## Mit Femtosekundenlaserpulsen erzeugte optische Strukturen im Glasvolumen zum Lichtmanagement in Solarmodulen

## Dissertation

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

der

Naturwissenschaftlichen Fakultät II Chemie, Physik, und Mathematik

der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg,

vorgelegt von

## Herrn Markus Muchow

geboren am 03.03.1987 in Schönebeck/Elbe

Gutachter:

- 1. PD Dr. Gerhard Seifert
- 2. Prof. Dr. Jörg Schilling
- 3. Prof. Dr. Stefan Nolte

#### Datum der Verteidigung: 16. September 2016

# Inhaltsverzeichnis

1.	Einl	eitung	1
2.	Lase	er-Materie-Wechselwirkung in transparenten Medien	8
	2.1.	Lineare Optik	8
	2.2.	Nichtlineare Optik	10
		2.2.1. Nichtlinearer Brechungsindex und Selbstfokussierung	11
		$2.2.2. \ Gruppengeschwindigkeits dispersion, Selbst phasen modulation und self-$	
		steepening $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$ $\ldots$	13
	2.3.	Lichtwechselwirkung mit Halbleitern	14
		2.3.1. Anregung von Ladungsträgern	15
		2.3.2. Plasmadefokussierung	17
		2.3.3. Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse und Bildung von Filamenten in	
		transparenten Medien	18
3.	Pha	sengitter in transparenten Medien	23
	3.1.	Gittertypen	23
	3.2.	Numerische Berechnung von Phasengitterbeugungeeffizienzen	26
4.	Exp	erimentelle Methoden und Versuchsaufbau	30
	4.1.	Beschreibung der verwendeten Glasproben	30
	4.2.	Versuchsaufbau und -durchführung	31
		4.2.1. Verwendete Laserquellen	31
		4.2.2. Bestrahlung der Glasproben	32
		4.2.3. Vermessung der Beugungseffizienzen	34
		4.2.4. Phasenkonstrastmikroskopie	35
5.	Nun	nerische Studien zu Strukturparametern einfacher Phasengitter	37
6.	Best	timmung der experimentell erreichbaren Strukturparameter	45
	6.1.	Positionierbarkeit der optischen Mikrostrukturen im Glasvolumen $\ldots$ .	45
	6.2.	Abhängigkeit der erzeugten Modifikationslänge von der Laserpulsenergie	
		und -wellenlänge	47
		6.2.1. Materialmodifizierung durch Bestrahlung mit 515 nm	48

		6.2.2.	Material modifizierung durch Bestrahlung mit 800 nm $\hdots$	49					
		6.2.3.	Material modifizierung durch Bestrahlung mit 1030 nm $\ $	51					
		6.2.4.	Diskussion der Ergebnisse	54					
	6.3.	Experi	mentelle Validierung des optimalen Designs für einfache Gitter	56					
7.	Ausl	egung	hocheffizienter Phasengitter	61					
	7.1. Numerische Studien zum Design optimierter Phasengitter innerhalb der								
		Grenze	en der benutzten Versuchsanordnung	61					
	7.2.	Herste	llung und Charakterisierung eines optimierten Phasengitters	65					
	7.3.	Numer	ische Studien zum optimierten Design für theoretisch erreichbare						
		Strukt	urparameter	67					
8.	Ums	setzung	und Bewertung im Hinblick auf PV-Anwendung	71					
	8.1.	Lichtle	nkung im Miniatur-Solarmodul	71					
	8.2.	Einsch	ätzung des Verbesserungspotentials für feststehende Solarmodule	79					
9.	Zusammenfassung 84								
Lit	eratı	ırverze	ichnis	95					
Ab	Abbildungsverzeichnis 99								
Ta	belle	nverzei	chnis	100					
Α.	Anh	ang		101					
В.	B. Eidesstattliche Erklärung 104								
Da	Danksagung 105								

## KAPITEL 1 : Einleitung

In den letzten Jahren gab es große Fortschritte bei der Weiterentwicklung von Lasersystemen mit Pulsdauern im Femtosekundenbereich. Auf Grund der gestiegenen Leistungsfähigkeit und Verfügbarkeit haben sich Femtosekundenlasersysteme sowohl in der wissenschaftlichen als auch in der wirtschaftlichen Anwendung etabliert, wo eine präzise Laserbearbeitung ohne thermische Beeinflussung des Werkstoffs gefordert wird. Kommerziell verfügbare hochleistungsfähige Systeme mit hohen Pulswiederholraten gewährleisten eine konkurrenzfähige Materialbearbeitung. Auf Grund der stark nichtlinearen Absorption der Femtosekundenlaserpulse im Medium kann die Prozessierung nahezu materialunabhängig durchgeführt werden [1].

Die Bearbeitung von transparenten Dielektrika mit ultrakurzen Laserpulsen wurde in den letzten Jahren ausgiebig erforscht. Ein Schwerpunkt lag dabei auf der Volumenmodifikation von Gläsern mit fokussierten Femtosekundenlaserpulsen. Viele interessante Anwendungen wie das Schreiben optischer Speicher [2, 3], Mikroschweißen [4–6], die Erzeugung von Wellenleitern im Material [7] sowie das selektive Ätzen nach der Laserbestrahlung [8, 9] wurden erforscht. Weiterhin wurden Modifikationen in Quarzglas zu Volumen-Bragggittern mit geringen Gitterperioden angeordnet und ihre Anwendung als hocheffiziente Reflektionsgitter untersucht [10–12].

In der International Technology Roadmap for Photovoltaics (ITRPV) 2015 [13] wird für die nächsten Jahre ein Solarzellen- zu Modulleistungsverhältnis von über 100 % vorausgesagt. Die Leistung eines Solarmoduls wird ab 2016 nach dieser Vorhersage die Leistung der verbauten Solarzellen übersteigen. Dies ist nur durch eine weitere Verbesserung des Lichtmanagements in Solarmodulen möglich, indem Licht von inaktiven Modulflächen zu aktiven Zellflächen umgeleitet wird. Eine verbesserte Leistung der Module kann unter anderem durch die Einführung neuer elektrischer Kontakte (z.B. durch Reduzierung der Breite der Silberkontakte [14]) oder innovativer Verkapselungstechnologien (mit verringerter Absorption im UV-Bereich des Sonnenlichtes [15]) erreicht werden.

Um den Wirkungsgrad von Photovoltaikanlagen weiter zu verbessern, sind also Methoden zur Verbesserung des Lichtmanagements von entscheidender Bedeutung [16–18]. Die Optimierung der Lichteinkopplung in Solarmodule ist daher ein aktuelles Thema der Forschung [19]. Es wird beispielsweise die Umleitung des Lichtes auf aktive Flächen der Solarzellen untersucht, welches ohne zusätzliche Maßnahmen auf die Frontseitenkontaktierung treffen und reflektiert bzw. absorbiert würde.

Diese Arbeit verfolgt den Ansatz, das Deckglas von Solarmodulen direkt über den Kontaktfingern durch Bestrahlung mit Femtosekundenlaserpulsen zu verändern und auf diese Weise die Lichteinkopplung an den Fingern vorbei in das Modul zu erhöhen. Durch die Laserbehandlung erzeugte optische Mikrostrukturen im Deckglasvolumen werden als Gitter angeordnet und können durch Beugung die Lichteinkopplung erhöhen. Die Bearbeitung der Deckgläser mit Femtosekundenlaserpulsen findet in der Anwendung am fertiggestellten Solarmodul statt, sodass das Schreiben der Beugungsgitter flexibel an verschiedene Entwürfe der Vorderseitenmetallisierung der Solarzellen angepasst werden kann.

Ziel der Arbeit ist die Erzeugung hocheffizienter Beugungsgitter durch die Fokussierung von Femtosekundenlaserpulsen in das Volumen des Deckglases, um die Lichteinkopplung in das Solarmodul zu erhöhen.

Bevor die Ergebnisse der im Rahmen dieser Arbeit durchgeführten Experimente vorgestellt werden, gibt Kapitel 2 einen Überblick über die physikalischen Grundlagen bei der Laser-Materie-Wechselwirkung mit transparenten Medien. Im Anschluss wird in Kapitel 3 auf die Funktionsweise von Phasengittern eingegangen und erläutert wie eine numerische Berechnung des Beugungsverhaltens realisiert werden kann.

Nachdem in Kapitel 4 die verwendeten Glasproben, die genutzten Lasersysteme und Versuchsaufbauten sowie die Versuchsdurchführung erläutert wurden, schließen sich in Kapitel 5 numerische Studien zur Ermittlung optimaler Phasengitterparameter für maximale Beugungseffizienzen an.

Bei der Bestrahlung des fertigen Moduls muss sicher gestellt werden, dass bei der Laserbehandlung der Deckgläser keine Modifikation angrenzender Modulbestandteile stattfindet. In Kapitel 6 wird daher die exakte Positionierung und Erzeugung der optischen Strukturen bei der Laserbestrahlung mit unterschiedlichen Wellenlängen, Laserpulsdauern, Fokussieroptiken und Laserpulsenergien untersucht. Die erzeugten Materialmodifikationen im Glasvolumen werden mit Hilfe eines Lichtmikroskopes in Phasenkontrastmodus charakterisiert.

Um die durch numerische Berechnungen erhaltenen optimalen Gitterparameter zu validieren, werden Phasengitter mit diesen Kenngrößen experimentell hergestellt. Der in das Solarglas induzierte Brechungsindex wird in Kapitel 6.3 durch den Vergleich zwischen experimentell ermittelten Beugungseffizienzen und Simulationen der Phasengitter ermittelt.

Es schließen sich in Kapitel 7 numerische Berechnungen für ein hocheffizientes geblazstes Gitterdesign an. Die Beugungseffizienzen von hergestellten geblazsten Phasengittern mit optimierten Gitterparametern werden vermessen und mit den im Vorfeld durchgeführten Rechnungen verglichen. Aus dem Vergleich wird der durch die Bestrahlung mit Femtosekundenlaserpulsen erzeugte Brechungsindexunterschied abgeschätzt.

Im Kapitel 8 werden die untersuchten Phasengitter im Hinblick auf die Anwendung in der Photovoltaik untersucht. Dazu werden im Unterkapitel 8.1 Ergebnisse einer ortsaufgelösten externen Quanteneffizienzmessung an einem mit Beugungsstrukturen präparierten Miniatur-Solarmodul vorgestellt. Die relativen Veränderungen des Photostroms und photovoltaischen Wirkungsgrades der integrierten Solarzelle werden anhand dieser Messungen angegeben. Eine Abschätzung des Potentials der Beugungsstrukturen bei schrägem Lichteinfall wird in Kapitel 8.2 vorgestellt.

Am Schluss dieser Arbeit werden die Erkenntnisse und Ergebnisse aus den Simulationen und Experimenten in Kapitel 9 zusammengefasst.

#### Lichtmanagement in Solarmodulen

Die Mehrheit der heutzutage verkauften und installierten Solarmodule besteht aus einer Serienverschaltung von kristallinen Silizium-Solarzellen mit Frontseitenmetallisierung (kurz c-Si). Diese werden durch eine Verkapselungsfolie (typischerweise Ethylenvinylacetat - EVA) vor schädlichen Umwelteinflüssen isoliert und mit einem vorderseitigen Deckglas mit einer Dicke von 3,2 mm sowie einer rückseitigen Tedlar-Folie zu einem festen Materialverbund laminiert. In Abbildung 1.1 ist die Schichtabfolge des Moduls vor der Laminierung dargestellt. Die Vorderseitenkontaktierung zur Abführung der in der Zelle erzeugten elektrischen Spannung besteht dabei für gewöhnlich aus drei Busbars mit einer Breite von 1 - 2 mm und Kontaktfingern mit Breiten zwischen 50 und 100 µm, die gemeinsam bis zu 10 % der aktiven Zellfläche bedecken und sie somit vom eintreffenden Sonnenlicht abschatten. Scheint Sonnenlicht auf (fertigungstechnisch bedingte) Zwischenräume benachbarter Solarzellen, trifft es ohne zusätzliche Maßnahmen nicht auf das Absorbermaterial und trägt demnach nicht zur Stromgeneration bei.



Abb. 1.1.: Bestandteile eines Solarmoduls vor der Laminierung, abgebildet sind Frontglas, Polymerfolien, vorderseitig kontaktierte Solarzelle und Rückseitenfolie

Während eine Herangehensweise an diese optischen Herausforderungen darin besteht, die Kontaktierung von der Front zum Großteil auf die Rückseite der Zellen zu verlegen [20], existieren vielfältige Versuche das Lichtmanagement in Solarmodulen zu verbessern.

Eine Möglichkeit die Reflektion an der Grenzfläche zwischen Luft und Frontglas durch Interferenz zu verringern besteht darin, auf der Luftseite des Glases eine entsprechende Antireflexschicht anzubringen [21, 22].

Alternativ existieren Versuche, die sich mit der Reduzierung der Dicke des Deckglases beschäftigen, um die Absorptionsverluste beim Lichtdurchgang durch das Glas zu minimieren [23].

Um die Absorption der UV-Komponenten des Sonnenlichts durch die Verkapselung zu reduzieren, wurden auch in diesem Bereich Forschungen unternommen und neue Verkapselungsmaterialien hergestellt [15].

Eine vielversprechende Möglichkeit, um das Lichtmanagement um die Frontmetallisierung herum zu verbessern, besteht in der Strukturierung der Busbars. Die Strukturierungen werden als *light harvesting strings* (kurz LHS) bezeichnet und reflektieren das Licht unter einem flachen Winkel, sodass der Lichtweg innerhalb des Moduls verlängert wird [24].

Eine weitere Methode um die Lichteinkopplung in Solarmodule zu erhöhen, ist die Einbringung geeigneter beugender Mikrostrukturen in Komponenten des Moduls, die sich über der aktiven Solarzellenfläche befinden [25]. Durch die Beugung des einfallenden Sonnenlichtes an der Frontseitenkontaktierung vorbei auf die aktiven Flächen der Solarzelle kann die Abschattung des Absorbermaterials verringert und somit der Wirkungsgrad er-



höht werden. Schematisch ist diese Vorgehensweise mit Beugungsstrukturen im Deckglas eines Solarmoduls zum Lichtmanagement in Abbildung 1.2 dargestellt.

Abb. 1.2.: Schematische Darstellung von Beugungsstrukturen im Deckglasvolumen eines Solarmoduls

Erst kürzlich konnten durch Bestrahlung mit Femtosekunden-(kurz fs)Laserpulsen beugende Mikrostrukturen in der EVA-Polymerverkapselung eines Solarmoduls erzeugt werden [26, 27]. Bei der Beurteilung der Langzeitstabilität und der Betrachtung des vertikalen Abstands der Beugungsstrukturen zum Absorbermaterial erscheint es vorteilhaft, die beugenden Mikrostrukturen für das Lichtmanagement durch fs-Laserbestrahlung im Deckglas von Solarmodulen zu erstellen.

Aus anderen Arbeiten ist bekannt, dass es mit Hilfe von ultrakurzen Laserpulsen möglich ist, reine Brechungsindexunterschiede in Gläsern zu erzeugen [28–30]. Die laserinduzierten nichtlinearen Prozesse sind in der Lage auf molekularer Ebene langzeitstabile Brechungsindexunterschiede zu generieren. Die physikalischen Hintergründe der Laser-Materie-Wechselwirkung werden ausführlich in Kapitel 2 beschrieben.

Auf Grund der mutmaßlich höheren Langzeitstabilität und dem größeren vertikalen Abstand zum Absorber wird in dieser Arbeit der Versuch verfolgt, mit Femtosekundenlaserpulsen, optische Mikrostrukturen zum Lichtmanagement im Volumen von Deckgläsern zu erzeugen, um die Lichteinkopplung in Solarzellen zu verbessern. Das Potential zur Effizienzsteigerung durch die erhöhte Lichteinkopplung und die Anforderungen an eine optimale Lichtmanagementstruktur werden in den nächsten Abschnitten erläutert.

#### Potential zur Effizienzsteigerung durch Lichtlenkung

Ein beträchtlicher Anteil des Sonnenlichtes, das auf ein Standard-Solarmodul aus kristallinem Silizium mit Frontseitenmetallisierung strahlt, erreicht den eigentlichen Absorber nicht und kann daher nicht für die Energiegewinnung genutzt werden. Je nach Solarzellendesign werden bis zu 10 % der aktiven Zellfläche von der Vordermetallisierung abgeschattet. Diese ist notwendig, um die durch den photoelektrischen Effekt erzeugten Ladungsträger zu trennen und abzuleiten. 8-10 % des eintreffenden Lichtes werden daher an den Frontkontakten der Solarzelle reflektiert oder absorbiert. Ein Großteil des reflektierten Lichtes kann ohne weitere Vorkehrungen nicht mehr auf die aktive Zellfläche treffen. Um weitere 2-3 % wird die aktive Zellfläche durch fertigungsbedingte Zwischenräume zwischen den Solarzellen im Modul reduziert. Sonnenlicht, das auf diese Bereiche trifft, kann wiederum nicht für die Leistungsumwandlung genutzt werden.

Auf Grund dieser angesprochenen optischen Verluste, ergibt sich ein Potential für die Effizienzsteigerung durch Lichtlenkung in einem frontseitenkontaktierten Solarmodul, wenn die angedeuteten Verlustmechanismen minimiert bzw. umgangen werden können.

Der Anstieg im Wirkungsgrad kann auf 1 % absolut (ca. 5 % relativ) abgeschätzt werden, sofern es gelingt, das Sonnenlicht durch Lichtlenkung vollständig um die Frontseitenmetallisierung zu leiten [19, 31] und es so für die photovoltaische Energieumwandlung nutzbar zu machen. Angenommen wurde bei dieser Rechnung, dass die aktive Fläche der Solarzelle mit ca. 10 % von Frontkontakten bedeckt wird.

#### Anforderungen an ideale Beugungsstruktur für das Lichtmanagement

Um das im vorherigen Abschnitt beschriebene Potential zur Effizienzsteigerung durch Lichtleitung ausschöpfen zu können, ergeben sich für eine ideale Beugungsstruktur bestimmte Anforderungen.

