erfolgreichem Test der Anlage wurde anschließend versucht mit verschiedenen Parametern eine gezielte Änderung des Brechungsindex zu erreichen. Bei der ersten Versuchsreihe wurde ein scannendes Verfahren mit einer geringen Pulsfrequenz von 1 kHz gewählt. Dabei wurde zunächst ein Volumen von $100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m} \times 100\ \mu\text{m}$ mäanderförmig abgerastert. Mit diesem Verfahren konnte jedoch keine Änderung erzielt werden, so dass anschließend jeder zu bearbeitende Punkt einzeln angefahren und bestrahlt wurde um die eingebrachte Energie zu erhöhen. Da auch mit diesem Verfahren keine Änderung erzielt wurde, folgte eine Versuchsreihe mit hochfrequenter Pulsfolge (76 MHz), welche zu Veränderungen des Brechungsindex durch thermische Zerstörung führte.

Der erhoffte Durchbruch zur Korrektur optischer Komponenten konnte somit in dieser Arbeit nicht erreicht werden. Die Ursache für die misslungenen Versuchsreihen mit niedriger Pulsfolge lassen sich auf zu niedrige Intensitäten zurückführen. Ob dies jedoch an der zu geringen Leistung des Lasers oder an Verlusten innerhalb des Aufbaus lag, konnte nicht geklärt werden.

Inhaltsverzeichnis

1	Einleitung	3
2	Theoretische Grundlagen	5
2.1	Brechungsindex	5
2.2	Laser	8
2.2.1	Induzierte Emission	8
2.2.2	Besetzungsinversion	11
2.2.3	Resonator	14
2.2.4	Linienbreite	15
2.2.5	Modenkopplung	17
2.2.6	Fokussierbarkeit	20
2.2.7	Yb:KGW	25
2.3	Interferometrie	27
2.3.1	Interferenz	27
2.3.2	Twyman-Green-Interferometer	28
2.4	Nichtlineare Optik	31
2.4.1	Einführung	31
2.4.2	Frequenzverdopplung	32
2.4.3	Selbstfokussierung von Licht	34
2.4.4	Multiphotonen-Absorption	38
2.5	Laserinduzierte Schäden in Dielektrika mittels fs-Pulsen	40
2.5.1	Einfluss der Pulslänge	40
2.5.2	Dominierende Prozesse im Kurzpuls-Bereich	43
2.5.3	Einfluss der Repetitionsrate	46
2.5.4	Laserinduzierte Schäden in Polymethylmethacrylat	49
3	Versuchsaufbau und Untersuchungsmethode	52
3.1	Einleitung	52
3.2	Materialbearbeitung	53
3.3	Materialuntersuchung	58
3.3.1	Aufbau	58
3.3.2	Messverfahren	59
3.4	Zusammenführung der Systeme	62

4	Versuchsdurchführung	65
4.1	Einleitung	65
4.2	Materialbearbeitung mit Einzelpulsen	65
4.2.1	Scannendes Verfahren	68
4.2.2	Schrittweises Verfahren	70
4.2.3	Frequenzverdopplung	72
4.3	Materialbearbeitung mit hochfrequenten Pulsfolgen	73
4.3.1	Einfluss der Bestrahlungszeiten	74
4.3.2	Abhängigkeit der Eindringtiefe	75
4.3.3	Variation der Intensität	78
4.3.4	Untersuchung des phasenschiebenden Effekts	81
5	Zusammenfassung und Ausblick	87
	Literatur	89

1 Einleitung

Beginnend mit ersten Untersuchungen zur gezielten Schädigung optisch transparenter Materialien im Jahr 1994 [1], kam es in den folgenden Jahren zu einer rasanten Entwicklung im Bereich der Mikrostrukturierung solcher Materialien zur Herstellung photonischer Komponenten. Dabei wird Laserstrahlung mit sehr kurzen Pulsen in das Material fokussiert. Da die elektrische Feldstärke der einzelnen Pulse dabei sehr groß ist, kommt es im Fokuspunkt zu Energiedichten, welche so hoch sind, dass es an dieser Stelle zu nichtlinearen Absorptionseffekten kommt. Diese führen zu einer lokal sehr begrenzten mikroskopischen Modifikation des Materials, was zu einer Änderung des Brechungsindex führen kann. Da diese intensitätsabhängigen Effekte nur direkt im Fokuspunkt auftreten, kann mit dieser Methode frei innerhalb der zu bearbeitenden Werkstücken gearbeitet werden, ohne umliegende Bereiche zu zerstören.

Mit dieser Technik wurden in den vergangenen Jahren diverse Komponenten wie optische Wellenleiter [2], [3], [4], [5], optische Richtkoppler [6] oder Fresnel-Linsen [7], [8] in verschiedenen transparenten Materialien realisiert. Ausgehend von den gezeigten Möglichkeiten entwickelte sich die Idee durch die Modifikation des Brechungsindex von PMMA eine Verbesserung der Eigenschaften von optischen Komponenten, insbesondere Linsen, zu erreichen. Dabei sollen diese Linsen zunächst mit einem Interferometer auf Abbildungsfehler untersucht werden. Anschließend wird eine Kunststoff-Scheibe (PMMA) mit einem Femtosekundenlaser derart modifiziert, dass der veränderte Brechungsindex zu einem Ausgleich des Abbildungsfehlers führt, sobald diese Scheibe anschließend in der Pupillenebene der Linse montiert wird.

Ziel dieser Arbeit ist es, den Grundstein für diese Anwendung zu legen. Dabei wird ein Versuchsstand zur Modifizierung des Brechungsindex von PMMA aufgebaut. Es ist dabei nicht möglich, die in den zitierten Veröffentlichungen genutzten Parameter zu übernehmen, da es sich dabei teils um andere Materialsysteme, um andere Lasersysteme oder auch um eine andere Geometrie der zu verursachenden Modifikationen handelt. Deshalb ist es zunächst nötig, den gesamten Bearbeitungsprozess zu beherrschen und die geeigneten Parameter zu finden, um zu den gewünschten Ergebnissen zu gelangen. Dabei werden verschiedene Modi des Lasers genutzt und die dabei auftretenden Schädigungen und Modifikationen der bearbeiteten Proben untersucht. Zudem wird neben dem Aufbau, zur Bearbeitung des Materials, eine in situ Methode zur Vermessung der verursachten Modifikationen implementiert.

Mit dieser auf Interferometrie beruhenden Technik ist es möglich, Veränderungen des Brechungsindex schon während des Bearbeitungsprozesses zu beobachten und die Größe dieser Modifikation abzuschätzen.

In der folgenden Arbeit werden zunächst die theoretischen Grundlagen zur Funktionsweise eines Kurzpulslasers gelegt. Anschließend folgen die Grundlagen der Interferometrie, welche zur Auswertung benötigt werden. Nach einem Überblick über die nichtlineare Optik und die für diese Arbeit benötigten Effekte werden die theoretischen Grundlagen mit einer Diskussion über laserinduzierte Schäden in Dielektrika beendet. Im dritten Kapitel erfolgt eine genaue Beschreibung des entwickelten Versuchsstandes, welcher genutzt wurde, um die im vierten Kapitel beschriebenen Versuche durchzuführen. Dort erfolgt auch eine Diskussion der erzielten Ergebnisse. Abgeschlossen wird diese Arbeit im fünften Kapitel mit einer Zusammenfassung der Ergebnisse und einem Ausblick.

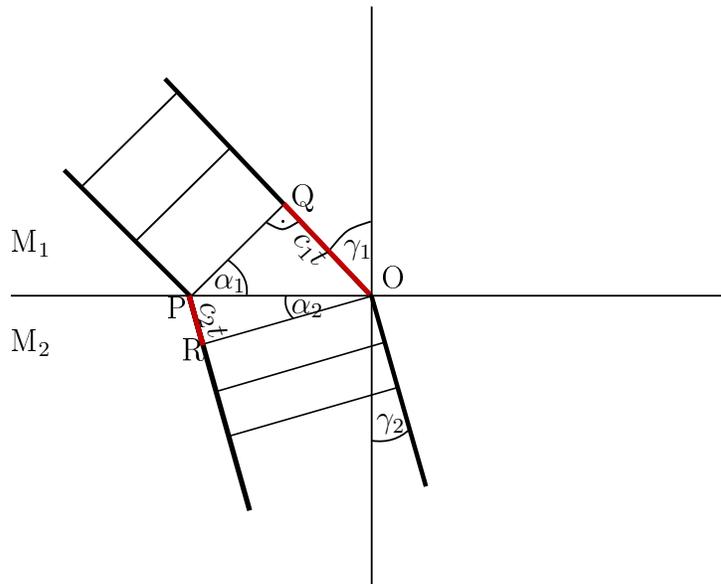


Abbildung 1: Eine Welle trifft aus einem Medium M_1 kommend auf ein optisch dichteres Medium M_2 . Durch die unterschiedlichen Phasengeschwindigkeiten in den beiden Medien wird die Richtung der Welle geändert.

2 Theoretische Grundlagen

2.1 Brechungsindex

Da das Ziel dieser Arbeit die Modifikation des Brechungsindex ist, folgt zunächst eine Beschreibung dieser Materialeigenschaft. Der Brechungsindex lässt sich über das Brechungsgesetz nach Snellius definieren. Dafür wird eine ebene Welle betrachtet, welche von einem transparenten Medium in ein anderes transparentes Medium übergeht. Dabei ändert sich, wie in Abbildung 1 zu sehen, die Ausbreitungsrichtung dieser Welle. Die aus dem Medium M_1 kommende Welle trifft unter dem Winkel γ_1 , zum Lot, auf die Grenzfläche und wird an dieser teilweise gebrochen. Dieser gebrochene Teil der Welle bewegt sich in Medium M_2 unter dem Winkel γ_2 weiter. Es ist zu sehen, dass die Welle in M_1 in einer Zeit t die Strecke $c_1 t$ zurücklegt, während sie in M_2 in der gleichen Zeit die Strecke $c_2 t$ zurücklegt. c_1 und c_2 sind die Phasengeschwindigkeiten der Welle in den Medien 1 und 2. Daraus folgen die Verhältnisse

$$\sin \alpha_1 = \frac{c_1 t}{OP} \quad (1)$$

und

$$\sin \alpha_2 = \frac{c_2 t}{OP}. \quad (2)$$

Diese beiden Gleichungen lassen sich gleichsetzen und es folgt

$$\frac{\sin \alpha_1}{\sin \alpha_2} = \frac{c_1}{c_2} = n_{12}. \quad (3)$$

Der Brechungsindex n_{12} gibt damit also das Verhältnis der Phasengeschwindigkeiten der ebenen Welle in den verschiedenen Medien zueinander an. Der Übergang von Licht aus dem Vakuum in ein beliebiges Material ist als der absolute Brechungsindex¹

$$n = \frac{c_0}{c} \quad (4)$$

definiert. c_0 ist die Lichtgeschwindigkeit im Vakuum und c die Lichtgeschwindigkeit im gewählten Medium.

Eine Verknüpfung des Brechungsindex mit den Eigenschaften des untersuchten Materials erfolgt über die Wellengleichung des Lichts. Diese lässt sich aus den Maxwellgleichungen²

$$\vec{\nabla} \times \vec{E} = -\frac{\partial \vec{B}}{\partial t} \quad (5)$$

und

$$\vec{\nabla} \times \vec{B} = \mu\sigma \vec{E} + \mu\epsilon \frac{\partial \vec{E}}{\partial t} \quad (6)$$

¹ [9], Seite 13

² [10], Seite 1041

ableiten. Während Gleichung (5) zeigt, dass Änderungen der magnetischen Flussdichte zu einem elektrischen Wirbelfeld führen, zeigt Gleichung (6) dass elektrische Ströme zu einem magnetischen Wirbelfeld führen. Dabei sind μ die Permeabilität, σ die elektrische Leitfähigkeit und ϵ die Dielektrizitätskonstante. Durch Bilden der zweiten Ableitungen der Ortsvariablen $\nabla \times (\nabla \times \vec{E})$ und $\nabla \times (\nabla \times \vec{B})$ ergeben sich für nichtleitendes Material die beiden Lösungen³

$$\vec{\nabla}^2 \vec{E} - \mu\epsilon \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} = 0 \quad (7)$$

und

$$\vec{\nabla}^2 \vec{B} - \mu\epsilon \frac{\partial^2 \vec{B}}{\partial t^2} = 0. \quad (8)$$

Vergleicht man diese mit einer allgemeinen, von Ort und Zeit abhängigen physikalischen Welle, welche sich durch ein verlustfreies Medium bewegt und durch eine lineare homogene, partielle Differentialgleichung zweiter Ordnung⁴ der Form

$$\frac{\partial^2 \Psi}{\partial x^2} = \frac{1}{c^2} \frac{\partial^2 \Psi}{\partial t^2} \quad (9)$$

beschrieben werden kann, zeigt sich der Zusammenhang

$$c = \frac{1}{\sqrt{\epsilon\mu}} \quad (10)$$

mit der Phasengeschwindigkeit des Lichts c . Für den Brechungsindex führt dies zu

$$n = \frac{c_0}{c} = \frac{\sqrt{\epsilon_r \mu_r \epsilon_0 \mu_0}}{\sqrt{\epsilon_0 \mu_0}} \quad (11)$$

$$n = \sqrt{\epsilon_r \mu_r}. \quad (12)$$

³ nach [10], Seite 1045

⁴ [10], Seite 23 f

Mit der elektrischen und magnetischen Feldkonstante ϵ_0 und μ_0 und den Materialkonstanten ϵ_r und μ_r . Da für sichtbares Licht transparente Materialien im Normalfall nicht magnetisch sind, kann $\mu_r = 1$ gesetzt werden und es ergibt sich ein direkter Zusammenhang zwischen dem Brechungsindex eines Materials und dessen Dielektrizitätskonstante mit

$$n = \sqrt{\epsilon_r}. \quad (13)$$

Es ist zu beachten, dass die gezeigten Zusammenhänge noch keine Abhängigkeit des Brechungsindex von der Wellenlänge des Lichts⁵ berücksichtigen. Da während dieser Arbeit mit jeweils konstanten Wellenlängen gearbeitet wird, soll auf diese Thematik auch nicht näher eingegangen werden. Weiterhin ist zu beachten, dass es sich bei dem Brechungsindex im Allgemeinen um eine komplexe Größe handelt. Der imaginäre Anteil beschreibt dabei die Absorption. Auf diese soll im folgenden nicht näher eingegangen werden und bei folgenden Erwähnungen des Brechungsindex ist zu beachten, dass immer der Realteil gemeint ist. Eine andere Abhängigkeit liegt auch zwischen der Intensität des Lichts und dem Brechungsindex des Materials vor. Auf diesen Zusammenhang wird in Abschnitt 2.4.3 noch näher eingegangen.

2.2 Laser

Voraussetzung für die in dieser Arbeit geplanten und durchgeführten Experimente ist die Nutzung von gepulster Laserstrahlung mit Pulslängen im Femtosekundenbereich. Die Funktionsweise eines Laser [11] [12] ("Light Amplification by Stimulated Emission of Radiation") beruht, wie der Name schon sagt, auf der Erzeugung und Verstärkung von Licht durch induzierte (im Englischen: *Stimulated*) Emission von Photonen. Hierbei wird die Wechselwirkung von Atomen mit elektromagnetischer Strahlung direkt genutzt. Die dafür verantwortlichen physikalischen Vorgänge, der prinzipielle Aufbau und die Funktionsweise eines Laser sollen deshalb in den folgenden Abschnitten näher betrachtet werden.

2.2.1 Induzierte Emission

Legt man, Einsteins Argumentation [13] folgend, die quantenmechanische Theorie zu Grunde, befinden sich die Moleküle eines Systems in diskreten

⁵ siehe [10], Seite 117 ff

Zuständen Z_i mit den dazugehörigen Energien ϵ_i . Betrachtet man nun die Moleküle eines Gases im Gleichgewicht, bei einer beliebigen Temperatur T , werden sich durchschnittlich N_i Moleküle pro Volumeneinheit in einem bestimmten diskreten Zustand Z_i befinden, wobei die Aufteilung in die einzelnen Zustände der Maxwell-Boltzmann-Verteilung

$$N_i = p_0 e^{-\epsilon_i/k_B T} \quad (14)$$

folgt. Dabei ist p_0 eine temperaturabhängige Konstante und k_B die Boltzmann-Konstante. Es ergibt sich für größere Energien ein kleinerer Exponentialterm und damit eine kleinere Anzahl von Molekülen im entsprechenden Zustand. Bei niedrigen Temperaturen werden sich die meisten der Moleküle im Grundzustand befinden. N_i wird als Besetzungsdichte bezeichnet.

Man betrachtet zwei Zustände Z_m und Z_n mit den dazugehörigen Energien ϵ_m und ϵ_n , wobei $\epsilon_m > \epsilon_n$ gilt. Für ein Molekül ist es nun möglich durch die Absorption oder Emission der Energie $(\epsilon_m - \epsilon_n)$ zwischen den Zuständen Z_n und Z_m zu wechseln. Die dabei absorbierte oder emittierte Strahlung in Form eines Photons hat dabei die Frequenz $\nu_{mn} = \frac{1}{h}(\epsilon_m - \epsilon_n)$, wobei h das Plancksche Wirkungsquantum ist. Die Wahrscheinlichkeit dW , mit der das angeregte Molekül wieder in einen stabilen Zustand zurückkehrt, lässt sich mit

$$dW = A_m^n dT \quad (15)$$

berechnen. Dabei ist A_m^n ein Proportionalitätsfaktor und dT die Zeit, innerhalb welcher es zum Übergang kommt. In der Regel wird sich das Molekül nur eine kurze Zeit in einem angeregten Zustand befinden und dann durch die hier beschriebene und in Abbildung 2 dargestellte spontane Emission in einen stabilen Zustand zurückkehren. Neben dieser spontanen Emission existiert jedoch noch ein weiterer für die Entwicklung des Laser entscheidender Prozess. Befindet sich ein Molekül in einem Strahlungsfeld mit einer spektralen Energiedichte ρ wird es mit einer Wahrscheinlichkeit von

$$dW = B_n^m \rho dT \quad (16)$$

vom Zustand Z_n in den Zustand Z_m übergehen. Dieser Prozess wird als induzierte Absorption bezeichnet. Die Energiedichte kann man sich dabei als

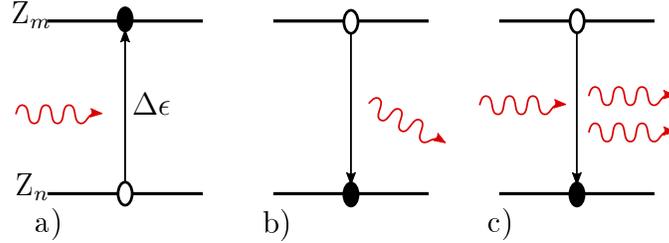


Abbildung 2: Schematische Darstellung der a) Absorption, b) spontanen Emission und c) induzierten Emission.

Photonendichte mit der Frequenz ν_{mn} vorstellen. Zugleich kann es jedoch durch den Einfluss des vorliegenden Feldes mit einer Wahrscheinlichkeit

$$dW = B_m^n \rho dT \quad (17)$$

zu einer induzierten Emission und damit zu einem Übergang eines angeregten Moleküls vom Zustand Z_m in den Zustand Z_n kommen. Dabei wechselwirkt ein ankommendes Photon, dessen Energie genau der Energiedifferenz $\Delta\epsilon = \epsilon_m - \epsilon_n$ entspricht, mit einem angeregten Molekül, welches dadurch in den Zustand Z_n zurückfällt und dabei ein Photon abstrahlt welches, in Energie, Phase, Richtung und Polarisation dem einfallenden Photon entspricht. Die Proportionalitätsfaktoren B_n^m und B_m^n bilden zusammen mit A_m^n die Einstein-Koeffizienten.

Befindet sich das System im thermodynamischen Gleichgewicht und die in Gleichung (14) beschriebene Zustandsverteilung ist nicht gestört, müssen die Anzahl der Absorptions- und Emissionsprozesse im Gleichgewicht sein

$$p_n e^{\frac{-\epsilon_n}{k_B T}} B_n^m \rho = p_m e^{\frac{-\epsilon_m}{k_B T}} (B_m^n \rho + A_m^n). \quad (18)$$

Um die Bedingung zu erfüllen, dass bei gegen unendlich strebenden Temperaturen auch die Energiedichte ρ gegen unendlich strebt, muss die Relation

$$p_n B_n^m = p_m B_m^n \quad (19)$$

gelten [13]. Damit folgt aus Gleichung (18)

$$\rho = \frac{\frac{A_m^n}{B_m^n}}{e^{\frac{\epsilon_m - \epsilon_n}{k_B T}} \left(\frac{p_n B_n^m}{p_m B_m^n} \right) - 1}. \quad (20)$$

Ein Vergleich mit dem Planckschen Strahlungsgesetz [13]

$$\rho = \frac{\alpha \nu^3}{e^{\frac{h\nu}{k_B T}} - 1} \quad (21)$$

zeigt, dass für die spontane und induzierte Emission

$$\frac{A_m^n}{B_m^n} = \alpha \nu^3 \quad (22)$$

gilt. Dies zeigt zum einen, dass beide Größen in einem proportionalen Verhältnis zueinander stehen, und zum anderen, dass für größere Frequenzen der Anteil der spontanen Emission ansteigt.

Aus den in diesem Abschnitt dargelegten Zusammenhängen lassen sich nun in den folgenden Abschnitten Schlüsse ziehen, welche Bedingungen erfüllt sein müssen, um einen funktionierenden Laser zu verwirklichen.

2.2.2 Besetzungsinversion

Da nur die induzierte Emission zur Erzeugung von Photonen, welche in Energie, Phase und Polarisation übereinstimmen, führt, muss dieser Prozess der dominierende im Vergleich zur spontanen Emission sein. Die Wahrscheinlichkeit einer induzierten Emission wird dabei in einem starken Strahlungsfeld, durch die Anwesenheit zahlreicher bereits emittierter Photonen ansteigen. Zudem ist aus Gleichung (22) ersichtlich, dass bei einer niedrigen Frequenz der Anteil der induzierten gegenüber dem der spontanen Emission größer ist. Damit es zu einer Verstärkung des Lichts innerhalb des Systems kommen kann, muss zudem die Voraussetzung erfüllt sein, dass die induzierte

Emission größer als die Absorption innerhalb des Systems ist und es so zu einer positiven Erzeugungsrate von Photonen kommt. Die Änderungsrate der Photonendichte über die Zeit lässt sich mit

$$\frac{dn(t)}{dt} = A_m^n N_m + \rho(B_m^n N_m - B_n^m N_n) \quad (23)$$

darstellen. Vernachlässigt man wegen der ersten genannten Voraussetzung die spontane Emission und berücksichtigt Gleichung (19) entscheidet über die Zunahme oder Abnahme der Photonendichte alleine das Verhältnis der Besetzungsdichten zueinander

$$\frac{dn(t)}{dt} = \rho B_n^m (N_m - N_n). \quad (24)$$

Ein positiver Wert für $\frac{dn(t)}{dt}$ führt zu einer Photonenzunahme und ein negativer Wert zu einer Photonenzunahme innerhalb des Systems. Die in Gleichung (14) eingeführte Maxwell-Boltzmann-Verteilung zeigt jedoch, dass im thermischen Gleichgewicht die energetisch niedrigeren Zustände eine höhere Besetzungsdichte vorweisen als höher energetische Zustände und es damit nur zu einer Abnahme der Photonen kommen kann. Es ist also notwendig, das System dauerhaft außerhalb des thermischen Gleichgewichts zu halten. Dies geschieht durch den Prozess des Pumpens. Dabei werden durch Anlegen eines äußeren Feldes die Moleküle durch geeignete Zufuhr von Energie kontinuierlich in den Zustand Z_m gehoben. Dabei können verschiedenste Mechanismen wie optisches Pumpen, elektrisches Pumpen oder chemisches Pumpen zur Anwendung kommen. Doch auch mithilfe eines Pumpmechanismus ist es bei dem bis jetzt genutzten Modell eines Zwei-Energieniveau-Schemas noch nicht möglich, den energetisch höheren Zustand stärker als den energetisch niedrigeren Zustand zu besetzen. Wiederum Gleichung (19) zeigt, dass bei zwei Zuständen maximal eine gleichstarke Besetzung erreicht werden kann. Um eine Besetzungsinversion zu erreichen, die zu einer Verstärkung des Lichts nötig wäre, ist also mindestens ein drittes am Prozess beteiligtes Energieniveau notwendig (siehe Abbildung 3). Handelt es sich bei Niveau Z_2 um einen metastabilen Zustand, mit einer im Vergleich zu Z_1 und Z_3 langen Lebensdauer τ , kann es zu einer Besetzungsinversion zwischen den Zuständen Z_2 und Z_1 kommen. Während des Pumpprozesses werden dabei Moleküle von Niveau Z_1 in Z_3 angeregt. Findet nun ein Übergang auf Niveau Z_2 schneller statt als die spontane Emission zurück nach Z_1 und war der Pumpvorgang

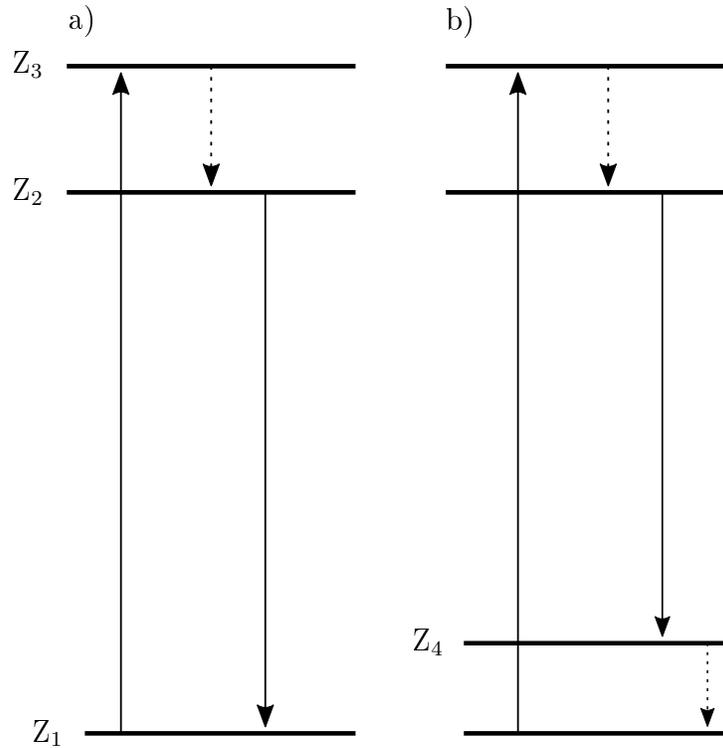


Abbildung 3: a) Bei einem Drei-Niveau-Laser gehen die angeregten Elektronen schnell und nichtstrahlend in Zustand Z_2 über. Von diesem gehen sie unter Emission eines Photons in Zustand Z_1 über.

b) Bei einem Vier-Niveau-Laser findet der strahlende Übergang zwischen Zustand Z_2 und Zustand Z_4 statt.

stark genug, um mehr als die Hälfte der Moleküle aus Niveau Z_1 anzuregen, befinden sich mehr Moleküle in Z_2 als in Z_1 und eine Lichtverstärkung durch Zunahme der Photonendichte ist möglich. Durch ein weiteres Niveau Z_4 (siehe Abbildung 3) wird die Besetzungsinversion noch einfacher möglich. Bei einem solchen Vier-Niveau-System findet die Abregung von Z_2 durch die induzierte Emission nicht ins Niveau Z_1 statt sondern in ein energetisch darüber liegendes Niveau Z_4 . Dieses ist nicht stabil und die Moleküle gehen sehr schnell von dort auf Niveau Z_1 über. Durch diesen Vorgang liegt sofort ab Beginn des Pumpvorgangs eine Besetzungsinversion zwischen den Niveaus Z_2 und Z_4 vor und ein Laserprozess ist möglich.