Eine ideale Beugungsstruktur muss hocheffizient im photovoltaisch relevanten Wellenlängenbereich von 300 bis 1100 nm wirken, wenn das Lichtmanagement in Solarmodulen eingesetzt werden soll. Das eintreffende weiße Licht der Sonne sollte idealerweise vollständig in höhere Beugungsordnungen gebeugt werden.

Um die erhöhte Lichteinkopplung in das Modul zu realisieren, muss eine ideale hocheffiziente Beugungsstruktur jene Beugungswinkel gewährleisten, die eine Lichtleitung um die Frontkontakte auf die aktive Solarzellenfläche erlauben. Da die Beugungswinkel eines Gitters mit steigender Beugungsordnung und Wellenlänge wachsen, wird an dieser Stelle die erwähnte Anforderung besonders an die erste Beugungsordnung bei einer Wellenlänge von 300 nm gestellt. Für die angestrebte Anwendung der Phasengitter als lichtleitende Strukturen in Solarmodulen kann eine ideale Funktionalität nur gewährleistet werden, wenn bereits der Beugungswinkel für die 1. Beugungsordnung bei geringen Wellenlängen groß genug ist, um das einfallende Sonnenlicht vollständig um die Kontaktfinger zu leiten. Da die ideale Beugungsstruktur nicht nur auf zweiachsig der Sonne nachgeführte Solarmodule beschränkt sein soll, muss auch bei schrägen Einfallswinkeln im Tagesverlauf der Sonne eine hohe Effizienz gewährleistet werden.

Eine Beugungsstruktur, die alle diese angesprochenen Anforderungen erfüllt, ist beispielhaft in Abbildung 1.3 skizziert. Im Tagesverlauf der Sonneneinstrahlung ist sie in der Lage, das einfallende weiße Licht, welches normalerweise auf die Kontakte treffen würde, vollständig um die Frontmetallisierung der Solarzellen zu leiten und so die Abschattung der aktiven Fläche zu minimieren.



Abb. 1.3.: Schematische Darstellung der Beugungswirkung einer idealen Beugungsstruktur im Glasvolumen

# KAPITEL 2 : Laser-Materie-Wechselwirkung in transparenten Medien

Dieses Kapitel beschreibt die Grundlagen der Laser-Materie-Wechselwirkung in transparenten Medien. Da bei hochintensiven Ultrakurzzeitlaserpulsen nichtlineare optische Materialeigenschaften einen erheblichen Einfluss haben, werden diese zusätzlich zu den wichtigsten linearen Eigenschaften und deren Einfluss auf die Laser-Materie-Wechselwirkung hergeleitet und beschrieben. Im letzten Abschnitt dieses Kapitels wird die Wechselwirkung von ultrakurzen Laserpulsen mit transparenten Halbleitern und die Entstehung von Filamenten beschrieben.

### 2.1. Lineare Optik

Eine elektromagnetische Welle kann mit den Maxwell-Gleichungen beschrieben werden. Trifft Licht als elektromagnetische Strahlung auf Materie, so wechselwirkt hauptsächlich dessen elektrisches Feld mit den vorhandenen Ladungen des bestrahlten Materials. Die Wellengleichung für das elektrische Feld in Materie lautet:

$$\Delta \vec{E} = \varepsilon_0 \varepsilon_r \mu_0 \mu_r \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} \tag{2.1}$$

mit der elektrischen Permittivität  $\varepsilon_0$ , der Dielektrizitätskonstante  $\varepsilon_r$ , der magnetischen Permeabilität  $\mu_0$  und der relativen Permeabilität  $\mu_r$ . Da sowohl  $\varepsilon_r$  als auch  $\mu_r$  wellenlängenund materialabhängig sind, ergibt sich eine Lösung der Maxwell-Gleichung für das elektrische Feld zu:

$$\vec{E} = \vec{E_0} e^{i(\vec{k}\cdot\vec{x}-\omega t)}$$
 mit  $\sqrt{\varepsilon_0\varepsilon_r\mu_0\mu_r} = \frac{k}{\omega(k)}$  und  $k = \left|\vec{k}\right|$  (2.2)

Der Quotient aus dem Betrag des Wellenvektors  $k = |\vec{k}|$  und der Kreisfrequenz  $\omega(k)$  wird als Phasengeschwindigkeit  $c_{ph}$  bezeichnet. Die Brechzahl  $\hat{n}$  wiederum lässt sich aus dem Verhältnis zwischen Lichtgeschwindigkeit c und der eben definierten Phasengeschwindigkeit  $c_{ph}$  bestimmen:

$$\hat{n}(\omega) = \frac{c}{c_{ph}(\omega)} = \sqrt{\varepsilon_r \mu_r}$$
(2.3)

Wird der optische Wellenlängen- bzw. Spektralbereich betrachtet, so hat die relative Permeabilität  $\mu_r$  (in diesem Fall  $\mu_r \approx 1$ ) nahezu keinen Einfluss auf die Berechnung des Brechungsindexes  $\hat{n}$ . Die Abhängigkeit der Brechzahl  $\hat{n}(\omega)$  von der wellenlängenabhängigen Dielektrizitätskonstante  $\varepsilon_r$  lässt sich zu

$$\varepsilon_r = \hat{n}(\omega)^2 = 1 + \frac{e^2 N}{\varepsilon_0 m_e} \cdot \frac{1}{\omega_e^2 - \omega^2 + i\gamma\omega}$$
(2.4)

zusammenfassen. Die Dielektrizitätskonstante hängt dabei von der Anzahl der Elektronen N im betrachteten Volumen, der Elektronenmasse  $m_e$ , der eingestrahlten Kreisfrequenz  $\omega$ , der Dämpfungskonstante  $\gamma$  und der Rückstellkraft auf die Elektronen  $\omega_e$  ab.

Der Brechungsindex  $\hat{n}(\omega)$  kann in guter Näherung mit Hilfe des Drude-Modells beschrieben werden, wenn der Festkörper eine hohe Anzahl an freien Ladungsträgern besitzt. Angenommen wird hierbei, dass sich Elektronen frei bewegen können, dass also keine Dämpfung  $\gamma$  und Rückstellkraft  $\omega_e$  auf sie wirken. Unter Berücksichtigung dieser Annahmen kann die Dielektrizitätskonstante folgendermaßen bestimmt werden:

$$\varepsilon_r(\omega) = 1 + \frac{e^2 N}{\varepsilon_0 m_e} \cdot \frac{1}{-\omega^2} = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2} \quad \text{mit} \quad \omega_p^2 = \frac{e^2 N}{\varepsilon_0 m_e}$$
(2.5)

Die Plasmafrequen<br/>z $\omega_p$ ist nach Gleichung (2.5) proportional zur Anzahl der frei<br/>en Elektronen N im betrachteten Volumen.

Trifft Licht auf ein Medium, kann es durch dieses absorbiert, reflektiert oder transmittiert werden. Bei der Absorption werden die Ladungsträger des Materials in höhere Energieniveaus angeregt, indem sie Energie der eingestrahlten Photonen aufnehmen. Aus makroskopischer Sicht geschieht die Absorption auf Grund der Brechzahl des Mediums und somit auf Grund der dielektrischen Funktion. Die komplexe Darstellung des Brechungsindexes kann dabei folgendermaßen dargestellt werden:

$$\hat{n}(\omega) = n(\omega) - i\kappa(\omega) \tag{2.6}$$

Der Realteil  $n(\omega)$  wird dabei als reelle Brechzahl und der Imaginärteil  $\kappa(\omega)$  als Absorptionsindex bezeichnet. Wenn sich die elektrische Welle eindimensional in x-Richtung ausbreitet und der Ausdruck für den Brechungsindex anstelle des Wellenvektors k in Gleichung (2.2) verwendet wird, ergibt sich für das elektrische Feld:

$$\vec{E} = \vec{E_0} e^{-\kappa \frac{\omega}{c} x} e^{i(n \frac{\omega}{c} x - \omega t)}$$
(2.7)

Demnach verändert sich die Intensität des einfallenden Lichts in Abhängigkeit von der Eindringtiefe ins Material

$$I(x) = I_0 e^{-2\kappa \frac{\omega}{c}x} \quad . \tag{2.8}$$

Die eingestrahlte Intensität des Lichtes nimmt dabei exponentiell mit der Eindringtiefe ab. Der Ausdruck  $\frac{2\kappa\omega}{c}$  wird auch als Absorptionskoeffizient  $\alpha$  bezeichnet. Die Strecke, bei der die ursprüngliche Intensität auf 1/e ihres Wertes abgefallen ist, wird als Absorptionslänge definiert.

## 2.2. Nichtlineare Optik

Die bisherige Beschreibung der linearen optischen Eigenschaften ist solange ausreichend, wie die elektrische Feldstärke der elektromagnetischen Strahlung gering ist. Sind die Schwingungen der angeregten Elektronen also harmonisch und deren Auslenkung aus der Ruhelage gering, werden wie in Kapitel 2.1 beschrieben, die optischen Eigenschaften von der dielektrischen Funktion des Mediums bestimmt. Wird nun die Ausbreitung von Strahlung mit erheblicher Intensität, also elektrischer Feldstärke, betrachtet, so spielen nichtlineare Effekte eine wesentliche Rolle. Zur Verdeutlichung wird die Wellengleichung für das elektrische Feld (Gleichung (2.1)) in Abhängigkeit der Polarisation  $\vec{P}$  (also der induzierten Verschiebung der Elektronen aus der Ruhelage) geschrieben:

$$\Delta \vec{E} = \varepsilon_0 \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{E}}{\partial t^2} + \mu_0 \frac{\partial^2 \vec{P}}{\partial t^2}$$
(2.9)

Die Taylorentwicklung der induzierten Polarisation lautet

$$\vec{P} = \vec{P}_0 + \vec{E} \left(\frac{d\vec{P}}{d\vec{E}}\right)_0 + \frac{1}{2}\vec{E}^2 \left(\frac{d^2\vec{P}}{d\vec{E}^2}\right)_0 + \frac{1}{6}\vec{E}^3 \left(\frac{d^3\vec{P}}{d\vec{E}^3}\right)_0 + \dots$$
(2.10)

Besitzt das zu betrachtende Material kein statisches Dipolmoment, kann Gleichung (2.10) zu

$$\vec{P} = \varepsilon_0 \bigg[ \chi_1 \vec{E} + \chi_2 \vec{E}^2 + \chi_3 \vec{E}^3 + \dots \bigg]$$
(2.11)

zusammengefasst werden.  $\chi$  ist dabei die Polarisierbarkeit, wobei alle  $\chi_n$  mit n > 1 als nichtlineare Polarisierbarkeiten n-ter Ordnung bezeichnet werden. Der Zusammenhang zwischen der Polarisierbarkeiten oder auch Suszeptibilitäten  $\chi_n$  und dem Brechungsindex lautet

$$n^2 = 1 + \chi \quad \text{mit} \quad \chi = \chi_1 + \chi_2 \vec{E} + \chi_3 \vec{E}^2 + \dots$$
 (2.12)

Somit beinhaltet  $\chi$  auch Informationen über die nichtline<br/>aren Absorptionskoeffizienten, die mit zunehmender Ordnung der Polarisierbarkeit jeweils um viele Größenordnungen

kleiner werden. Während beispielsweise der lineare Absorptionskoeffizient in eisenarmen Natronglas einen Wert von  $\alpha = 1,89 \cdot 10^{-2} \ cm^{-1}$  [32] hat, beträgt der Koeffizient für die Drei-Photonenabsorption  $\gamma = 2, 1 \cdot 10^{-23} \ cm^3 W^{-2}$  [33]. Der Prozess der Multiphotonenabsorption hat daher erst bei hohen eingestrahlten Leistungen einen signifikanten Einfluss auf den Absorptionsmechanismus in transparenten Medien. Da diese hohen Spitzenintensitäten bei der Bestrahlung mit ultrakurzen Laserpulsen erreicht werden können, ist es auf diese Weise möglich, Photonen in normalerweise für sie transparenten Medien zu absorbieren.

Unter Berücksichtigung der nichtlinearen Absorptionskoeffizienten lässt sich der effektive Absorptionskoeffizient als

$$\alpha_{eff}(\lambda) = \alpha(\lambda) + \beta(\lambda)I + \gamma(\lambda)I^2 + \dots$$
(2.13)

schreiben.  $\alpha$ ,  $\beta$ , und  $\gamma$  stellen hierbei die wellenlängenabhängigen Absorptionskoeffizienten für die lineare, Zwei-Photonen- sowie Drei-Photonen-Absorption dar. Sind im Medium genügend freie (angeregte) Ladungsträger vorhanden, wird ein Teil der eingestrahlten Photonen auch von ihnen absorbiert, sodass Gleichung (2.13) unter Berücksichtigung dieses Sachverhalts um den Absorptionskoeffizient der freien Ladungsträger  $\alpha_{fca}(N)$  ergänzt wird:

$$\alpha_{eff}(\lambda) = \alpha(\lambda) + \beta(\lambda)I + \gamma(\lambda)I^2 + \ldots + \alpha_{fca}(N)$$
(2.14)

Die Wahrscheinlichkeit, dass ein Photon von einem freien Elektron absorbiert wird, steigt dabei mit der Anzahl der vorhandenen (angeregten) freien Ladungsträger N.

Die effektive Absorptionstiefe für elektronische Strahlung mit hohen Intensität wird über den Kehrwert des effektiven Absorptionskoeffizienten  $\alpha_{eff}(\lambda)^{-1}$  angegeben.

#### 2.2.1. Nichtlinearer Brechungsindex und Selbstfokussierung

Bei der Bestrahlung mit ultrakurzen Laserpulsen treten sehr hohe Spitzenintensitäten auf, sodass in Gleichung (2.12) auch die höheren Ordnungen der Suszeptibilität einen wesentlichen Anteil zur Gesamtsuszeptibilität leisten. Bei hohen Intensitäten weicht die Wechselwirkung der Laserpulse mit dem Medium vom linearen Verhalten ab, sodass es in erster Näherung sinnvoll ist, auch den quadratischen Term des elektrischen Feldes zu berücksichtigen [34]. Der Brechungsindex der Mediums beinhaltet dann sowohl die erste als auch zweite Ordnung des elektrischen Feldes

$$n = \sqrt{1 + \chi_1 + \frac{3}{4}\chi_3 |\vec{E}|^2},\tag{2.15}$$

wobei angenommen wird, dass eine räumliche Inversionssymmetrie ( $\chi_2 = 0$ , für Gläser im Allgemeinen üblich) vorliegt. Wird der lineare Brechungsindex mit  $n_0 = \sqrt{1 + \chi_1}$  bezeichnet und angenommen, dass die nichtlineare Reaktion des Systems gering bleibt, kann der Brechungsindex als

$$n = n_0 + n_2 I(r, t)$$
 mit  $n_2 = \frac{3\chi_3}{4\varepsilon_0 c n_0^2}$  (2.16)

geschrieben werden. Die in Gleichung (2.16) ersichtliche Abhängigkeit des Brechungsindexes von der eingestrahlten Intensität hat weitreichende Konsequenzen auf die Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse im Medium. Während der zusätzliche nichtlineare Beitrag zum Brechungsindex bei kleinen Intensitäten vernachlässigbar ist, nimmt er bei der Bestrahlung mit fs-Laserpulsen auf Grund der hier auftretenden sehr hohen Spitzenintensitäten eine dominierende Rolle ein. Dies wird deutlich, wenn man die Größenordnung des nichtlinearen Brechungsindexes in Natronglas mit  $n_2 = 3 \cdot 10^{-16} \frac{cm^2}{W}$  [33] betrachtet. Die unmittelbare nichtlineare Antwort des Systems auf die eingestrahlte hohe Intensität wird als optischer Kerr-Effekt bezeichnet. Dieser Effekt hat weitreichende Auswirkungen auf die Ausbreitung ultrakurzer, hochintensiver Laserpulse in transparenten Medien. Das örtliche Intensitätsprofil des Laserstrahls ruft laut Gleichung (2.16) eine ortsabhängige Antwort im Medium hervor. Vereinfacht betrachtet, wird durch die Bestrahlung der Probe mit einem nahezu idealen Gaußlaserpuls, eine gaussförmige Brechungsindexverteilung induziert. Diese wirkt als eine Linse und fokussiert den eintreffenden Laserstrahl. Dieser Effekt tritt ab einer kritischen Leistung

$$P_{kr} = 3,77 \ \frac{\lambda^2}{8\pi n_0 n_2} \tag{2.17}$$

auf [35, 36], welcher den Grenzwert beschreibt, bei dem die Selbstfokussierung die Beugung überwindet, die der Laserstrahl beim Durchlaufen des Mediums erfährt. Die Ausbreitungslänge eines kollimierten Laserstrahls  $L_c$ , der im Medium selbstfokussiert wird, kann mit

$$L_c = \frac{\pi n_0 r_0^2}{\lambda} \cdot \frac{0,367}{\sqrt{\left[(P_{peak}/P_{kr})^{1/2} - 0,852\right]^2 - 0,0219}}$$
(2.18)

beschrieben werden und hängt vom Radius  $r_0$  des Laserstrahls ab [37, 38]. Angenommen wird in Gleichung (2.17) ein gaussförmiges Intensitätsprofil. In Natronglas beträgt die kritische Leistung für Selbstfokussierung bei der Bestrahlung mit 800 nm Laserpulsen  $P_{kr} = 2, 1 MW$ . Daraus lässt sich mit der Gleichung

$$E_{kr} = \frac{P_{peak} \cdot \tau_{puls}}{0,94} \tag{2.19}$$

unter Annahme einer gaussförmigen Intensitätsverteilung die entsprechende Pulsenergie von  $E_{puls} = 0,63 \ \mu J$  berechnen, wobei  $P_{peak}$  die Spitzenintensität des Laserpulses und  $\tau_{puls}$  die FWHM Pulsdauer angibt (für die Rechnung wurde  $\tau_{puls} = 270 \ fs$  als Pulsdauer des verwendeten Pharos-Lasersystems benutzt). Bei den durchgeführten Experimenten wurden diese Pulsenergien immer erreicht, sodass der Einfluss der Selbstfokussierung bei der Bestrahlung von transparenten Medien in dieser Arbeit berücksichtigt werden muss. Das Phänomen der Selbstfokussierung würde isoliert betrachtet, zu einem Kollabieren des kollimierten Laserstrahls in einem bestimmten Punkt im Material und zu einem dielektrischen Zusammenbruch führen. Die gesamte Laserpulsenergie würde in der Theorie im unendlich kleinen Fokuspunkt gesammelt. Weitere nichtlineare Wechselwirkungen der ultrakurzen Laserpulse mit dem Material wirken der Selbstfokussierung entgegen und werden in den folgenden Kapiteln beschrieben.