2.2.3 Resonator

Werden in einem Materialsystem, welches die vorher genannten Voraussetzungen besitzt, durch einen Pumpvorgang Moleküle angeregt, findet zunächst spontane Emission in alle Richtungen statt. Entlang der Achse des Systems werden die erzeugten Photonen durch induzierte Emission weiter verstärkt. Doch diese Verstärkung ist bei den meisten Materialsystemen bei einem einfachen Durchgang durch das Material nicht stark genug, um eine intensive Strahlung zu erreichen. Daher wird das aktive Material zwischen zwei Spiegel eingebracht. So läuft das in axialer Richtung emittierte Licht zwischen den Spiegeln hin und her und es kommt, wenn die Verstärkung größer ist als die Verluste innerhalb des Systems, bei jedem Durchlauf zu einer Erhöhung der Intensität, bis sich ein Gleichgewicht von Verstärkung und Verlusten einstellt. Die Verluste des Systems ergeben sich dabei aus dem Reflexionsgrad der Spiegel und anderen Effekten wie Beugung und Streuung. Dabei ist zu beachten, dass einer der Spiegel bewusst eine Reflexion von weniger als 100 % besitzt, um den Strahl auszukoppeln. Damit sich innerhalb des Resonators eine stehende Welle ausbilden kann, muss die Länge des Resonators L dem ganzzahligen Vielfachen m der halben Wellenlänge λ_m des emittierten Lichts entsprechen. Aus

$$L = m \frac{\lambda_m}{2} \quad (25)$$

und unter Berücksichtigung von

$$\lambda = \frac{c}{\nu} \quad (26)$$

folgt dann

$$\nu_m = \frac{mc}{2L} \quad (27)$$

mit c als Lichtgeschwindigkeit innerhalb des Mediums. Es existieren also viele longitudinale Resonatormoden mit der entsprechenden Frequenz ν_m mit dem Abstand

$$\nu_{m+1} - \nu_m = \frac{c}{2L}. \quad (28)$$

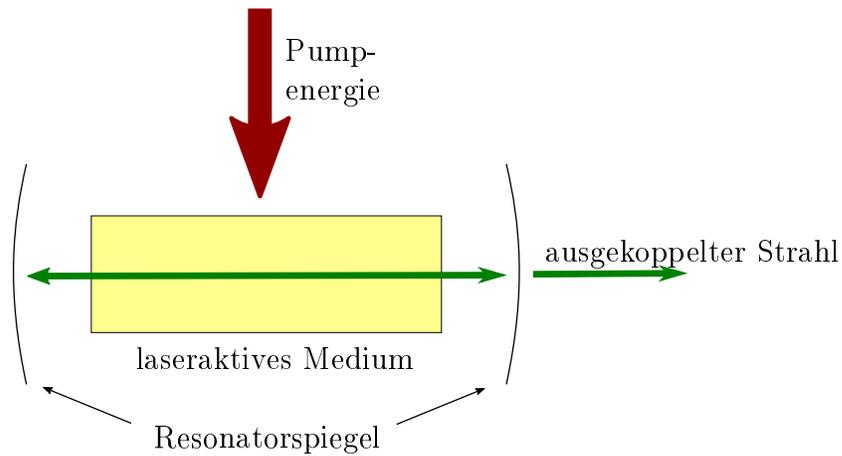


Abbildung 4: *Durch den Pumpmechanismus und induzierte Emission erzeugtes Licht läuft zwischen den Spiegeln des Resonators hin und her und wird bei jedem Durchlaufen des aktiven Lasermediums weiter verstärkt. Ein Teil dieser Strahlung wird durch einen nicht 100% reflektierenden Spiegel ausgekoppelt.*

Damit ist nun neben dem aktiven Lasermedium und dem Pumpmechanismus die dritte wichtige Komponente zur Verwirklichung eines Lasers eingeführt (siehe Abbildung 4).

2.2.4 Linienbreite

Bis jetzt wurde der Übergang zwischen zwei Niveaus als diskret angenommen. Tatsächlich liegt jedoch eine Unschärfe der Energie und den sich daraus ergebenden Frequenzen des Lichts bei Übergängen vor, die über die Zeit-Energie-Unschärfe

$$\Delta E \tau \approx h \quad (29)$$

nach Heisenberg [14] mit der mittleren Lebensdauer der Niveaus miteinander verknüpft sind. Diese Verteilung der Energien und daraus folgend auch der Frequenzen, lässt sich beschreiben, indem das angeregte Molekül als ein gedämpfter Oszillator der Form

$$x(t) = x_0 e^{-\left(\frac{\gamma}{2}\right)t} \cos(\omega_0 t) \quad (30)$$

mit γ als Dämpfungsterm und ω_0 als Kreisfrequenz angesehen wird. Durch eine Fouriertransformation dieser Gleichung lässt sich die Amplitude in Abhängigkeit der Frequenz berechnen

$$A(\omega) = \frac{x_0}{\sqrt{8\pi}} \left(\frac{1}{i(\omega - \omega_0) + \frac{\gamma}{2}} + \frac{1}{i(\omega + \omega_0) + \frac{\gamma}{2}} \right). \quad (31)$$

Damit ergibt sich für die reale Intensitätsverteilung statt einer δ -Funktion

$$I(\omega) = A(\omega)A^*(\omega) \quad (32)$$

ein Profil in Form einer Lorentzverteilung

$$I(\omega) = \frac{1}{2\pi} \frac{\gamma}{(\omega - \omega_0)^2 + \left(\frac{\gamma}{2}\right)^2}. \quad (33)$$

Aus dieser Kurve ergibt sich die Halbwertsbreite $\Delta\omega = \gamma$ welche dem reziproken Wert der mittleren Lebensdauer τ entspricht. Diese wiederum ist direkt mit dem Einsteinkoeffizienten A_m^n für die spontane Emission gleichzusetzen. Neben der natürlichen Linienbreite tragen noch weitere Effekte zur Verbreiterung des Frequenzspektrums bei. Dabei wird zwischen homogenen und inhomogenen Linienverbreiterungen unterschieden. Aufgrund der zahlreichen verschiedenen möglichen Materialsysteme für Laser existieren auch sehr viele verschiedene Mechanismen, die zu diesen Verbreiterungen⁶ führen. Im Folgenden soll nur auf die für den genutzten Festkörperlaser relevanten Prozesse eingegangen werden. Für homogene Linienverbreiterungen sorgen vor allem Wechselwirkungen mit dem Gitter für Störungen, die zu verkürzten Lebensdauern führen. Dabei werden während des strahlenden Übergangs Phononen vom Gitter emittiert oder absorbiert, so dass das beim Prozess emittierte Photon eine entsprechend höhere oder niedrigere Frequenz besitzt [16]. Zu einer inhomogenen Verbreiterung in Festkörpern kommt es durch variierende

⁶ [15], Seiten 36 ff

Einflüsse des Kristallfeldes auf die laseraktiven Ionen. Ursache dafür können verschiedene Positionen der Ionen innerhalb des Kristallgitters, mit dadurch verschiedenen nächste-nachbar-Umgebungen oder verschiedenen Abständen zu den nächsten Nachbarn sein [16]. Als Folge dieser zusätzlichen Effekte kann die resultierende Kurve der Intensität auch die Form einer Gaußverteilung bekommen.

Wird nun dieses kontinuierliche Frequenzspektrum mit den Resultaten des Kapitels 2.2.3 verknüpft, ergibt sich das in Abbildung 5 zu sehende Spektrum von einzelnen, voneinander unabhängigen Moden verschiedener Frequenzen.

2.2.5 Modenkopplung

Die im vorherigen Abschnitt beschriebenen Moden bewegen sich nun unabhängig voneinander und mit statistischen Phasenbeziehungen zueinander im Resonator hin und her. Zwischen diesen umherlaufenden Moden wird es durch Überlagerung, je nach Phasenlage; zu konstruktiver und destruktiver Interferenz kommen, wodurch es zu starken Schwankungen der Intensität kommt. Betrachtet man die Feldstärkeamplitude an einem Ort innerhalb eines Resonators der Länge L , setzt sich diese aus der Summe N benachbarter Frequenzen⁷ ν_m zusammen

$$E(t) = \sum_{m=m_0}^{m_0+(N-1)} E_m \cos(2\pi\nu_m t + \varphi_m). \quad (34)$$

Berücksichtigung von $\nu_m = \frac{mc}{2L}$ aus Gleichung (27) und der Laufzeit innerhalb des Resonators mit $T = \frac{2L}{c}$ ergibt

$$E(t) = \sum_{m=m_0}^{m_0+(N-1)} E_m \cos(2\pi \frac{t}{T} + \varphi_m). \quad (35)$$

Für eine Phasenverschiebung $\varphi = 0$ und der Voraussetzung $E_m = E_0$ ergeben sich durch positive Interferenz einzelne Pulse mit maximaler Feldstärkeamplitude, welche im Resonator umlaufen. In Abbildung 6 ist zu sehen, dass die zeitliche Länge dieser Pulse τ abhängig von der Anzahl involvierter Moden

⁷ [15], Seite 321

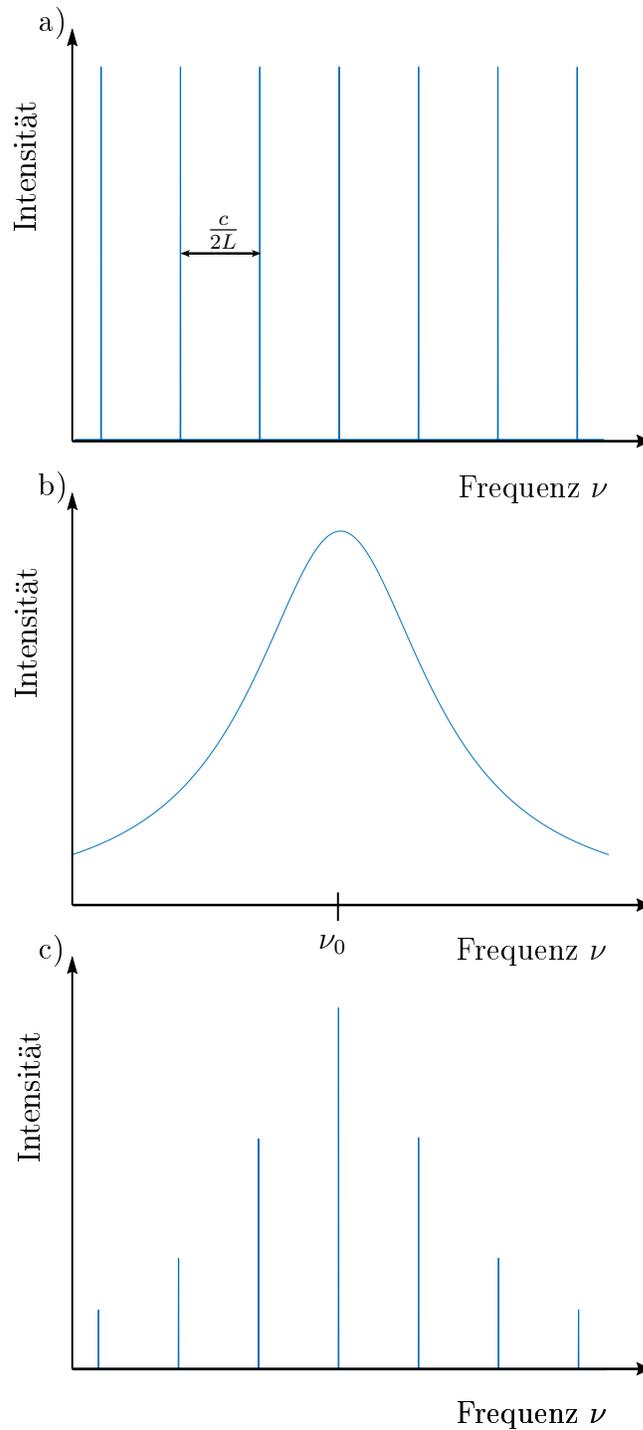


Abbildung 5: a) Innerhalb des Resonators können sich mit einer Frequenzdifferenz von $\frac{c}{2L}$ stehende Wellen und somit axiale Moden ausbilden. b) Die Anzahl der entstehenden Moden ist durch die Linienbreite des Lasers begrenzt. c) Eine Kombination dieser beiden Prozesse ergibt eine feste Anzahl von Moden, unterschiedlicher Intensität.

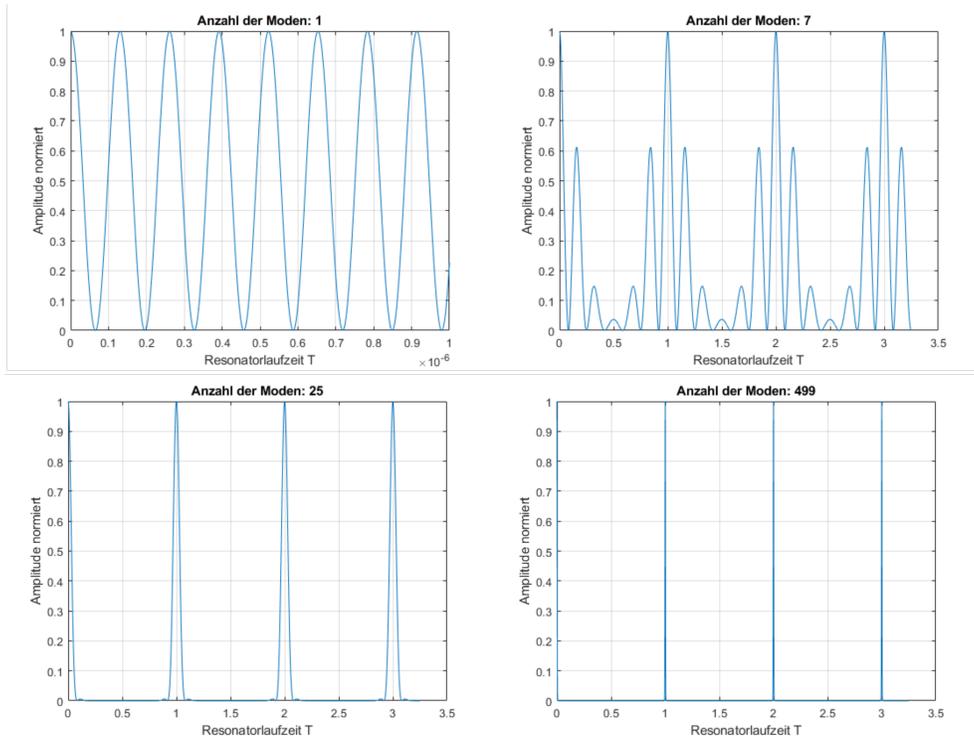


Abbildung 6: Durch eine höhere Anzahl umlaufender Moden bilden sich zeitlich kurze Pulse heraus.

N ist. Eine präzisere Verknüpfung zwischen der Pulsdauer und der Frequenzbreite $\delta\nu$ (mit $\delta\nu = \frac{\delta\omega}{2\pi}$) ergibt sich aus dem Puls-Bandbreiteprodukt

$$\tau\Delta\nu \geq K. \quad (36)$$

Diese Gleichung ergibt sich aus einer Fouriertransformation der zeitabhängigen Feldstärkeamplitude. Der Faktor K hängt dabei zum einen von der Form der Einhüllenden des entstandenen Pulses und zum anderen von der Definition der Länge eines Pulses ab. Diese kann beispielsweise abhängig von der Halbwertsbreite (FWHM) oder dem Abfall der Intensität auf $\frac{1}{e^2}$ der Amplitude angegeben werden. Für einen gaußförmigen Puls und der Verwendung von FWHM beträgt der K -Faktor beispielsweise 0,44.

Bei einer Linienbreite $\Delta\nu$ und der in Gleichung (27) gefundenen Bedingung lässt sich die Gesamtzahl der im Puls vorliegenden Moden durch

$$N = \Delta\nu \frac{2L}{c} \quad (37)$$

bestimmen, woraus sich mittels Gleichung (36) die Pulslänge

$$\tau \geq \frac{2KL}{Nc} \quad (38)$$

ergibt. Eine große Linienbreite und einhergehend eine große Anzahl von Moden führt also zu zeitlich sehr kurzen Pulsen. Zur Erzeugung von Pulsen im Bereich von Femtosekunden ist ein sehr breitbandig emittierendes Lasermedium im Bereich von $N > 10^5$ Moden nötig.

Zur Verwirklichung eines Kurzpulslasers muss die in diesem Abschnitt beschriebene, statistisch auftretende Modenkopplung aktiv unterstützt werden. Dafür ist es notwendig, die im Resonator umlaufenden ungekoppelten Moden, also solche mit einer Phasenverschiebung, zu unterdrücken. Dafür stehen verschiedene Techniken zur Verfügung, welche sich in aktive und passive Modenkopplung einteilen lassen⁸. Die für Femtosekundenpulse geeigneten passiven Methoden nutzen dabei Effekte aus, bei welchen die hohen Intensitäten der gekoppelten Moden ungestört im Resonator umlaufen können und somit durch den Laserprozess weiter verstärkt werden, während niedrigere Intensitäten absorbiert (sättigende Absorber) oder durch Blenden abgeschirmt (zum Beispiel optische Kerr-Linse) werden. Auf den optischen Kerr-Effekt wird als Beispiel für nichtlineare optische Effekte in Abschnitt 2.4.3 kurz eingegangen.

2.2.6 Fokussierbarkeit

Um die für nichtlineare optische Effekte benötigten hohen Intensitäten des eingekoppelten Feldes zu erreichen, ist es notwendig, die aus dem Laser emittierten Strahlen auf einen Punkt zu fokussieren. Bei näherer Betrachtung ist die Größe dieses Punktes auch bei einem Lasersystem, welches im Vergleich zu anderen Lichtquellen eine sehr große Kohärenz und einen kleinen Ausbreitungswinkel des Lichts besitzt, durch Beugungseffekte auf einen Minimalwert begrenzt. Zur Berechnung dieses Wertes muss neben den bisher betrachteten longitudinalen Moden auch die transversale Feldverteilung des Lasers betrachtet werden. Diese Verteilung ist abhängig vom Resonator und kann

⁸ siehe dazu [15], Seite 323 ff.

durch das Lösen der Wellengleichung unter den durch die Form des Resonators festgelegten Randbedingungen berechnet werden. Es zeigt sich, dass es zur Ausbildung stabiler transversaler Moden verschiedener Ordnung kommt. Diese stehen senkrecht zur Ausbreitungsrichtung des Lasers und werden als TEM_{*mn*}-Moden bezeichnet (dabei steht TEM für "transverse electric and magnetic"). Die Parameter *m* und *n* geben dabei die Anzahl der Knotenlinien an, welche sich in x- und y-Richtung ausbilden. In Abbildung 7 sind verschiedene Ordnungen dieser Moden zu sehen. Eine für viele Anwendungen geeignete und auch für diese Arbeit verwendete Strahlform ist die Grundmode TEM₀₀, welche keine Knotenlinien aufweist und im Querschnitt einer Gaußkurve entspricht. Das entstehende Strahlprofil⁹ kann durch

$$E(r, z) = E_0 e^{\frac{-r^2}{w(z)^2}} e^{-ikz} e^{\frac{r^2}{2R}}, \quad (39)$$

als Lösung der Wellengleichung beschrieben werden. Der erste Term dieser Gleichung gibt die Amplitude der Feldstärke an. Dabei ist E_0 ein Normierungsfaktor, r die radiale Strahlkoordinate und w der Strahldurchmesser an entsprechender Stelle z in Ausbreitungsrichtung. Dies entspricht einer Gaußverteilung und es zeigt sich für die Intensität als Quadrat der Feldamplitude für $r = 0$ das Maximum und eine Intensität von $I(r) = \frac{I_0}{e^2}$ für $r = w$. Der zweite Term beschreibt die Phase und der dritte Term den Ausbreitungsradius der Welle mit R als Krümmungsradius des Gaußbündels. In z -Richtung ergibt sich damit das in Abbildung 8 zu sehende Ausbreitungsprofil mit einer Strahltaile

$$w_0 = \frac{z_R \lambda}{\pi} \quad (40)$$

bei $z = 0$. λ gibt die Wellenlänge des Lichts an und die Rayleighlänge z_R beschreibt nach welcher Entfernung die Strahltaile um den Wert $\sqrt{2}$ zugenommen hat. Umformen dieser Gleichung nach der Rayleighlänge

$$z_R = \frac{w_0^2 \pi}{\lambda} \quad (41)$$

⁹ [17], Seite 152

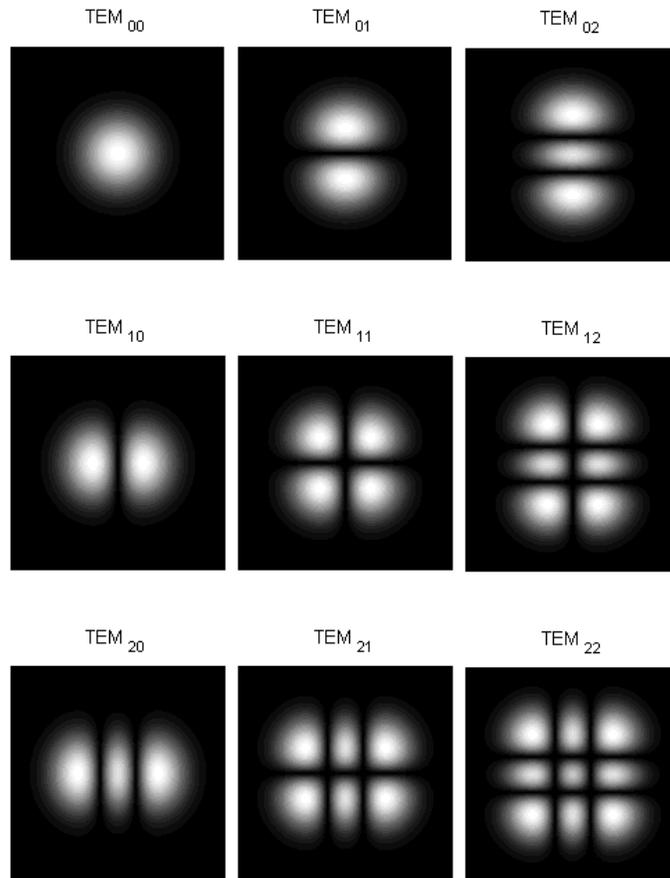


Abbildung 7: Neben den longitudinalen Moden können sich auch verschiedene transversale Moden ausbilden. Dabei bilden sich in x - und y -Richtung Knotenlinien aus.

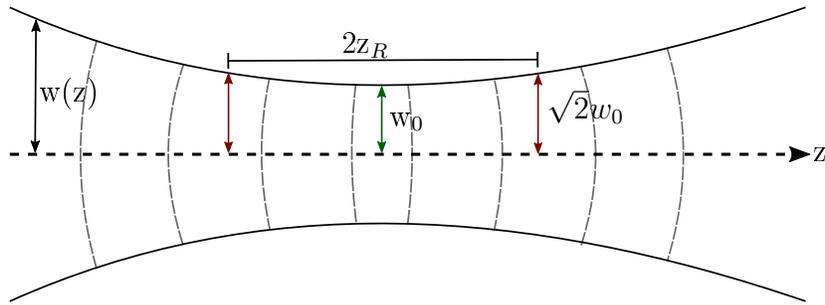


Abbildung 8: Ausbreitungsprofil eines gaußschen Strahls. Von einer Strahl-
 taille w_0 an $z = 0$ ausgehend nimmt der Radius in Abhängigkeit von z zu.
 Die Rayleighlänge z_R gibt an, wann der Radius sich auf $\sqrt{2}w_0$ aufgeweitet
 hat.

zeigt, dass eine größere Strahl-
 taille w_0 zu einer kleineren Rayleighlänge und
 damit zu einer kleineren Divergenz des Strahlenbündels führt.

Soll nun die Größe der Strahl-
 taille eines solchen Gaußprofils nach dem Durch-
 gang durch eine Sammellinse mittels der geometrischen Optik beschrieben
 werden¹⁰, muss die Abbildungsgleichung

$$\frac{1}{b} = \frac{1}{g} + \frac{1}{f} \quad (42)$$

leicht angepasst werden. b entspricht hierbei der Bildweite, g der Gegen-
 standsweite und f der Brennweite der Linse. Da die Strecke g von der Linse
 nach links verläuft, ist diese Größe negativ. Ausgehend von dieser Gleichung
 ergibt sich für die Transformation einer einfallenden Kugelwelle mit dem Ra-
 dius $R_1 = -g$ in eine Kugelwelle mit dem Radius $R_2 = -b$ die Gleichung

$$\frac{1}{R_2} = \frac{1}{R_1} - \frac{1}{f}. \quad (43)$$

Die Radien R sind für konkave Wellenfronten, von der Linse aus betrachtet,
 negativ. Zur Beschreibung eines Gauß-Strahls müssen die Parameter R_1 und
 R_2 nun durch die komplexen Strahlparameter

¹⁰ nach [15], Seite 234 ff

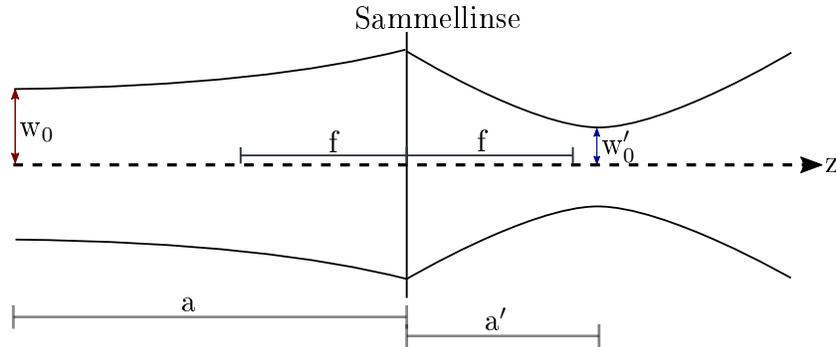


Abbildung 9: Nach der Fokussierung eines gaußschen Strahls durch eine Sammellinse ergibt sich eine neue Strahltaile w'_0 .

$$\begin{aligned} q_1 &= a + iz_R \\ q_2 &= a' + iz'_R \end{aligned} \quad (44)$$

ersetzt werden. a und a' geben wie in Abbildung 9 zu sehen jeweils den Abstand von der Strahltaile zur Linse an, während z_R und z'_R die Rayleighlängen vor und nach der Linse beschreiben. Aus den Gleichungen (41), (43) und (44) folgt dann

$$\frac{w'_0}{w_0} = \frac{f}{\sqrt{(a-f)^2 + z_R^2}}. \quad (45)$$

Nach Umformen dieser Gleichung nach w'_0 und der Annahme, dass $z_R \gg (a-f)$ wegen der geringen Divergenz von Laserlicht gilt, ergibt sich für den minimalen Strahldurchmesser nach dem Linsendurchgang

$$w'_0 = \frac{\lambda f}{\pi w_0}. \quad (46)$$

Es zeigt sich, dass der minimale Strahldurchmesser einerseits von der Wellenlänge des Lasers abhängt und kleinere Wellenlängen eine bessere Fokussierbarkeit ermöglichen und andererseits die Strahltaile des ankommenden Lichtbündels einen Einfluss hat. Eine Strahlaufweitung des Laserlichts durch

ein Linsensystem vor der Fokussierung führt damit zu einem kleineren w'_0 . Bei der Fokussierung durch ein Objektiv bietet es sich an, diese neue Strahltaile in Abhängigkeit der Apertur anzugeben. Für diesen Ansatz muss jedoch die Näherung genutzt werden, dass das ankommende Licht eine ebene Wellenfront besitzt. Die Apertur ist dann durch

$$NA = \frac{w_0}{f} \quad (47)$$

definiert. Daraus folgt für Gleichung (46) eine Strahltaile von

$$w'_0 = \frac{2}{\pi} \frac{\lambda}{NA}. \quad (48)$$

2.2.7 Yb:KGW

Bei dem für diese Arbeit verwendeten Lasersystem handelt es sich um einen Festkörperlaser mit einem Ytterbium-aktivierten Laserkristall. Der Einsatz von Ytterbium-Ionen als laseraktives Material hat zu einer ganzen Gruppe von Lasersystemen geführt [16], [18], [19] die sich in ihren spektroskopischen Eigenschaften leicht unterscheiden. Im vorliegenden Fall handelt es sich um ein Doppelwolframat der Form $\text{Yb:KGd}(\text{W}_4)_2$, welches unter dem Kürzel Yb:KGW geführt wird.

Bei Ytterbium handelt es sich um das 70. Element des Periodensystems aus der Gruppe der Lanthanide. Die Elektronenstruktur¹¹ des Elements entspricht $[\text{Xe}]4f^{14}6s^2$ und es liegt in Verbindungen gewöhnlich als zweifach oder dreifach positiv geladenes Ion vor [16]. Für Yb^{+3} führt dies zur Konfiguration $[\text{Xe}]4f^{13}$ und somit zu einer bis auf ein Elektron gefüllten f-Schale. Dies führt zu einer relativ einfachen in Abbildung 10 dargestellten Niveaustuktur. Bei den dargestellten Niveaus handelt es sich um die für den Laserprozess relevanten Stark Multipletts $F_{\frac{7}{2}}$ und $F_{\frac{5}{2}}$ mit einem Abstand von etwa 1,24 eV [16], [19]. Der energetisch niedrigere $F_{\frac{7}{2}}$ Zustand ist dabei in vier Level (0, 1, 2, 3) und $F_{\frac{5}{2}}$ in drei Level (0', 1', 2') aufgespalten. Die geringen Energieunterschiede innerhalb der beiden Multipletts führen dazu, dass die einzelnen Level über die Boltzmann-Verteilung miteinander

¹¹ [20], Seite 355

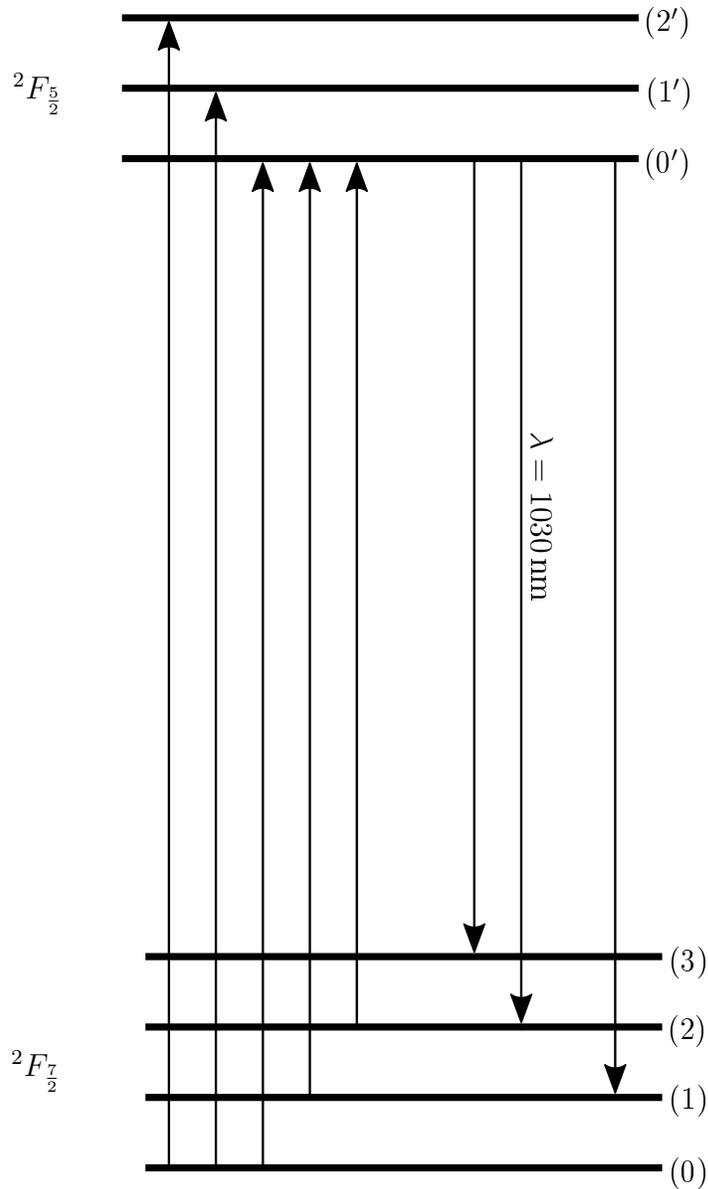


Abbildung 10: Die Niveaustuktur eines Yb:KGW Laser ist relativ einfach. Aus dem $F_{7/2}$ Multiplett werden Elektronen in das $F_{5/2}$ Multiplett angeregt. Dort relaxieren diese strahlungsfrei in den Zustand $F_{5/2}(0')$. Von diesem findet der strahlende Übergang statt. Dominierend ist dabei der Übergang mit einer Wellenlänge von $\lambda = 1030 \text{ nm}$.

verknüpft sind. Wird dieses System mittels Laserdiode mit einer Wellenlänge von 900–980 nm angeregt, gehen die meisten der angeregten Moleküle schnell durch Intrabandübergänge in den, mit einer Lebensdauer von etwa einer Millisekunde [19], metastabilen Zustand $F_{\frac{5}{2}}(0')$ über. Von dort findet dann der strahlende Übergang in $F_{\frac{7}{2}}$ statt. Durch diese Prozesse entsteht trotz nur zwei vorhandener Multipletts ein "Quasi-Dreilevel-System". Der dominierende strahlende Übergang für Yb:KGW ist $F_{\frac{5}{2}}(0')$ in $F_{\frac{7}{2}}(2)$ [19] mit einer daraus resultierenden Wellenlänge um 1030 nm. Die für Kurzpulslaser notwendige große Frequenzbreite ergibt sich bei Yb:KGW überwiegend aus der in Abschnitt 2.2.4 erwähnten homogenen und inhomogenen Linienverbreiterungsmechanismen.

2.3 Interferometrie

Bei der Interferometrie handelt es sich um eine Messmethode, die auf der Interferenz mehrerer Wellen basiert. Daher soll vor der näheren Beschreibung der Messmethode zunächst noch eine kurze allgemeine Betrachtung¹² vorgestellt werden. Anschließend wird die Funktionsweise der Interferometrie am Beispiel eines Twyman-Green-Interferometers deutlich gemacht.

2.3.1 Interferenz

Betrachtet werden sollen zwei ebene, monochromatische Wellen gleicher Frequenz \vec{E}_1 und \vec{E}_2 , welche von zwei unterschiedlichen Quellen ausgehend im Raum überlappen. Die resultierende Intensität des Lichts ist gegeben als

$$I = \vec{E}^2 = (E_0 \sin(\omega t))^2, \quad (49)$$

was dem zeitlichen Mittelwert des Quadrats der elektrischen Feldes (mit einer Amplitude E_0) entspricht. Diese kann mit gängigen Sensoren gemessen werden und wird auch als Bestrahlungsstärke bezeichnet. Da es sich in diesem Fall um die Überlagerung zweier Feldstärken \vec{E}_1 und \vec{E}_2 handelt, ergibt sich das resultierende Quadrat wegen

$$\vec{E}^2 = (\vec{E}_1 + \vec{E}_2)(\vec{E}_1 + \vec{E}_2) \quad (50)$$

¹² nach [10], Seiten 628 ff

zu

$$\vec{E}^2 = \vec{E}_1^2 + \vec{E}_2^2 + 2\vec{E}_1\vec{E}_2. \quad (51)$$

Somit ergibt sich die Intensität zu

$$I = I_1 + I_2 + 2I_{12}. \quad (52)$$

Der letzte Ausdruck dieser Gleichung ist der sogenannte Interferenzterm. Eine genauere Betrachtung dieses Terms, unter der Annahme, dass die beiden Wellen parallel zueinander ausgerichtet sind und der Berücksichtigung einer Phase δ zwischen diesen beiden Wellen, führt zu

$$I = I_1 + I_2 + \sqrt{I_1 I_2} \cos \delta. \quad (53)$$

Die Intensität wird somit für Phasenunterschiede von ganzzahligen Vielfachen von 2π maximal und für ganzzahlige ungerade Vielfache von π minimal.

2.3.2 Twyman-Green-Interferometer

Im Laufe der Zeit wurden viele verschiedene Typen von Interferometern entwickelt (siehe [21]), um verschiedenste Messaufgaben bewältigen zu können. Eines dieser Typen ist das im frühen 20. Jahrhundert entwickelte Twyman-Green-Interferometer, mit welchem die Qualität optischer Komponenten untersucht werden kann. Zudem lassen sich Änderungen des Brechungsindex messen wodurch es für den Zweck dieser Arbeit sehr gut geeignet ist.

In Abbildung 11 ist der schematische Aufbau eines solchen Interferometers, wie es in leicht abgewandelter Form realisiert wurde, zu sehen. Als Lichtquelle dient ein Laser, der durch sein monochromatisches Licht und die große Kohärenzlänge früher genutzten Weißlichtquellen weit überlegen ist. Durch eine erste Linse wird der divergierend aus einer Faser austretende Laserstrahl parallelisiert, wodurch sowohl ein geeigneter Strahldurchmesser als auch eine ebene Wellenfront erreicht werden. Dieses Lichtbündel trifft dann auf eine Strahlteilerplatte und wird dort amplitudenspaltend aufgetrennt. Das reflektierte Lichtbündel L_1 trifft anschließend auf einen verkippt montierten Spiegel S_1 und wird von diesem zurück zum Strahlteiler reflektiert. Das transmittierte Lichtbündel L_2 trifft auf den fest montierten Spiegel S_2 und läuft

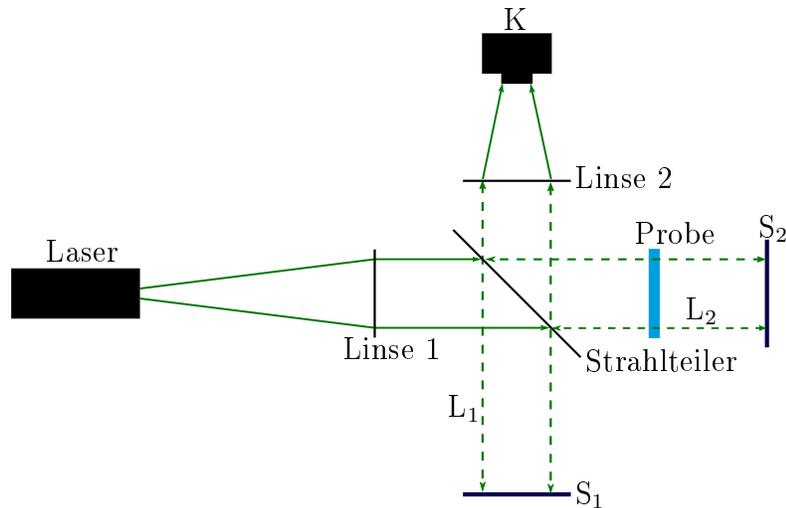


Abbildung 11: *Schematischer Aufbau eines Twyman-Green-Interferometers.*

von dort zurück zum Strahlteiler. Nach erneuter Transmission und Reflexion an diesem Bauteil überlagern sich die beiden Teilbündel nun interferierend sowohl in Richtung zurück zur Lichtquelle als auch in Richtung des Sensors K. Bei Bedarf befindet sich vor diesem noch eine Sammellinse, um das gesamte Strahlenbündel auf den Sensor zu fokussieren. Handelt es sich bei diesem Sensor um einen Bildschirm, ist dann entsprechend Abschnitt 2.3 direkt ein Interferenzmuster zu sehen. Bei perfekt ausgerichteten Spiegeln wird es sich bei dem Bild um eine gleichmäßig erhellte Fläche handeln. Die Helligkeit hängt dabei von der Differenz der optischen Weglängen (OPD) und der sich daraus ergebenden Phase zwischen den Bündeln L_1 und L_2 ab. Wird der justierbare Spiegel jedoch leicht verkippt, ändert sich die optische Weglänge des Lichtbündels L_1 über seine gesamte Achse kontinuierlich und somit auch die OPD der interferierenden Lichtbündel. Auf dem Bildschirm zeigen sich dadurch die in Abbildung 12 zu sehenden, typischen Interferenzstreifen.

Wird eine zu untersuchende optische Komponente in einen beiden der Strahlengänge L_1 oder L_2 eingebracht, können aus den sich ergebenden Interferenzmustern Schlüsse auf vorliegende Fehler gezogen werden (siehe dazu zum Beispiel [22]). In dieser Arbeit handelt es sich bei der verwendeten Komponente um eine planparallele Platte aus Polymethylacrylat, welche komplett in den Strahlengang eingebracht wird. Dadurch erzeugt sie eine zusätzliche

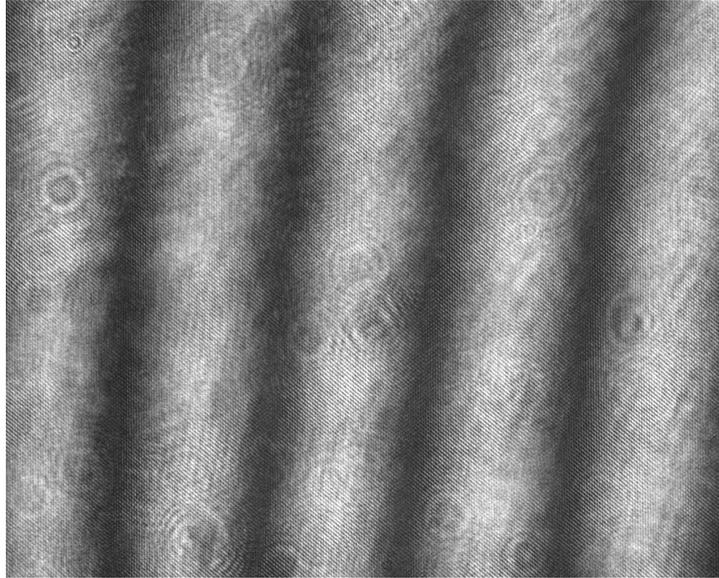


Abbildung 12: *Ein leicht verkippter Spiegel führt bei einem Twyman-Green-Interferometer zu den typischen Interferenzstreifen.*

optische Weglängendifferenz¹³ von

$$OPD = 2(n_{\text{PMMA}} - 1)d \quad (54)$$

mit der Dicke der Platte d und dem Brechungsindex des Materials n_{PMMA} . Bei entsprechend guter Qualität der Probe wird das Interferenzmuster dadurch noch nicht gestört, da über die gesamte Fläche die OPD konstant ist. Eine lokale Änderung des Brechungsindex führt jedoch zu einer lokalen Änderung der Lichtgeschwindigkeit und somit einer Phasenverschiebung des Lichts im Vergleich zu unveränderten Bereichen. Durch den sich ergebenden Sprung im Streifenmuster des Interferogramms ist die Brechungsindexänderung mit

$$\Delta n = \frac{OPD}{2d} \quad (55)$$

berechenbar.

¹³ [21], Seite 62

2.4 Nichtlineare Optik

2.4.1 Einführung

Die Optik beschreibt die Ausbreitung von Licht und die Wechselwirkung des Lichts mit Materie sowie die sich daraus ergebende Modifizierung optischer Eigenschaften dieser Materie durch Licht. Das Gebiet der nichtlinearen Optik beschäftigt sich dabei mit dem nichtlinearen Zusammenhang zwischen der Stärke des angelegten Feldes und der Antwort des Systems auf dieses. Ist die Frequenz eines angelegten elektromagnetischen Feldes hoch genug, kommt es auch bei elektrisch nichtleitenden Materialien zu einer Verschiebung der Ladungsträger und zur Ausbildung von Dipolmomenten innerhalb des Materials, da die trägen Kernmassen dem angelegten Feld nicht mehr folgen können, während die Elektronen dazu noch in der Lage sind¹⁴. Beschreiben lässt sich das ausgebildete Dipolmoment in Abhängigkeit des elektrischen Feldes, im allgemeinen Fall, durch die Polarisation¹⁵

$$\vec{P}(t) = \epsilon_0 \chi \vec{E}(t). \quad (56)$$

ϵ_0 ist dabei die elektrische Feldkonstante und χ die Suszeptibilität des Materials, welche als Proportionalitätsfaktor zwischen Polarisation und der angelegten Feldstärke $\vec{E}(t)$ dient. χ lässt sich zudem über

$$\chi = \epsilon_r - 1 \quad (57)$$

beschreiben und kann durch Gleichung (13) direkt mit dem Brechungsindex verknüpft werden. Zur Beschreibung der nichtlinearen Effekte ist jedoch eine Betrachtung der einzelnen Koeffizienten

$$\vec{P}(t) = \vec{P}^{(1)}(t) + \vec{P}^{(2)}(t) + \vec{P}^{(3)}(t) \dots \quad (58)$$

notwendig. Nach Gleichung (56) lässt sich die Polarisation somit durch

$$\vec{P}(t) = \epsilon_0 [\chi^{(1)} \vec{E}(t) + \chi^{(2)} \vec{E}^2(t) + \chi^{(3)} \vec{E}^3(t) + \dots] \quad (59)$$

¹⁴ [23], Seite 18

¹⁵ [24], Seite 2

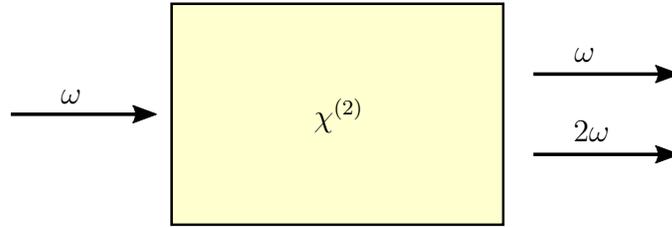


Abbildung 13: Schematische Darstellung der Frequenzverdopplung. Während ein Teil der Strahlung mit der Frequenz ω durch das Material transmittiert wird, kommt es zusätzlich zur Emission von Strahlung doppelter Frequenz.

beschreiben. $\chi^{(2)}$ und $\chi^{(3)}$ sind hierbei die Suszeptibilitäten der zweiten und dritten Ordnung. Die Größenordnungen¹⁶ der einzelnen Ordnungen der Suszeptibilität ($\chi^{(1)} \sim 1$, $\chi^{(2)} \sim 10^{-12} \frac{\text{m}}{\text{V}}$, $\chi^{(3)} \sim 10^{-22} \frac{\text{m}^2}{\text{V}^2}$) lassen erahnen, warum erst mit der Erfindung des Laser und den damit ermöglichten hohen elektrischen Feldstärken des Lichts eine experimentelle Bestätigung [25], [26] der schon früher vorhergesagten nichtlinearen Effekte [27] erfolgen konnte. In den nächsten Abschnitten folgt eine Übersicht über die für diese Arbeit relevanten nichtlinearen optischen Effekte.

2.4.2 Frequenzverdopplung

Bei der, oft als SHG (Second Harmonic Generation) abgekürzten, Frequenzverdopplung handelt es sich um einen Prozess, bei welchem durch Bestrahlung eines transparenten Materials mit einem Laser, neben der Strahlung einer Frequenz ω zusätzlich eine Strahlung mit doppelter Frequenz entsteht. Eine schematische Darstellung des Prozesses ist in Abbildung 13 zu sehen. Aus quantenmechanischer Sicht betrachtet, finden dabei sowohl die Vernichtung zweier Photonen der Frequenz ω als auch die Entstehung eines Photons der Frequenz 2ω , wie in Abbildung 14 dargestellt, gleichzeitig in einem einzigen Prozess statt [27].

Das auf ein Medium treffende Laserlicht kann als Welle mit

$$\vec{E} = E e^{-i\omega t} \quad (60)$$

¹⁶ [24], Seiten 50, 221

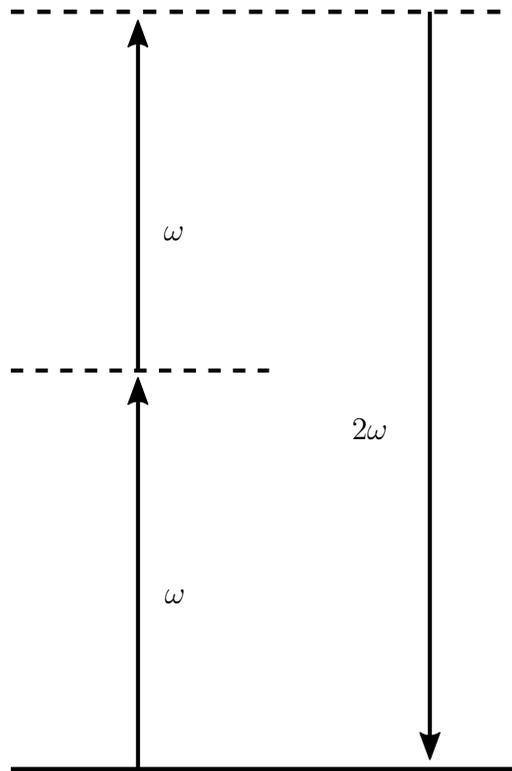


Abbildung 14: *Eine Betrachtung der energetischen Übergänge bei der Frequenzverdopplung. Zwei Photonen regen gleichzeitig ein Elektron an, welches unter Austrahlung eines Photons doppelter Frequenz in den ursprünglichen Zustand übergeht.*

beschrieben werden. Da es sich bei der Frequenzverdopplung um einen nichtlinearen Prozess zweiter Ordnung handelt, wird die nichtlineare Polarisation entsprechend Gleichung (59) durch

$$\vec{P}^{(2)} = \chi^{(2)} \vec{E}^2(t) \quad (61)$$

dargestellt. Einsetzen von Gleichung (60) in Gleichung (61) und Ausrechnen des Ausdrucks führt zum neuen, aus zwei Termen bestehenden, Ausdruck für den nichtlinearen Anteil der Polarisation

$$\vec{P}^{(2)} = \underbrace{2\epsilon_0\chi^{(2)}EE^*}_a + \underbrace{\epsilon_0\chi^{(2)}E^2e^{-i2\omega t}}_b. \quad (62)$$

Term a entspricht einem statischen optischen Feld, während in Term b zu erkennen ist, dass sich die Frequenz verdoppelt hat.

Es ist zu beachten, dass für isotrope Materialsysteme und inversionssymmetrische Kristalle $\chi^{(2)} = 0$ ist und somit in solchen Systemen keine Effekte zweiter Ordnung zu erwarten sind.

Auch bei geeigneten Materialien ist das Herbeiführen einer nutzbaren Strahlung mit doppelter Frequenz nicht ohne weiteres möglich. Da sich bei der Fortbewegung von Licht durch dichte Materie die entstehenden Elementarwellen nur in Ausbreitungsrichtung konstruktiv überlagern¹⁷, muss das entstehende Signal phasengleich zum eingestrahnten Signal sein. Durch die Dispersion entsteht jedoch ein Phasenunterschied zwischen den Phasen von Strahlung verschiedener Frequenzen und es muss eine Phasen Anpassung vorgenommen werden, um bei Austritt aus dem Kristall ein messbares Signal zu erhalten. Abbildung 15 zeigt die Amplitude für verschiedene Phasenunterschiede. Dies kann durch die Ausnutzung verschiedener Brechungsindices für verschiedene Ausrichtungen der Polarisation des E-Feldes zur optischen Achse des Kristalls, wie es in einigen nicht isotropen Kristallen vorkommt, geschehen. Durch passende Drehung des Kristalls zur Ausbreitungsrichtung des Laserstrahls kann so ein großer Teil der Strahlung umgewandelt werden.

2.4.3 Selbstfokussierung von Licht

Für viele Materialien kann der Brechungsindex n über die Beziehung

¹⁷ [10], Seite 157

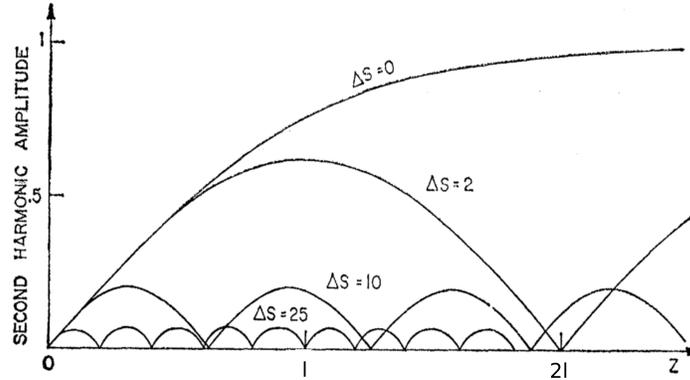


Abbildung 15: Das Wachstum des frequenzverdoppelten Signals in Abhängigkeit des Phasenunterschieds ΔS zum Eingangssignal. Bei perfekter Phase $\Delta S = 0$ zwischen den beiden Strahlen steigt der Anteil des frequenzverdoppelten Signals beim Durchlaufen des Kristalls an, während die Amplitude des Ursprungssignals dementsprechend kleiner wird. Der Parameter l ist eine charakteristische Interaktionslänge, nach welcher etwa 75% der ankommenden Energie umgewandelt wurde (nach [28]).

$$n = n_0 + 2n_2|E(\omega)|^2 \quad (63)$$

beschrieben werden. n_0 ist der aus Abschnitt 2.1 bekannte lineare Anteil und n_2 eine Proportionalitätskonstante, welche angibt, wie stark sich der Brechungsindex mit steigender Intensität des eingekoppelten Feldes ändert. Um diesen nichtlinearen Prozess dritter Ordnung, der auch als optischer Kerr-Effekt bezeichnet wird, über die Polarisation zu beschreiben, muss zunächst der nichtlineare Anteil dieser Polarisation betrachtet werden. Er ergibt sich zu¹⁸

$$P^{(3)} = 3\epsilon_0\chi^{(3)}|E(\omega)|^2E(\omega) \quad (64)$$

und damit folgt eine Gesamtpolarisation¹⁹ von

¹⁸ [24], Seite 13

¹⁹ [24], Seite 208

$$P(\omega) = \epsilon_0 \chi^{(1)} E(\omega) + P^{(3)} = \epsilon_0 \chi^{(1)} E(\omega) + 3\epsilon_0 \chi^{(3)} |E(\omega)|^2 E(\omega). \quad (65)$$

Zur Vereinfachung erfolgt die Einführung der effektiven Suszeptibilität

$$\chi_{\text{eff}} = \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)} |E(\omega)|^2 \quad (66)$$

und damit

$$P(\omega) = \epsilon_0 \chi_{\text{eff}} E(\omega). \quad (67)$$

Über Gleichung (13) und das bekannte Verhältnis

$$\epsilon_r = 1 + \chi \quad (68)$$

ergibt sich

$$n^2 = 1 + \chi_{\text{eff}} \quad (69)$$

und daraus, mit den Gleichungen (63) und (66), folgend

$$[n_0 + 2n_2 |E(\omega)|^2]^2 = 1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)} |E(\omega)|^2, \quad (70)$$

$$n_0^2 + 4n_0 n_2 |E(\omega)|^2 + 4n_2^2 |E(\omega)|^4 = 1 + \chi^{(1)} + 3\chi^{(3)} |E(\omega)|^2. \quad (71)$$

Unter Berücksichtigung der Terme bis zur zweiten Ordnung lässt sich aus dieser Gleichung eine Relation zwischen den Brechungsindizes und den Suszeptibilitäten

$$n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}} \quad (72)$$

und

$$n_2 = \frac{3\chi^{(3)}}{4n_0} \quad (73)$$

herstellen.