## 2.2.2. Gruppengeschwindigkeitsdispersion, Selbstphasenmodulation und self-steepening

In allen Gasen, Flüssigkeiten und transparenten Festkörpern findet eine Dispersion des eingestrahlten Lichtes statt. Für gewöhnlich breiten sich im dispersiven Material niedrigere (rote) Frequenzen schneller als hohe (blaue) aus. Nach einem gewissen Ausbreitungsweg im Medium sammeln sich die roten Frequenzen an der führenden mittleren Front des Laserpulses an, während sich der blaue Anteil in den äußeren Bereich der Einhüllenden des Pulses verschiebt. Das Resultat ist eine Verlängerung der Pulsdauer  $\tau_{puls}$  und eine Verringerung der Spitzenintensität  $P_{peak}$  des eingestrahlten Pulses. Dieser Vorgang wird als Gruppengeschwindigkeitsdispersion bezeichnet und besitzt eine charakteristische Länge:

$$L_{GVD} = \frac{\tau_{puls}^2}{2k''} \quad . \tag{2.20}$$

 $k'' = \partial^2 k / \partial \omega^2 |_{\omega_0}$  bezeichnet dabei den quadratischen Term der Entwicklung der Wellenzahl als Funktion der Abweichung von der Zentralwellenlänge  $\omega_0$  des Laserpulses:

$$k(\omega) = \frac{n(\omega)\omega}{c} = \frac{n_0\omega_0}{c} + k'(\omega - \omega_0) + \frac{k''(\omega - \omega_0)^2}{2} + \dots \quad .$$
 (2.21)

Beispielsweise wird sich ein Laserpuls mit  $\tau_{puls} = 10 \ fs$  und 800 nm Wellenlänge nach einem Ausbreitungsweg von 1,4 mm in Glas um 40 % verlängern ( $k'' = 360 fs^2/cm$ ). Um eine genaue spektrale und zeitliche Entwicklung eines ultrakurzen Laserpulses zu erhalten, ist die korrekte Beschreibung der Dispersion im Material unverzichtbar [39, 40]. Bei der Bestrahlung mit ultrakurzen Laserpulsen verzögert die Gruppengeschwindigkeitsdispersion die Selbstfokussierung des Strahls durch die Aufweitung des Pulses auf der zeitlichen Ebene [41] und verhindert so den Kollaps des Laserpulses im Medium.

Auf Grund der eben beschriebenen zeitlichen Veränderung des Laserpulses bei der Aus-

breitung im Medium wird auch die nichtlineare Antwort des Systems in Form des Brechungsindexes  $n = n_0 + n_2 I(r, t)$  zeitlich variiert. Als Folge treten neue Frequenzen im Spektrum des Laserpulses auf. Dieser Effekt wird Selbstphasenmodulation (SPM) genannt und kann mit einem einfachen Modell über eine Verknüpfung der Frequenzen mit der Pulsintensität beschrieben werden:

$$\omega(t) = -\frac{\partial\phi}{\partial t} \sim \omega_0 - \frac{n_2\omega_0}{c} z \frac{\partial I(r,t)}{\partial t} \quad . \tag{2.22}$$

Die Erzeugung neuer Frequenzen im Laserpuls ist laut Gleichung (2.22) abhängig vom Anstieg der Laserpulsintensität, dem Ausbreitungsweg im Medium z und dem nichtlinearen Brechungsindex  $n_2$ . Dieser Zusammenhang beschreibt weiterhin, dass der vordere Teil des Pulses (aus Sicht der Intensität) höhere Frequenzen als der hintere erzeugt. Die Selbstphasenmodulation kann als zeitliches Gegenstück zur Selbstfokussierung bezeichnet werden und wirkt dem Zusammenbruch des ultrakurzen Laserpulses durch den optischen Kerr-Effekt entgegen.

Auf Grund des intensitätsabhängigen nichtlinearen Brechungsindexes des Materials breitet sich die Front des Laserpulses, an dem die Spitzenintensität vorliegt, langsamer als die äußeren Teile aus. Eine Art Stauchung geschieht in der Mitte des Laserpulses. Dieser Vorgang wird auch self-steepening genannt [42]. In Natronglas konnte ein positives  $n_2$ gemessen werden, sodass sich die Lichtgeschwindigkeit im Material mit erhöhter Laserintensität verringert. Nimmt man einen gaussförmige Intensitätsverteilung an, so wird die Spitze des Pulses im Bezug auf die Gruppengeschwindigkeit verlangsamt, während die Seitenbereiche des Pulses zum mittleren Frontbereich aufschließen können. Es bildet sich eine steile Kante im Randbereich des Pulses aus. Dieser Effekt führt auf Grund der anwachsenden Intensität zu einer schnelleren Selbstfokussierung der äußeren Randbereiche des Laserpulses. Self-Steepening führt weiterhin zu einer asymmetrischen Aufteilung des Pulses [43–45].

## 2.3. Lichtwechselwirkung mit Halbleitern

In diesem Kapitel werden die Mechanismen beschrieben, die zu permanenten Materialveränderungen in Halbleitern führen, wenn diese mit ultrakurzen Laserpulsen bestrahlt werden. Bei der Absorption von ultrakurzen Laserpulsen in Halbleitern werden im Material freie Ladungsträger erzeugt. Zu Beginn des Kapitels werden daher die unterschiedlichen Mechanismen zur Erzeugung freier Ladungsträger beschrieben. Bei hohen Lichtintensitäten kommt es in der Folge zur Entstehung eines freien Elektronengases. Dieser Zustand kann auch als Elektronenplasma bezeichnet werden. Der Effekt des Plasmas auf eingestrahlte ultrakurze Laserpulse wird anschließend genauer erläutert (Kap. 2.3.2). Abschließend wird in Kapitel 2.3.3 beschrieben wie sich transparente Medien und im Detail Natronglas bei der Bestrahlung mit ultrakurzen Laserpulsen verhalten und wie in diesen permanente Materialveränderungen induziert werden können.

## 2.3.1. Anregung von Ladungsträgern

Bei der Absorption von ultrakurzen Laserpulsen in Halbleitern werden im Material freie Ladungsträger erzeugt. Die verschiedenen Mechanismen zur Anregung von der freien Elektronen sind schematisch in Abbildung 2.1 zusammengefasst. Diese Prozesse sind abhängig von der Energie der eingestrahlten Photonen und werden im Folgenden im Detail beschrieben.



(a) lineare Einphotonenabsorption mit direktem Bandübergang



(c) direkter Bandübergang nach Multiphotonenabsorption



(e) Stoßionisation durch hochenergetische Ladungsträger



(b) lineare Einphotonenabsorption mit indirektem Bandübergang



(d) Absorption durch freie Ladungsträger oder inverse Bremsstrahlung

Abb. 2.1.: Mechanismen zur Anregung von Ladungsträgern in Festkörpern mit Bandlücke [46]

#### Interbandanregungen

Bei allen Interbandanregungen werden eingestrahlte Photonen vom Material absorbiert und freie Ladungsträger erzeugt. Entspricht dabei die zugeführte Photonenenergie mindestens der kleinsten direkten Bandlücke des Mediums, kann ein Elektronen durch die Absorption eines Photons energetisch vom Valenz- ins Leitungsband angeregt werden (siehe Abbildung 2.1 (a)). Besitzt das zu bestrahlende Material eine indirekte Bandlücke, befinden sich also das Maximum des Valenzbandes und das Minimum des Leitungsbandes bei unterschiedlichen Wellenvektoren, ist auch ein indirekter Bandlübergang möglich. Die Photonenenergie muss in diesem Szenario größer als die zu überbrückende indirekte Bandlücke sein. Auf Grund der Impulserhaltung muss zusätzlich zur Absorption des Photons eine Gitterschwingung (Phonon) erzeugt werden. Der indirekte Bandübergang ist in Abbildung 2.1 (b) schematisch dargestellt.

Wie im vorherigen Kapitel bei der Beschreibung des Zwei- ( $\beta$ ) bzw. Drei-Photonenabsorptionskoeffizienten ( $\gamma$ ) bereits erwähnt, ist es ebenfalls möglich, mehrere Photonen gleichzeitig im Material zu absorbieren. Mit zunehmender lokaler Intensität bzw. höheren elektrischen Feldern wird die simultane Absorption von mehreren Photonen wahrscheinlicher. Durch die nicht-lineare Absorption ist die Anregung von Ladungsträgern in energetisch höhere Niveaus auch dann realisierbar, wenn die eingestrahlte Photonenenergie kleiner als die Bandlücke des Mediums ist. Auf diese Weise ist es möglich, Photonen in für sie transparenten Materialien zu absorbieren. Dieser Vorgang wird als Multiphotonenabsorption (kurz MPA) bezeichnet und ist in Abbildung 2.1 (c) skizziert. Beispielsweise kann eine MPA in Quarzglas ( $E_G = 9 \ eV$ ) mit Photonen von 800 nm Wellenlänge (1,55 eV) nur dann erfolgen, wenn mindestens sechs Photonen gleichzeitig absorbiert werden.

Durch alle beschriebenen Interbandanregungen werden freie Ladungsträger im bestrahlten Medium erzeugt. Deren Anzahl N nimmt also bei der Bestrahlung zu. Die Differenz aus der absorbierten Energie der Photonen und der vorliegenden Bandlücke steht den freien Ladungsträgern aus Energieerhaltungsgründen als kinetische Energie zur Verfügung. Diese überschüssige kinetische Energie kann in Form von Stößen mit gebundenen Elektronen oder nach einigen Pikosekunden in Form von Gitterschwingungen an das Materialgitter abgegeben werden [47].

#### Intrabandanregungen

Als Intrabandanregungen werden Absorptionen von Photonen durch freie Ladungsträger bezeichnet. Die Wahrscheinlichkeit für diesen Vorgang nimmt dabei mit der Anzahl der im betrachteten Volumen vorhandenen freien Ladungsträger N zu. Absorbiert ein freies Elektron, das sich energetisch betrachtet im Leitungsband befindet, ein eingestrahltes Photon, so wird ihm dessen Energie als kinetische Energie zugeführt. Das freie Elektron wird auf ein höheres Energieniveau angehoben. Die Absorption durch freie Ladungsträger - oder auch inverse Bremsstrahlung genannt - kann wiederum direkt oder indirekt erfolgen. Der Unterschied besteht wie bei der linearen Absorption in der Erzeugung eines Phonons für einen zusätzlichen Impuls. Die indirekte Absorption durch freie Ladungsträger ist in Abbildung 2.1 (d) schematisch dargestellt. Auf Grund des thermischen Gleichgewichts oder Defekten im Material, existiert immer eine gewisse Anzahl an freien Elektronen im Leitungsband des Halbleitermaterials. Durch die beschriebenen Intrabandanregungen erhöht sich die kinetische Gesamtenergie des Materials.

#### Stoßionisation

Durch die eben beschriebenen Inter-und Intrabandanregungen können freie Ladungsträger in Materialien mit Bandlücken erzeugt werden und ihre kinetische Energie kann dabei Werte weit oberhalb des Leitungsbandes annehmen. Es ist ihnen dann möglich einen Teil ihrer kinetischen Energie durch Stöße an gebundene Ladungsträger abzugeben. Durch die Aufnahme dieser Energie können diese ionisiert und als freie Ladungsträger betrachtet werden. Dieser Vorgang wird als Stoßionisation bezeichnet und ist in Abbildung 2.1 (e) skizziert. Da bei diesem Prozess keine Photonen direkt beteiligt sind, kann auch nach Beendigung der Bestrahlung die Anzahl der freien Ladungsträger weiter anwachsen. Aus diesem Grund wird der Vorgang der Stoßionisation als nichtstrahlender Vorgang bezeichnet. Dieser Vorgang konnte experimentell noch mehr als 100 fs nach Beendigung der Bestrahlung mit 500 nm Wellenlänge festgestellt werden [48].

Können freie Ladungsträger mit ausreichend hoher kinetischer Energie durch Stöße weitere freie Ladungsträger erzeugen, kann dies zu einem Lawinen(Avalanche)-Prozess führen. Diese Kettenreaktion bewirkt einen sehr steiler Anstieg der freien Ladungsträger im bestrahlten Volumen.

## 2.3.2. Plasmadefokussierung

Bei der Bestrahlung mit hohen Intensitäten können durch die im vorherigen Abschnitt beschriebenen Mechanismen eine große Anzahl freier Ladungsträger im Material angeregt werden. Dabei ändern sich dessen optische Eigenschaften im bestrahlten Volumen drastisch. Die erzeugten freien Elektronen absorbieren die eintreffenden Photonen und lösen durch Stoßionisation eine Kettenreaktion aus. Wurden durch diesen Lawineneffekt genügend freie Elektronen im Material generiert, kann der vorliegende Zustand als ein Gas aus freien Elektronen bezeichnet werden, das sich wie ein stark absorbierendes heißes Elektronenplasma verhält. Die Erzeugung eines Elektronenplasma bewirkt lokal eine Verringerung des Brechungsindexes [49]

$$n \simeq n_0 - \frac{\rho_N(r,t)}{2\rho_c} \quad mit \quad \rho_c = \frac{\epsilon_0 m_e \omega_0^2}{e^2} \quad , \tag{2.23}$$

wobei  $\rho_N(r,t)$  die Dichte der freien Elektronen N und  $\rho_c$  die kritische Plasmadichte be-

schreibt bei der das Plasma lichtundurchlässig wird. Die Masse eines Elektrons und dessen Ladung werden mit  $m_e$  bzw. e und die zentrale eingestrahlte Kreisfrequenz mit  $\omega_0$  abgekürzt. Wird die kritische Plasmadichte ( $\rho_c \sim 1.7 \cdot 10^{21} cm^{-3}$  bei 800 nm Wellenlänge) erreicht, reduziert sich der Brechungsindex lokal und der eintreffende Laserstrahl wird defokussiert. Das Plasma wirkt wie eine divergente Linse. Wie bereits erwähnt, wirkt dieser Effekt der Selbstfokussierung durch den nichtlinearen Brechungsindex bei ultrakurzen Laserpulsen entgegen und verhindert so ein Kollabieren des Laserstrahls im Halbleitermaterial.

Es muss allerdings erwähnt werden, dass die Front des Laserpulses, die bei gaussförmiger Intensitätsverteilung die Spitzenintensität trägt, das Elektronenplasma erzeugt, welches nachfolgend vorrangig die äußeren Randbereiche des Pulses defokussiert. Zusätzlich zur räumlichen Defokussierung führt das erzeugte Plasma zu einer starken Asymmetrie des zeitlichen Profil des Pulses. Dieser Zusammenhang führt zu einer zeitlichen Kompression des Laserpulses und darf bei der Balance der nichtlinearen dynamischen Effekte bei der Bildung von Filamenten (Details in Kapitel 2.3.3) nicht vernachlässigt werden. Die Bildung eines Plasmas in der Mitte des Pulses trägt auch zur spektralen Verbreiterung und Blauverschiebung in dessen Front bei [50]. Die unmittelbare Frequenzantwort auf die zeitabhängig Plasmadichte  $\rho$  kann als

$$\omega(t) = -\frac{\partial\phi}{\partial t} \sim \omega_0 + \frac{\omega_0 z}{c} \left( -n_2 \frac{\partial I(r, t)}{\partial t} + \frac{1}{2n_0\rho_c} \frac{\partial\rho(r, t)}{\partial t} \right)$$
(2.24)

formuliert werden. Diese Gleichung ist das Gegenstück zu Gleichung (2.22), wenn die Selbstphasenmodulation durch das erzeugte Plasma berücksichtigt wird.

## 2.3.3. Ausbreitung ultrakurzer Laserpulse und Bildung von Filamenten in transparenten Medien

Nachdem in diesem Kapitel die linearen und nichtlinearen Mechanismen bei der Wechselwirkung von ultrakurzen Laserpulsen mit Halbleitern erläutert wurden, findet an dieser Stelle eine Zusammenfassung statt. Dieser Überblick dient dazu die Chronologie der Laser-Materie-Wechselwirkung in transparenten Materialien und die dabei konkurrierenden nichtlinearen Effekte zu beschreiben.

Bei der Bestrahlung mit Femtosekundenlaserpulsen kann sich während des Bestrahlungsvorgangs kein Gleichgewicht zwischen den erzeugten freien Elektronen und dem Gitter eines Halbleiters einstellen. Da sowohl Thermalisierungs- als auch Rekombinationsmechanismen in der Zeit der Bestrahlung vernachlässigt werden können, ist es möglich sehr hohe Ladungsträgerdichten im Material zu erzeugen. Aus diesem Grund wird die Laser-MaterieWechselwirkung bei der Bestrahlung mit ultrakurzen Laserpulsen nahezu unabhängig vom prozessierten Material [51]. Viele theoretische und experimentelle Untersuchungen wurden zu diesem Thema durchgeführt und bestätigen diese These [52–54].

Werden Halbleiter mit ultrakurzen Laserpulsen bestrahlt, erzeugen Interbandübergänge freie Ladungsträger im Material. Einige weitere freie Ladungsträger sind auf Grund des thermodynamischen Gleichgewichts und dem Vorhandensein von Defekten auch bei Raumtemperatur vorhanden. Über Intrabandübergänge absorbieren die freien Elektronen weitere eingestrahlte Photonen, wodurch sich ihre kinetische Energie erhöht [55]. Auf Grund dieser kinetischen Energie sind die freien Ladungsträger in der Lage weitere freie Ladungsträger durch Stoßionisation zu erzeugen. Bei hohen Spitzenintensitäten der eingestrahlten Laserpulse kann dies zu einem Lawinen oder Avalanche-Effekt und lokal zu einem steilen Anstieg der Ladungsträgerdichten auf bis zu  $1 \cdot 10^{21} cm^{-3}$  führen [1].

Überschreitet ein fokussierter Laserstrahl lokal die materialabhängige kritische Leistung  $P_{kr}$  (Gleichung (2.17)), findet eine unmittelbare nichtlineare Reaktion des Systems auf die eingestrahlte hohe Intensität statt. Der Effekt wird auch als optischer Kerr-Effekt bezeichnet. Der nichtlineare Brechungsindex dominiert bei diesen eingestrahlten Spitzenintensitäten die Materialantwort. Bei der Bestrahlung der Probe mit einem nahezu idealen Gaußlaserpuls wird daher eine gaussförmige Brechungsindexverteilung induziert, die eine Selbstfokussierung des Laserstrahls bewirkt. Im Fokus des Strahls finden auf Grund der vorhandenen hohen Leistungsdichte Multiphotonenabsorptionen statt, welche mit Hilfe der bereits beschriebenen Ladungsträgererzeugungs- und Avalancheeffekte lokal ein heißes Elektronenplasma erzeugen. Das erzeugte Plasma defokussiert den Laserstrahl und absorbiert einen Teil seiner Leistung. Besitzt der Strahl nach der Defokussierung eine Leistung, die den kritischen Wert  $P_{kr}$  überschreitet, beginnt der Selbstfokussierungs-Defokussierungs-Kreislauf von neuem. Die Wiederholung dieses Vorgangs bewirkt die Erzeugung von Filamenten mit Längen, die weitaus größer als die Rayleighlänge des Laserlichtes sind [56, 57]. Die Refokussierung des Laserstrahls kann so lange stattfinden bis die Leistung unter den kritischen Wert  $P_{kr}$  sinkt [29]. Die eingestrahlte Laserleistung sinkt entlang des Filaments vorrangig durch Multiphotonenabsorption.

Ein Zusammenbruch des Filaments kann allerdings intensitätsabhängig auch durch andere Effekte herbeigeführt werden. Beispielsweise ist eine Sättigung des nichtlinearen Brechungsindex durch höhere defokussierende Ordnungen möglich [58, 59]. Weiterhin kann die Plasmadefokussierung direkt zum Zusammenbruch des Filaments führen [60]. In Festkörpern ist die Gruppengeschwindigkeitsdispersion so stark, dass sie zur Aufspaltung des Laserpulses in zwei Teile führen kann, die sich im Folgenden im Material divergent zum ursprünglichen Laserpuls ausbreiten [43, 61, 62]. Natürlich findet in der Realität eine

#### Kombination dieser Effekte statt.

Ein Schema des Kreislaufes, der zur Filamentbildung führt, ist vereinfacht in Abbildung 2.2 dargestellt. Die Balance zwischen Selbstfokussierung durch den optischen Kerr-Effekt, Multiphotonenabsorption und Ionisation, sowie Defokussierung durch das erzeugte Elektronenplasma ist ein hochdynamischer Prozess und führt zur Entstehung langer Filamente in Halbleitern [63]. Das Gleichgewicht ist durch die beschriebenen zeitlichen und örtlichen nichtlinearen Reaktionen des Materials sehr dynamisch und komplex, aber vor allem abhängig von der Pulsdauer und der Spitzenintensität des eingestrahlten ultrakurzen Laserpulses. Der Durchmesser der erzeugten Filamente beträgt auf Grund der Balance zwischen Selbstfokussierung und Defokussierung materialabhängig nur einige wenige Mikrometer [64, 65]. Entlang der Filamente findet ein dynamischer Wettkampf zwischen optischem Zusammenbruch durch Selbstfokussierung des Laserpulses und defokussierenden Effekten bei einer räumlichen Ausdehnung statt, die abhängig von der Schnelligkeit der nichtlinearen Materialreaktion auf die Intensitätsveränderungen ist.



Abb. 2.2.: Schematische Darstellung der Balance zwischen Selbstfokussierung des Laserstrahls und Defokussierung durch das entstehende Elektronenplasma; durch den skizzierten Kreislauf entstehen Filamente mit einigen Mikrometern Länge im Material

Verschiedene Mechanismen wie die Multiphotonenionisation und der Avalancheeffekt erzeugen lokal im Material sehr hohe freie Ladungsträgerdichten, sodass sich das System in einem ungewöhnlichen Zustand befindet, in dem ein heißes Elektronenplasma und kalte Atomrümpfe des Gitter koexistieren. Zahlreiche thermodynamische Vorgänge verteilen die zusätzlich in das Material eingebrachte Energie und stellen das thermodynamische Gleichgewicht wieder her. Abhängig von der eingestrahlten Intensität bewirkt diese Energierelaxation lokale strukturelle Veränderungen im Material. Diese können sowohl die optischen, chemischen als auch mechanischen Eigenschaften des Materials beeinflussen. Vereinfacht zusammengefasst, führt die Herstellung des thermischen Gleichgewichts bzw. der Energietransfer im bestrahlten Bereich zwischen den heißen freien Elektronen und den kalten Atomrümpfen des Gitter zu hohen Temperaturen und starken Drücken. Diese Umstände induzieren ein lokales Schmelzen des Glases, welches sich nach der Abkühlung in einer Verdichtung des Materials äußert.

Atomar betrachtet, besteht das Glasnetzwerk von Natronglas aus einem Netzwerk von  $SiO_4$ -Tetraedern. Die Tetraeder ordnen sich dabei vorrangig in sechs- [28, 66] bzw. neungliedrigen [67] Ringen an. Bei der Bestrahlung mit fs-Laserpulsen werden diese Ringe aufgespaltet und rekombinieren im Folgenden zu drei- oder vier-gliedrigen Ringen. Abbildung 2.3 zeigt dies schematisch.



Abb. 2.3.: Schematisches Aufspalten der neun-gliedrigen Ringe im Glas durch Bestrahlung mit fs-Laserpulsen und Rekombination zu kleineren Ringen im Glasnetzwerk, übernommen aus [67]

Dabei verringert sich der Si-O-Si Bindungswinkel, sodass sich die Glasmatrix lokal verdichtet. Die verstärkte Rekombination zu kleineren Ringen nach der Bestrahlung mit ultrakurzen Laserpulsen äußert sich im Ramanspektrum des betroffenen Gebiets. Chan et al. [68] stellten mit steigender Laserpulsenergie eine Vergrößerung der für die 3er oder 4er Ringe charakteristischen Ramanpeaks (490  $cm^{-1}$  und 605  $cm^{-1}$ ) fest. Die Zunahme der Intensitäten dieser charakteristischen Peaks ist in Abbildung 2.4 (a) dargestellt. Auf der rechten Seite der Grafik (Abb. 2.4 (b)) ist die integrierte Fläche unter dem 605  $cm^{-1}$ relative Wellenzahlenpeak in Abhängigkeit der eingestrahlten Pulsenergie zu sehen. Die aufsummierte Fläche nimmt mit erhöhter eingestrahlter Energie zu.



Abb. 2.4.: Ramanspektren eines mit ultrakurzen Laserpulsen bestrahlten Glases in Abhängigkeit von der verwendeten Pulsenergie, übernommen aus [28]

Die induzierte Umordnung des Glasnetzwerks und Verdichtung des Materials führt lokal je nach Material zu unterschiedlichen Reaktionen. Während für Quarzglas und Natronglas ein zunehmender Brechungsindex auf Grund von Materialverdichtungen berichtet wird, verringert sich die Dichte und somit die Brechzahl in Phosphatgläser bei der Bestrahlung mit fs-Laserpulsen [30, 69, 70]. Der induzierte Brechungsindex ändert sich dabei proportional mit steigender Materialdichte [71]:

$$\frac{\Delta\rho}{\rho} \propto \frac{\Delta n}{n} \tag{2.25}$$

Auf diese Weise ist es möglich Brechungsindexunterschiede in Natronglas zu induzieren, indem das Glasnetzwerk lokal mit fs-Laserpulsen verändert wird. Dies gilt vor allem dann, wenn geringe Laserrepetitionsraten verwendet werden. Bei hohe Laserwiederholraten kann es in der Zeit zwischen zwei eintreffenden Laserpulsen nicht zum Abbau der induzierten zusätzlichen freien Ladungsträger kommen (thermische Diffussionszeit 1 µs [72]). Die eingebrachte Energie akkumuliert sich und das Material erhitzt sich im Fokusgebiet stark [73]. Auf diese Weise ist es ebenfalls möglich Modifikationen in der Probe vorzunehmen [74], die sich allerdings weit über das den Fokusbereich hinaus erstrecken [75].

Weiterhin wird bei der Bestrahlung von Gläsern mit ultrakurzen Laserpulsen die Bildung von Farbzentren als mögliche Ursache für die Bildung von Brechungsindexunterschieden diskutiert. Die Bildung von Defekten im Glasnetzwerk geschieht meist bei niedrigeren Laserintensitäten. Während erzeugte Brechungsindexunterschiede erst ab 500°C ausheilbar sind, verschwinden die Farbzentren bereits bei 400°C [76].

# KAPITEL 3 : Phasengitter in transparenten Medien

Gitter beruhen auf einer lokalen Änderung des Brechungsindexes und können dazu verwendet werden, eintreffendes Licht zu beugen. In diesem Kapitel werden unterschiedliche Gittertypen vorgestellt. Der Schwerpunkt liegt dabei auf der Beschreibung von Phasengittern. Dies sind optische Beugungsgitter, welche die Phase des einfallenden Lichtes beeinflussen. Bei einem in Transmission verwendeten Beugungsgitter durchlaufen die unterschiedlichen Teile der Lichtwelle das Gitter auf Grund der verschiedenen Brechzahlen mit unterschiedlich langem Lichtweg. Die optische Weglänge ist für die verschiedenen Teile der Welle unterschiedlich, sodass sie beim Austritt aus dem Gitter eine Phasenverschiebung zueinander besitzen.

Abschließend werden in diesem Kapitel Möglichkeiten genauer erläutert, um die Transmission, Reflektion und Beugungseffizienz von Phasengittern numerisch zu berechnen.

## 3.1. Gittertypen

Gitter sind periodisch räumliche Variationen der Dielektrizitätskonstante im Inneren oder auf der Oberfläche eines Trägermaterials. Als Beugung wird die kohärente Streuung an den periodisch angelegten Streuzentren bezeichnet. Das gestreute Licht hat im Allgemeinen eine andere Phase oder auch Amplitude als das ungestreute Licht. Die gestreuten Lichtwellen interferieren nach Passieren des Gitters konstruktiv oder destruktiv, sodass sich ein Interferenzmuster mit Maxima und Minima verschiedener Ordnungen ausbildet. Gitter werden in Phasen- und Amplitudengitter unterteilt je nachdem, ob beim Durchlaufen eine Modulation der Phase oder Amplitude der eintreffenden Lichtwellen stattfindet. Weiterhin unterscheidet man Gitter nach ihrer Anwendung in Reflektion und Transmission.

Um einen Überblick über verschiedene Gittertypen zu geben, sind diese in Abbildung 3.1 zusammengefasst. Beispielhaft sind Gitter auf der Oberfläche eines Trägermaterials abgebildet. Die Gitterperiode wird dabei mit a bezeichnet und durch Pfeile gekennzeichnet. Ist bei rechteckigen Gitterstegen nur eine Gittertiefe vorhanden, werden die Gitter als binär bezeichnet (Abb. 3.1 (a),(b)). Existiert eine kontinuierliche Variation der Höhe oder der Brechzahl innerhalb einer Gitterperiode, spricht man von geblazsten Gittern (Abb. 3.1 (c)). In der Herstellung ist die Anfertigung geblazster Gitter mit hohem Aufwand verbunden. Aus diesem Grund wird in der Realität die dreiecksförmige Querschnittsfläche oft durch ein Stufenprofil approximiert (Abb. 3.1 (d)).

Die Dielektrizitätskonstante der dargestellten Gitter ist nur in einer Raumrichtung periodisch moduliert. In der zweiten Raumrichtung sind die Gitter translationsinvariant, sodass sie als eindimensionale Gitter bezeichnet werden können. Aus diesem Grund genügt es, eine Gitterperiode a für die Beschreibung zu verwenden. Bei zweidimensionalen Gittern und einer periodischen Modulation der Dielektrizitätskonstante in zwei Richtung ist die Angabe einer weiteren Gitterperiode für die zweite Raumrichtung notwendig.



Abb. 3.1.: Verschiedene Gittertypen auf der Oberfläche eines Trägermaterials angebracht
 (a) binäres symmetrisches Gitter (b) binäres asymmetrisches Gitter (c) geblazstes Gitter (d) geblazstes Stufengitter

Die Beugung des Lichtes lässt sich anhand des Huygens-Fresnelschen Prinzips [77] verdeutlichen. Licht wird an jeder Änderung des Brechungsindexes gestreut. In erster Näherung geht von jedem dieser Punkte eine sphärische Elementarwelle in alle Richtungen aus. In einigen Richtungen sind die Phasenbeziehungen des gestreuten Lichtes benachbarter Streuzentren konstruktiv, sodass diese im Fernfeld konstruktiv interferieren und sich intensive Maxima bzw. Beugungsordnungen ergeben. Liegt eine destruktive Phasenbeziehung des gestreuten Lichts benachbarter Streuzentren vor, löschen sich diese im Fernfeld aus, sodass Beugungsminima zu beoabachten sind.

Ist das Trägermaterial (im Folgenden mit Brechungsindex  $n_1$  bezeichnet) dielektrisch bzw. nicht-absorbierend, wird durch das Gitter (im Folgenden mit Brechungsindex  $n_2$ bezeichnet) nur die Phase der eintreffenden Lichtwellen beeinflusst. Besteht ein Gitter beispielsweise aus Gitterstegen aus Metall, treten auf Grund der Amplitudenveränderung Beugungseffekte auf. Die Unterscheidung in Amplituden- und Phasengitter beruht also vorrangig auf dem verwendeten Material.

Die Beugung kann mit der Gittergleichung für ein Gitter mit der Gitterperiode a, einen Einfallswinkel  $\alpha$ , einen Beugungswinkel  $\beta$  für die Beugungsordnung m beschrieben werden [78]:

$$\frac{m\lambda}{a} = \sin \alpha - \sin \beta \tag{3.1}$$

Zusätzlich ist die Brechung des Lichtes beim Ein- und Austritt an den Grenzflächen des Gitters (also zwischen Trägermaterial  $n_1$  und Gitter  $n_2$ ) zu berücksichtigen. Der Brechungswinkel kann über das Snelliussche Brechungsgesetz berechnet werden [77, 78]:

$$n_1 \sin \alpha = n_2 \sin \beta \tag{3.2}$$

Trifft Licht unter einem Einfallswinkel  $\alpha$  auf die Oberfläche eines Gitters, so ergeben sich nach Wechselwirkung der Lichtwellen mit dem Gitter und je nachdem ob destruktive oder konstruktive Interferenz auftritt unterschiedliche Beugungsordnungen im Fernfeld. In Abbildung 3.2 sind verschiedene Beugungsordnungen in Reflektion und Transmission dargestellt. Die Beugungswirkung des Gitters kann sich abhängig von der Polarisation des eintreffenden Lichtes unterscheiden. Man bezeichnet Anteile des Lichtes mit Oszillationsrichtung des elektrischen Feldes senkrecht zur Einfallsrichtung als s-polarisiert. Der Anteil des einfallenden Lichtes, der parallel zur Einfallsrichtung schwingt, wird p-polarisiert genannt.



Abb. 3.2.: Beugungsordnungen eines Phasengitters

Da sie für die geforderte Anwendung besonders geeignet erscheinen, werden im Rahmen dieser Arbeit Phasengitter in Transmission untersucht, die nur die Phase des eintreffenden Lichtes beeinflussen. Diese Form der Gitter ist besonders attraktiv, da bei der Verwendung von nicht-absorbierenden Materialien und geringen Änderungen des Brechungsindexes prinzipiell 100 % des einfallenden Lichtes transmittiert werden kann.

Die Beugung an einem Gitter ist in Abbildung 3.2 zusammengefasst. Die Gitterperiode wird mit a, die Strukturlänge mit l und der Einfallswinkel mit  $\alpha$  bezeichnet. Die Brechungsindizes des Gitters und umliegenden Materials sind mit  $n_2$  und  $n_1$  gekennzeichnet. Das ungebeugt transmittierte bzw. reflektierte Licht wird als nullte Beugungsordnung bezeichnet ( $I^{0th}$ ,  $I_R^{0th}$ ). Die weiteren Beugungsordnungen sind in Abbildung 3.2 entsprechend nummeriert. Für die im Rahmen dieser Arbeit geforderte Anwendung sind besonders hohe Beugungseffizienzen in Transmission erforderlich. Eine Reflektion des eingestrahlten Lichtes soll im Idealfall minimal sein. Eine hohe Effizienz des Gitters wird erreicht, wenn die nullte Beugungsordnung bzw. ihre Intensität unterdrückt wird. Über eine Anpassung der Strukturlänge 1 (siehe Abbildung 3.2) kann in Abhängigkeit des Einfallswinkels eine Phasendifferenz von  $\pi$  zwischen zwei kohärent gebeugten Strahlen erreicht werden. Bei identischer Amplitude ist die Folge eine Auslöschung der nullten Beugungsordnung. Für den Spezialfall  $\alpha = 0^{\circ}$  lässt sich die relative Intensität der Beugungsordnung m berechnen [79]:

$$I^{mth} \propto \frac{4}{\pi^2 m^2} \sin^2 \left( \pi m \frac{b}{a} \right) \sin^2 \frac{\phi}{2} \quad mit \quad \phi = \frac{4\pi l}{\lambda}$$
(3.3)

Um beliebige Einfallswinkel und Gittergeometrien berücksichtigen zu können, besteht die Notwendigkeit, ein numerisches Verfahren zu finden, mit dem diese Rechnungen durchgeführt und die Beugungseffizienzen von Phasengittern berechnet werden können.

## 3.2. Numerische Berechnung von Phasengitterbeugungeeffizienzen

Historisch begründet werden bis heute Beugungsgitter in die Regime dünn und dick unterteilt. Diese Begriffe sind allerdings nicht durch die Dimensionen der Gitter definiert. Für beide Gitterformen existieren analytische Lösungen für die Berechnung ihrer Beugungseffizienz. Gitter, die weder als dünn noch als dick definiert sind, werden als intermediate Gitter bezeichnet. Für diese Gitter können Beugungseffizienzen nur numerisch berechnet werden.