Trifft nun ein Laserstrahl mit gaußischem Strahlprofil und einem Strahldurchmesser ω_0 , wie in Abbildung 16 zu sehen, auf ein Material mit einem solchen positiven, nichtlinearen Brechungsindex, wird es zu einer Selbstfokussierung des Laserlichts kommen. Durch das Profil des Strahls bedingt ist die Intensität I entlang der optischen Achse maximal und führt dort zu einem Brechungsindex

$$n = n_0 + n_2 I, \quad (74)$$

während am Rand des Strahls von einem linearen Brechungsindex n_0 ausgegangen werden kann. Dem Fermatschen Prinzip²⁰ folgend müssen die optischen Weglängen

$$\int n(\vec{s}) ds \quad (75)$$

der Strahlen einer Wellenfront gleich groß sein. Durch den niedrigeren Brechungsindex müssen die Randstrahlen also eine größere Strecke s zurücklegen und es folgt

$$(n_0 + n_2 I) z_{\text{fp}} = \frac{n_0 z_{\text{fp}}}{\cos \theta_{\text{fp}}} \quad (76)$$

mit dem Abstand von der Oberfläche des Materials bis zu Fokuspunkt f_{fp} . Mit der Näherung

$$\cos \theta_{\text{fp}} = 1 - \frac{1}{2} \theta_{\text{fp}}^2 \quad (77)$$

lässt sich die Gleichung nun nach dem Winkel

$$\theta_{\text{fp}} = \sqrt{\frac{2n_2 I}{n_0}} \quad (78)$$

²⁰ [10], Seiten 182-184

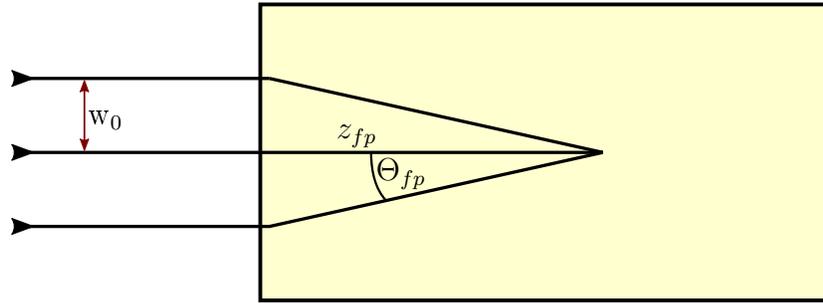


Abbildung 16: Schematische Darstellung der Selbstfokussierung eines Laserstrahls mit ausreichend großer Intensität in einem Material mit positivem n_2 .

auffösen. Während dieser Effekt bei der Nutzung von Laserstrahlung mit hoher Intensität bei vielen Anwendungen eine störende und ungewollte Rolle spielt, kann er auch gezielt genutzt werden. So dient er in Kurzpulslasern zur Modenkopplung, indem im Zusammenspiel mit einer Blende, umlaufende Moden mit niedriger Intensität abgeblockt werden, während sich überlagernde Moden mit hoher Intensität fokussiert werden und so die Blende passieren können.

2.4.4 Multiphotonen-Absorption

Ist die Energiedifferenz zwischen dem Grundzustand eines Moleküls und dem ersten angeregten Zustand ΔE größer als die Energie eines ankommenden Photons $E = h\nu$ wird dieses im Normalfall nicht absorbiert. Durch den nichtlinearen Prozess der Multiphotonen-Absorption [27] kann es jedoch trotzdem zu einer Anregung des Moleküls oder Festkörpers kommen. Dabei wird im einfachsten Fall der Zwei-Photonen-Absorption, ein Elektron durch zwei Photonen gleichzeitig über einen virtuellen Zwischenzustand in einen energetisch höher liegenden Zustand angeregt. Im Allgemeinen gilt, dass die Absorptionsraten der einzelnen Prozesse proportional zu den entsprechenden imaginären Anteilen der Suszeptibilitäten sind (lineare Absorptionsrate $\propto \chi^{(1)}$, Zwei-Photonen-Absorptionsrate $\propto \chi^{(3)}$, Drei-Photonen-Absorptionsrate $\propto \chi^{(5)}$, ...) ²¹. Da die Berechnung für höhere Ordnungen je-

²¹ [24], Seite 550

doch mühsam wird²², bietet sich für die Berechnung der Absorptionsraten ein anderer Ansatz an, welcher sich aus den Gesetzen der Quantenmechanik ergibt²³. Mit diesem Ansatz ergeben sich, ausgehend von der linearen Absorption und erweiterbar auf beliebige höhere Ordnungen, die Absorptionsraten

$$R_{mg}^{(1)} = \left| \frac{\mu_{mg} E}{\hbar} \right|^2 2\pi \rho_f(\omega_{mg} = \omega), \quad (79)$$

$$R_{ng}^{(2)} = \left| \frac{\mu_{nm} \mu_{mg} E^2}{\hbar^2 (\omega_{mg} - \omega)} \right|^2 2\pi \rho_f(\omega_{ng} = 2\omega), \quad (80)$$

$$R_{og}^{(3)} = \left| \frac{\mu_{on} \mu_{nm} \mu_{mg} E^3}{\hbar^3 (\omega_{ng} - 2\omega)(\omega_{mg} - \omega)} \right|^2 2\pi \rho_f(\omega_{og} = 3\omega), \quad (81)$$

$$R_{pg}^{(4)} = \left| \frac{\mu_{po} \mu_{on} \mu_{nm} \mu_{mg} E^4}{\hbar^4 (\omega_{og} - 3\omega)(\omega_{ng} - 2\omega)(\omega_{mg} - \omega)} \right|^2 2\pi \rho_f(\omega_{pg} = 4\omega) \quad (82)$$

$$(83)$$

und so weiter. Diese sind von verschiedenen Faktoren abhängig. Dazu gehören die Übergangsdipolmomente μ welche proportional zu den Übergangswahrscheinlichkeiten zwischen den einzelnen Zuständen (siehe Abbildung 17) sind, die Zustandsdichten ρ_f bei den entsprechenden Energien und die elektrische Feldstärke E . Für eine kürzere und anschaulichere Darstellung wird die Intensität an Stelle der elektrischen Feldstärke genutzt und der übrige Teil der Gleichung als Wirkungsquerschnitt σ zusammengefasst, wodurch sich die Übergangsraten

$$R_{mg}^{(1)} = \sigma_{ng}^{(1)}(\omega) I \quad (84)$$

$$R_{ng}^{(2)} = \sigma_{ng}^{(2)}(\omega) I^2 \quad (85)$$

$$R_{og}^{(3)} = \sigma_{og}^{(3)}(\omega) I^3 \quad (86)$$

$$R_{pg}^{(4)} = \sigma_{pg}^{(4)}(\omega) I^4 \quad (87)$$

$$(88)$$

ergeben. Da die Wirkungsquerschnitte für höhere Ordnungen von einer größeren Anzahl verschiedener Übergangswahrscheinlichkeiten abhängen, werden

²² [24], Seiten 161 ff

²³ [24], Seiten 552 ff

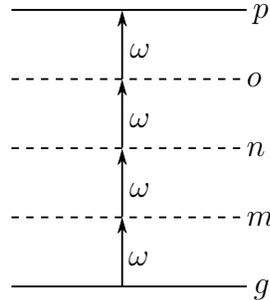


Abbildung 17: *Schematische Darstellung der Zustände und virtuellen Zwischenzustände bei der Multiphotonen-Absorption.*

die Wirkungsquerschnitte für Prozesse höherer Ordnung kleiner werden und es ist eine größere Intensität notwendig, um den Effekt nutzen zu können. Ist die Summe der Energie der absorbierten Photonen größer als die Ionisationsenergie des Moleküls oder die Austrittsarbeit eines Festkörpers wird von Mehrphotonen-Ionisation gesprochen und die angeregten Elektronen sind nicht mehr gebunden, sondern quasi-frei.

2.5 Laserinduzierte Schäden in Dielektrika mittels fs-Pulsen

Um die auftretenden Schäden des Materials besser zu verstehen und einen Überblick über benötigte Voraussetzungen für eine gezielte Veränderung des Brechungsindex in PMMA zu erlangen, soll in den folgenden Abschnitten der aktuelle Forschungsstand zusammengefasst werden. Dabei wird zunächst allgemein auf den Einfluss der Pulslänge, den Einfluss der Repititionsrate der Pulse aber auch auf zugrunde liegende Mechanismen für die Veränderungen eingegangen. Später folgt eine genauere Betrachtung für das in dieser Arbeit verwendete PMMA.

2.5.1 Einfluss der Pulslänge

Durch die Entwicklung von Kurzpulslasern wurden große Fortschritte auf dem Feld der Materialbearbeitung von nichtleitenden transparenten Materialien erzielt. Doch schon vor dieser Entwicklung gab es Forschungsarbeiten zu laserinduzierten Schäden solcher Materialien [29], [30], [31], [32]. Durch fort-

schreitende Lasertechnologie konnte ein Zusammenhang zwischen der Länge von Laserpulsen und der benötigten Energie pro Fläche bis zum Eintreten von Schäden hergestellt werden [1], [33]. Dabei wurden für verschiedene transparente Materialien sowohl die verwendeten Pulslängen als auch die Energiedichten variiert und die Schwelle für Schäden im Material untersucht. Wie in Abbildung 18 zu sehen ist, besteht für Pulslängen T_p bis zu 20 ps ein direkter Zusammenhang zwischen Energiedichte bis zum Eintreten von Schäden und $\sqrt{T_p}$. Mit einem Blick auf die Wärmeleitungsgleichung²⁴

$$(\rho_0 C) \frac{\partial T_p}{\partial t} - \kappa \nabla^2 T = 0 \quad (89)$$

unter Vernachlässigung einer Wärmequelle kann auch dort eine $\sqrt{T_p}$ Abhängigkeit gezeigt werden. Dabei sind $(\rho_0 C)$ die spezifische Wärmekapazität und κ die thermische Wärmeleitfähigkeit. Unter der Annahme, dass ein Temperaturanstieg ΔT in einem Zeitintervall T_p , welches der Pulslänge entspricht, über eine Strecke L diffundiert, lässt sich auch hier eine $T_p^{\frac{1}{2}}$ Abhängigkeit zeigen. Durch einige Vereinfachungen ergibt sich nämlich

$$(\rho_0 C) \frac{\Delta T}{T_p} = \kappa \frac{\Delta T}{L^2} \quad (90)$$

und damit

$$L = \left(\frac{\kappa}{\rho_0 C} T_p \right)^{\frac{1}{2}}. \quad (91)$$

Durch einen näheren Blick auf die spezifische Wärmekapazität²⁵

$$\rho_0 C = \frac{\Delta Q}{V \Delta T} \quad (92)$$

mit der zugeführten Wärme ΔQ und der dadurch verursachten Temperaturänderung ΔT im Volumen V kann nun der direkte Zusammenhang zwischen

²⁴ [10], Seite 547

²⁵ nach [34], Seite 123

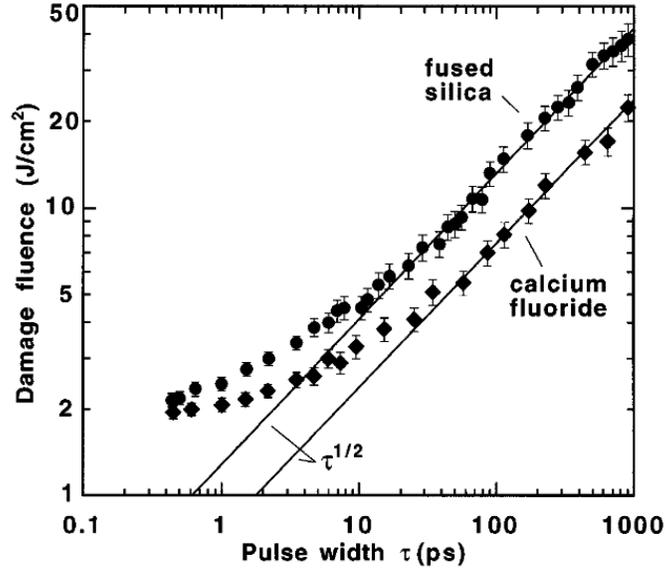


Abbildung 18: Zwischen der Wurzel der Pulslänge und der bis zum Auftreten von Schäden benötigten Energiedichte besteht für Pulse bis zu 20 ps ein direkter Zusammenhang [33].

der Energiedichte und der Pulsdauer T_P gezeigt werden. Bei der zugeführten Wärme handelt es sich um die eingekoppelte Energie des Laser E , um den Temperaturanstieg von der Ausgangstemperatur bis zur Zerstörungsschwelle zu erreichen. Das dabei erwärmte Volumen beträgt $\frac{4}{3}\pi L^3$. Die zur Zerstörung benötigte Energie lässt sich durch

$$E = \frac{4}{3}\pi L^3 \rho_0 C \Delta T \quad (93)$$

bestimmen und die entsprechende Energiedichte ergibt sich somit zu

$$\frac{E}{L^2} = L \frac{4}{3}\pi \rho_0 C \Delta T. \quad (94)$$

Unter Vernachlässigung der Konstanten gilt

$$\frac{E}{L^2} \propto L \quad (95)$$

und wegen Gleichung (91) damit auch

$$\frac{E}{L^2} \propto T_P^{\frac{1}{2}}. \quad (96)$$

Damit zeigt sich zum einen, dass die Schwelle für auftretende Schäden in diesem Bereich von der Pulslänge abhängig ist. Zum anderen lässt sich darauf schließen, dass in diesem Zeitbereich die auftretenden Schäden vor allem durch thermische Effekte verursacht werden. Ab einer Schwelle von etwa 20 ps (siehe Abbildung 18) bricht diese Abhängigkeit auf und andere Effekte dominieren. Neben den in Abbildung 18 gezeigten Dielektrika wurden für weitere transparente Materialien qualitativ ähnliche Ergebnisse gefunden, wobei die Werte der benötigten Energiedichten variieren.

2.5.2 Dominierende Prozesse im Kurzpuls-Bereich

Verschiedene Arbeitsgruppen [35], [1], [36], [37], [38] haben sich mit den verantwortlichen Prozessen für Laserpulse unterhalb der 20 ps Marke beschäftigt. Dabei werden zur Modellierung der auftretenden Prozesse verschiedene Näherungen genutzt, doch der zu Grunde liegende Ansatz ist bei allen Arbeiten derselbe. Durch Bestrahlung des Materials mit einem Laserpuls, werden Elektronen aus dem Valenzband in das Leitungsband angeregt. Übersteigt die freie Elektronendichte einen Schwellwert von etwa 10^{21} cm^{-3} , bildet sich ein Plasma und es kommt in einem zweiten Schritt, innerhalb weniger Pikosekunden, durch Elektron-Phononen Wechselwirkung zu einer Schädigung des Materials. Zur Anregung der Elektronen stehen zwei Prozesse zur Verfügung. Einer dieser Prozesse ist die in Abschnitt (2.4.4) beschriebene Multiphotonen-Absorption, der andere Prozess die Elektron-Elektron Stoßionisation. Während beim erstgenannten Prozess Elektronen durch die gleichzeitige Wechselwirkung mit, je nach Größe der Bandlücke variierend, mehreren Photonen wechselwirken und somit ins Leitungsband angehoben werden, übertragen bei der Stoßionisation, wie in Abbildung 19 zu sehen, Elektronen des Leitungsbands einen Teil ihrer Energie an Elektronen des Valenzbands und regen diese damit ins Leitungsband an.

Für diesen Prozess müssen jedoch schon Initialelektronen im Leitungsband zur Verfügung stehen. Ist dies der Fall, kommt es zu einem lawinenartigen Anwachsen der Elektronendichte über die Zeit nach

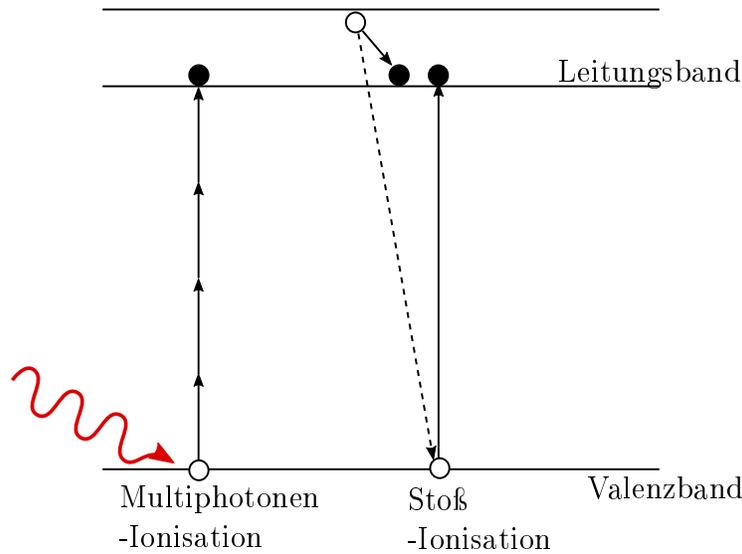


Abbildung 19: Die beiden dominierenden Prozesse zur Anregung von Elektronen ins Leitungsband sind die auf der linken Seite zu sehende Multiphotonen-Ionisation und die auf der rechten Seite zu sehende Stoßionisation.

$$n_e(t) = n_0(t)e^{gt}. \quad (97)$$

In den Proportionalitätsfaktor g gehen dabei unter anderem die Stärke des angelegten Feldes und Materialeigenschaften ein. Beschrieben werden kann die insgesamt resultierende Elektronendichte n_e allgemein mit einer Gleichung (nach [37]) der Art

$$\frac{\partial n_e}{\partial t} = \eta(E)n_e - w_{\text{PI}}(E). \quad (98)$$

Auf einen etwaigen Term für Verluste kann aufgrund der kurzen Pulsdauer verzichtet werden und des weiteren sind w_{PI} die Rate der Photonenionisation in Abhängigkeit des elektrischen Feldes und η die Rate der Elektron-Elektron Stoßionisation. Damit ergibt sich für die Elektronendichte in Abhängigkeit von der Zeit das in Abbildung 20 zu sehende Ergebnis.

Die durchgezogene Linie zeigt die, durch Multiphotonen-Absorption und Stoßionisation verursachte, wachsende Elektronendichte über der Zeit für einen

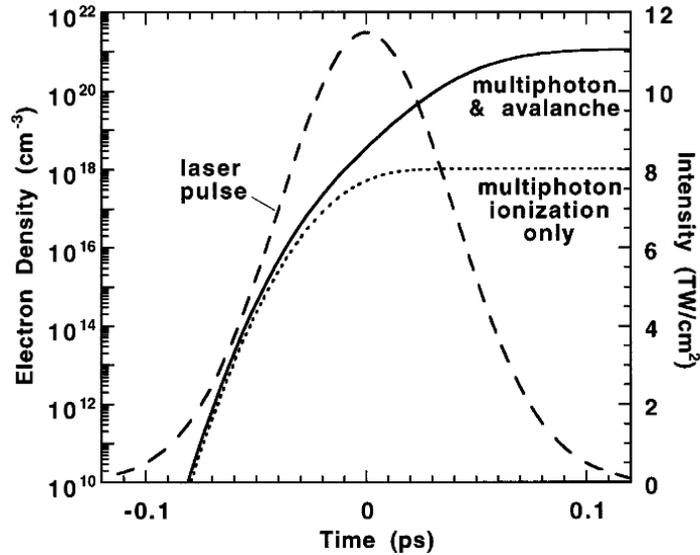


Abbildung 20: Entwicklung der Elektronendichte in Abhängigkeit von der Zeit, für einen Laserpuls der Länge 100 fs (aus [33]).

Puls der Länge 100 fs (gestrichelte Linie). Da die Multiphotonen-Absorption stark intensitätsabhängig ist, tritt sie beim Peak des Pulses auf. Die gepunktete Linie berücksichtigt nur diesen Prozess und es ist zu erkennen, dass dieser bis zum Peak des Pulses dominant ist. Erst zu diesem Zeitpunkt beginnt die Stoßionisation eine Rolle zu spielen und die endgültige Elektronendichte wird erst zu Ende des Pulses erreicht. Daraus lässt sich schließen, dass durch den Prozess der Multiphotonen-Absorption erste freie Elektronen erzeugt werden, welche dann durch Stoßionisation weitere Elektronen des Valenzbands anregen und somit zu der zur Schädigung nötigen hohen Elektronendichte führen. Dieser qualitative Verlauf wird in allen analysierten Arbeiten bestätigt. Durch verschiedene Ansätzen zur Berechnung der Ionisationsraten kommt es jedoch zu unterschiedlichen Interpretationen, welcher Prozess ab welcher Pulslänge dominiert. Grundsätzlich gilt, dass die Multiphotonen-Absorption für kürzere Pulse überwiegt und für $T_P < 30$ fs [33] der alleinige verantwortliche Prozess ist. Mit steigender Pulsdauer nimmt der Anteil der Stoßionisation dann zu.

Die unterschiedlichen Ursachen für Schäden bei kurzen (< 20 ps) oder langen (> 20 ps) Laserpulsen führen auch zu einem Unterschied bei der räumlichen Ausdehnung der auftretenden Schäden. Da die Multiphotonen-Absorption

sehr stark intensitätsabhängig ist, findet sie nur im Peak des Pulses statt und es kommt nur in diesem Bereich zur Plasmabildung [39]. Da die Pulsdauer für thermische Effekte zu kurz ist, bleiben auftretende Schäden auch auf diesen räumlichen Bereich beschränkt. Zu beachten ist, dass es sich bei den zitierten Arbeiten vor allem um Arbeiten mit verschiedenen Gläsern handelt. Die benötigten Energiedichten sind daher etwas höher als solche für PMMA. An den grundsätzlichen Mechanismen ändert sich jedoch zwischen den verschiedenen nichtleitenden Dielektrika nichts.

2.5.3 Einfluss der Repetitionsrate

Die im vorherigen Abschnitt diskutierten Experimente und Simulationen beziehen sich immer auf die Auswirkung einzelner bis hin zu weniger Pulse auf ein Dielektrikum. Dabei können, wie diskutiert, durch die kurze Zeitskala der Interaktion, thermische Effekte durch Diffusion ausgeschlossen werden. Wird jedoch eine Repetitionsrate der wechselwirkenden Laserpulse berücksichtigt [40], [41], kann sich dies ändern. Bei niedrigen Frequenzen kann davon ausgegangen werden, dass zwischen den einzelnen Pulsen die im letzten Abschnitt beschriebenen Prozesse stattfinden und der nachfolgende Puls wieder auf erkaltetes Material trifft (siehe Abbildung 21). Das in Abbildung 22 zu sehende Ergebnis einer Berechnung der Temperatur von PMMA in Abhängigkeit der Laserfrequenz zeigt, dass für Frequenzen oberhalb eines Grenzwertes eine Wärmeakkumulation innerhalb des Materials auftritt. Zur Erklärung dieser Wärmeentwicklung wird die aus Gleichung (89) bekannte Wärmeleitungsgleichung

$$(\rho_0 C) \frac{\partial T_p}{\partial t} - \kappa \nabla^2 T = 0$$

betrachtet. Nun wird eine Zeit τ angenommen, innerhalb welcher sich die neue Temperaturverteilung nach Auftreffen eines Laserpulses eingestellt hat²⁶. Diese kann bestimmt werden, indem der erste Term der Gleichung durch $(\rho_0 C) \frac{T_1}{\tau}$ und der zweite Teil durch $\frac{\kappa T_1}{R^2}$ angenähert werden. Dabei entspricht $2R$ dem Durchmesser des Laserpulses. Es ergibt sich somit eine Antwortzeit des Systems von

²⁶ [24], Seite 237

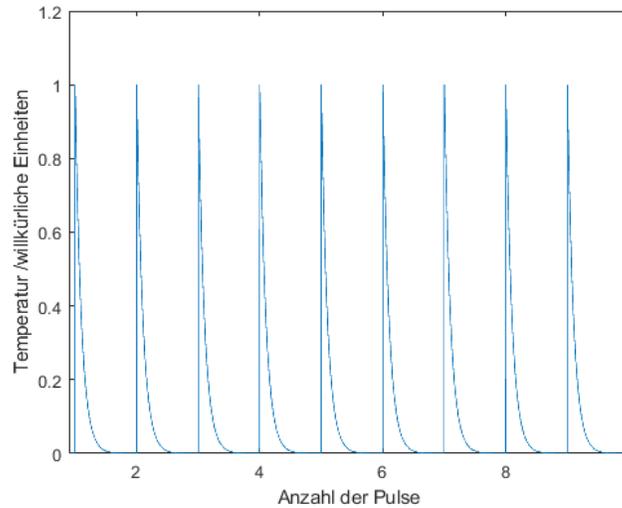


Abbildung 21: Ist der Abstand zwischen den einzelnen Pulsen groß genug, kommt es zu einer Abkühlung des Materials bis zur Ausgangstemperatur.

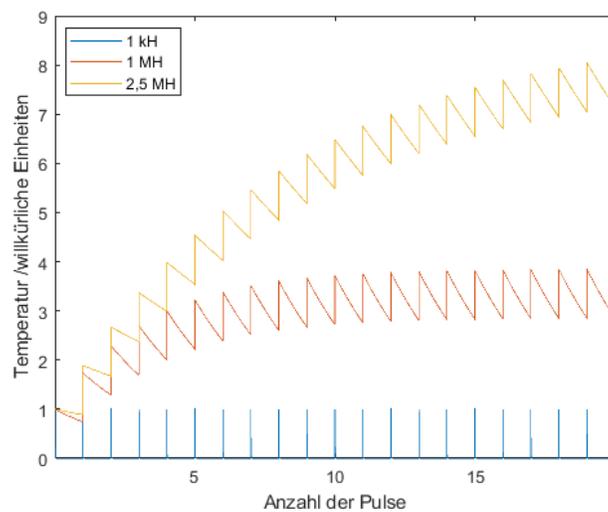


Abbildung 22: Modellierung der Wärmeakkumulation in Abhängigkeit der Frequenz auftreffender Pulse für PMMA bei einem Spotdurchmesser von $10\mu\text{m}$.

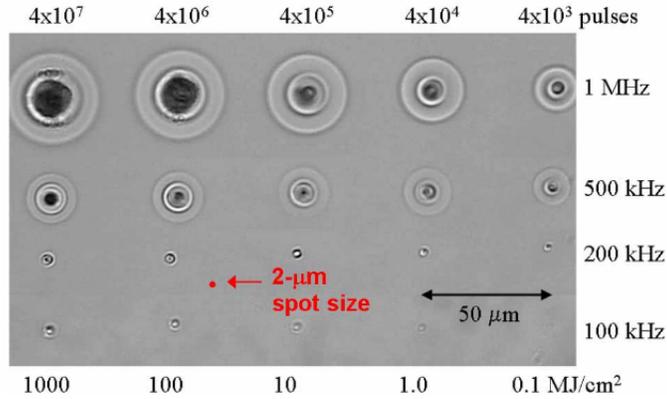


Abbildung 23: Diese Aufnahme eines optischen Mikroskops zeigt die Größe der verursachten Schäden in Abhängigkeit der Frequenz und Anzahl der Pulse [40].

$$\tau \approx \frac{\rho_0 C R^2}{\kappa}. \quad (99)$$

Für das in dieser Arbeit verwendete PMMA lässt sich diese Zeit mittels der im Datenblatt des Herstellers [42] angegebenen Materialeigenschaften (Wärmeleitfähigkeit κ : $0,19 \frac{\text{W}}{\text{mK}}$, spezifische Wärmekapazität C : $1,47 \frac{\text{J}}{\text{gK}}$, Dichte ρ : $1,19 \frac{\text{g}}{\text{cm}^3}$) berechnen.

Bei einem angenommenen Durchmesser von $10 \mu\text{m}$ ergibt sich eine Zeit von $\tau \approx 230 \mu\text{s}$ und für einen stärker fokussierten Puls von $2 \mu\text{m}$ Durchmesser eine Zeit von $\tau \approx 10 \mu\text{s}$. Trifft innerhalb dieser Zeit der nächste Puls auf das Material, kommt es dann zu einer Wärmeakkumulation. Durch die Erwärmung des Materials und die Diffusion der Wärme weg vom Fokus des Laserpulses, wird die Größe der verursachte Schäden mit zunehmender Frequenz der Pulse und Länge der Bestrahlungsdauer zunehmen. Dies ist beispielhaft für Borsilikatglas in Abbildung 23 zu sehen.

Es ist festzuhalten, dass die Beschaffenheit und Größe der verursachten Schädigungen des bestrahlten Materials sowohl von der Länge der einzelnen Pulse als auch von der Frequenz, mit welcher diese auf das Material treffen, abhängig sind. Es ist zu beachten, dass die in den letzten Abschnitten zitierten Arbeiten mit anderen Materialsystemen durchgeführt wurden und eine

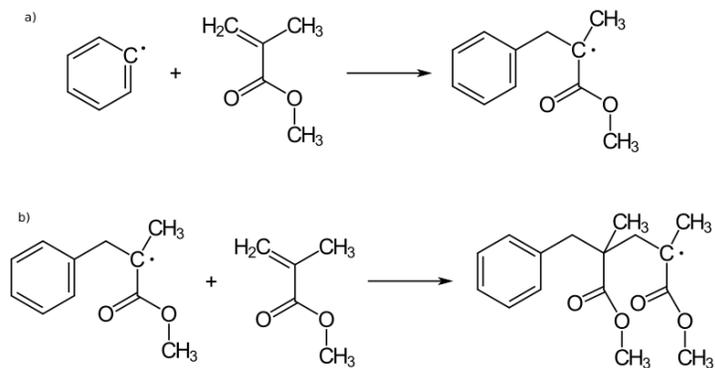


Abbildung 24: a) Durch Reaktion von MMA mit einem Radikal bildet sich ein größeres Radikal.
 b) Dieses wiederum reagiert mit dem nächsten MMA-Molekül und die Kette beginnt zu wachsen [43].

direkt Übertragung der Parameter für eigene Experimente an PMMA nicht möglich ist.

2.5.4 Laserinduzierte Schäden in Polymethylmethacrylat

Bei dem in dieser Arbeit als Dielektrikum verwendeten Polymethylmethacrylat (PMMA) handelt es sich um ein thermoplastisches, amorphes Polymer. Es wird aus dem Monomer Methacrylsäure (MMA) durch Kettenpolymerisation gewonnen. Der chemische Prozess der Kettenbildung ist in Abbildung 24 zu sehen.

Dabei wird dem MMA ein Starterradikal beigemischt. Diese Substanzen reagieren miteinander und bilden ein neues Radikal, welches im nächsten Schritt mit einem anderen MMA-Molekül reagiert. Dadurch bilden sich lange Verbindungen (siehe Abbildung 25), bis es schließlich zu einem Kettenabbruch kommt. Dies kann entweder durch das Aufeinandertreffen zweier Ketten oder die Reaktion der Kette mit einem weiteren Starterradikal geschehen. Die mittleren Längen der Polymerketten variieren dabei mit den gewählten Parametern des Polymerisationsprozesses und die einzelnen Moleküle können

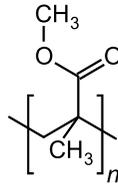


Abbildung 25: Durch die Polymerisation entstehen große Polymethylmethacrylat-Moleküle [43].

molare Massen von $996.000 \frac{\text{g}}{\text{mol}}$ [44], [45] erreichen. Durch seine hohe Lichtdurchlässigkeit²⁷ von 92 %, einer optischen Bandlücke von etwa 4,6 eV [44] und seine guten mechanischen Eigenschaften, wird es in einer Vielzahl von Bereichen eingesetzt. Darunter befinden sich auch die Verwendung als Brillengläser, Linsen und Prismen. Der Brechungsindex beträgt 1,492 [42]. Auch im Bereich der Kurzpuls-Laser-Materialbearbeitung wurde es wegen seiner Eigenschaften schon erfolgreich eingesetzt, um Lichtleiter [47], [2], [3] und Fresnellinsen [8] herzustellen. Um die Brechungsindexänderungen bei diesen Anwendungen besser zu verstehen und dies bei den eigenen Experimenten zu berücksichtigen, folgt ein Einblick in die Modifikationsmechanismen von PMMA. Dabei zeigt sich, dass die Veränderung des Brechungsindex Δn auf einer Kombination aus Depolymerisation [45], [48] und Vernetzungseffekten [48] beruht.

Untersuchungen [45] der vorliegenden molaren Massen einer PMMA-Probe nach der Bestrahlung mit Femtosekunden-Pulsen zeigen, dass ein erhöhter Anteil an Molekülen niedrigerer molekularer Masse vorliegt (siehe Abbildung 26).

Durch diesen Prozess entstehen zusätzliche Kettenenden an welchen C=C Doppelbindungen vorliegen. Mit einem Blick auf die Lorentz-Lorenz'sche Beziehung [49] zur Bestimmung der molaren Masse M , welche die Dichte (ρ) und den Brechungsindex (n) eines Stoffes miteinander in Beziehung setzen, kann daraus eine positive Veränderung des Brechungsindex abgeleitet werden. Die beiden Größen sind dabei über die Gleichung

²⁷ [46], Seite 337

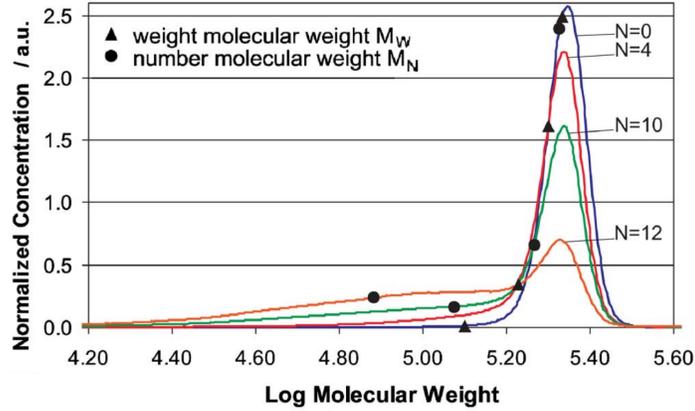


Abbildung 26: Untersuchungen der molaren Massen vor und nach der Bestrahlung einer Probe zeigen einen erhöhten Anteil kürzerer Ketten [45]. N steht dabei für die Anzahl der Bestrahlungen des Materials.

$$M_R = \frac{n^2 - 1}{n^2 + 2} \frac{M}{\rho} \quad (100)$$

miteinander verknüpft, dabei gibt M_R die molare Brechung an. Zu diesem Faktor tragen alle Bindungen und Gruppen eines Moleküls mit unterschiedlichen Beiträgen bei. Entstehen nun beim Aufbrechen der Ketten durch Disproportionierung C=C statt der vorherigen C-H Bindungen, erhöht sich die molare Brechung [48]. Nach Umstellen der Gleichung (100) nach dem Brechungsindex

$$n = \sqrt{\frac{1 + \frac{2M_R\rho}{M}}{1 - \frac{M_R\rho}{M}}} \quad (101)$$

zeigt sich, dass dies zu einer positiven Änderung des Brechungsindex führt. Versuche zum thermischen Verfall [48] des mit Laser bestrahlten PMMA zeigen, dass es zu Vernetzungen der einzelnen Polymerketten kommt [50]. Diese lassen sich durch ihre erhöhte thermische Stabilität nachweisen. Durch den höheren Brechungsindex für vollständig vernetztes PMMA von 1,504 [48], lässt sich für Proben, welche durch Bestrahlung mit Kurzpulslasern teilweise vernetzt wurden, ein erhöhter Brechungsindex voraussagen.

3 Versuchsaufbau und Untersuchungsmethode

3.1 Einleitung

Das Ziel dieser Arbeit lässt sich in zwei Abschnitte unterteilen: Die erste Aufgabe ist es, mittels Femtosekunden-Pulsen eine lokalisierte Brechungsindexänderung in einer PMMA-Platte herbeizuführen und diesen Prozess zu kontrollieren. Diese Änderungen sollen dabei jedoch nicht, wie in bisherigen Veröffentlichungen [2], [3], [51], [4], dazu dienen, einen optischen Wellenleiter herzustellen, stattdessen sollen PMMA-Platten so modifiziert werden, dass damit eine Korrektur optischer Komponenten möglich wird. Beispielsweise kann eine Linse oder andere optische Komponente, wie in Abbildung 27 zu sehen, mittels Interferometer auf Abbildungsfehler untersucht werden. Im dabei entstehenden Interferogramm sind Abweichungen von der perfekten Wellenfront zu erkennen. Durch das gezielte Ändern des Brechungsindex und der damit verursachten Veränderung der optischen Weglänge des Lichts in einer PMMA-Platte lässt sich ein Negativ dieser Abweichungen erzeugen. Durch anschließendes Positionieren dieser Platte vor der Linse, könnte so der Abbildungsfehler minimiert werden. Dafür müssen die Modifikationen im Vergleich zu den vorher zitierten Arbeiten nicht nur in einer Linie in das PMMA geschrieben werden, sondern die Änderungen müssen über zusammenhängende Flächen erzielt werden. Dafür ist der Aufbau eines Versuchsstandes nötig, mit welchem das Schreiben von 3D-Strukturen möglich ist.

Das zweite Ziel dieser Arbeit ergibt sich aus der ersten Aufgabe. Es muss ein Messsystem umgesetzt werden, um die Änderungen des Brechungsindex während der Bearbeitung zu bestimmen. Dies geschieht über den Einsatz eines Interferometers, mit welchem die Änderungen der optischen Weglängen des Lichts durch das Material aufgezeigt und vermessen werden. Diese Methode bietet zum einen die benötigte Genauigkeit, um minimale Änderungen zu erkennen, und zum anderen wird die Möglichkeit geschaffen, ein In-situ-Messverfahren aufzubauen. Dies geschieht durch die Integration des Messaufbaus in den Bearbeitungsaufbau und soll in den folgenden Abschnitten näher erklärt werden. Daher erfolgen zunächst die genaue Beschreibung der beiden Teilsysteme im Einzelnen und anschließend die Beschreibung der Kombination zum Gesamtsystem.

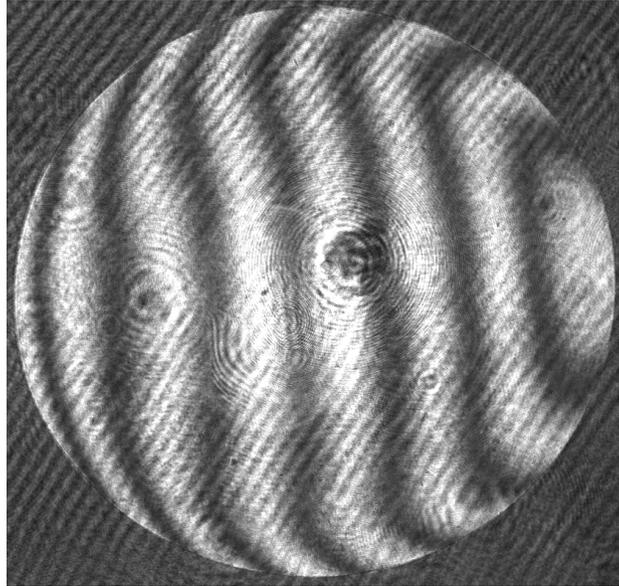


Abbildung 27: *Interferogramm eines Mikroskopobjektives [22].*

3.2 Materialbearbeitung

Die Aufgabe des Aufbaus ist es, die einzelnen Pulse des Lasers stark fokussiert und mit einer hohen Genauigkeit in die Kunststoffproben einzubringen, so dass es an der gewünschten Stelle durch die hohen Intensitäten zu Schädigungen kommt, welche zu Veränderungen des Brechungsindex führen. Im folgenden Abschnitt wird nun eine genaue Beschreibung des verwirklichten Versuchsaufbaus inklusive der Parameter der zur Verfügung stehenden Geräte gegeben.

In Abbildung 28 ist eine schematische Zeichnung des Aufbaus mit allen notwendigen Komponenten zu sehen. Als Quelle für die Femtosekundenpulse dient ein Femtosekundenlaser des Modells FLINT der Firma Light Conversion. Dabei handelt es sich um einen Festkörperlaser mit einem Yb:KGW Kristall als aktivem Material (siehe Abschnitt 2.2.7). Daraus ergibt sich eine Zentralwellenlänge von 1035 nm. Die Repetitionsrate beträgt 76 MHz mit einer durchschnittlichen Ausgangsleistung von bis zu 2,5 Watt, woraus sich eine Pulsenergie von etwa 33 nJ ergibt. Die Pulslänge beträgt 83 fs und die transversale Feldverteilung (siehe Abschnitt 2.2.6) entspricht einem Gaußprofil.

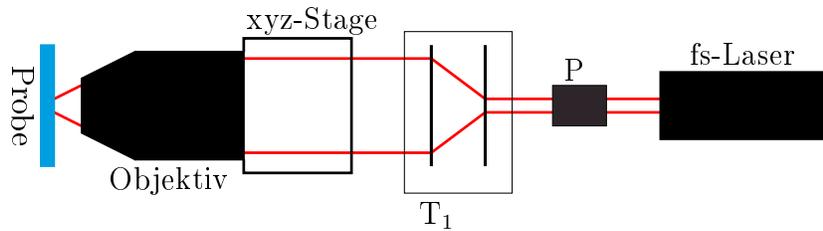


Abbildung 28: Schematische Zeichnung des Aufbaus zur Materialbearbeitung. Die grundlegenden Komponenten sind dabei ein Kurzpulslaser (fs-Laser), ein Pulspicker (P) eine xyz-Plattform und ein Objektiv. Dazu kommt noch eine Strahlaufweitung (T_1).

Da eine Frequenz von 76 MHz für einen Teil der geplanten Experimente zu groß ist, folgt hinter dem Laser ein elektrooptischer Pulspicker (P). Mit dieser Pockels-Zelle kann die Frequenz der Pulse von 1 kHz bis hinunter zu Einzelpulsen geregelt werden. Höhere Frequenzen sind jedoch nicht möglich. Zudem dient der Pulspicker als Blende, mit welchem die Gesamtdauer der Pulsfolge gesteuert wird. Anschließend folgt eine Strahlaufweitung, welche durch ein Galileo-Teleskop (T_1) verwirklicht wird. Die Linsen der Strahlaufweitung können für die verschiedenen benutzten Objektive ausgetauscht werden, so dass der Durchmesser des Laserstrahls immer passend zur Apertur des Objektivs gewählt werden kann.

Anschließend muss das Objektiv so vor der fest verbauten PMMA-Probe installiert werden, dass ein Verfahren in alle drei Raumrichtungen möglich ist. Dies wurde mit der in Abbildung 29 zu sehenden Konstruktion verwirklicht. Die Position der Probe ist dabei durch den Interferometer-Aufbau vorgegeben, auf welchen im folgenden Abschnitt eingegangen wird. Das Laserlicht wird durch ein System aus Spiegeln auf die benötigte Arbeitshöhe gebracht und trifft dort auf das Objektiv. Dieses gesamte System befindet sich auf einer Konstruktion aus Schienen, welche wiederum auf drei Mikrostelltischen verbaut sind. Diese durch DC-Motoren angetriebenen Tische besitzen Stellwege von 15 mm mit einer minimalen Schrittweite von 50 nm und einer maximalen Verfahrensgeschwindigkeit von 2 mm pro Sekunde. Somit lässt sich der Brennpunkt des Objektivs sehr zielgenau auf der PMMA-Probe platzieren. Das in der Grundkonfiguration eingesetzte Objektiv ist für den Nah-Infrarot-Bereich konzipiert und liefert eine 50fache Vergrößerung bei einer numerischen Apertur von 0,5 und einer Eintrittspupille von 4 mm. Damit ist nach

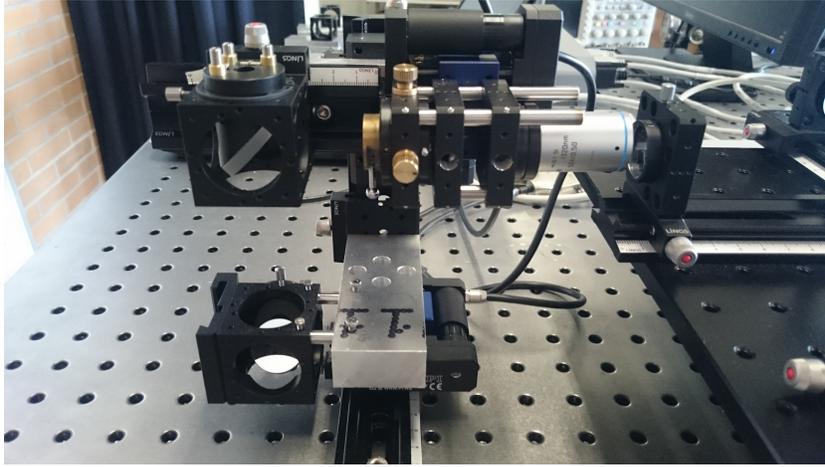


Abbildung 29: Das Objektiv zur Fokussierung des Laserlichts ist auf einer xyz-Plattform angebracht. So lassen sich die fokussierten Laserpulse sehr genau (250 nm) in die rechts neben dem Objektiv montierte PMMA-Probe einbringen.

Gleichung (48)

$$w'_0 = \frac{2}{\pi} \frac{\lambda}{NA}$$

eine Fokussierung der Laserpulse auf einen Durchmesser von etwa $2,6 \mu\text{m}$ möglich. Mit der angegebenen Pulsenergie von etwa 33 nJ lässt sich mit diesem Versuchsaufbau somit eine Energiedichte von $0,622 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ erreichen.

In einer zweiten möglichen Konfiguration des Aufbaus wird ein optisch nicht-linearer Lithiumtriborat-Kristall (LBO) in den Strahlengang eingebracht und somit die Wellenlänge des Lichts mit einer Effizienz von etwa 20 % halbiert (siehe Abschnitt 2.4.2). Für Licht dieser Wellenlänge steht ein Objektiv mit 40facher Vergrößerung, einer Apertur von 0,65 und einer Eintrittspupille von 6,5 mm zur Verfügung. Durch die kleinere Wellenlänge des Lichts ist eine bessere Fokussierung möglich und es kann ein Durchmesser der Fokussierung von etwa $1 \mu\text{m}$ erreicht werden. Somit wird trotz der großen Verluste durch die Frequenzverdopplung eine höhere Energiedichte von $0,84 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ erreicht. Damit können in beiden Konfigurationen Energiedichten erreicht werden, welche in derselben Größenordnung liegen wie die in anderen Veröffentlichungen genutzten Energiedichten von $0,35 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ [45], $0,446 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ [48] oder $1 \frac{\text{J}}{\text{cm}^2}$ [2].

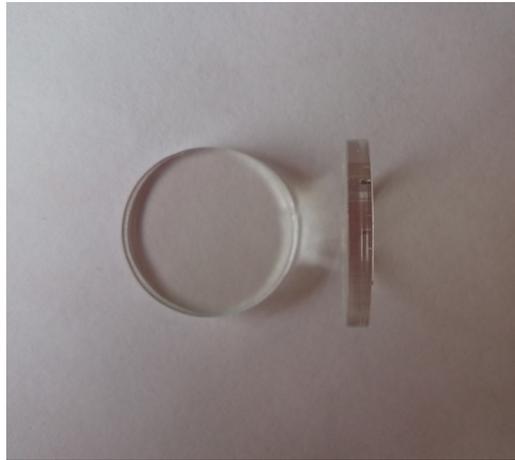


Abbildung 30: Die auf einen Durchmesser von 22 mm zugeschnittenen PMMA-Proben lassen sich direkt in die genutzte Linos-Mikrobank Umgebung integrieren.

Bei den zu bearbeitenden PMMA-Proben handelt es sich um kreisförmige Plexiglasscheiben mit einer Dicke von 2,5 mm (Abbildung 30). Diese wurden vom liefernden Unternehmen auf einen Durchmesser von 22 mm zugeschnitten, so dass sie sich in das, für den gesamten Aufbau verwendete, Linos-Mikrobank-System integrieren lassen.

Bei einem anschließenden Test wurde ein massiver PMMA-Block vor dem Objektiv aufgebaut. Der Abstand zwischen PMMA und Objektiv wurde so gewählt, dass der Brennpunkt sich eindeutig innerhalb des Materials befindet. Anschließend wurde eine Kamera so platziert, dass von oben auf die Probe geblickt wird. Danach wurde unter Umgehung des Pulspickers für wenige Millisekunden die Blende des Laser geöffnet. In Abbildung 31 ist der zeitliche Ablauf dieses Tests zu sehen. Nach Öffnen der Blende ist das Nah-Infrarote Licht(NIR) des Laser zu erkennen. Nach kurzer Zeit ist ein erster Effekt kurz hinter der Oberfläche des Materials zu sehen und wenige Millisekunden später kommt es zu einer Zerstörung des Materials. Dieser Schaden ist, wie in Abbildung 32 am Beispiel einer anderen Aufnahme zu sehen ist, bleibend.

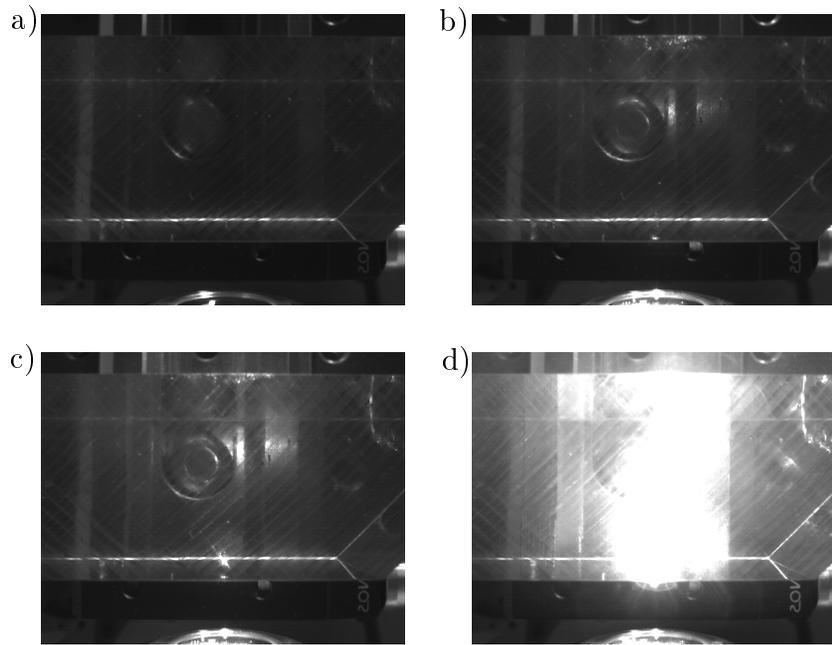


Abbildung 31: Zeitliche Abfolge der Bestrahlung. a) Geschlossene Blende, b) Blende ist geöffnet und der Laser trifft auf das Material. c) Ein erster Effekt ist zu erkennen. d) Das Material wird zerstört.

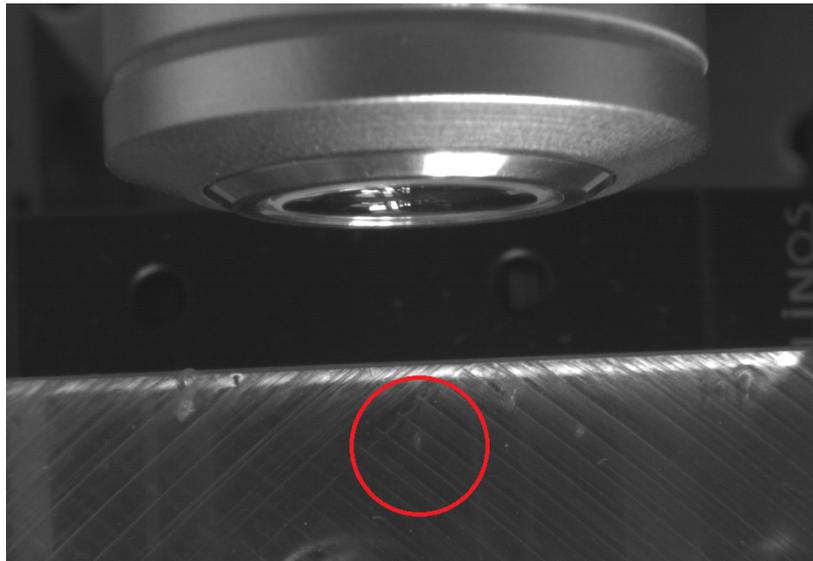


Abbildung 32: Nach der Bestrahlung ist ein bleibender Schaden zu erkennen.

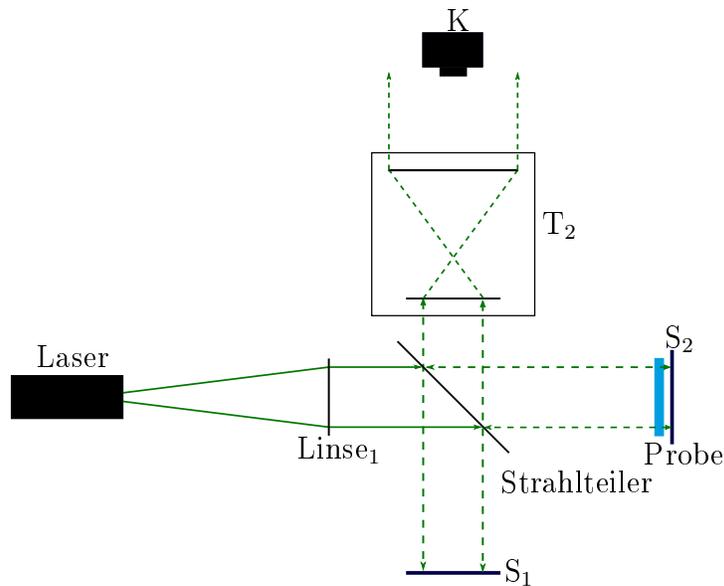


Abbildung 33: Schematische Zeichnung des aufgebauten Twyman-Green-Interferometers.

3.3 Materialuntersuchung

3.3.1 Aufbau

Um die Brechungsindexänderungen des PMMA zu detektieren und zu vermessen, wird eine Variation eines Twyman-Green-Interferometers aufgebaut (siehe Abbildung 33). Diese unterscheidet sich in zwei Punkten von der in Abschnitt 2.3.2 beschriebenen Konfiguration. Zum einen wurde der zweite Spiegel S_2 durch einen dichroitischen Filter ersetzt. Dieser Filter mit einer Dicke von 1,05 mm reflektiert Licht im Bereich von 450–790 nm, während er Licht mit einer größeren Wellenlänge transmittiert. Die Transmission im wichtigen Bereich von 1035 nm beträgt dabei über 90 %.

Die zweite Änderung wurde vor dem Sensor vorgenommen. Während sich dort bei einem herkömmlichen Twyman-Green-Interferometer oftmals eine Sammellinse befindet, um das gesamte Interferogramm auf den Sensor abzubilden, wird in diesem Fall ein Kepler-Teleskop mit einer fünffachen Vergrößerung installiert. Der Vorteil dieses Umbaus zeigt sich bei der Betrachtung des verwendeten Sensors. Dabei handelt es sich um eine μ Eye-Industriekamera mit einem 1,3 Megapixel CMOS Sensor. Die Auflösung beträgt 1280×1024

Pixel mit einer Bildwiederholungsrate von 10 Hz. Die Größe der einzelnen Pixel beträgt dabei $5,2\ \mu\text{m}$. Wird nun von einer beschriebenen Fläche mit Kantenlängen von $50\text{--}100\ \mu\text{m}$ ausgegangen, wäre der zu erwartende Effekt nur in einem Bereich von 10 bis 20 Pixel zu detektieren. Durch eine Vergrößerung auf 50 bis 100 Pixel wird die Auswertung damit stark verbessert. Bei dem verwendeten Laser handelt es sich um einen grünen HeNe-Laser mit einer Wellenlänge von $543,5\ \text{nm}$. Der Laser wird mittels einer Faser eingekoppelt und das von dieser Punktlichtquelle unter einem Öffnungswinkel ausgehende Licht wird anschließend durch eine Sammellinse (Linse₁) parallelisiert. Damit ist der Durchmesser des Laserstrahls groß genug, um die gesamte zu untersuchende Probe auszuleuchten, und es kann davon ausgegangen werden, dass eine ebene Wellenfront des Laserlichts vorliegt. An der Stelle S₁ befindet sich ein Spiegel, welcher in drei Achsen justierbar montiert ist. Dadurch lässt sich die Verkipfung einstellen und die Differenz der optischen Weglängen variieren. Somit kann die Anzahl der zu beobachtenden Maxima und Minima eingestellt werden, was wiederum einen Einfluss auf die Detektierbarkeit der zu erwartenden Effekte hat. Als Strahlteiler wird eine Strahlteilerplatte verwendet, welche das Licht in einem 50/50 Verhältnis reflektiert und transmittiert. Zusätzlich zur Antireflexbeschichtung werden unerwünschte Reflexionen durch eine leichte Keilform des Strahlteilers minimiert. In Abbildung 34 ist noch einmal der vollständige Interferometer-Aufbau zu sehen. Dieser wurde auf einer Lochplatte installiert, welche wiederum auf einer schwingungsdämpfenden Plattform montiert wurde.