Dünne Gitter (charakteristisch ist  $a \gg \lambda$ ) beugen das eintreffende Licht in viele Beugungsordnungen. Raman und Nath ordneten dünne Gitter in das Raman-Nath-Regime ein [80]. Lösungen für die Beugungseffizienz dünner Gitter kann mit Hilfe der komplexen Amplitudentransmission des Gitters im Rahmen der skalaren Beugungstheorie (*thin element approximation* - TEA) berechnet werden. Dabei wird angenommen, dass Licht als skalare Größe beschrieben werden kann und dass elektrisches und magnetisches Feld des einfallenden Lichtes entkoppelt sind. Die Feldverteilung im Fernfeld ergibt sich in Fresnelund Fraunhofer-Näherung als Fouriertransformierte der Transmissionsfunktion des Gitters [81].

Dicke Gitter (charakteristisch ist Gitterperiode  $a \approx \lambda$ ) werden auch Volumengitter genannt. Sie beugen das unter dem Bragg-Winkel einfallende Licht ausschließlich in eine Beugungsordnung. Moharam et al. definierten für dicke Gitter das Bragg-Regime. Das Beugungsverhalten dicker Gitter kann näherungsweise mit der Kopplung zweier Wellen beschrieben werden. Nur beim Einfall des Lichtes unter dem Bragg-Winkel findet eine effiziente Kopplung der Energie der einfallenden Lichtwelle an die gebeugte Welle statt. Kogelnik entwickelte 1969 diese Zwei-Wellen-Theorie (*coupled wave theory* - CWT) [82]. Sie kann verwendet werden, um qualitative Aussagen über das Beugungsverhalten dicker Gitter zu erhalten.

Um das Raman-Nath- und das Bragg-Regime voneinander unterscheiden zu können, führten bereits Extermann und Wannier [83] einen Parameter ein, den sie mit Q' bezeichneten. Dieser ermöglicht anhand der Gittergeometrie eine Aussage über das Beugungsverhalten [84, 85]:

$$Q' = \frac{2 \pi \lambda b}{a^2 \cos \alpha \overline{n}} \tag{3.4}$$

Dabei ist $\overline{n}$  als mittlerer Brechungsindex definiert.

Berechnet man für die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Phasengitter den Q-Faktor nach Gleichung (3.4), befinden sich die erhaltenen Werte zwischen den beiden Regimen, sodass sie als intermediate Gitter eingestuft werden können. Das Beugungsverhalten von intermediate Gittern kann nur numerisch durch die lokale Lösung der Maxwell-Gleichungen bestimmt werden. Rigorose Beugungstheorien ermöglichen diese numerische Berechnung. In dieser Arbeit wurde für die Berechnung der Beugungseffizienzen das Programm S4 verwendet [86]. Es enthält, basierend auf der von Moharam und Gaylord [87, 88] dargestellten Theorie, optimierte numerische Umsetzungen der *rigorous coupled wave analysis* Theorie (RCWA-Theorie). Im Folgenden wird die RCWA-Theorie kurz dargestellt.

Üblicherweise werden Felder bei elektromagnetischen Phänomenen an der Grenzfläche zwischen zwei homogenen Medien durch ebene Wellen beschrieben. Die Amplituden der Wellen müssen dabei als Ganzes die Randbedingungen an den Grenzflächen der Gitterregion erfüllen. Die Randbedingungen verlangen, dass die Tangentialkomponenten des elektrischen Feldes  $\vec{E}$  und des magnetischen Feldes  $\vec{B}/\mu$  stetig ineinander übergehen. Gleiches gilt für die Normalkomponenten der Felder  $\epsilon \vec{E}$  und  $\vec{B}$ .

Prinzipiell wird bei der Lösung eines Gitterproblems das Gebiet in drei Regionen unter-

teilt. Schematisch ist dies in Abbildung 3.3 dargestellt. In der zweiten Region befindet sich das eigentliche Gitter. In den Regionen darüber (I) und darunter (III) ein homogenes Medium.



Abb. 3.3.: Unterteilung eines Gitterproblems in drei Regionen, dargestellt sind die transmittierten und reflektierten Beugungsordnungen, Ordnungen die sich innerhalb des Gitters bewegen werden als evaneszent bezeichnet

Da in dieser Arbeit Phasengitter im Glasvolumen untersucht werden, bestehen die Gebiete I und III aus unbehandeltem und Region II aus behandeltem Glas mit lokal erhöhtem Brechungsindex. Mit Hilfe der RWCA-Theorie ist es möglich die in das Gebiet I zurückreflektierten und die in das Gebiet III transmittierten Wellen zu berechnen. Die Felder in Region I und III können auf Grund ihrer Homogenität durch Rayleigh-Entwicklungen dargestellt werden. Im Gittergebiet II werden die periodische dielektrische Funktion und das elektromagnetische Feld in Fourierreihen entwickelt. Bei der numerischen Berechnung muss jede Feldkomponente in z-Richtung in Region I und III zur jeweiligen Raumharmonischen in der Gitterregion phasenangepasst werden. Sind die z-Komponenten reell, kann sich diese transmittierte oder reflektierte Welle im Substrat ausbreiten. Sind die Komponenten in z-Richtung imaginär, spricht man von evaneszenten Wellen. Diese breiten sich in Region II entlang des Gitters aus (siehe Abbildung 3.3 und klingen exponentiell mit der Entfernung vom Gitter ab, sodass sie im Fernfeld - allerdings nicht bei der Kopplung an andere Wellen innerhalb des Gitters - vernachlässigt werden können.

Bei Berechnungen mit Hilfe der RCWA-Theorie werden Medien als homogen in z-Richtung betrachtet. Es ist jeweils also nur die Beschreibung einer Querschnittsfläche in x- und y-Richtung notwendig. In dieser Ebene wird eine Einheitszelle definiert, die dann periodisch



in x- und y-Richtung fortgesetzt wird. Schematisch ist dies in Abbildung 3.4 dargestellt.

Abb. 3.4.: Schematische Abbildung eines Schichtstapels und Definition der Einheitszelle für die Berechnung mit Hilfe der RCWA-Theorie im Sofwarepaket S4 [86]

Aus den Intensitäten der eingestrahlten und ins Gebiet III transmittierten Wellen kann folglich die Beugungseffizienz errechnet werden. Die Berechnungen wurden für s- und p-Polarisation durchgeführt und im Anschluss gemittelt. Diese Vorgehensweise ist wichtig, damit im Folgenden die Vergleichbarkeit zwischen Experiment und Simulation gewährleistet ist.

# KAPITEL 4 : Experimentelle Methoden und Versuchsaufbau

In diesem Kapitel werden die im Rahmen dieser Arbeit verwendeten Proben und Versuchsaufbauten erläutert. Zu Beginn werden die genutzten Glasproben, ihre optischen Eigenschaften und ihre Zusammensetzung beschrieben. Im zweiten Abschnitt werden die verwendeten Laserquellen, der Versuchsaufbau für die Bestrahlung, der Aufbau zur Vermessung der Beugungseffizienzen und das verwendete Phasenmikroskop im Detail erläutert.

## 4.1. Beschreibung der verwendeten Glasproben

Im Rahmen dieser Arbeit wurden eisenarme Natrongläser der Firma f|solar verwendet. Sie kommen in dieser Zusammensetzung als Deckgläser von Solarmodulen zum Einsatz und wurden daher im Hinblick auf die Anwendung für die Bestrahlungsexperimente gewählt. Die detaillierte chemische Zusammensetzung der Gläser ist in Tabelle 4.1 aufgelistet.

Stoff	Anteil in Massen-%
Siliciumdioxid $(SiO_2)$	72,2
Natriumoxid $(Na_2O)$	13,3
Calciumoxid $(CaO)$	8,9
Magnesiumoxid $(MgO)$	4,4
Aluminiumoxid $(Al_2O_3)$	0,5
Eisen(III)-oxid $(Fe_2O_3)$	0,01
Kaliumoxid $(K_2O)$	0,3
Schwefeltrioxid $(SO_3)$	0,23

Tab. 4.1.: Chemische Zusammensetzung der verwendeten eisenarmen Natriumglasproben

Das Glas wurde im Floatverfahren aus hoch reinen Ausgangsstoffen industriell geschmolzen, ist 3,2 mm dick und für solare Anwendungen optimiert. Bei den Glasrohstoffen wird auf einen reduzierten Gesamtanteil (0,01 mol%) an polyvalentem Eisen ( $Fe^{2+/3+}$ ) geachtet. Dies führt zu einer farbneutralen Erscheinung und zur Verringerung der Absorption im Glas. Das Glas ist nicht vorgespannt und wird für die Bearbeitung auf Maße von ca.  $50 \ge 50$  mm geschnitten.

Die optische Charakterisierung der Natrongläser erfolgte durch Aufnahme von Transmissionsund Reflektionsspektren. Aus diesen Werten wurde der Brechungsindex des Glases in Abhängigkeit von der Wellenlänge berechnet. Die Ergebnisse der optischen Charakterisierung wurden mit einem Photospektrometer Lambda 1500 der Firma Perkin Elmer aufgenommen und sind in Abbildung 4.1 dargestellt.



Abb. 4.1.: Transmissions- und Reflektion und daraus berechneter Brechungsindex der verwendeten Gläser

Das Transmissionsspektrum zeigt ab einer Wellenlänge von ca. 300 nm eine Transmission von bis zu 90 % und entspricht somit einem üblichen eisenarmen Natronglasspektrum [32]. Die Reflektion ist mit einem Wert von unter 10 % gering. Der Brechungsindex der Gläser beträgt im photovoltaisch relevanten Wellenlängenbereich zwischen 300 und 1100 nm im Mittel 1,52.

## 4.2. Versuchsaufbau und -durchführung

#### 4.2.1. Verwendete Laserquellen

Um den Einfluss der Laserwellenlänge und unterschiedlicher Pulsdauern auf die Erzeugung von Brechungsindexunterschieden im Glasvolumen zu untersuchen, wurden in dieser Arbeit für die Bestrahlungsexperimente zwei verschiedene Ultrakurzpuls-Lasersysteme eingesetzt. Bei einem Lasersystem handelt es sich um einen Titan-Saphir Laser LEGEND der Firma Coherent. Dieses System emittiert Laserpulse von bis zu 3 mJ Energie bei einer Repetitionsrate von 1 kHz und einer Wellenlänge von 800 nm. Die Halbwertsbreite der Pulsdauer beim LEGEND beträgt 120 fs.

Als zweites Lasersystem wurde ein Yb:KGW-Laser PHAROS der Firma Light Conversion verwendet. Er ist in der Lage mit bis zu 200 kHz Repetitionsrate, Laserpulse bei

einer Wellenlänge von 1030 nm zu emittieren. Die Halbwertsbreite der Laserpulse beträgt bei diesem System ca. 270 fs. Im Rahmen dieser Arbeit wurde am PHAROS eine Repetitionsrate von 20 kHz für die Bestrahlungsexperimente eingestellt. Die Pulsdauern der Laserquellen wurden mit Hilfe einer Autokorrelation bestimmt. Der Fehler bei der Vermessung der Pulsdauern liegt auf Grund der verwendeten Messgeräte bei ca. 10 %.

Durch Frequenzkonversionen der Pharoslaserpulsen durch HIRO (ebenfalls Firma Light Conversion) ist es möglich, höhere Harmonische der Ausgangswellenlänge für die Bestrahlungsexperimente zu verwenden. Im Rahmen dieser Arbeit wurde die Frequenzverdopplung verwendet und somit die zweite Harmonische mit 515 nm Wellenlänge für die Bestrahlung der Glasproben genutzt. Eine Übersicht der verwendeten Lasersysteme inklusive einiger relevanter Parameter ist in Tabelle 4.2 zusammengefasst.

Parameter	Pharos	Legend
Emissionswellenlänge [nm]	1030 & 515 ( <b>HIRO</b> )	800
Pulsdauer [fs]	270	120
Repetitionsrate [kHz]	bis zu 200	1
max. Leistung [W]	6	5
max. Pulsenergie [mJ]	0,11	3

Tab. 4.2.: Übersicht verwendeter Laserquellen für die Bestrahlung der Glasproben

### 4.2.2. Bestrahlung der Glasproben

Für die Bestrahlung der Glasproben wurde der Laserstrahl über ein System aus Spiegeln bis zur Fokussieroptik gelenkt. Die Strahlformung geschah dabei über zwei Irisblenden, die einen großen Abstand zueinander haben. Durch die Fraunhofer-Beugung an der ersten Irisblende entsteht ein nahezu ideales Gaußprofil des Laserstrahls. Die zweite Blende wurde dazu verwendet nur die nahezu gaußförmige 0. Beugungsordnungen durchzulassen und höhere Ordnungen zu blockieren. Der eintreffende nahezu ideale Gaußstrahl wurde vor der Fokussieroptik durch ein Linsensystem aufgeweitet, um diese komplett auszuleuchten. Die Laserpulse wurden dabei entweder durch asphärische Linsen (AL) der Firma Thorlabs mit einer numerischen Apertur (NA) von 0,4; 0,5 oder einem Mikroskopobjektiv (MO) der Firma Carl Zeiss Jena mit einer NA von 0,65 in das 3,2 mm dicke Glasvolumen fokussiert. Im weiteren Verlauf dieser Arbeit werden die Fokussieroptiken mit einem Akronym aus den angegeben Abkürzungen der Linsentypen und ihrer numerischen Apertur bezeichnet (bspw. AL 0.4 für eine asphärische Linse mit einer numerischen Apertur von 0,4). Die verwendeten Fokussieroptiken sind über einer Kombination aus zwei motorisierten Piezo-Verschiebetischen mit einem Verfahrweg von jeweils 200 mm, einer maximalen Geschwindigkeit von 100 mm/s und einer Genauigkeit von 0,5 µm angebracht. Auf den Tischen
ist ein Vakuum-Chuck montiert, der zur Fixierung der Proben dient. Die Positionierung der fixierten Probe geschieht in der Ebene relativ zur Optik. Die Steuerung der Tische erfolgte über eine selbst geschriebene Software. Diese kann die für die Auskopplung der Laserpulse verantwortlichen Pockelszellen direkt ansteuern. Auf diese Weise ist es möglich die Verschiebetische über den PC mit dem Laser zu synchronisieren. Die Software öffnet elektronisch die Pockelszellen des Lasers, sobald sich die Verschiebetische mit der fixierten Probe für das Bestrahlungsexperiment bewegen. Durch eine festgelegte Verfahrgeschwindigkeit der Piezotische kann so der Abstand zwischen zwei Laserpulsen auf der Probe und somit der erzeugten Modifikationen zueinander im Glas eingestellt werden.

Der Fokus der verwendeten Optiken konnte manuell verändert werden, indem der Abstand zwischen Optik und Glasprobe mechanisch mit einer Mikrometerschraube verstellt wurde. Ein Foto des Bestrahlungsaufbaus mit einem Mikroskopobjektiv, den Piezo-Verschiebetischen und einem zu bestrahlenden Miniatur-Solarmodul ist in Abbildung 4.2 dargestellt.



Abb. 4.2.: Bestrahlungsaufbau: (1) zu bestrahlendes Miniaturmodul (alternativ Glasprobe) (2) Fokussieroptik (Mikroskopobjektiv oder Asphärische Linse) (3) Umlenkspiegel (3) computergesteuerter X-Y-Piezotisch mit Vakuumchuck zur Probenfixierung

Die genaue Einstellung der Laserpulsenergie erfolgte durch eine Kombination aus einem verstellbaren  $\lambda/2$ -Plättchen und einem Dünnschichtpolarisator im Brewster-Winkel. Das Plättchen konnte mit einer Genauigkeit von etwa 10<sup>-3</sup> Grad gedreht werden. Durch die

Rotation des  $\lambda/2$ -Plättchen wird die Polarisation des Laserlichts verändert. Der senkrecht polarisierte Anteil des Lichts wird anschließend am Dünnschichtpolarisator reflektiert. Der parallele Anteil wird transmittiert. Die Polarisation des Laserstrahls nach Passieren des Dünnschichtpolarisators ist also linear. Da auch an Linsen und Spiegeln Energieverluste auftreten, wurde die auf diese Weise eingestellte Laserpulsenergie hinter dem letzten optischen Bauelement mit einem pyroelektrischen Sensor der Firma Coherent gemessen. Die Laserpulsenergie konnte so mit einer Genauigkeit von ca. 3% bestimmt werden.

#### 4.2.3. Vermessung der Beugungseffizienzen

Für die Charakterisierung der Beugungseffizienzen und die Beleuchtung der hergestellten Phasengitter wurden Laserdioden mit Emissionswellenlängen von 405, 514, 635 und 785 nm verwendet. Diese vier Wellenlängen liegen im relevanten Wellenlängenbereich für die Silizium-Photovoltaik. Das monochromatische Licht wurde über isotropische optische Glasfasern ins Experiment geleitet und über eine entsprechende asphärische Linse kollimiert. Über ein zweiachsiges Positionierungssystem konnten die präparierten Glasproben fixiert und die relevanten Bereiche bestrahlt werden. Bei der Beleuchtung der Proben wurde darauf geachtet, dass die gleiche Intensität für p- und s-Polarisation in Bezug auf die Gitterausrichtung vorliegt. Der Lichteinfall verlief senkrecht zur Probenoberfläche. Ein durch monochromatische Beleuchtung der induzierten Phasengitter auftretendes Beugungsmuster ist in Abbildung 4.3 dargestellt.



Abb. 4.3.: Glasprobe, in die ein Phasengitter geschrieben wurde. Zu sehen ist das Beugungsmuster, welches bei der monochromatischen Beleuchtung der Gitters entsteht.

Die Intensität der Beugungsmaxima wurde mit einer CCD-Kamera der Firma Diagnostic Instruments (RT Monochrome) vermessen.

#### 4.2.4. Phasenkonstrastmikroskopie

Die Lichtmikroskopie beruht auf der Absorption von Licht in Materie. Bei der Absorption im Material wird die Amplitude bzw. die Intensität der einfallenden Lichtwelle verringert. Der entstehende optische Kontrast zwischen absorbierten und unbeeinflussten Lichtwellen wird zur Bildgebung genutzt.