3.3.2 Messverfahren

Zur Auswertung der aufgenommenen Kamerabilder wurde ein eigenes MATLAB Programm geschrieben. Wird dieses Programm separat betrieben, können damit zuvor gespeicherte Bilder eingelesen und ausgewertet werden. Zudem kann es aber auch in das in Abschnitt 4.2 beschriebene Programm integriert werden und damit während des Prozesses der Materialbearbeitung in situ Messergebnisse liefern.

In beiden Fällen wird dafür zunächst ein Bild des mit der Kamera aufgenommenen Interferenzmusters (siehe dazu Abbildung 35 und Abbildung 36) eingelesen.

Bei der Kalibrierung des Interferometers ist darauf zu achten, dass die auf-

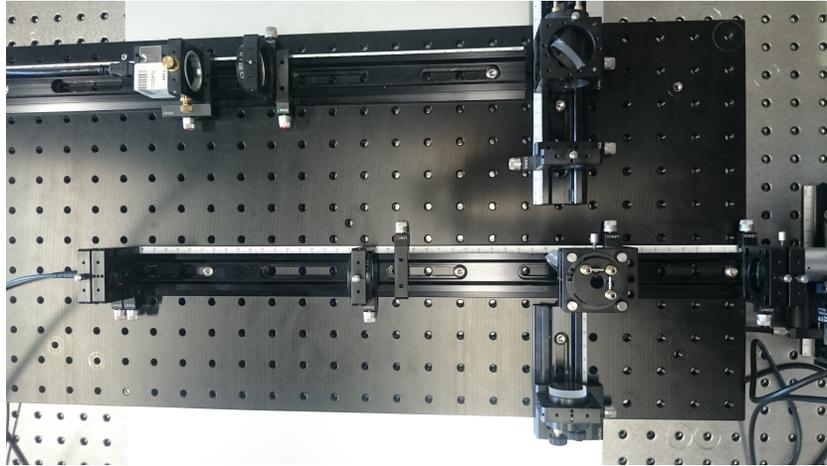


Abbildung 34: *Blick von oben auf das aufgebaute Interferometer. Am rechten Bildrand sind die Halterungen für die PMMA-Probe und den dichroitischen Filter sowie das Objektiv zur Materialbearbeitung zu sehen.*

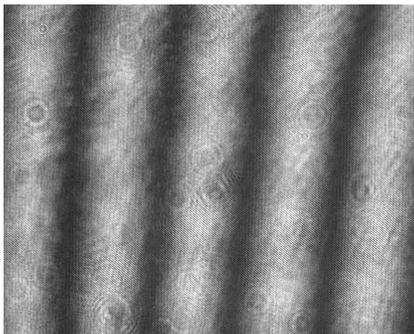


Abbildung 35: *Ein zuvor mit der Kamera des Interferometers aufgenommenes Bild wird in das Programm eingelesen.*

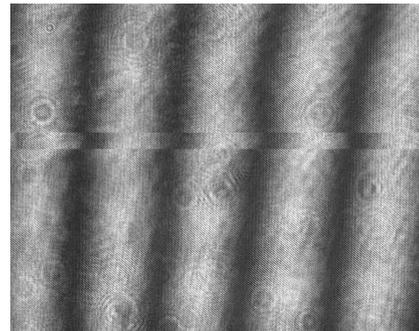


Abbildung 36: *Zu Testzwecken wird in ein Interferenzbild ein Streifen mit einer künstlich erzeugten Phasenverschiebung von $\frac{\lambda}{10}$ eingearbeitet.*

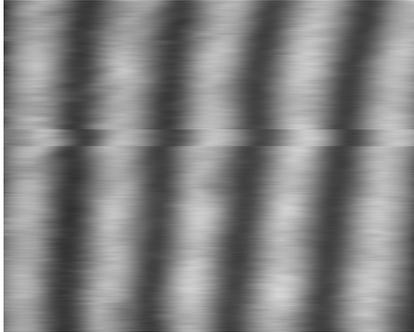


Abbildung 37: *Vor der Auswertung müssen die Daten zunächst geglättet werden.*



Abbildung 38: *Die verschobene Phase ist eindeutig detektierbar.*

tretenen Streifen vertikal angeordnet sind. Dadurch kann jede einzelne Zeile des Bildes als ein eigenes Cosinus-Signal angesehen werden. Zudem ist darauf zu achten, dass die Anzahl der sichtbaren Streifen nicht zu groß gewählt wird, da sonst kleine Verschiebungen der Phase nur wenigen Pixeln entsprechen und somit kaum noch zu erkennen sind. Zum Start der Auswertung wird ein Bild des mit der Kamera aufgenommenen Interferenzmusters eingelesen (Abbildung 35). In dieses wurde jedoch zu Testzwecken ein Streifen mit künstlich erzeugter Phasenverschiebung eingearbeitet (siehe Abbildung 36). Bevor dieses Bild weiterverarbeitet werden kann, müssen die störenden Reflexe im Hintergrund beseitigt werden. Dazu werden die Daten jeder einzelnen Zeile geglättet und es ergibt sich das in Abbildung 37 zu sehende Bild. Da die Stellen mit destruktiver Interferenz schärfer und schmaler ausgeprägt sind als solche mit konstruktiver Interferenz, wird im folgenden Schritt die Position der Minima jeder einzelnen Zeile gesucht. Eine graphische Darstellung der gefundenen Minima des eingelesenen Bildes ist in Abbildung 38 zu sehen. Nun lässt sich der Abstand zweier Streifen genau bestimmen und auch die sich ergebende Phasenverschiebung ist klar zu erkennen und gut auswertbar. In diesem Fall wurde bei einem Abstand der Minima von etwa 250 Pixeln zueinander eine Verschiebung von 25 Pixeln erzeugt. Es ist damit gezeigt, dass eine Änderung der optischen Weglänge von $\frac{\lambda}{10}$ noch eindeutig zu detektieren ist.

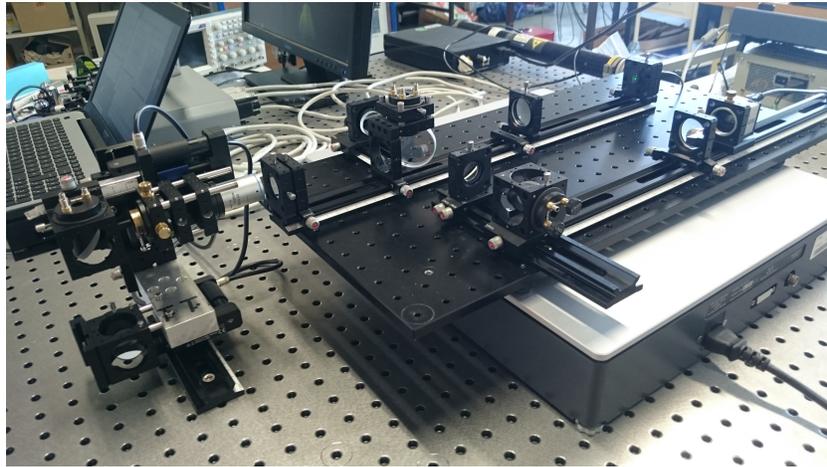


Abbildung 39: *Durch die gewählte Anordnung kann die PMMA-Probe zeitgleich von einer Seite bearbeitet werden, während sie von der anderen Seite mit dem Interferometer untersucht wird.*

3.4 Zusammenführung der Systeme

Nachdem in den zwei vorherigen Abschnitten die beiden Systeme zur Materialbearbeitung und zur Detektion der verursachten Brechungsindexänderung vorgestellt wurden, soll nun kurz dargestellt werden, wie diese miteinander verknüpft wurden, um eine in situ Messung zu ermöglichen. In Abbildung 39 ist zu sehen, dass die Aufbauten so zueinander angeordnet werden können, dass die PMMA-Probe zeitgleich mit dem Laser bearbeitet und vom Interferometer untersucht werden kann.

Ein näherer Blick auf die Schnittstelle (Abbildung 40) zeigt, dass die PMMA-Probe, in der linken Halterung, sehr nahe an dem dichroitischen Filter, in der rechten Halterung, positioniert werden kann. Von der anderen Seite ist durch die Mikrostelltische eine Positionierung des Objektivs bis direkt an den Filter möglich. Durch den relativ großen Arbeitsabstand des zur Verfügung stehenden Objektivs von mehreren Millimetern ist es nun möglich, die Laserpulse durch den Filter, welcher für die Wellenlänge 1035 nm transparent ist, hindurch in die PMMA-Probe zu fokussieren. Das grüne Licht des Interferometers wiederum wird, nachdem es durch das Plexiglas gelaufen ist, reflektiert.

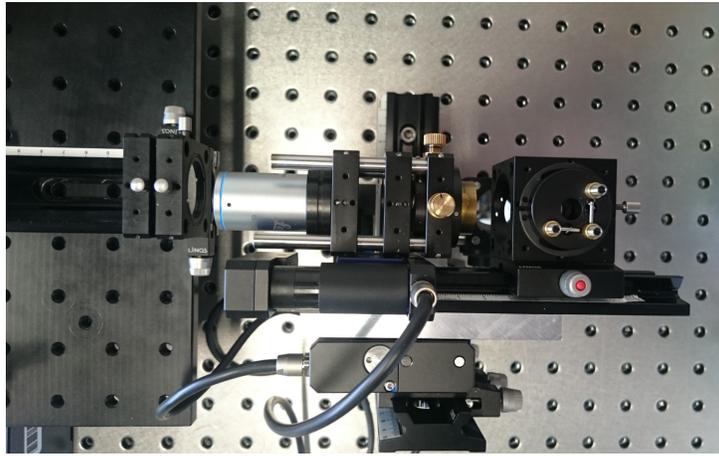


Abbildung 40: *Ein Blick von oben auf die Schnittstelle zwischen den beiden Komponenten des Gesamtaufbaus.*

Zum Abschluss und für einen Überblick ist in Abbildung 41 noch einmal eine schematische Zeichnung des gesamten Aufbaus inklusive der in den vorherigen Zeichnungen benannten Komponenten zu sehen und in Abbildung 42 eine Aufnahme des Aufbaus. Dabei ist in der rechten oberen Ecke der Femtosekundenlaser zu sehen. Von dort laufen die Pulse auf der rechten Seite durch den Pulpicker und dann an der unteren Kante durch die Strahlaufweitung. Nach dieser ist noch eine Filterkaskade zu sehen, mit welcher die Intensität der Pulse bei Bedarf reduziert werden kann. Danach folgt dann die xyz-Plattform mit integriertem Objektiv. In der linken oberen Ecke ist das auf einer Lochplatte aufgebaute Interferometer zu sehen, welches zusätzlich noch auf einer Schwingungsentkopplung montiert ist.

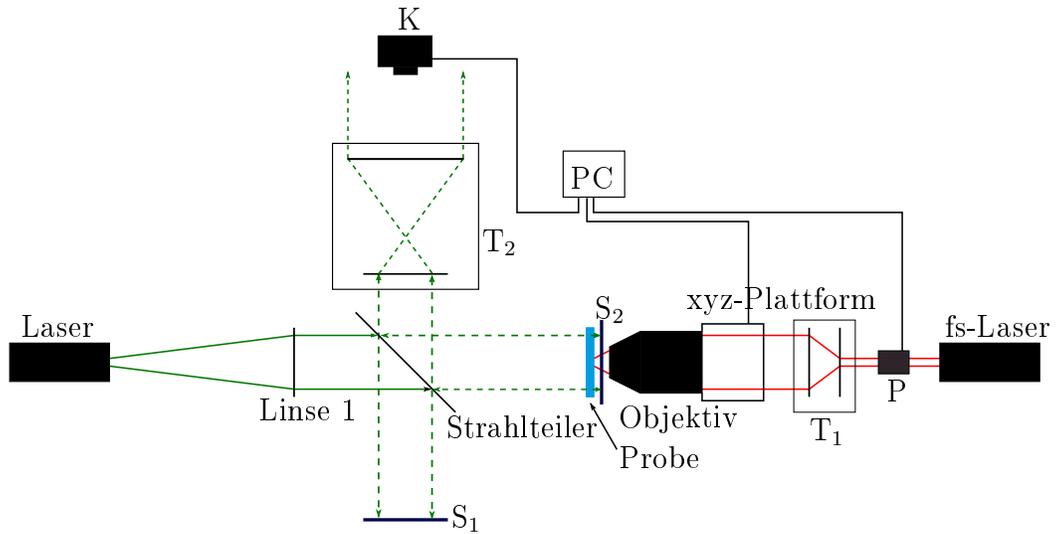


Abbildung 41: Schematische Zeichnung des kombinierten Aufbaus aus Materialbearbeitung und Interferometer.

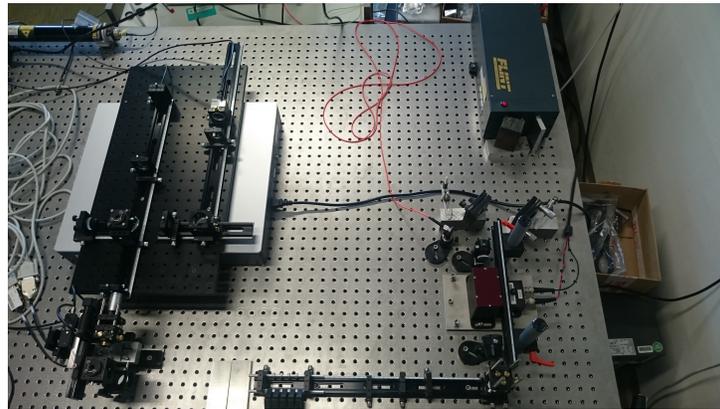


Abbildung 42: Der gesamte Aufbau wurde auf einem passiv gedämpften optischen Tisch aufgebaut.

4 Versuchsdurchführung

4.1 Einleitung

Nach der Installation des im vorherigen Abschnitts beschriebenen Versuchsaufbaus wurden im Folgenden verschiedene Versuchsreihen durchgeführt, um den Brechungsindex der PMMA-Proben gezielt zu verändern und dies auch mittels Interferometer zu überprüfen. Diese Versuchsreihen lassen sich in zwei verschiedene Ansätze einteilen. Zunächst wurde unter Verwendung des Pulspickers eine geringe Frequenz der Pulse eingestellt, um die in Abschnitt 2.5.3 dargelegte Wärmeakkumulation zu vermeiden. Die erhofften Änderungen sollten alleine durch die Prozesse der Multiphotonen-Absorption, Stoßionisation und anschließender stark lokalisierter Plasmabildung verursacht werden. Bei späteren Versuchen wurde der Oszillator in seiner Grundeinstellung genutzt. Durch die somit vorliegende Frequenz von 76 MHz waren auch thermische Effekte zu erwarten.

4.2 Materialbearbeitung mit Einzelpulsen

Durch die eingestellte Frequenz der Femtosekunden-Pulse von einem Kilohertz ist, wie in Abschnitt 2.5.3 aufgezeigt, davon auszugehen, dass das Material in der Zeitspanne von der Interaktion mit einem Puls bis zur Ankunft des nächsten Pulses wieder vollständig abgekühlt ist. Somit kann von einer wiederholten Interaktion von Einzelpulsen ausgegangen werden.

Für den Prozess der Materialbearbeitung wurde ein MATLAB-Programm geschrieben, mit welchem sowohl die Mikrostelltische als auch der Pulspicker angesteuert werden können. Die Steuerung der Stelltische ist dabei über direkte Befehle möglich. Zum Ansteuern des Pulspickers wird über eine AD-Wandlerkarte ein Triggersignal an dessen Steuerungseinheit gesendet und anhand dieses Signals die Pockelszelle für den gewünschten Zeitraum oder die gewünschte Anzahl von Pulsen aktiviert.

Der erste Schritt nach dem Einbau einer jeden Probe ist die Kalibrierung des Versuchsstandes. Zur Orientierung sind in Abbildung 43 die Ausrichtung der Achsen der xyz-Plattform bezüglich der verbauten Probe zu sehen. Damit sich der Brennpunkt des Objektivs während der Materialbearbeitung auch tatsächlich innerhalb der Probe befindet, muss zunächst für jede neu eingebaute Probe die Oberfläche gefunden werden. Dies ist notwendig, da die

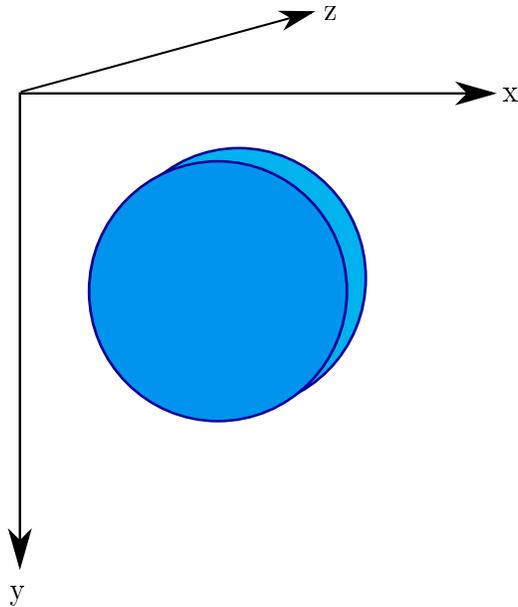


Abbildung 43: Die Laserpulse bewegen sich in Richtung der z-Achse und treffen frontal auf die Probe.

Proben nur mit einer Genauigkeit von etwa 0,2 mm in z-Richtung installiert werden können. Die Schwankungen beim Einbau der Proben sind somit größer als die geplante Tiefe des Laserfokuspunktes, in welcher die Änderungen des Brechungsindex herbeigeführt werden sollen. Zum Finden der Oberfläche wird das Objektiv von einem ausreichend großen Abstand von der Probe langsam näher an diese herangefahren. Dabei wird ohne Pulspicker gearbeitet, so dass die volle Leistung des Lasers auf das Material trifft. Das Interferogramm wird dabei nicht auf die Kamera sondern auf einen großen Bildschirm projiziert so dass die gesamte Probenoberfläche abgebildet wird. Erreicht der Brennpunkt die Oberfläche, findet an dieser Stelle eine Zerstörung (siehe Abbildung 44) statt und die Blende des Laser wird geschlossen. Zusätzlich wird die Position des Motors als Referenzwert notiert. Anschließend werden Fixpunkte (siehe Abbildung 45) in die Oberfläche geschrieben, um das Interferenzbild (Durchmesser 30 mm) so auf dem Kamerachip (6,6 mm × 5,3 mm) ausrichten zu können, dass der zu bearbeitende Teil sich im Bild befindet. Bevor die ersten Bearbeitungen durchgeführt werden können, erfolgt zunächst eine Abschätzung der zu erwartenden Änderungen, woraus sich das

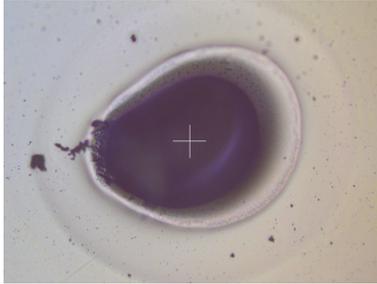


Abbildung 44: *Mikroskop-
aufnahme des entstandenen
Schadens an der Oberflä-
che bei maximaler Laserlei-
stung. Die Länge des Kreuzes
beträgt 50 μm .*

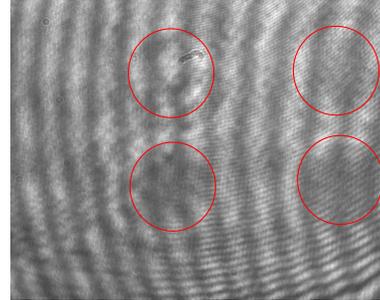


Abbildung 45: *Die Oberflä-
chenschäden der Fixpunkte
sind im Interferogramm als
dunkle Störungen im Hin-
tergrund zu erkennen.*

zu bearbeitende Volumen ergibt, um detektierbare Effekte zu erreichen. Mit Gleichung (55)

$$\Delta n = \frac{OPD}{2d}$$

kann abgeschätzt werden, in welcher Dicke d entlang der z -Achse die Probe bearbeitet werden muss. Für Δn wird dabei ein Wert von $4,6 \times 10^{-4}$ [2] angenommen. Ausgehend von einer angestrebten Änderung der optischen Weglänge von

$$ODP = \frac{\lambda}{10} = 54,6 \text{ nm} \quad (102)$$

muss die Brechungsindexänderung über eine Strecke in z -Richtung von etwa $60 \mu\text{m}$ erreicht werden. Für eine erste Abschätzung, wie groß der Bereich in z -Richtung ist, in welcher bei einer Bestrahlung mit festem Objektiv eine Veränderung zu erwarten ist, wird die Rayleighlänge

$$z_R = \frac{w_0^2 \pi}{\lambda}$$

aus Gleichung (41) herangezogen. Diese beträgt bei einer Strahltaile von $w_0 = 1,3 \mu\text{m}$ und der Wellenlänge des genutzten Laser von $\lambda = 1035 \text{ nm}$ etwa $5 \mu\text{m}$. Dabei handelt es sich jedoch nur um einen groben Richtwert, da bei

dieser Länge die Intensität schon auf 80 % abgefallen ist und dies eventuell nicht mehr ausreicht, um die nichtlinearen optischen Prozesse zu starten. Um eine Dicke von mindestens $60\ \mu\text{m}$ zu erreichen, müssen in z-Richtung mehrere Bearbeitungsschritte hintereinander durchgeführt werden. Dies wurde erreicht, indem zunächst in der xy-Ebene eine Fläche beschrieben wurde und dann die z-Achse um einen Schritt versetzt wurde, um den Vorgang zu wiederholen. Die Beschreibung der Flächen wurde in zwei verschiedenen Varianten durchgeführt.

4.2.1 Scannendes Verfahren

Beim zunächst durchgeführten, scannenden Verfahren wurde sich an den Veröffentlichungen zur Herstellung von Lichtleitern [47], [2], [3] orientiert. Dabei wird der Laser mit einer festen Geschwindigkeit durch das Material geführt und modifiziert dabei die Probe. In diesem Fall wird jedoch nicht nur ein einzelner Leiter geschrieben, sondern eine ganze Fläche wird mäanderförmig abgefahren (Abbildung 46). Für die Geschwindigkeit wurde ein Wert von $0,2\ \frac{\text{mm}}{\text{s}}$ gewählt und die Verfahrenswege in x- und y-Richtung auf $100\ \mu\text{m}$ eingestellt. Durch die fünffache Vergrößerung des Interferometers sollte das modifizierte Gebiet damit eine Fläche von etwa 100×100 Pixel auf dem Kamerachip einnehmen und damit eindeutig identifizierbar sein. Baum et al. [45] zeigen in ihrer Arbeit, dass durch wiederholtes Scannen der gleichen Stelle die Modifikation des Brechungsindex stark verbessert werden kann und Änderungen von $\Delta n = 4 \times 10^{-3}$ erreicht werden können. Dieser Ansatz wird hier übernommen und dieselbe Ebene dreimal abgefahren. Anschließend erfolgt ein Schritt von $1\ \mu\text{m}$ in Richtung der Oberfläche und der Prozess beginnt erneut. Die Startwerte in z-Richtung wurden zwischen den einzelnen Versuchsreihen variiert, lagen jedoch mindestens $200\ \mu\text{m}$ unterhalb der Oberfläche. Die Schrittgröße in z-Richtung wurde mit $1\ \mu\text{m}$ bewusst kleiner als die Rayleighlänge gehalten, um ein geschlossenes Volumen an modifiziertem Material zu erhalten. Der Verfahrensweg in dieser Richtung wurde variiert, meist jedoch so groß gewählt, dass die Bearbeitung bis hin zur Oberfläche stattfand. Das Interferogramm wurde vor und nach der Bearbeitung aufgenommen und konnte während des Prozesses jederzeit über einen Bildschirm beobachtet werden. Bei der anschließenden Analyse der Bilder konnte in keinem einzigen Fall eine Phasenverschiebung detektiert werden. Auch eine weitere Vergrößerung des Interferogramms brachte keine Verbesserung, weshalb eine Änderung des

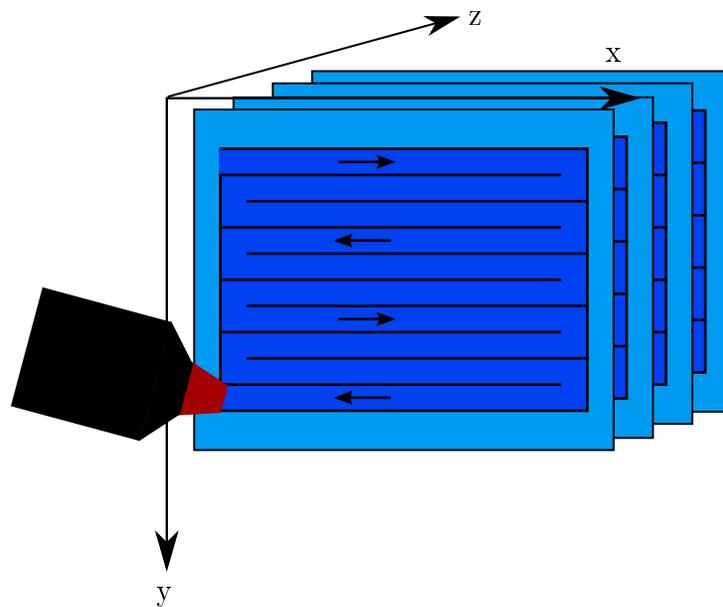


Abbildung 46: Die zu beschreibende Fläche wird vom Objektiv mäanderförmig abgefahren. Nach Beenden einer Ebene erfolgt ein Schritt in negativer z -Richtung und der Prozess beginnt erneut.

Bearbeitungsprozesses vorgenommen wurde.

4.2.2 Schrittweises Verfahren

Das scannende Verfahren wurde im nächsten Schritt in ein schrittweise arbeitendes System umgewandelt. Dabei wird nun jeder Punkt gezielt angefahren und für eine bestimmte Zeit bestrahlt. Dadurch kann die eingestrahlte Energie sehr genau eingestellt werden. Der Abstand zwischen den Punkten wurde mit $1\ \mu\text{m}$ so gewählt, dass bei einem Spotdurchmesser von $2,6\ \mu\text{m}$ eine Überschneidung der Punkte gegeben war. Da der zeitliche Aufwand bei dieser Methode durch das schrittweise Vorgehen stark ansteigt, musste das zu bearbeitende Volumen verringert werden, indem die Strecke in x-Richtung auf $50\ \mu\text{m}$, in y-Richtung auf $20\ \mu\text{m}$ und in z-Richtung auf $50\ \mu\text{m}$ reduziert wurde. Zum Ausgleich dafür wurde die Vergrößerung des Interferometers erhöht. Die Zeit pro Punkt betrug maximal 0,3 Sekunden. Doch auch mit dieser Methode war keine Veränderung im Interferogramm zu erkennen.

Da die Qualität der Interferogramme durch Rauschen und ein, durch Vorder- und Rückseite der Probe verursachtes, zweites Interferenzmuster nicht optimal war, wurden die Proben anschließend mit einem zweiten Interferometer untersucht, um auszuschließen, dass der zu messende Effekt durch die Störungen nicht erkannt wurde. Dieses im Rahmen einer Master-Arbeit [52] aufgebaute Interferometer nutzt ein phasenschiebendes Verfahren²⁸ zur Untersuchung der Wellenfront. Dabei wird eine Serie von Interferogrammen aufgenommen, während einer der beiden Spiegel verschoben wird, so dass sich die Referenzphase zwischen den einzelnen Aufnahmen verändert. Durch eine Verrechnung dieser Aufnahmen lässt sich anschließend die Phase der Wellenfront rekonstruieren. Das Ergebnis einer solchen Messung für eine zuvor bearbeitete Probe ist in Abbildung 47 zu sehen. Dabei zeigen sich über den gesamten zu sehenden Teil der Probe keinerlei Auffälligkeiten an der Wellenfront.

Es muss daher davon ausgegangen werden, dass durch die eingestrahlten Pulse keine nichtlinearen optischen Prozesse initiiert wurden und es nicht zu einer Modifikation des Brechungsindex gekommen ist. Eine mögliche Erklärung findet sich dafür bei einem erneuten Vergleich mit den Parametern anderer Veröffentlichungen [45], [2], bei welchen erfolgreiche Modifikationen zu sehen sind. Während sich Pulslängen, Spotdurchmesser, Energiedichten

²⁸ [21], Seite 547 ff

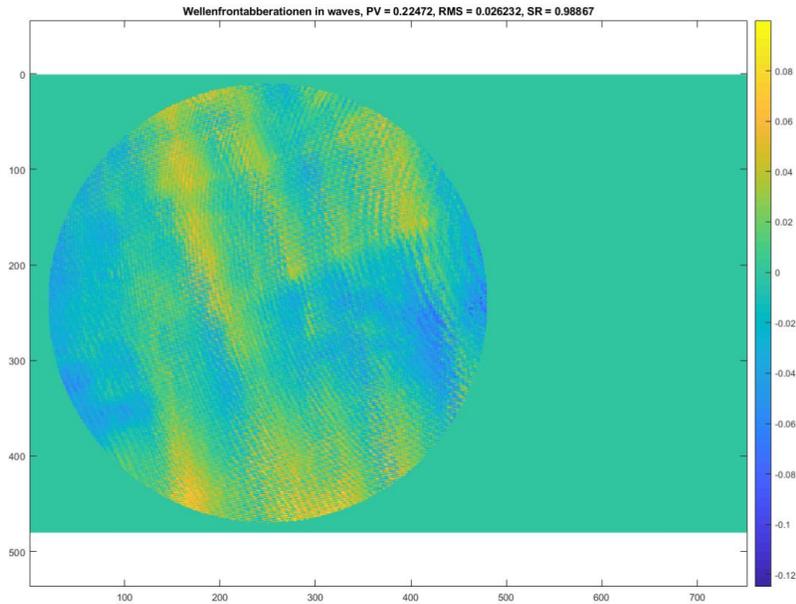


Abbildung 47: *Das Ergebnis der Wellenfrontuntersuchung mit einem phasen-schiebenden Interferometer zeigt keine signifikanten Abweichungen.*

und Wiederholungsraten der Pulse in denselben Größenordnungen bewegen, unterscheiden sich die Wellenlängen der verwendeten Laser (387 nm [45], 800 nm [2]). Der dominierende Prozess für die Schädigungen des Materials ist die Multiphotonen-Absorption (Abschnitt 2.5.2). Dabei werden Elektronen durch die Wechselwirkung mit mehreren Photonen gleichzeitig in das Leitungsband angeregt. Die Energie dieser Photonen muss also zusammenaddiert der Bandlücke des vorliegenden Materials entsprechen. Betrachtet man nun die Bandlücke von PMMA mit 4,6 eV und die Photonenenergie der verschiedenen Wellenlängen, zeigt sich, dass bei der Verwendung einer Wellenlänge von 387 nm (3,2 eV) bereits zwei Photonen ausreichen, um ein Elektron anzuregen. Bei einer Wellenlänge von 800 nm (1,55 eV) ist schon die Wechselwirkung mit drei Photonen notwendig und bei der in dieser Arbeit verwendeten Wellenlänge von 1035 nm (1,2 eV) ist eine Vier-Photonen-Absorption notwendig. In Abschnitt 2.4.4 wurde dargelegt, dass die Übergangsraten der Absorptionsprozesse zum einen von der Intensität abhängen zum anderen aber auch deren Wirkungsquerschnitte eine Rolle spielen, welche für höhere Ordnungen kleiner werden. Dies lässt nun die Vermutung zu,

dass die zur Verfügung stehenden Intensitäten nicht ausreichend sind, um eine Vier-Photonen-Absorption zu verursachen.

4.2.3 Frequenzverdopplung

Das Problem der Vier-Photonen-Absorption kann gelöst werden, indem die Wellenlänge des Laser geändert wird. Dafür steht wie in Abschnitt 3.2 beschrieben ein LBO-Kristall zur Verfügung, welcher zu einer Halbierung der Wellenlänge, also zur Frequenzverdopplung, führt. Damit wird eine Photonenenergie von 2,4 eV erreicht, was eine Zwei-Photon-Absorptionen erlaubt. Die anfallenden Verluste der Intensität sollten durch die bessere Fokussierbarkeit der Pulse wettgemacht werden. In dieser Konfiguration kann keine in situ Messung durchgeführt werden, da zum einen der dichroitische Filter das Licht reflektieren würde und zum anderen der Arbeitsabstand des zur Verfügung stehenden Objektivs so klein ist, dass es direkt an der Probe platziert werden muss, um den Fokuspunkt unterhalb der Oberfläche zu platzieren. Für diese Versuchsreihe wurde wieder das scannende Verfahren eingesetzt und eine Fläche von $100 \mu\text{m} \times 100 \mu\text{m}$ beschrieben. In z -Richtung wurde das Objektiv so bewegt, dass es für das Schreiben der ersten Ebene Kontakt mit der Probe hatte und dann in $1 \mu\text{m}$ -Schritten von der Probe entfernt wurde. Nach der Bearbeitung des Materials wurde ein herkömmlicher Spiegel hinter der Probe angebracht und so das Interferometer wieder vervollständigt. Doch auch bei den Messungen dieser Versuchsreihe konnten keine Veränderungen der optischen Weglänge festgestellt werden.

Aufgrund dieser Ergebnisse muss vermutet werden, dass die Pulsenergie nicht ausreicht, um die zur Brechungsindexänderung benötigten nichtlinearen optische Prozesse zu verursachen. Die Ursache dafür kann am Laser selbst liegen. Da die vom Hersteller angegebene Pulsenergie jedoch, wie schon beschrieben, nicht kleiner ist als bei anderen Arbeiten zu diesem Thema, können auch Verluste innerhalb des Aufbaus für die zu niedrige Leistung verantwortlich sein. Bei der Konfiguration mit dichroitischem Strahlteiler ist die Transmission für eine Wellenlänge von 1034 nm mit über 90 % angegeben, was im Umkehrschluss zu einem Verlust von bis zu zehn Prozent bedeuten kann. Weiterhin ist das genutzte Objektiv für eine Wellenlänge von 1300 nm ausgelegt, was zu weitere Verlust von 3 bis 5 Prozent führt. Zudem ist die Strahlführung mit dem infraroten Laser nicht unproblematisch, da die genaue Position nur mittels IR-Sensorkarte oder mit einem Blick durch eine Kamera bestimmt werden kann. Dies erschwert die Einkopplung des Laser-

strahls in das Objektiv, welche sehr präzise geschehen muss, da Strahldurchmesser und Pupille des Objektivs den selben Durchmesser besitzen und es somit leicht dazu kommen kann, dass Teile des Strahls abgeschnitten werden. Für die Konfiguration mit dem frequenzverdoppelnden Kristall spielen diese Faktoren jedoch teilweise keine Rolle dafür jedoch die Effektivität des LBO-Kristalls. Für beide Konfigurationen ist der Pulpicker eine mögliche Ursache für Verluste. Zum einen werden an den, am vorderen und hinteren Ende der Komponente verbauten, Prismen kleine Teile des Strahls ausgekoppelt, zum anderen kann es beim Prozess der Polarisation innerhalb der Pockelszelle zu Verlusten kommen. Beispielsweise ist die Drehung der Polarisation des Laser dabei von der angelegten Hochspannung abhängig, welche bei der Inbetriebnahme kalibriert werden muss. Es ist also nicht auszuschließen, dass die zur Verfügung stehende Pulsenergie durch auftretende Verluste soweit verringert wurde, dass es nicht zu den erwarteten Effekten kam.

4.3 Materialbearbeitung mit hochfrequenten Pulsfolgen

Da die Versuche im athermischen Regime sowohl mit 1035 nm als auch mit 517 nm zu keinem Ergebnis führten, wurde der Pulpicker für die nächsten Versuchsreihen deinstalliert. Dadurch steht die volle Repetitionsrate des Oszillators zur Verfügung. Aus Abschnitt 2.5.3 ist bekannt, dass es bei hohen Repetitionsraten zu Wärmeakkumulation innerhalb des Materials kommt. Yoshine et al. zeigen in ihrer Arbeit [40], dass dieser Effekt nutzbar ist und sich die Qualität von hergestellten Lichtleitern sogar steigern lässt, da durch die auftretenden Effekte Mikrorissbildung und Defekt-induzierte Schäden gemildert werden und die Form der auftretenden Schäden symmetrischer wird. Zudem können trotz reduzierter Pulsenergien Effekte erzielt werden, welche zu Änderungen des Brechungsindex führen. Dies ist in Anbetracht der vorherigen Versuchsreihen ein ermutigender Gesichtspunkt. Da sich diese Veröffentlichung jedoch mit der Bearbeitung von Glas befasst, ist eine Voraussage für die Bearbeitung von PMMA mit hohen Repetitionsraten nicht direkt möglich. Daher müssen vor dem eigentlichen Schreiben von Strukturen zunächst verschiedene Parameter untersucht werden.

Abbildung 31 hat gezeigt, dass durch die hohe Frequenz des Laser sehr schnell eine so große Energiemenge in das Material eingebracht wird, dass es zu einer vollständigen Zerstörung an dieser Stelle kommt. Es ist also notwendig, Blenden zu nutzen und entsprechende Blendenöffnungszeiten so einzustellen, dass dieser Effekt der Zerstörung verhindert wird. Diese Versuche finden wie-

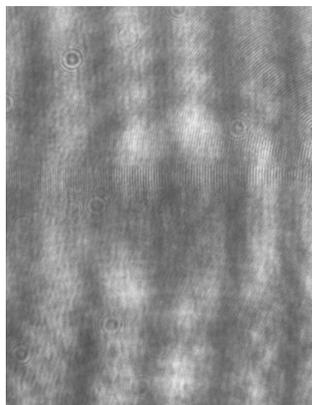


Abbildung 48: *Beispielhafte Interferogramm-Aufnahme eines Schadens innerhalb des Materials bei voller Intensität des Laser.*

der bei einer Wellenlänge von 1035 nm statt. Das dafür genutzte Objektiv ist Deckglass-korrigiert, so dass bei einer Eindringtiefe von 100 μm keine Abbildungsfehler zu erwarten sind und somit die Intensitätsverluste pro Fläche minimal sind. Zuletzt wird der Einfluss der Intensität auf die auftretenden Schäden untersucht. Zudem wird der Einfluss der Eindringtiefe auf die Schadensbildung untersucht.

4.3.1 Einfluss der Bestrahlungszeiten

Für diese Versuchsreihe wurde eine Reihe von verschiedenen Blenden genutzt, um die bei verschiedenen Bestrahlungszeiten auftretenden Schäden miteinander zu vergleichen. Diese Schäden bei zu großer Bestrahlung zeigten sich, wie in Abbildung 48 zu sehen, auf Interferogrammen gewöhnlich nur als dunkle Hintergrundstörung ohne die Interferenzstreifen zu beeinflussen. Daher wurden die auftretenden Schäden auch unter einem Konfokalmikroskop [53] untersucht. Mit diesem im Auflichtmodus betriebenen Mikroskop kann neben der Größe der Schäden in lateraler Ausrichtung auch die genaue Position in z-Richtung bestimmt werden, was nützlich ist, um die genaue Position der Schädigung innerhalb einer Probe zu ermitteln.

Der dichroitische Filter wurde für diese Versuche entfernt, so dass ein besserer Blick auf die Proben möglich war. Als Shutter standen verschiedene teils selbst aufgebaute Konstruktionen zur Verfügung, welche Öffnungszeiten im

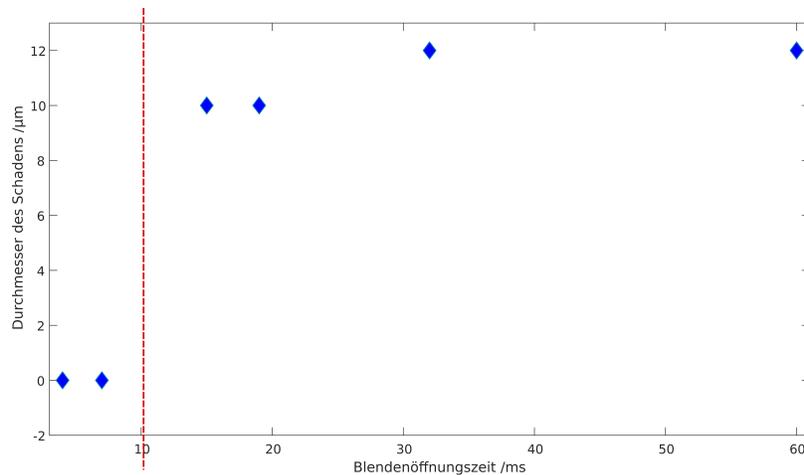


Abbildung 49: Dieser Graph zeigt die Größe der auftretenden Schäden in Abhängigkeit von der Öffnungszeit der Blende. Die Ergebnisse weisen dabei auf eine scharf definierte Zerstörungsschwelle hin.

Bereich zwischen 4 ms bis 60 ms besitzen. In Abbildung 49 ist zu sehen, dass die Größe der Schäden für 15 ms bis 60 ms annähernd konstant bleibt. Für kleinere Öffnungszeiten waren keine Schäden detektierbar. Auch die Form der Zerstörungen war unabhängig von der Öffnungszeit und ist beispielhaft in Abbildung 50 zu sehen. Es ist anzumerken, dass aus den Aufnahmen des Konfokalmikroskops keine Aussagen über die Art des auftretenden Schadens zu treffen sind. Sie dienen ausschließlich zur Bestimmung der Größe und Position.

Abschließend ist zu dieser Testreihe festzuhalten, dass es eine untere Grenze der Öffnungszeit gibt, ab welcher keine sichtbaren Schäden mehr auftreten. Auch mit dem Interferogramm waren für 6,5 ms und 4 ms keine Veränderungen zu erkennen. Eine genauere Eingrenzung ist jedoch aufgrund fehlender alternativer Blenden nicht möglich.

4.3.2 Abhängigkeit der Eindringtiefe

Es ist davon auszugehen, dass der Abbildungsfehler mit zunehmender Eindringtiefe größer wird und so einen Einfluss auf die Größe des Strahldurch-

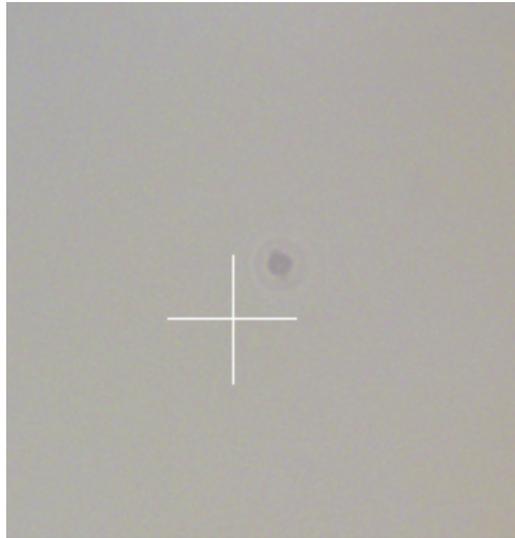


Abbildung 50: *Unter dem Konfokalmikroskop sind die Schäden für verschiedene Öffnungszeiten sichtbar. Die Gesamtlänge des zu sehenden Fadenkreuzes beträgt $50\ \mu\text{m}$.*

messers und damit auf die Energiedichte haben wird. Zur Untersuchung dieses Einflusses wurde wiederum bei ausgebautem Spiegel und einem Shutter mit einer Öffnungszeit von 60 ms die Größe und Form der auftretenden Schäden untersucht. Dafür wurde das Objektiv zwischen den einzelnen Bearbeitungen so in z-Richtung verfahren, dass die Schädigungen in einem Bereich von $228\ \mu\text{m}$ und $340\ \mu\text{m}$ unterhalb der Oberfläche liegen. Bei den anschließenden Messungen war festzustellen, dass die räumliche Ausdehnung der Schäden mit zunehmender Tiefe abnimmt (Abbildung 51).

Zur Erklärung dieses Ergebnisses wurde mittels eines Programms zum Design optischer Systeme (OSLO) der Radius der Strahltaile im Fokuspunkt, in Abhängigkeit zum Abstand zur Oberfläche, simuliert. Da es sich um ein deckglaskorrigiertes Objektiv handelt, entspricht der Radius in einer Tiefe von $0,1\ \text{mm}$ unterhalb der Oberfläche dem in Abschnitt 3.2 berechneten Radius (Abbildung 52). Mit zunehmendem Abstand zur Oberfläche wird dieser Radius jedoch durch auftretende Abbildungsfehler größer. Durch den daraus resultierenden größeren Fokuspunkt, nimmt die Energiedichte ab. Durch den niedrigeren Energieeintrag pro Fläche, reduziert sich die Schädigung des

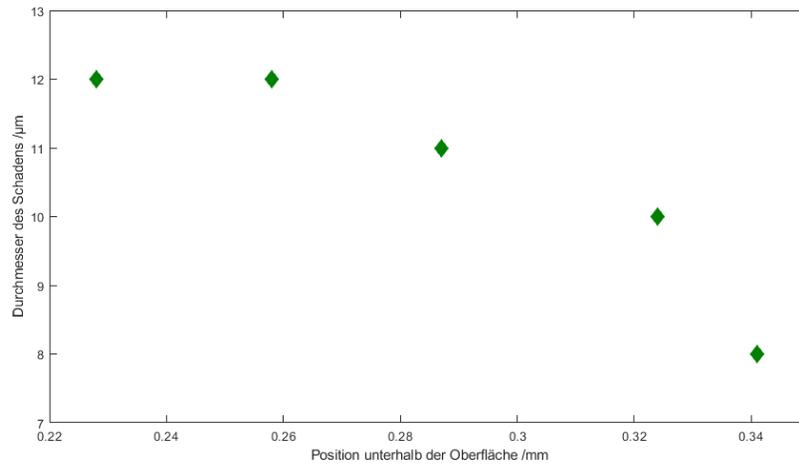


Abbildung 51: *Mit zunehmender Tiefe nimmt die Größe der vermessenen Schäden ab.*

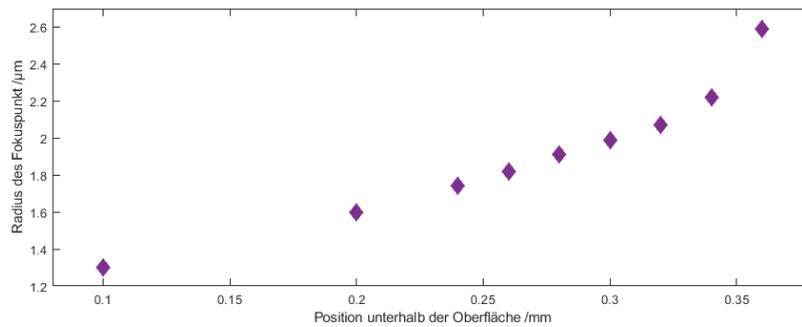


Abbildung 52: *Durch Abbildungsfehler des Objektivs wird der Radius des Fokuspunktes mit zunehmender Tiefe größer.*



Abbildung 53: *Durch eine Schädigung knapp unterhalb der Oberfläche kommt es zu Verformung und Rissbildung. Das zu sehende Fadenkreuz hat eine Länge von $50\ \mu\text{m}$.*

Materials.

Für nachfolgende Untersuchungen sollte daher darauf geachtet werden, dass die gewählte Arbeitstiefe nicht zu groß ist. Doch auch zu geringe Tiefen können problematisch sein, da es bei Effekten knapp unterhalb der Oberfläche schnell zu Schädigungen dieser kommen kann (siehe Abbildung 53).

4.3.3 Variation der Intensität

Die Versuche die ins Material eingebrachte Energiemenge über die Öffnungszeit der Blende so zu steuern, dass eine totale Zerstörung des Materials verhindert wird und es zu den erhofften Veränderungen des Brechungsindex kommt, haben zu keinem Ergebnis geführt. Daher folgt als nächster Schritt die Steuerung der eingebrachten Energie über eine Regulierung der Intensität des Laser. Bei einem ersten Ansatz wurde dazu eine Blende in den Strahlengang eingebracht. Damit konnte zum einen durch Zuziehen dieser Blende der Durchmesser des Laserstrahls verringert werden, wobei Teile des Laserstrahls abgeschnitten werden und zum anderen durch den sich verringern den Durchmesser des Lasers die numerische Apertur verringert werden. Daraus ergibt sich ein größerer Spotdurchmesser innerhalb des Materials und somit eine geringere Energiedichte. Doch auch dieser Ansatz führte nicht zu den erhofften Ergebnissen. Untersuchungen mit dem Interferometer zeigten für größere

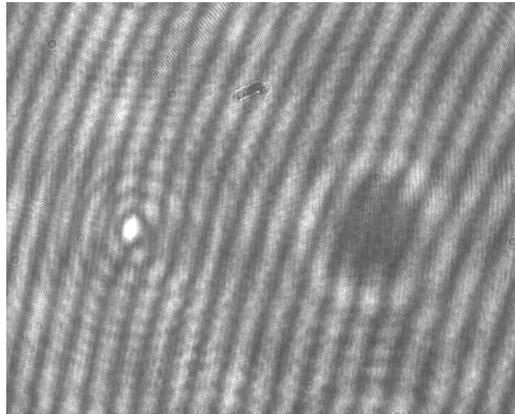


Abbildung 54: Auf der rechten Seite ist ein typischer Schaden zu sehen für hohe Intensitäten zu sehen. Auf der linken Seite ein durch geringe Intensität erzeugter Effekt.

Durchmesser die für zerstörtes Material typischen Bilder einer Hintergrundstörung ohne die Interferenzstreifen zu beeinflussen, ab einem Grenzwert des Durchmessers waren dann keine Effekte mehr zu sehen. Somit ist auch dieser Ansatz nicht zielführend. Als nächste Methode zur Reduzierung der Intensität wurde der Einsatz von Transmissionsfiltern gewählt. Damit konnte je nach Anzahl der Filter eine Intensität von 100 %, 84,5 %, 71 % und 61 % eingestellt werden. Mit diesen unterschiedlichen Intensitäten wurde eine Probe bei angeschlossenem Interferometer an verschiedenen Stellen bestrahlt. Die Vergrößerung des Interferometers war dabei entfernt, da die bisherigen Schäden bei den hohen Repetitionsraten so groß waren, dass sie auch so detektiert werden konnten. Als Arbeitspunkt wurde eine Tiefe von 200 μm unter der Oberfläche gewählt. Bei dieser Versuchsreihe kam es zum ersten Mal zu einer nachweisbaren Phasenverschiebung. Während es bei voller Intensität zu dem gewohnten Muster kam, ist in Abbildung 54 neben diesem ein Effekt zu sehen, welcher durch eine Bestrahlung mit 61 % verursacht wurde.

Neben der eindeutigen Verformung des Interferenzstreifens ist zudem der helle Spot in der Mitte des Schadens hervorzuheben. Während der rechte Effekt bei voller Intensität schon bei einer kurzen Öffnungszeit von wenigen Millisekunden zu sehen war, musste für den Effekt auf der linken Seite die Blende, bei geringer Intensität, für einige Sekunden geöffnet werden. Im Verlauf dieser

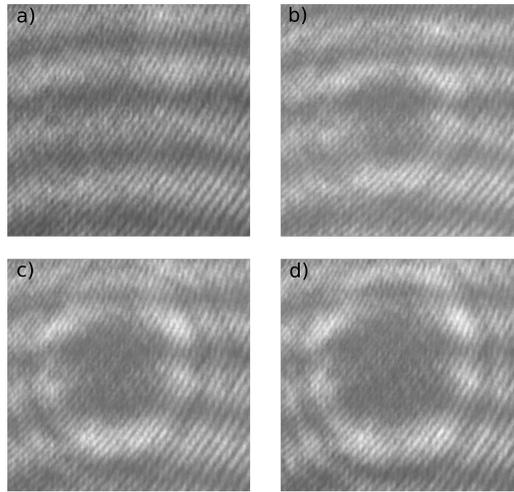


Abbildung 55: In Bild a) ist ein Interferogramm der Probe vor der Bestrahlung zu sehen. Die Bilder b) und c) zeigen die mit der Zeit wachsende Verformung, welche in Bild d) ihre maximale Größe erreicht hat. Beendet man zu diesem Zeitpunkt die Bestrahlung, kommt es zu einer vollständigen Rückbildung der Verformung.

Zeit kam es zu eindeutigen thermischen Verformungen des Materials. Dieser Prozess ist in Abbildung 55 zu sehen. Wurde die Blende vor Eintreten des Schadens geschlossen, kam es zu einer vollständigen Erholung der Probe. Nach dem erfolgreichen Erzeugen einer Phasenverschiebung sollte dieser Prozess reproduziert werden. Dafür wurde eine neue Probe eingebaut und diese mit unterschiedlichen Intensitäten und unterschiedlichen Öffnungszeiten der Blende bestrahlt. Die Reproduktion des Effekts gelang diesmal auch für höhere Intensitäten, wobei die benötigte Zeit von etwa 0,8 Sekunden (84,5%) über etwa 1,5 Sekunden (71%) bis etwa 2,5 Sekunden (61%) variierte. Zur weiteren Überprüfung der Reproduzierbarkeit wurde in einer neuen Probe ein Array von 3×3 Punkten mit einem Abstand von 1,5 mm zueinander und einer Intensität des Lasers von 71% der maximalen Leistung bestrahlt. In Abbildung 56 ist zu sehen, dass bei acht von neun Punkten der erwünschte Effekt erzielt wurde.

Beim neunten Punkt kam es zu einem, für volle Laserleistung typischen, Schaden. Eine Reproduzierbarkeit des Effekts ist somit möglich, wobei auf eine sorgfältige Steuerung der Blendenöffnungszeit zu achten ist, um einen

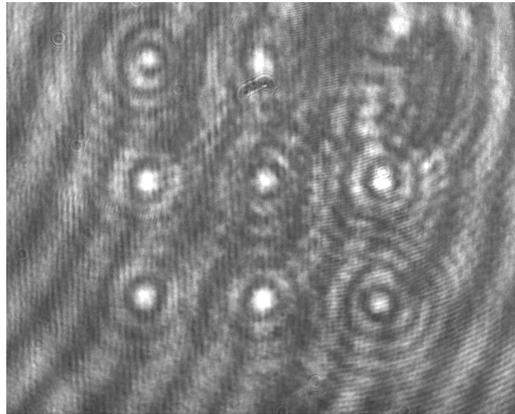


Abbildung 56: *Bei acht von neun Punkten ist die Erzeugung des gewünschten Effekts gelungen.*

Energieeintrag zu erreichen, welcher zwischen einer reversiblen thermischen Verformung des Materials und der Zerstörung des Materials liegt. Weitere Versuche diesen Effekt auch in einem spannenden Verfahren zu erreichen waren erfolglos. Je nach eingestellter Verfahrensgeschwindigkeit und Leistung des Laser kam es entweder zu einer Zerstörung des Materials oder zu einer temporären Erwärmung ohne Schädigung.

4.3.4 Untersuchung des phasenschiebenden Effekts

Zur näheren Untersuchung des Schadens, der zu einer Phasenverschiebung führt, wurde eine dieser Stellen (Abbildung 57) zunächst mit einem Mikroskop im Durchlichtmodus untersucht.