Die meisten mikroskopischen Objekte in der Biologie oder der Medizin sind nahezu transparent und daher für das Lichtmikroskop unsichtbar. Ebenso wenig sind lokale Brechungsindexunterschiede in Gläsern unter normaler Mikroskopbeleuchtung sichtbar. Im Rahmen dieser Arbeit werden durch den von der Glasumgebung lokal abweichenden Brechungsindex die Phase der Lichtes je nach Dicke und Dichte verändert. Objekte, die bei Lichtdurchgang nur die Phase des Lichtes verändern, werden auch als Phasenobjekte bezeichnet.

Die im Rahmen dieser Arbeit induzierten erhöhten Brechzahlen bewirken eine Phasenverzögerung des Lichtes beim Durchqueren dieser Materialveränderungen. Dabei wird das Produkt aus geometrischer Weglänge und dem Brechungsindex (auch optische Weglänge genannt) vergrößert. Bei der Verzögerung der Phase wird die Lichtwelle abgebremst und es ist ein Gangunterschied (Phasenunterschied) zwischen der verzögerten und ungehindert passierenden Welle detektierbar. Um diesen Phasenunterschied und somit auch den induzierten Brechungsindexunterschieden Kontrast zu verleihen und sie sichtbar zu machen, muss der übliche Lichtmikroskopaufbau angepasst und erweitert werden.



Abb. 4.4.: Schema eines Lichtmikroskops im Phasenkontrastaufbau

Die Umwandlung von einem Phasen- in einen Amplitudenkontrast kann mit Hilfe eines Phasenkontrastmikroskops realisiert werden [89], indem das direkte nicht gebeugte Licht gegenüber dem gebeugten in der Phase verschoben und geschwächt wird. Ein Schema dieses Phasenkontrastaufbaus ist in Abbildung 4.4 dargestellt. In einem Phasenkontrastaufbau wird die Aperturblende durch eine Ringblende im Strahlengang ersetzt. Auf diese Weise wird gewährleistet, dass die Probe mit einem kegelförmigen Strahl beleuchtet wird. Das auf die Probe treffende Licht wird so in einen ungebeugten und gebeugten Anteil aufgeteilt. Der ungebeugte Anteil des Lichtes durchläuft in der hinteren Brennebene des Objektives eine weitere Ringfläche, die als Phasenring bezeichnet wird und den ungebeugten Anteil um -90° also  $\lambda/4$  phasenverzögert. Das gebeugte Licht verläuft überwiegend nicht durch den Phasenring und besitzt durch die Beugung in der Probe eine Phasenverschiebung von  $\lambda/4$ . Durch eine geeignete Kombination aus Ringblende und Phasenring im verwendeten Objektiv wird das Licht, welches die laserinduzierten Brechungsindexunterschiede im Glas durchquert, im Vergleich zum ungehindert passierenden Licht um  $\lambda/2$ phasenverzögert und interferiert destruktiv in der Bildebene. Je nach Art des Phasenringes (Drehung des ungebeugten Lichtanteils um + oder - 90°) können sowohl positive als auch negative Phasenkontraste erzielt werden [90].

Im Rahmen dieser Arbeit wurde das Mikroskop Olympus BX-61 um die notwendigen Elemente für den Phasenkontrastmodus wie Ringblende und Objektiv mit Phasenring erweitert. Der Phasenunterschied zwischen direktem und gebeugtem Licht beträgt + 90°, sodass die Bereiche mit höherem Brechungsindex im Vergleich zur Umgebung heller erscheinen.

# KAPITEL 5 : Numerische Studien zu Strukturparametern einfacher Phasengitter

In diesem Kapitel werden Ergebnisse numerischer Studien zu einfachen Phasengittern präsentiert. Die Rechnungen wurden mit dem in Kapitel 3.2 beschriebenen Softwarepaket S4 durchgeführt. Die Vorgehensweise bei der Simulation auf Grundlage der RCWA-Theorie ist die Definition einer Einheitszelle in zwei Dimensionen mit periodischen Randbedingungen. Daher berechnet die Simulationssoftware Ergebnisse für Gitter mit unendlicher Breite. Dabei wird im Folgenden vor allem auf simulationsrelevante Parameter wie Gitterperiode, Gitterlinienbreite, Brechungsindexunterschied, Strukturlänge der Phasengitter sowie auf die Wellenlänge des eingestrahlten Lichtes eingegangen und deren Einfluss auf die Beugungseffizienz der Gitter erläutert. Ziel des Kapitels ist es, anhand der präsentierten Rechnungen einen Satz von Strukturparametern für einfache Phasengitter zu finden, der maximale Beugungseffizienzen in höhere Beugungsordnungen gewährleistet.

Als Beugungseffizienz der Phasengitter  $\eta_D(\lambda)$  wird in dieser Arbeit die auf die Intensität des eingestrahlten Lichtes  $I_0(\lambda)$  normierte Summe aller gebeugten Intensitäten  $I^{mth}(\lambda)$ mit Ausnahme der 0. Beugungsordnung definiert. Die entsprechende Beugungsordnung wird mit m bezeichnet, sodass sich folgender Zusammenhang ergibt:

$$\eta_D(\lambda) = \frac{\sum\limits_{n>0} I^{mth}(\lambda)}{I_0(\lambda)}$$
(5.1)

Die summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  gibt also an, welcher Prozentsatz der Ausgangsintensität des monochromatisch eingestrahlten Lichtes durch das Phasengitter in höhere Beugungsordnungen gebeugt werden kann. Die Reflektion aller berechneten Gitter befindet sich in einer Größenordnung von  $10^{-8}$ , sodass sie im Folgenden vernachlässigt werden kann.

In Abbildung 5.1 ist eine schematische Darstellung eines einfachen Phasengitters zu sehen. Das Gitter kann dabei mit folgenden Parametern beschrieben werden: Gitterperiode a, Gitterlinienbreite b, Brechungsindex des unbehandelten Glases  $n_1$ , lokal erhöhter Brechungsindex des bestrahlten Glases  $n_2$ , Strukturlänge des Gitters l und Wellenlänge des eingestrahlten Lichts  $\lambda$ . Nachfolgend wird die Differenz der Brechungsindizes zwischen behandeltem und unbehandeltem Glas  $n_2 - n_1$  als Brechungsindexunterschied  $\Delta n$  bezeichnet.

Um die Grenzen der Parameter für die Simulationen abschätzen zu können, sind einige Anforderungen zu berücksichtigen, die sich aus der Problemstellung dieser Arbeit ergeben.

Für die angestrebte Anwendung der Phasengitter als lichtleitende Strukturen in Solarmodulen kann nur dann optimale Funktionalität gewährleistet werden, wenn bereits der Beugungswinkel für die 1. Beugungsordnung groß genug ist, um das senkrecht einfallende Licht vollständig um die Kontaktfinger zu leiten. Nimmt man eine typische Fingerbreite von 70 µm und einen vertikalen Abstand des Gitters zum Finger von 2 mm (d.h. das Gitter wurde 1 mm unter der Glasoberfläche erzeugt) an, so beträgt der für die Anwendung minimal benötigte Beugungswinkel 2,0°. Ein Beugungsgitter mit 8 µm Gitterperiode erfüllt diese Bedingung mit einem Beugungswinkel für die erste Ordnung von 2,14° selbst bei der niedrigsten für die Silizium-Photovoltaik relevanten Wellenlänge von 300 nm. Dieser Wert wird daher für nachfolgende Rechnungen als Maximalwert für die Gitterperiode gewählt.



Abb. 5.1.: Schema eines einfachen Phasengitters inklusive der für die numerischen Rechnungen verwendeten Parameter

Im Hinblick auf die experimentelle Umsetzung der Laserbehandlung sind hohe Schreibgeschwindigkeiten vorteilhaft. Eine Erhöhung der Schreibraten ins Glasvolumen ist möglich, wenn weniger Gitterlinien pro bearbeiteter Fläche geschrieben werden. Dies bedeutet eine Präferenz für gröbere Beugungsgitter, wenn mit diesen vergleichbare Beugungseffizienzen erreicht werden können.

Als Ausgangspunkt für die Grenzen der Parameter Strukturlänge und Brechungsindexun-

terschied dient die Recherche von Arbeiten anderer Autoren auf dem Gebiet der fs-Laser Glasbearbeitung. Durch die Bestrahlung von Quarzglas mit fs-Laserpulsen konnten Hashimoto et al. ein Brechungsindexunterschied von 0,03 ins Glasvolumen induzieren [91]. In der Literatur finden sich weitere Gruppen, die ähnliche Werte erzielen konnten [30, 92]. Aus diesem Grund wird ein Brechungsindexunterschied von  $\Delta n = 0,03$  für die folgenden Rechnungen als obere Grenze gewählt.

In der Literatur findet man für die Laserbestrahlung je nach gewählten Parametern eine große Bandbreite von dabei erzielten Strukturlängen bis zu einem Maximalwert von ca. 600 µm [3, 93, 94]. Dieser Wert wird daher für die ersten nachfolgend diskutierten Rechnungen als Maximalwert zugrunde gelegt.

Innerhalb dieser Grenzen ist die summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  eines Gitters mit gebräuchlichen Werten für Gitterperiode a von 6 µm, Gitterlinienbreite b von 3 µm (also ca. 160 Gitterlinien pro mm) bei einfallendem Licht mit 700 nm Wellenlänge in Abhängigkeit der Strukturlänge l und dem induzierten Brechungsindex  $\Delta n$  in Abbildung 5.2 dargestellt. Das Farbschema für  $\eta_D$  ist als Legende auf der rechten Seite des Bildes angegeben.

Da der Brechungsindex  $n_1$  des unbehandelten Glases durch Transmissions- und Reflektionsmessungen (Kapitel 4.1) im entsprechenden Wellenlängenbereich im Mittel zu 1,52 bestimmt werden konnte, bedeutet ein Brechungsindexunterschied von 0,03 einen lokal erhöhten Brechungsindex von 1,55 im Material ( $\Delta n = n_2 - n_1$ ).



Abb. 5.2.: Summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  eines Phasengitters mit Gitterperiode a = 6 µm, Gitterlinienbreite b = 3 µm in Abhängigkeit des Brechungsindexunterschiedes  $\Delta n$  und der Strukturlänge l bei senkrecht einfallendem Licht mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 700$  nm

Der für die Silizium-Photovoltaik energetisch nutzbare und somit interessante Wellenlängenbereich erstreckt sich von 300 bis 1100 nm. Für einen ersten Überblick wurde für die präsentierte Rechnung eine Wellenlänge von 700 nm gewählt, da sich Photonen mit dieser Energie genau mittig in diesem Intervall befinden. In dieser Arbeit werden Phasengitterparameter vorerst für den senkrechten Lichteinfall optimiert. Der Einfallswinkel des eingestrahlten Lichtes beträgt daher in den Rechnungen 0°. Jede Simulation wurde für pund s-polarisiertes Licht durchgeführt. Die Resultate wurden summiert und anschließend gemittelt.

Die Simulationsergebnisse zeigen, dass insgesamt eine Beugungseffizienz von bis zu 100 % in höhere Ordnungen erreicht werden kann, wenn geeignete Parameter für Strukturlänge und Brechungsindexunterschied gewählt werden. Die 0. Beugungsordnung wird also vollständig unterdrückt und das monochromatisch einfallende Licht mit einer Wellenlänge von 700 nm vollständig in höhere Beugungsordnungen umgeleitet. Weiterhin kann in Abbildung 5.2 beobachtet werden, dass sich ein erhöhter Brechungsindexunterschied vorteilhaft auf die Beugungseffizienz des Gitters auswirkt.  $\eta_D$  steigt bis ca.  $\Delta n = 0,015$  an und sättigt bei höheren Werten des Brechungsindexunterschiedes ( $\Delta n > 0,02$ ) ab.

Zusätzlich ist ein periodisches Verhalten von  $\eta_D$  mit wachsender Strukturlänge zu beobachten. Qualitativ kann dies damit erklärt werden, dass eine Phasenverzögerung des sich ausbreitenden Lichtes auf dem Weg durch das Gitter auftritt. Licht, welches im oberen Teil des Gitters gebeugt wird, interferiert mit dem unten im Gitter gebeugten Licht je nach Länge des Phasengitters, also der Größe der Phasenverzögerung, konstruktiv oder destruktiv. Wird das einfallende Licht im unteren Teil des modifizierten Bereiches im Vergleich zum im oberen Gitterabschnitt gebeugten Licht um  $\frac{\lambda}{2}$  phasenverzögert, findet destruktive Interferenz statt und eine Beugung in höhere Ordnungen wird unterdrückt. Dieser Effekt hat einen starken Einfluss auf das Design von Phasengittern, da geeignete Strukturlängen gewählt werden müssen, bei denen die Beugungseffizienz  $\eta_D$  maximal wird. Es ist weiterhin festzustellen, dass größere Werte für die Strukturlänge bei festem Brechungsindexunterschied keinen positiven Effekt auf die maximale Beugungseffizienz haben. Deshalb wird in folgenden Rechnungen die Strukturlänge nur in einem Bereich zwischen 0 und 200 µm betrachtet, während der Bereich für den Brechungsindexunterschied auf Grund der oben geführten Argumentation auf einen maximalen Wert von 0,02 begrenzt wird.

Im folgenden Abschnitt wird der Einfluss der Gitterperiode auf die summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  präsentiert. Nachdem physikalisch motivierte Grenzen für die Simulationsparameter l und  $\Delta n$  abgeschätzt und festgelegt wurden, wurden Rechnungen für symmetrische Phasengitter mit unterschiedlichen Gitterperioden und Gitterlinienbreiten durchgeführt. Als symmetrisch werden Phasengitter bezeichnet, bei denen die Gitterperiode a dem Doppelten der Gitterlinienbreite b entspricht. Die Ergebnisse der Simulationen mit Gitterperioden von 4, 6 und 8 µm und entsprechenden Gitterlinienbreiten sind in Abbildung 5.3 zusammengefasst. Für das einfallende Licht wurden wiederum 0° Einfallswinkel bei einer Wellenlänge von  $\lambda = 700 \ nm$  gewählt. Das Farbschema für  $\eta_D$  ist als Legende auf der rechten Seite des Bildes angegeben.

Beim Vergleich der drei dargestellten Abbildungen wird deutlich, dass sich eine steigende Gitterperiode positiv auf die resultierende Beugungseffizienz  $\eta_D$  auswirkt. Während bei einer Gitterperiode von 4 µm (siehe Abb. 5.3 (1)) maximal 56 % des einfallenden Lichtes in höhere Ordnungen gebeugt werden kann, steigt dieser Wert bei einer Periode von 8 µm auf 100 % an (Abb. 5.3 (3)).



Abb. 5.3.: Summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  symmetrischer Phasengitter mit unterschiedlichen Gitterperioden a bei senkrecht einfallendem Licht mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 700$  nm (1) a = 4 µm b = 2 µm (2) a = 6 µm b = 3 µm (3) a = 8 µm b = 4 µm

Weiterhin ist erkennbar, dass die Bereiche hoher Effizienz mit steigender Gitterperiode breiter werden. Geringe Abweichungen in der Strukturlänge innerhalb dieser Bereiche führen nur zu geringen Abweichungen in der Effizienz. Im Hinblick auf die Anwendung und das Laserschreiben der Phasengitter ins Glasvolumen, ist ein breiter Bereich hoher Effizienzen vorteilhaft. Die Periodizität von  $\eta_D$  mit der Strukturlänge und der positive Effekt eines erhöhten Brechungsindexunterschiedes auf die Effizienz ist wiederholt zu beobachten.

Bisher wurden in diesem Kapitel Rechnungen zu symmetrischen Gittern (a = 2b) durchgeführt und präsentiert. Im Folgenden wird daher der Einfluss der Gitterlinienbreite b und somit asymmetrischer Phasengitter genauer betrachtet. Im vorherigen Abschnitt konnte festgestellt werden, dass eine Gitterperiode von 8 µm die für die geplante Anwendung optimalen Effizienzen liefern kann, wenn geeignete Parameter wie Brechungsindexunterschied und Strukturlänge gewählt werden (siehe Abb. 5.3 (3)). Vom symmetrischen Gitterdesign wird nun abgewichen, indem die Gitterlinienbreite bei fester Gitterperiode von 8 µm variiert wird. Unterschiedliche Gitterlinienbreiten b von 2, 3 und 4 µm bei einer Gitterperiode a von 8 µm sind in Abbildung 5.4 dargestellt. Ein Einfallswinkel des Lichtes von 0° bei einer Wellenlänge von 700 nm wird beibehalten. In der Darstellung ist zu erkennen, dass die Gitterlinienbreite bei fester Gitterperiode kaum Einfluss auf die summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  hat. Die Werte für  $\eta_D$  in den drei betrachteten Fällen ändern sich nur wenig. Außerdem ist nur ein minimaler Unterschied im Verlauf der Flächen hoher Beugungseffizienzen in der Konturdarstellung zu beobachten. Der Einfluss der Gitterlinienbreite ist bei geringen Brechungsindexunterschieden am deutlichsten zu erkennen. Bei einem Unterschied der Brechzahlen von  $\Delta n = 0,004$  verschiebt sich der Bereich hoher Effizienzen von einem Strukturlängenbereich 60 - 170 µm bei 2 µm Gitterlinienbreite (Abb. 5.3 (1)) zu 40 - 140 µm bei 4 µm (Abb. 5.3 (3)). Für alle Gitterlinienbreiten von 2 - 4 µm können Effizienzen von bis zu 100 % erreicht werden, wenn geeignete Werte für Brechungsindexunterschied und Strukturlänge gewählt werden. Im Vergleich zu den bereits betrachteten Strukturparametern Gitterperiode, Brechungsindexunterschied und Strukturlänge ist die Abhängigkeit der Phasengitterbeugungseffizienzen  $\eta_D$  von der Gitterlinienbreite gering.



Abb. 5.4.: Summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  asymmetrischer Gitter mit einer Gitterperiode von a = 8 µm und unterschiedlichen Gitterlinienbreiten b bei senkrecht einfallendem Licht mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 700$  nm (1) b = 2 µm (2) b = 3 µm (3) b = 4 µm

Um einen Überblick über die Beugungseffizienz der Phasengitter im gesamten für die Silizium-Photovoltaik energetisch nutzbaren Wellenlängenbereich von 300 bis 1100 nm zu bekommen, wurden die bisher präsentierten Ergebnissen für 700 nm Wellenlänge um Rechnungen für 300 und 1100 nm ergänzt. Die Berechnungen wurden für ein Phasengitter mit einer Gitterperiode 8 µm und einer Gitterlinienbreite von 4 µm durchgeführt, da mit diesem Gitterdesign mit 700 nm die höchsten Effizienzen erzielt werden konnten (vergleiche Abb. 5.3 (3)). Der Lichteinfall wurde wie in allen bisher präsentierten Ergebnissen senkrecht gewählt. Der Einfluss der Wellenlänge des einfallenden Lichtes auf die Beugungseffizienz  $\eta_D$  eines einfachen Phasengitters ist in Abbildung 5.5 dargestellt. Bis zu 100 % Beugungseffizienz kann bei geeigneter Parameterwahl erreicht werden, wenn Licht mit 300 nm Wellenlänge auf das betrachtete Phasengitter trifft (Abbildung 5.5 (1)).

Licht mit 300 nm Wellenlänge auf das betrachtete Phasengitter trifft (Abbildung 5.5 (1)). Beträgt die Wellenlänge 1100 nm, ist es nicht möglich, mehr als 75 % des einfallenden Lichtes in höhere Ordnungen zu beugen (Abbildung 5.5 (2)). Die Effizienz  $\eta_D$  des betrachteten Gitterdesigns sinkt signifikant mit steigender Wellenlänge.



Abb. 5.5.: Summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  eines Gitters mit Gitterperiode von 8 µm, Gitterlinienbreite von 4 µm bei senkrecht einfallendem Licht mit einer Wellenlänge von  $\lambda = (1)$  300 und (2) 1100 nm

Ein Vergleich mit der Effizienz  $\eta_D$  bei einer Wellenlänge von 700 nm und ansonsten konstanten Gitterparametern (siehe Abbildung 5.4 (3)) bestätigt diesen Trend und ermöglicht einen guten Überblick über die Leistungsfähigkeit eines einfachen Phasengitters im gesamten photovoltaisch relevanten Wellenlängenbereich.

Da sich sowohl die maximalen Beugungseffizienzen  $\eta_D$  als auch deren Verlauf mit steigender Strukturlänge bei unterschiedlichen Wellenlängen stark voneinander unterscheiden, muss für eine im Hinblick auf die photovoltaische Anwendung sinnvolle Diskussion an dieser Stelle eine spektrale Größe definiert werden.

Die spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  wird in dieser Arbeit als Integral aller summierten Beugungsordnungen  $\eta_D$  (siehe Gleichung (5.1)) im Wellenlängenbereich 300 bis 1100 nm definiert.

$$\eta_{PV} = \frac{1}{R} \int_{300nm}^{1100nm} \eta_D(\lambda) \ d\lambda \quad \text{mit} \quad R = \int_{300nm}^{1100nm} d\lambda \tag{5.2}$$

Mit Hilfe dieser spektralen Beugungseffizienz ist es möglich, die mittlere Leistungsfähigkeit eines Satzes von Strukturparametern im Wellenlängenbereich 300 bis 1100 nm darstellen und beurteilen zu können. Durch eine spektral gemittelte Betrachtung der Beugungseffizienzen kann so schnell ein Überblick zu den jeweils verwendeten Strukturparametern gewonnen werden. An dieser Stelle wird vorerst auf den Bezug zum realen Sonnenspektrum AM1.5G verzichtet. Eine Untersuchung der Leistungsfähigkeit der Beugungsstrukturen bei Beleuchtung mit dem Sonnenspektrum wird in Kapitel 8 untersucht.

Um die Ergebnisse aus Abbildung 5.5 zusammenzufassen, wurde die integrierte spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  eines einfachen Phasengitters mit einer Gitterperiode von 8 µm und einer Gitterlinienbreite von 4 µm berechnet und in Abbildung 5.6 dargestellt.



Abb. 5.6.: Spektrale Beugungseffizien<br/>z $\eta_{PV}$ eines Gitters mit Gitterperiode von 8 µm und Gitterlinien<br/>breite von 4 µm bei senkrecht einfallendem Licht und einem Wellenlängenber<br/>eich von  $\lambda = 300$  bis 1100 nm

Mit dem in diesem Kapitel gefundenen optimalen Satz von Strukturparametern für einfache Phasengitter (Gitterperiode 8 µm und Gitterlinienbreite 4 µm) kann im spektralen Mittel im Wellenlängenbereich zwischen 300 und 1100 nm eine Effizienz  $\eta_{PV}$  von bis zu 75 % erreicht werden. In den am Anfang des Kapitels physikalisch motivierten Grenzen für Brechungsindexunterschied und Strukturlänge ist dies der nach unseren Rechnungen das effektivste Design eines einfachen Phasengitters. Der Bereich hoher Effizienz befindet sich in einem Strukturlängenbereich zwischen ca. 20 bis 80 µm je nachdem welcher Wert für den Brechungsindexunterschied betrachtet wird. Eine Erhöhung von  $\Delta n$  bewirkt einen Anstieg der Effizienz.

# KAPITEL 6 : Bestimmung der experimentell erreichbaren Strukturparameter

Die als Ergebnis des dynamischen Gleichgewichts zwischen Selbstfokussierung durch den Kerr-Effekt und Defokussierung durch das bei der Laserbestrahlung erzeugte Elektronenplasma auftretenden Filamente können genutzt werden, um strukturelle Veränderungen in weitaus größeren Dimensionen als der Rayleighlänge des Laserstrahls im Glas zu generieren (siehe Kapitel 2). Mit welchen experimentellen Limitierungen diese Mikrostrukturen im Glasvolumen erzeugt und welche Strukturparameter für die Anfertigung von Phasengittern damit erreicht werden können, wird in diesem Kapitel dargestellt. Beginnend mit der Positionierbarkeit der Strukturen im Glasvolumen wird im Laufe des Kapitels auf den Einfluss der verwendeten Laserwellenlänge, der eingestrahlten Laserpulsenergie und der verwendeten Fokussieroptiken eingegangen und die präsentierten Ergebnisse diskutiert. Abschließend werden die in Kapitel 5 beschriebenen Simulationsergebnisse für einfache Phasengitter experimentell validiert. Hierfür wurden Phasengitter mit den entsprechenden Parametern hergestellt und charakterisiert.

## 6.1. Positionierbarkeit der optischen Mikrostrukturen im Glasvolumen

Für das Laserschreiben komplexer Gitterstrukturen ist eine genaue Kontrolle der Strukturparameter und eine präzise Positionierung im Glas notwendig. Auf die genaue Positionierbarkeit innerhalb des Glasvolumens wird in diesem Kapitel eingegangen.

Der Aufbau zur Bestrahlung der Glasproben wurde bereits in Kapitel 4.2.2 beschrieben. Die verwendeten Fokussieroptiken sind über einer Kombination aus zwei Piezo-Verschiebetischen mit einem Verfahrweg von jeweils 200 mm und einer Genauigkeit von 0,5 µm angebracht. Nach der Fixierung der gewöhnlicherweise 50 x 50 mm großen Gläser kann die Positionierung der Probe in der Ebene relativ zur Optik ohne Einschränkungen durchgeführt werden.

Für die Untersuchung der Tiefeneinstellbarkeit der Modifikationen im Glasvolumen wurde der Fokus der verwendeten Optiken von der Glasoberfläche aus manuell bis zur Rückseite

verschoben, indem der Abstand zwischen Optik und Glasprobe mechanisch mit einer Mikrometerschraube verstellt wurde. Für jeden eingestellten Fokuswert wurden Bestrahlungen mit den drei verwendeten Fokussieroptiken im Glas vorgenommen und anschließend der Beginn der modifizierten Bereiche im Phasenkontrastmikroskop vermessen. Die Bestrahlungen wurden mit dem Pharos-Laser bei einer Wellenlänge von 1030 nm und einer Pulsenergie von 5 µJ durchgeführt. In Abbildung 6.1 sind die Ergebnisse dieser Messungen zusammengefasst. Der ermittelte Modifikationsbeginn im Glasvolumen ist in Abhängigkeit der eingestellten Modifikationstiefe (relativ zur Glasoberfläche) aufgetragen.



Abb. 6.1.: Tiefeneinstellbarkeit der Modifikationen im Glasvolumen, durchgeführt mit verschiedenen Fokussieroptiken bei einer Laserwellenlänge von 1030 nm und 5 µJ Pulsenergie

Der relative Abstand der Modifikationen zur Probenoberfläche kann genau kontrolliert werden. Der Zusammenhang zwischen eingestelltem und gemessenem Modifikationsbeginn ist wie in Abbildung 6.1 sichtbar linear. Für die Analyse wurden lineare Anpassungen vorgenommen, die auf Grund der Übersichtlichkeit in der zusammenfassenden Abbildung nicht dargestellt sind. Der Anstieg der linearen Regressionen beträgt bei allen genutzten Optiken  $1,5 \pm 0,1$ . Der im Phasenkontrastmikroskop gemessene Modifikationsbeginn ist im Vergleich zur eingestellten Modifikationstiefe um diesen Faktor verschoben, da sich der Lichtweg des fokussierten Lasers beim Durchgang durch das Probenvolumen auf Grund des Brechungsindexes des Glases verlängert. Der gemessene Anstieg der linearen Regression ist in guter Übereinstimmung mit dem ermittelten Brechungsindex des verwendeten Glases (siehe Kapitel 4.1). Alle verwendeten Optiken zeigen eine identische Tiefeneinstellbarkeit. Die Positionierung in der Tiefe wird bei den Optiken MO\_0.65 und AL\_0.5 lediglich durch ihre Arbeitsabstände limitiert. Bei einer weiteren Erhöhung der Tiefe würde es zum Kontakt zwischen Optik und Probe kommen. Aus diesem Grund sind

bei den Vermessungen dieser Optiken nur beschränkte Modifikationstiefen eingestellt worden. Im Hinblick auf die Anwendung der optischen Mikrostrukturen in Deckgläsern von Solarmodulen wird eine oberflächennahe Erzeugung auf Grund des vertikalen Abstands zum Absorbermaterial präferiert, sodass die erwähnten Beschränkungen auf Grund des Arbeitsabstandes nicht relevant sind. Die Positionierung der optischen Mikrostrukturen im Glasvolumen in der Ebene und beliebigen Tiefen kann im Rahmen dieser Arbeit also ohne Einschränkungen durchgeführt werden.

An dieser Stelle wird auf die Zusammenfassung der Messungen mit anderen Laserwellenlängen verzichtet, da bei der Tiefeneinstellbarkeit in der Probe identische Zusammenhänge festgestellt werden konnten, wenn die Laserbestrahlung mit 515, 800 und 1030 nm vorgenommen wurde.

Obwohl die Pulsenergie bei den dargestellten Bestrahlungsexperimenten mit 5 µJ konstant war, konnte eine Vergrößerung der Filamentlänge bei zunehmender Tiefe im Glas beobachtet werden. Die Position des Modifikationsbeginns bleibt davon unbeeinflusst. Verantwortlich für diese Beobachtung ist die sphärische Aberration beim Übergang des fokussierten Laserstrahls an der Grenzfläche von Luft in Glas. Die Fokusposition zwischen paraxialen und achsenfernen Strahlen ist nicht identisch, sodass die tiefenabhängige sphärische Aberration zu einem longitudinal verlängerten Fokus entlang der Laserbestrahlungsrichtung führt. Alle im Folgenden erzeugten Filamente wurden in einer maximalen Tiefe von 1 mm unter der Glasoberfläche geschrieben und die sphärische Aberration entsprechend berücksichtigt, sodass die nun präsentierten pulsenergieabhängigen Modifikationslängen vergleichbar sind.

# 6.2. Abhängigkeit der erzeugten Modifikationslänge von der Laserpulsenergie und -wellenlänge

Nachdem die präzise Positionierbarkeit der Strukturen im Glasvolumen durchgeführt werden kann, wird nun in diesem Abschnitt der Einfluss der verwendeten Laserwellenlänge, der eingestrahlten Laserpulsenergie und der verwendeten Fokussieroptik erläutert. Bei der Bestrahlung mit unterschiedlichen Wellenlängen konnte beobachtet werden, dass sich die erzeugte Modifikationslänge durch Variation der eingestrahlten Pulsenergie ändert. Eine Seitenansicht einzelner Filamente im Glas in Abhängigkeit von der eingestrahlten Laserpulsenergie ist als Lichtmikroskopaufnahme im Phasenkontrastmodus in Abbildung 6.2 dargestellt. Die modifizierten Bereiche mit lokal erhöhtem Brechungsindex erscheinen auf Grund der Phasenverzögerung im Phasenkontrast heller (siehe Kapitel 4.2.4) und wurden ca. 1 mm unter der Glasoberfläche mit einer Wellenlänge von 1030 nm erzeugt. Die Bestrahlungsrichtung des Lasers und seine Fokussierung sind schematisch eingezeichnet. Die eingestrahlte Pulsenergie wurde im Bild von links nach rechts verringert. Da der eingestellte Fokus konstant bleibt, beginnen alle Modifikation in derselben Tiefe. Zu beobachten ist, dass die resultierende Modifikationslänge mit kleinerer Pulsenergie sinkt. In den folgenden Kapiteln wird der Einfluss der eingestrahlten Laser-Wellenlänge, der Pulsenergie und der verwendeten Fokussieroptik genauer untersucht. Im Anschluss findet eine Diskussion der Ergebnisse statt.



Abb. 6.2.: Lichtmikroskopaufnahme im Phasenkontrastmodus einer Seitenansicht von Modifikationen im Glasvolumen erzeugt mit einer Laserwellenlänge von 1030 nm bei unterschiedlichen Pulsenergien (abnehmend von links nach rechts)

#### 6.2.1. Materialmodifizierung durch Bestrahlung mit 515 nm

Die Seitenansicht in Abbildung 6.2 belegt bereits, dass sich die erzeugte Modifikationslänge mit der Laserpulsenergie ändert. Die erzeugten Filamente sind spheroidaler Form. Der Durchmesser beträgt unabhängig von der Energie und verwendeten Fokussieroptik 2 - 3 µm. Um die Energieabhängigkeit der Modifikationslängen genauer zu untersuchen, wurde bei der Bestrahlung mit dem Pharos-Laser ( $\tau_{puls} = 270 fs$ ) in Kombination mit einer Frequenzverdopplung durch das HIRO-System bei einer Wellenlänge von 515 nm und drei verschiedenen Fokussieroptiken die eingestrahlte Pulsenergie verändert und die resultierende Länge der Filamente im Phasenkontrastmikroskop vermessen. Die ermittelten Zusammenhänge sind in Abbildung 6.3 zusammengefasst.

Die Länge der Modifikationen kann in einer Tiefe von ca. 650 µm im Glas zwischen 25 und 180 µm verändert werden, indem die Pulsenergie zwischen 0,8 und 5 µJ variiert wird. Der Messfehler für die eingestellte Pulsenergie beträgt dabei ca. 3 %. Der Fehler bei der Vermessung der Modifikationslängen wurde mit  $\pm$  5 µm angenommen und ist im Diagramm eingezeichnet.

Der Verlauf ist für alle verwendeten Optiken qualitativ gleich. Mit Erhöhung der Pulsenergie wächst die Filamentlänge zunächst mit unterschiedlichem Anstieg an, bis sie sich einem Maximalwert annähert. Bei zwei der verwendeten Optiken (AL\_0.5 und MO\_0.65) ist ein Sprung der Längen bei 2,5 µJ von 50 auf 140 bzw. 160 µm zu erkennen. Die kleinsten mit dem Phasenkontrastmikroskop vermessbaren Filamente sind 25 µm groß und wurden mit AL\_0.4 und 0,8 µJ Pulsenergie erzeugt. Die Modifikationsschwelle zur Erzeugung stabiler Brechungsindexunterschiede mit einem einzelnen fs-Laserpuls liegt abhängig von der verwendeten Fokussieroptik zwischen 0,8 und 1 µJ. Dieser Wert weicht etwas von der kritischen Energie ab, die für die Selbstfokussierung des eingestrahlten Laserpulses in Natronglas notwendig ist ( $E_{kr}$ (515nm, 270fs)=0,26 µJ, Gleichung (2.19)). Eine mögliche Erklärung liegt in der Aufweitung des Laserpulses durch die sphärische Abberation. Durch die Aufweitung ist mehr Energie notwendig, um eine Selbstfokussierung des Laserpulses zu erreichen. Es ist Eine Sättigung der Filamentlänge setzt abhängig von 90 - 100 bzw. 180 µm ein. Eine weitere Erhöhung der Pulsenergie hat keinen Einfluss auf die erzeugte Länge der Filamente.



Abb. 6.3.: Erzeugte Modifikationslänge im Glasvolumen in Abhängigkeit der eingestrahlten Pulsenergie und der verwendeten Fokussieroptik bei einer Laserwellenlänge von 515 nm

Während also die kleinsten Modifikationslängen von 25  $\mu$ m mit der asphärischen Linse AL\_0.4 erzeugt werden konnten, beträgt die maximale Länge 180  $\mu$ m, wenn mit dem Mikroskopobjektiv MO\_0.65 bestrahlt wird.

#### 6.2.2. Materialmodifizierung durch Bestrahlung mit 800 nm

Analog zu den Experimenten mit 515 nm wurden bei der Bestrahlung mit dem Legend-Laser ( $\tau_{puls} = 120 fs$ ) bei einer Wellenlänge von 800 nm drei verschiedene Fokussieroptiken verwendet und die eingestrahlte Pulsenergie verändert. Die resultierende Länge der Filamente im Glasvolumen wurde im Phasenkontrastmikroskop vermessen und ist in Abhängigkeit von der eingestrahlten Pulsenergie in Abbildung 6.4 dargestellt.