In Abbildung 58 ist eine Aufnahme dieses Schadens zu sehen. Dabei ist klar erkennbar, dass das Material im Zentrum zerstört ist. Diese verbrannte Stelle sollte auch in einem Interferogramm als dunkler Fleck zu sehen sein, da an dieser Stelle Licht absorbiert wird und das im Interferometer genutzte Licht eine ebene Wellenfront aufweist. In Abbildung 57 ist jedoch an dieser Stelle ein strahlender Fleck mit einem Durchmesser von etwa $250\ \mu\text{m}$ zu sehen, welcher um einen Faktor 1,6 heller ist als die Streifen konstruktiver Interferenz in der Aufnahme. Diese hohe Helligkeit deutet auf einen Fokussierungseffekt hin. Für eine weitere Untersuchung wurde die Probe mit dem in Abschnitt

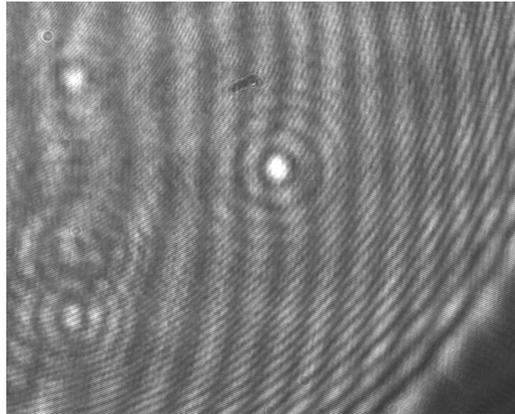


Abbildung 57: Dieser zentral im Bild und separat liegende Effekt ist gut für nähere Untersuchungen geeignet.

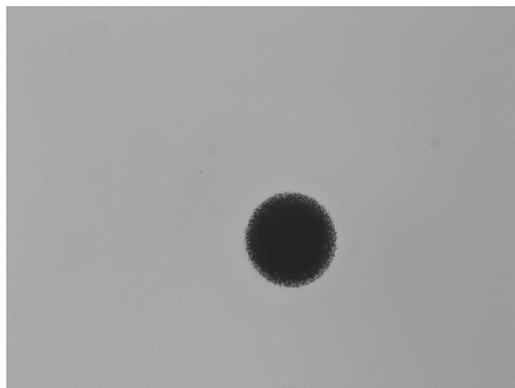


Abbildung 58: Mikroskopaufnahme eines, mit reduzierter Intensität erzeugten, Schadens. Der Durchmesser beträgt etwa $180\mu\text{m}$.



Abbildung 59: Kameraaufnahme des erzeugten Arrays.

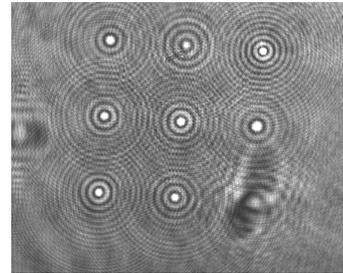


Abbildung 60: Eine Aufnahme des transmittierten Lichts durch das Array zeigt strahlende Stellen an den Positionen der Schäden.

4.3.3 beschriebenen Array mit einem aufgeweiteten und parallelisierten Laser beleuchtet und das transmittierte Licht mit einer Kamera detektiert (Abbildung 60).

Auch dort sind an acht Stellen, im Vergleich zur Umgebung, sehr hohe Lichtintensitäten zu erkennen. Am neunten Punkt, bei dem es nicht zum gewünschten Effekt kam, zeigt sich diese hohe Lichtintensität nicht.

Eine leicht defokussierte Mikroskopaufnahme des Schadens aus Abbildung 57 gibt eine erste Information zur Erklärung des zu sehenden Effekts. Es zeigt sich im defokussierten Bild (Abbildung 61) ein heller Ring um den dunklen Hauptschaden, was auf eine Veränderung des Brechungsindex in diesem Bereich hinweisen könnte.

Zur Überprüfung dieser These wurden Polarisationsfilter in einem Winkel von 90 Grad zueinander in den Strahlengang des Mikroskops eingebracht. Dadurch sollte, wie in Abbildung 62 zu sehen ist, kein Licht am Kamerachip ankommen. Betrachtet man nun die Probe, zeigen sich jedoch helle Stellen, in Form eines Isogyrenkreuzes, um den Schaden herum (siehe Abbildung 63). Dies zeigt, dass es zu Polarisierungseffekten um den Schaden herum kommt, was auf eine lokale Änderung des Brechungsindex zurückzuführen ist. Dies führt zur Herausbildung eines Linseneffekts. Dadurch lassen sich die erhöhten Lichtintensitäten im Zentrum der Schäden durch eine Bündelung des Lichts von den Randbereichen der geschädigten Stellen, wo es zu einer Änderung

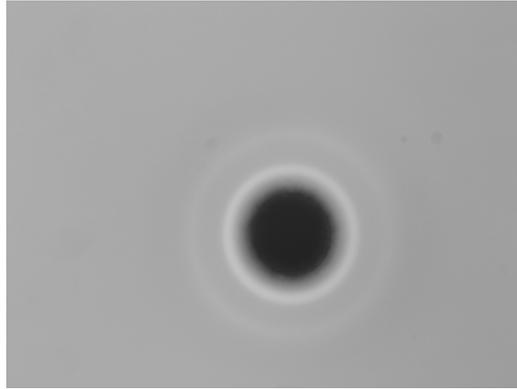


Abbildung 61: *Leicht defokussierte Mikroskopaufnahme des Schadens.*

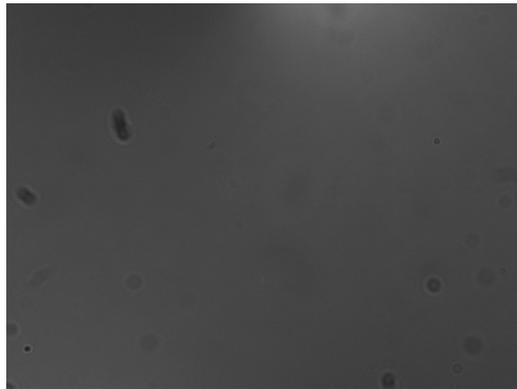


Abbildung 62: *Mikroskopaufnahme der Probe an einer unbeschädigten Stelle mit installierten Polarisationsfiltern.*

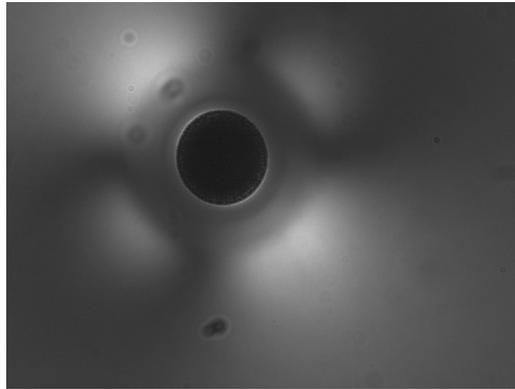


Abbildung 63: *Trotz um 90 Grad zueinander verdrehter Polarisationsfilter, wird um den Zentralen Bereich des Schadens Licht transmittiert.*

des Brechungsindex gekommen ist, zum Zentrum erklären.

Durch diese letzte Überprüfung bestätigt sich also die Annahme, dass durch die Einwirkung eines Femtosekundenlasers der Brechungsindex einer PMMA-Probe lokal geändert werden kann. Jedoch entspricht die erzielte Veränderung nicht den Erwartungen und ist für den ursprünglichen Verwendungszweck nicht geeignet.

Obwohl es sich bei den erzeugten Änderungen des Brechungsindex und den damit einhergehenden Phasenverschiebungen in den Interferenzbildern nicht um den erwarteten Effekt handelt, konnte abschließend anhand eines verursachten Schadens die entwickelte Software getestet werden. Dafür wurde ein Interferogramm, auf welchem ein erzeugter Effekt zu sehen ist (Abbildung 64), in das Programm eingelesen und anschließend ausgewertet. Im ausgegebenen Bild (Abbildung 65) ist die erzeugte Phasenverschiebung eindeutig zu erkennen und ihre Größe zu bestimmen. In diesem Fall entspricht sie, bei einem Streifenabstand von 160 Pixeln, etwa 70 Pixeln und damit etwa $0,4\lambda$. Das in der Abbildung zu sehende Artefakt weißer Pixel zwischen mittlerem und rechten Streifen ist durch das ringförmige Hintergrundmuster aus Abbildung 64 zu erklären, welches zu Komplikationen bei der Minimasuche führt. Damit ist gezeigt, dass das entwickelte Programm grundsätzlich zur Untersuchung von Phasenverschiebungen nutzbar ist, für die tatsächlich auftretenden Schäden ist es jedoch eher ungeeignet, da die erzeugten Effekte zu Störungen der Interferenzbilder führen, welche eine genaue Auswertung erschweren. Zudem kommt es nicht zu einer Brechungsindexänderung am zentralen Punkt

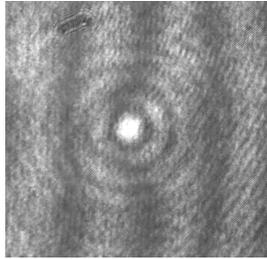


Abbildung 64: *Interferogramm mit Phasenverschiebung zum Testen der Software.*

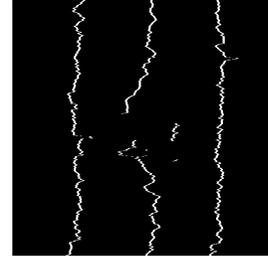


Abbildung 65: *In der Auswertung ist eindeutig die Phasenverschiebung zu erkennen.*

der Schädigung sondern um diesen Punkt herum. Aus der Auswertung der entstandenen Phasenverschiebung lässt sich so keine Aussage über die Größe der erfolgten Brechungsindexänderung treffen.

5 Zusammenfassung und Ausblick

Zum Abschluss dieser Arbeit bleibt festzuhalten, dass auf dem Weg zu einer Korrektur optischer Komponenten mittels modifizierter PMMA-Scheiben noch kein entscheidender Durchbruch erzielt werden konnte. Bei einer Bearbeitung der Proben mit einem Femtosekundenlaser mit kleiner Frequenz (1 kHz) konnten in keiner der gewählten Konfigurationen des Aufbaus Veränderungen des Brechungsindex detektiert werden. Dabei wurden die Proben zunächst in einem scannenden Verfahren bestrahlt, wobei der Laser innerhalb des Materials mehrere Ebenen hintereinander abgerastert hat. Da in dieser Konfiguration auch bei sehr langsamen Verfahrensgeschwindigkeiten und mehreren Scans pro Ebene keinerlei Veränderungen der optischen Weglängen innerhalb der Probe feststellbar waren, wurde der Aufbau geändert. Die Bestrahlung der Probe erfolgte nun schrittweise, so dass eine beliebig große Energiemenge an jeder einzelnen Position eingebracht werden konnte. Doch auch mit dieser Methode wurde keine messbare Änderung erzielt. Dies führt zu der Schlussfolgerung, dass die Energie der einzelnen Pulse, beziehungsweise die erzielte Energiedichte, nicht ausreichend groß war, um den Prozess der Multiphotonen-Absorption zu starten. Ein Vergleich mit anderen Veröffentlichungen [45], [48], in welchen der Brechungsindex von PMMA erfolgreich verändert wurde, zeigt jedoch dass die theoretisch erforderlichen Spezifikationen eingehalten wurden. Auch ein Wechsel der Wellenlänge von 1035 nm auf 517,5 nm, um die benötigte Anregungsenergie schon mit einer Zwei-Photonen-Absorption zu erreichen, führte nicht zum Erfolg. Berücksichtigt werden muss bei dieser Analyse jedoch, dass es innerhalb des Aufbaus an verschiedenen Stellen zu Verlusten kommen kann, was die zur Verfügung stehende Leistung möglicherweise unter die kritische Schwelle drückt.

Aus diesem Grund wurde im nächsten Schritt die Frequenz der Pulse stark erhöht. Dies führte dazu, dass neben den nichtlinearen optischen Effekten auch thermische Effekte Einfluss hatten. Mit einer Frequenz von 76 MHz war die benötigte Leistung zur Modifikation des Materials nicht nur erreicht, sondern sogar überschritten. Dadurch wurde das PMMA an den bestrahlten Stellen schon bei kurzen Öffnungszeiten der verwendeten Blenden stark zerstört. Durch den Einbau von Transmissionsfiltern und einer sorgfältigen Steuerung der Blendenöffnungszeit, konnte dieser Effekt verhindert werden. Mit dieser Konfiguration war es möglich, Brechungsindexänderungen zu erzeugen. Dabei handelte es sich jedoch nicht um die, noch zu Beginn der Arbeit erwarteten, auf den Fokuspunkt beschränkten (etwa 2,5 μm), minimalen Än-

derungen. Die erzeugten modifizierten Bereiche um den Laserspot erreichten Durchmesser von $180\ \mu\text{m}$ und waren mit bloßem Auge als schwarze Stellen zu erkennen. Bei Beleuchtung der bearbeiteten Proben und Analyse des dabei transmittierten Lichts, zeigte sich jedoch auf dem Kamerabild an diesen Stellen eine hohe Lichtintensität. Das selbe Ergebnis war auch bei Untersuchungen mit einem Interferometer zu sehen. Die dunkel erwarteten Stellen leuchteten hell auf und es kam in diesem Bereich zu einer Phasenschiebung der Interferenzstreifen. Dies lässt darauf schließen, dass es im Bereich direkt um die zerstörte Stelle zu einer Veränderung des Brechungsindex kam, was zu einem Linseneffekt führte. Die Modifikation des Brechungsindex konnte anschließend auch unter einem Mikroskop mithilfe von Polarisationsfiltern nachgewiesen werden.

Damit lässt sich abschließend zu diesem Thema festhalten, dass es zu einer erfolgreichen Modifikation des Brechungsindex von PMMA, durch Bearbeitung mit einem Femtosekundenlaser kam. Der dabei erreichte Effekt entspricht dabei jedoch noch nicht dem angepeilten Ziel und ist für die Korrektur von optischen Komponenten noch nicht geeignet, da es unter anderem im Zentrum der bearbeiteten Stellen zur Zerstörung des Materials kommt.

Das zweite Ziel dieser Arbeit konnte vollständig erreicht werden. Mit der entwickelten Software ist es möglich, die mit dem aufgebauten Versuchsaufbau aufgenommenen Bilder zu analysieren und in situ die Veränderungen der optischen Weglängen in den bearbeiteten Proben zu detektieren. Trotz der erschwerten Umstände durch die Art der auftretenden Schäden konnte dies an einer der bearbeiteten Proben demonstriert werden.

Da die Modifikation der PMMA-Proben im Einzelpuls-Modus wahrscheinlich an zu geringer Energiedichte gescheitert ist, muss, um die Entwicklung im Bereich der Optimierung optischer Bauteile erfolgreich weiterzuführen, über einen Austausch des genutzten Lasers nachgedacht werden. Durch eine Erhöhung der Leistungsdichte im Fokuspunkt des Objektivs sollte sich eine Modifikation des Brechungsindex erreichen lassen und der, auf der Analyseseite funktionierende, Aufbau könnte weiter genutzt werden. Zudem ist eine nähere Untersuchung der erzielten Modifikationen, bei Bearbeitung mit hohen Frequenzen, interessant. Die beobachteten Effekte hoher Lichtintensitäten im Bereich dunkler Stellen im Material bieten dabei das Potenzial für weitere Messungen und Überlegungen zur praktischen Anwendung dieses Effekts.

Literatur

- [1] D. DU, X. LIU, G. KORN, J. SQUIER, G. MOUROU. Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO₂ with pulse widths from 7 ns to 150 fs. *Appl. Phys. Lett.* (1994). 64, 3071–3073.
- [2] S. SOWA, W. WATANABE, T. TAMAKI. Symmetric waveguides in poly(methyl methacrylate) fabricated by femtosecond laser pulses. *Optics Express* (2006). 14(1), 291–297.
- [3] W. WATANABE. Three-Dimensional Waveguides Fabricated in Poly(methyl methacrylate) by a Femtosecond Laser. *Japanese Journal of Applied Physics* (2006). 45(29), L765–L767.
- [4] S. NOLTE, M. WILL, J. BURGHOFF, A. TUENNERMANN. Femtosecond waveguide writing: a new avenue to three-dimensional integrated optics. *Applied Physics A* (2003). 77, 109–111.
- [5] D. H. H. NGUYEN, K. KALETA, S. HENGSBACH, U. OSTRZINSKI, K. PFEIFFER, U. HOLLENBACH, J. MOHR. Three-dimensional buried polymer waveguides via femtosecond direct laser writing with two-photon absorption. *Proceedings of SPIE* (2014). 9130, 9130N1–9130N8.
- [6] A. M. STRELTSOV, N. BORRELLI. Fabrication and analysis of directional coupler written in glass by nanojoule femtosecond laser pulses. *Optics Letters* (2001). 26(1), 42–43.
- [7] S. S. K. GUDURU, F. SCOTOGNELLA, L. CRIANTE, R. M. VAZQUEZ, R. RAMPONI, K. C. VISHNUBHATLA. Fresnel lenses fabricated by femtosecond laser micromachining on polymer one-dimensional photonic crystal. *Optical Engineering* (2014). 53(7), 0718131–0718135.
- [8] R. M. VAZQUES, S. M. EATON, R. RAMPONI, G. CERULLO, R. OSEL-LAME. Fabrication of binary Fresnel lenses in PMMA by femtosecond laser surface ablation. *Optics Express* (2011). 19(12), 11597–11604.
- [9] M. BORN, E. WOLF. *Principles of Optics*. Cambridge University Press, 7. Auflage (1999).
- [10] E. HECHT. *Optik*. Oldenbourg Verlag, 5. Auflage (2009).

-
- [11] T. H. MAIMAN. Stimulated Optical radiation in Ruby. *Nature* (1960). 187, 493–494.
- [12] R. J. COLLINS, D. F. NELSON, A. L. SCHAWLOW, W. BOND, C. G. B. GARETT, W. KAISER. Coherence , narrowing, directionality, and relaxation oscillations in the light emission from ruby. *Physical Review Letters* (1960). 5(7), 303–305.
- [13] A. EINSTEIN. The Quantum Theory of Radiation. *Physikalische Zeitschrift* (1917). 18, 121–128.
- [14] W. HEISENBERG. Über den anschaulichen Inhalt der quantentheoretischen Kinematik und Mechanik. *Zeitschrift für Physik* (1927). 43, 172–198.
- [15] J. EICHLER. *Laser*. Springer, 6. Auflage (2006).
- [16] P. KLOPP. *New Yb³⁺-doped laser materials and their application in continuous-wave and mode-locked lasers*. Dissertation, Humboldt-Universität zu Berlin (2006).
- [17] O. SVELTO. *Principles of Lasers*. Springer, 5. Auflage (2010).
- [18] F. AUZEL. On the maximum splitting of the ($^2F_{7/2}$) ground state in Yb³⁺-doped solid state laser materials. *Journal of Luminescence* (2001). 93, 129–135.
- [19] W. F. KRUPKE. Ytterbium Solid-State Lasers– The first Decade. *IEEE Journal on selected topics in Quantum Electronics* (2000). 6(6), 1287–1296.
- [20] H. HAKEN, H. C. WOLF. *Atom- und Quantenphysik*. Springer (2004).
- [21] D. MALACARA. *Optical Shop Testing*. Wiley (2007).
- [22] C. HOFFMANN. *Aufbau eines Twyman-Green-Interferometers mit Auswertung unter Zuhilfenahme eines Hilfsspiegels*. Diplomarbeit, Technische Hochschule Mittelhessen (2013).
- [23] M. BORN. *Optik*. Springer (1981).
- [24] R. W. BOYD. *Nonlinear Optics*. Elsevier (2008).

-
- [25] P. A. FRANKEN, A. E. HILL, C. W. PETERS, G. WEINREICH. Generation of optical harmonics. *Physical Review Letters* (1961). 7(4), 118–119.
- [26] W. KAISER, C. G. B. GARRETT. Two-photon excitation in $\text{CaF}_2:\text{Eu}^{2+}$. *Physical Review Letters* (1961). 7(6), 229–231.
- [27] M. GÖPPERT-MAYER. *Über Elementarakte mit zwei Quantensprüngen*. Dissertation, Universität Göttingen (1930).
- [28] J. A. ARMSTRONG, N. BLOEMBERGEN, J. DUCUING, P. S. PERSHAN. Interactions between Light Waves in a Nonlinear Dielectric. *Physical Review* (1962). 127(6), 1918–1939.
- [29] W. H. LOWDERMILK, D. MILAM. Laser-Induced Surface and Coating Damage. *IEEE Journal of Quantum Electronics* (1981). 17.
- [30] E. YABLONOVITCH, N. BLOEMBERGEN. Avalanche Ionization and the Limiting Diameter of Filaments Oduced by Light Pulses in Transparent Media. *Physical Review Letters* (1972). 29(14), 907–910.
- [31] E. YABLONOVITCH. Optical Dielectric Strength of Alkali-Halide Crystals Obtained by Laser-Induced Breakdown. *Applied Physics Letters* (1971). 19(11), 495–497.
- [32] E. S. BLISS. Pulse Duration Dependence of Laser Damage Mechanism. *Opto-Electronics* (1971). 3, 99–108.
- [33] B. C. STUART, M. D. FEIT, A. M. RUBENCHIK, B. W. SHORE, M. D. PERRY. Laser-Induced Damage in Dielectrics with Nanosecond to subpicosecond Pulses. *Physical Review Letters* (1995). 74(12), 2248–2251.
- [34] D. GESCKE, P. KIRSTEN, M. KRÖTZSCH, W. SCHENK, H. SCHNEIDER, H. SCHULZE. *Physikalisches Praktikum*. Springer Fachmedien Wiesbaden GmbH, 10. Auflage (1994).
- [35] B. C. STUART, M. D. FEIT, S. HERMAN, A. M. RUBENCHIK, B. W. SHORE, M. D. PERRY. Optical ablation by high-power short-pulse lasers. *Journal of the Optical Society of America B* (1996). 13(2), 459–468.

-
- [36] B. RETHFELD, A. KAISER, M. VICANEK, G. SIMON. Excitation and relaxation dynamics of electrons and phonons in solids absorbing subpicosecond laser pulses. *Proceedings of SPIE* (2000). 3885, 200–211.
- [37] A. TIEN, S. BACKUS, H. KAPTEYN, M. MURNANE, G. MOUROU. Short-Pulse Laser Damage in Transparent Materials as a Function of Pulse Duration. *Physical Review Letters* (1999). 82(19), 3883–3886.
- [38] A. KAISER, B. RETHFELD, M. VICANEK, G. SIMON. Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses. *Physical Review B* (2000). 61(17), 437–450.
- [39] C. L. ARNOLD, A. HEISTERKAMP, W. ERTMER, H. LUBATSCHOWSKI. Numerical modeling of nonlinear plasma formation in high-NA micromachining of transparent materials and biological cells using ultrashort laser pulses. *Proceedings of SPIE* (2008). 6881, 6881041–68810411.
- [40] S. M. EATON, H. ZHANG, P. R. HERMAN. Heat accumulation effects in femtosecond laser-written waveguides with variable repetition rate. *Optics Express* (2005). 13(12), 4708–4716.
- [41] A. FUERBACH, S. GROSS, D. LITTLE, A. ARRIOLA, M. AMS, P. DEKKER, M. WITHFORD. Refractive index change mechanisms in different glasses induced by femtosecond laser irradiation. *Proceedings of SPIE* (2016). 9983, 99830W1–99830W7.
- [42] *Datenblatt über mechanische, akustische, optische, elektrische und thermische Eigenschaften von Plexiglas, Evonics Industries AG* (2013).
- [43] <https://de.wikipedia.org/wiki/Polymethylmethacrylat>.
- [44] R. M. AHMED. Optical Study on Poly(methyl methacrylate)/Poly(vinylacetate) Blends. *International Journal of Phototenergy* (2009). 2009, 1–7.
- [45] A. BAUM, P. J. SCULLY, M. BASANTA, C. L. P. THOMAS, P. R. FIELDS, N. J. GODDARD. Photochemistry of refractive index structures in poly(methyl methacrylate) by femtosecond laser irradiation. *Optics Letters* (2007). 21(2), 190–192.

-
- [46] W. KAISER. *Kunststoffchemie für Ingenieure*. Carl Hanser Verlag (2011).
- [47] A. ZOUBIR, C. LOPEZ, M. RICHARDSON, K. RICHARDSON. Femtosecond laser fabrication of tubular waveguides in poly(methyl methacrylate). *Optics Letters* (2004). 29(16), 1840–1842.
- [48] A. BAUM, P. J. SCULLY, W. PERRIE, D. LIU, V. LUCARINI. Mechanisms of femtosecond laser-induced refractive index modification of poly(methyl methacrylate). *Journal of the Optical Society of America B* (2009). 27(1), 107–111.
- [49] L. HORNER. Ein Beitrag zur Frage der Gültigkeit und Anwendung der Lorentz-Lorenz'schen Beziehung auf makromolekulare Stoffe. *Journal für makromolekulare Chemie* (1943). 3.Reihe Band 1, 234–246.
- [50] H. K. ALBELADI, A. N. AL-ROMAIZAN, M. A. HUSSEIN. Role of Cross-Linking Process on the Performance of PMMA. *International Journal of Biosensors and Bioelectronics* (2017). 3(3), 1–7.
- [51] K. M. DAVIS, K. MIURA, N. SUGIMOTO, K. HIRAO. Writing waveguides in glass with a femtosecond laser. *Optics Letters* (1996). 21(21), 1729–1731.
- [52] C. HOFFMAN. *Aufbau eines Twyman-Green-Interferometers mit dynamischer Messmethode*. Master-thesis, Technische Hochschule Mittelhessen (2015).
- [53] R. H. WEBB. Confocal optical microscopy. *Reports on Progress in Physics* (1996). 59, 427–471.

Danksagung

Ohne die Hilfe und Unterstützung zahlreicher Menschen, wäre die Erstellung dieser Dissertation nicht möglich gewesen. Deshalb möchte ich diese Stelle nutzen, um meine Dankbarkeit auszudrücken.

Besonderer Dank gilt dabei

Herrn Professor Sure, für seine wissenschaftliche und methodische Unterstützung während der gesamten Bearbeitungszeit meiner Dissertation, die konstruktiven Diskussionen und die hervorragende Arbeitsatmosphäre,

Herrn Professor Klar, für die Ermöglichung dieser Dissertation und die Unterstützung in all den Jahren seit Beginn des Master-Studiums,

Daniela, für die wundervolle Zeit, die moralische Unterstützung und für die Geduld, die sie mit mir hatte,

meiner gesamten Familie, die immer für mich da war und daran geglaubt hat, dass ich es schaffe,

Würfel, für die unglaublich angenehme Zeit in C10.8.19 und die (vor allem im praktischen Bereich) Unterstützung während der gesamten Zeit,

Oliver Wild, für das aufwendige und akribische Korrigieren meiner Arbeit,

meinem Mitbewohner Andreas Rühl, für die wunderbaren Jahre in der Walltorstraße,

Nils Henrich und der gesamten Fachschaftsbesatzung, für die angenehmen Stunden,

all meinen Freunden, durch die das Leben immer überwiegend positive Seiten hatte, auch wenn es im Labor nicht klappen wollte,

der gesamten AG Klar, die mich, auch noch als Halbexternen, stets mit offenen Armen begrüßt hat.

Eidesstattliche Erklärung

Hiermit erkläre ich an Eides statt, dass ich die eingereichte Dissertation selbstständig und ohne zulässige fremde Hilfe verfasst habe. Es wurden nur die in der Arbeit ausdrücklich benannten Quellen und Hilfsmittel benutzt. Wörtlich oder sinngemäß übernommenes Gedankengut habe ich als solches kenntlich gemacht. Zudem versichere ich, dass die vorgelegte elektronische mit der schriftlichen Dissertation übereinstimmt und die Abhandlung in dieser oder ähnlicher Form noch nicht anderweitig als Promotionsleistung vorgelegt und bewertet wurde.

Gießen,

Ort, Datum

Tobias Lind