Es ist ein Anwachsen der Modifikationslänge mit unterschiedlichem Anstieg bei steigender Pulsenergie zu beobachten. Eine Sättigung tritt unabhängig von der verwendeten Fokussierung bei ca. 10 µJ ein. Die dabei erreichten maximalen Längen unterscheiden sich je nach verwendeter Fokussieroptik. Während mit MO\_0.65 maximal 300 µm lange Modifikationen erzeugt werden können, beträgt der Wert für AL\_0.4 und AL\_0.5 ca. 150 µm. Die kleinste vermessbare Modifikation ist 50 µm groß und wurde bei der Bestrahlung mit den asphärischen Linsen erzeugt. Der Energieschwellwert für die Erzeugung von Filamenten im Glasvolumen liegt abhängig von der Fokussieroptik zwischen 1 und 1,5 µJ und weicht damit etwas von der für Kalknatronglas berechneten kritischen Pulsenergie für die Selbstfokussierung  $E_{kr}(800nm, 120fs)=0.27 \mu J$  (Gleichung (2.19) ab. Eine mögliche Ursache liegt in der bereits angesprochen Aufweitung des Laserstrahls an der Grenzfläche von Luft zu Glas.

Bei der Bestrahlung mit dem Legend-Laser und 800 nm Wellenlänge treten schon bei geringen Pulsenergien Risse entlang der Filamente auf. Beispielhaft ist in Abbildung 6.5 eine Seitenansicht von einzelnen Modifikationen mit Rissen dargestellt, die mit 8,5  $\mu$ J Pulsenergie und dem Objektiv MO\_0.65 erzeugt wurden.

Der Energiebereich für eine rissfreie Laserbearbeitung mit 800 nm Wellenlänge liegt je nach genutzter Apertur zwischen 1 und 1,5 µJ. Bei der Verwendung von AL\_0.5 sind selbst bei der Bestrahlung mit geringeren Energien, Risse zu beobachten. Das Prozessfenster für eine rissfreie Modifikation ist sehr schmal und ermöglicht maximale Filamentlängen von 50 µm. Ein potentieller Einfluss der Rissbildung auf die mechanische Stabilität des Glases kann nicht ausgeschlossen werden. Im Hinblick auf die Anwendung kann die Bestrahlung mit 800 nm Wellenlänge und einer Pulsdauer von 120 fs aus diesen Gründen nicht für die beabsichtigte Herstellung von Phasengittern im Deckglasvolumen Solarmodulen verwendet werden.



Abb. 6.4.: Erzeugte Modifikationslänge im Glasvolumen in Abhängigkeit der eingestrahlten Pulsenergie und der verwendeten Fokussieroptik bei einer Laserwellenlänge von 800 nm



Abb. 6.5.: Lichtmikroskopaufnahme im Phasenkontrastmodus einer Seitenansicht von Modifikationen mit Rissen im Glasvolumen erzeugt mit einer Laserwellenlänge von 800 nm, 8,5  $\mu$ J Pulsenergie und Fokussieroptik MO\_0.65

#### 6.2.3. Materialmodifizierung durch Bestrahlung mit 1030 nm

Analog zu den Experimenten mit 515 und 800 nm wurden bei der Bestrahlung mit dem Pharos-Laser bei einer Wellenlänge von 1030 nm drei verschiedene Fokussieroptiken verwendet und die eingestrahlte Pulsenergie verändert sowie die erzeugte Filamentlänge im Glasvolumen im Phasenkontrastmikroskop vermessen. Die Ergebnisse dieser Experimente sind in Abbildung 6.6 zusammengefasst.

Die Länge der Filamente kann in einer Tiefe von ca. 650 µm im Glas zwischen 25 und 150 µm verändert werden, indem die Pulsenergie zwischen 1 und 7 µJ variiert wird. Der Verlauf ist für alle verwendeten Optiken qualitativ gleich. Mit Erhöhung der Pulsenergie wächst die Modifikationslänge zunächst mit unterschiedlichem Anstieg an, bis sie sich einem Maximalwert nähert. Die kleinsten mit dem Phasenkontrastmikroskop vermessbaren Modifikationen sind 25 µm groß und wurden mit den Fokussieroptiken AL\_0.4 und MO\_0.65 erzeugt. Die maximale Länge von 150 µm kann durch die Fokussierung mit dem Mikroskopobjektiv MO\_0.65 erreicht werden. Der Grenzwert für die Pulsenergie zur Erzeugung von Filamenten im Glasvolumen mit einem einzelnen fs-Laserpuls liegt unabhängig von der Fokussieroptik bei ca. 1 µJ und stimmt damit gut mit der berechneten kritischen Energie für die Selbstfokussierung  $E_{kr}(1030$ nm, 270fs)=1 µJ überein. Da die sphärische Aberration mit steigender Wellenlänge abnimmt, ist der Einfluss bei der Bestrahlung mit 1030 nm Wellenlänge gering.



Abb. 6.6.: Erzeugte Modifikationslänge im Glasvolumen in Abhängigkeit der eingestrahlten Pulsenergie und der verwendeten Fokussieroptik bei einer Laserwellenlänge von 1030 nm

Eine Sättigung in der Länge der Filamente setzt abhängig von der verwendeten Optik bei 4, 6 und 7  $\mu$ J (AL\_0.5, AL\_0.5, MO\_0.65) bei Längen von 90 - 100 bzw. 150  $\mu$ m ein. Eine Seitenansicht einzelner Filamente im Glasvolumen, die mit einer Pulsenergie von 6  $\mu$ J und MO\_0.65 erzeugt wurden, ist in Abbildung 6.7 zu sehen.



Abb. 6.7.: Lichtmikroskopaufnahme im Phasenkontrastmodus einer Seitenansicht von Modifikationen im Glasvolumen erzeugt mit einer Laserwellenlänge von 1030 nm, 6  $\mu$ J Pulsenergie und Fokussieroptik MO\_0.65

In diesem Experiment wurden ebenfalls Fokussieroptiken mit geringeren numerischen Aperturen genutzt. Diese sind in Abbildung 6.6 nicht dargestellt. Bei der Verwendung von Fokussieroptiken mit numerischen Aperturen von weniger als 0,4 konnten keine reinen Brechungsindexunterschiede im Glas erzeugt werden. Bei der Lichtmikroskopauswertung wurde die zusätzliche Bildung von Farbzentren registriert. Im Kern des modifizierten Bereichs wurde eine stabile Erhöhung des Brechungsindexes festgestellt. An die Ränder des Kerns schließen sich strukturelle Defektzentren an, die farblich im Lichtmikroskop wahrgenommen werden können. Die Bildung der Farbzentren ist auf eine Ionisierung des Materials durch Multiphotonenabsorption zurückzuführen, tritt allerdings bereits bei geringeren Energien auf als für die Induzierung stabiler Brechungsindexunterschiede notwendig sind [95, 96]. Ist die numerische Apertur und damit die Fokussierung gering, treten im Randbereich des Fokus geringere Energiedichten auf. Die resultierenden geringeren Ladungsträgerdichten führen zu thermisch reversiblen Materialveränderungen wie bspw. der Bildung von Farbzentren. Die unterschiedliche thermische Stabilität der erzeugten Farbzentren und Brechungsindexunterschiede sowie die Rückbildung einiger Farbzentren bei Raumtemperatur konnte bereits von Eaton et al. beobachtet werden [96]. Im Rahmen dieser Arbeit war es möglich, die beobachteten Farbzentren bei einer Temperatur von ca. 200° C auszuheilen. Die induzierten Brechungsindexunterschiede entlang der Filamente blieben dabei erhalten.

#### 6.2.4. Diskussion der Ergebnisse

#### Einfluss der Pulsenergie

Bei allen drei verwendeten Laserwellenlängen (515, 800 und 1030 nm) kann eine Abhängigkeit der erzeugten Länge der Filamente von der Pulsenergie beobachtet werden. Mit der Erhöhung der Laserpulsenergie steigt auch die vermessene Länge der erzeugten Filamente an bis eine Sättigung eintritt. Wie bereits in Kapitel 2.2.1 beschrieben, ist eine kritische Leistung  $P_{kr}$  oder Pulsenergie  $E_{kr}$  für die Selbstfokussierung des Laserpulses notwendig. Durch die Fokussierung des Laserpulses im Material steigt die Leistungsdichte im Fokus stark an. Durch MPA wird im Material lokal ein Elektronenplasma erzeugt, welches den eintreffenden Laserpuls defokussiert. Eine dynamische Balance aus de- und refokussierenden Effekten führt so zur Ausbildung eines Filaments mit mehreren um Länge. Der Laserpuls gibt dabei vor allem durch MPA Energie an das Material ab. Besitzt der Puls nach der Defokussierung eine Energie, die den kritischen Wert  $E_{kr}$  überschreitet, beginnt der Selbstfokussierung erneut. Unterschreitet die lokale Pulsenergie diesen kritischen Wert, geschieht keine Refokussierung des Pulses und es kommt zum Abbruch des Re- und Defokussierungskreislaufs und somit zum Zusammenbruch des Filaments. Qualitativ kann die ansteigende Filamentlänge mit erhöhter eingestrahlter Laserpulsenergie also auf diese Weise erklärt werden.

#### Sättigung der Filamentlängen

Bei allen verwendeten Wellenlängen und Fokussieroptiken stellt sich bei hohen Pulsenergien eine Sättigung der Filamentlänge ein. Eine weitere Erhöhung der eingestrahlten Laserleistung liefert keine Vergrößerung der Länge der vermessenen Modifikationen im Glasvolumen. In Festkörpern ist die Gruppengeschwindigkeitsdispersion so stark, dass bei größeren Ausbreitungswegen im Medium eine Aufspaltung des Laserpulses in zwei Teile passiert. Diese bewegen sich divergent zum ursprünglich eingestrahlten Laserpuls. Während zu Beginn die Wechselwirkung zwischen Laserpuls und Materie von Effekten wie Selbstfokussierung und Defokussierung durch das Plasma dominiert wird, sinkt die Pulsenergie durch MPA entlang des Filaments und es werden weitere nichtlineare zeitliche Effekte relevant. Die Aufspaltung des Pulses in zwei Teile durch die GVD und die Stauchung (self-steeping) können ein Grund für die Sättigung der Filamentlänge bei hohen Pulsenergien sein. Ein Auftreten der Sättigung bei hohen Filamentlängen ab 90 µm, also bei hohen Ausbreitungswegen im Medium, unterstützt diese mögliche Erklärung. Entlang des Filaments akkumulieren sich die zeitlichen nichtlinearen Effekte und führen unabhängig von der eingestrahlten Pulsenergie zum Abbruch bzw. Zusammenbruch des Filaments.

#### Einfluss der Wellenlänge

Die Energie eines Photons  $(E_{Photon} = h \cdot c/\lambda)$  ist abhängig von der Wellenlänge. Die eingestrahlte Laserpulsenergie steigt mit sinkender Emissionswellenlänge des Lasers. Aus diesem Grund können für die Bestrahlung mit kleineren Wellenlängen, größere Filamentlängen erwartet werden, weil eine erhöhte Anzahl an Re- und Defokussierungs-Kreisläufen durchlaufen werden kann, bis die vorhandene Pulsenergie den kritischen Wert für die Selbstfokussierung unterschreitet. Während bei der Bestrahlung mit 515 nm maximale Filamentlängen von 180 µm erzeugt werden können, beträgt der Maximalwert bei 1030 nm noch 150 µm. Bestrahlungen mit diesen beiden Wellenlängen wurden mit dem gleichen Lasersystem durchgeführt. Abweichungen von dieser möglichen Erklärung treten bei der Vermessung der Filamentlängen bei der Bestrahlung mit 800 nm auf. In diesem Fall konnten maximale Strukturlängen von bis zu 300 µm gemessen werden. Da allerdings schon bei geringen Pulsenergien (ab 1,5 µJ) Risse entlang der Filamente auftreten, wird ein starker Einfluss der um den Faktor zwei geringeren Pulsdauer vermutet.

#### Einfluss der Pulsdauer

Mit niedrigerer Pulsdauer  $\tau_{puls}$  sinkt die für die Selbstfokussierung notwendige Pulsenergie  $E_{kr}$  (Gleichung (2.19)). Es ist also weniger Energie für die Refokussierung des Laserpulses nach der Defokussierung durch das Elektronenplasma notwendig. Der Abbruch bzw. Zusammenbruch des Filaments geschieht erst mit größerem Ausbreitungsweg im Medium. Weiterhin erhöht sich mit abnehmender Pulsdauer der Effekt der Gruppengeschwindigkeitsdispersion auf den eingestrahlten Laserpuls (Gleichung (2.20)). Es wurde beobachtet, dass die GVD ein effektiver Mechanismus ist, um den Zusammenbruch des Filaments zu verzögern [97]. Dies konnte allerdings nur bei Pulsen mit geringen Energien beobachtet werden, sodass die GVD mit fortschreitender Filamentlänge dominanter wird und den Kollaps des Filaments verhindert. Größere Filamentlängen mit sinkender Pulsdauer sind die Folge.

#### Einfluss der Fokussieroptik

Die Stärke der Fokussierung der Laserpulse wird unter anderem durch die numerische Apertur angegeben. Mit steigender Fokussierung entstehen im Fokus höhere Leistungsdichten, die die nichtlineare Absorption des Pulses begünstigen. Eine höhere Spitzenintensität des Laserpulses bewirkt eine größere Länge des induzierten Filaments, da der Grenzwert für die Selbstfokussierung erst mit fortlaufender Ausbreitungslänge im Medium unterschritten wird. Tendenziell steigt daher die erzeugte maximale Filamentlänge proportional zur verwendeten numerischen Apertur der Fokussieroptik. Eine Abweichung dieser Tendenz tritt bei der Bestrahlung mit 515 nm Wellenlänge auf. Als eine mögliche Erklärung ist die nicht optimale Ausleuchtung der asphärischen Linsen mit einer NA von 0,5 zu nennen. Sie besitzt im Vergleich die größte Apertur, sodass es möglich ist, dass beim Experiment keine optimale Beleuchtung passierte. Auch bei der Bestrahlung mit 800 und 1030 nm konnten mit AL\_0.5 im Vergleich zu AL\_0.4 maximal gleich große Filamentlängen im Glasvolumen erzeugt werden.

# 6.3. Experimentelle Validierung des optimalen Designs für einfache Gitter

Die in Kapitel 5 berechneten Beugungseffizienzen für einfache Phasengitter werden nun experimentell validiert, indem Phasengitter mit den entsprechenden Strukturparametern hergestellt, charakterisiert und mit den Simulationsergebnissen verglichen werden.

In den vorherigen Kapiteln wurde erläutert, in welchen Bereichen diese Mikrostrukturen abhängig von der Laserpulsenergie, der verwendeten Wellenlänge und Fokussieroptik im Glasvolumen erzeugt werden können.

Zur experimentellen Herstellung der Phasengitter wurde der Pharos-Laser mit 1030 nm Wellenlänge genutzt. Abhängig von der verwendeten Fokussieroptik ist es durch die unterschiedlichen Anstiege der Modifikationslänge möglich, die Strukturlänge in einem Bereich von 25 bis 150 µm variabel einzustellen (siehe Abbildung 6.6). Für das Anfertigen der Phasengitter wurde das Mikroskopobjektiv MO\_0.65 gewählt.

In Kapitel 4.2.2 wurde bereits erwähnt, dass in dieser Arbeit eine Laserrepetitionsrate von 20 kHz genutzt wurde. Ein zugehöriges Computerprogramm wird bei der Bestrahlung verwendet, um die Verschiebetische mit dem Laser zu synchronisieren. Eine teilweise Überlagerung aufeinanderfolgender einzelner fs-Laserpulse in einer Dimension konnte mit einer Tischverfahrgeschwindigkeit von 20 mm/s und einem resultierenden Puls-zu-Puls-Abstand von 1 µm erreicht werden. Auf diesem Weg ist es möglich, Brechungsindexunterschiede so im Material einzubringen und anzuordnen, dass sich eindimensionale Gitterlinien bilden. Schreibt man nun eine große Anzahl solcher paralleler Linien mit gleichem Abstand zueinander ins Glasvolumen, können Phasengitter mit fester Gitterperiode hergestellt werden. Da der Durchmesser der erzeugten Filamente als Resultat der Balance zwischen vielen nichtlinearen Effekten ca. 2 - 3 µm beträgt [64], ist es nicht möglich, Gitterlinienbreiten von 4 µm zu erzeugen. Deswegen wurde zum experimentellen Vergleich von den in Kapitel 5 hergeleiteten optimalen Strukturparametern (Gitterperiode 8 µm, Gitterlinienbreite 4 µm) abgewichen und ein Gitter mit 6 µm Gitterperiode und 3 µm Gitterlinienbreite angefertigt.

Die Charakterisierung der Phasengitterbeugungseffizienzen wurde mit dem in Kapitel

4.2.3 beschriebenen Aufbau durchgeführt. Laserdioden mit Wellenlängen von 405, 514, 635 und 785 nm wurden in Kombination mit isotropischen optischen Glasfasern verwendet, um die Phasengitter zu bestrahlen und ihre Beugungseffizienzen zu bestimmen. Bei der Beleuchtung der Proben wurde darauf geachtet, dass die gleiche Intensität für p- und s-Polarisation in Bezug auf die Gitterausrichtung vorliegt. Auf diese Weise kann eine Vergleichbarkeit zu den Simulationen gewährleistet werden.

Die Beugungseffizienz in höhere Ordnungen wurde dabei mit Hilfe einer CCD-Kamera für die vier verwendeten Laserdiodenwellenlängen bestimmt. Betrachtet man Gleichung (5.1), gibt die Beugungseffizienz  $\eta_D(\lambda)$  das Verhältnis zwischen eingestrahlter Intensität des monochromatischen Lichtes  $I_0(\lambda)$  und der Summe aller gebeugten Intensitäten mit Ausnahme der 0. Ordnung  $\sum_{n>0} I^{mth}(\lambda)$  an.

Bei der experimentellen Bestimmung der Intensitäten höherer Beugungsordnungen müssen auf Grund der auftretenden Beugungswinkel für jede Ordnung individuelle Reflektionsfaktoren bei Austritt des gebeugten Lichtes aus der Glasscheibe berücksichtigt werden. Die geringen Intensitäten der hohen Beugungsordnungen stellen eine zusätzliche Herausforderung dar. Um den Aufwand bei der Vermessung der Effizienzen zu verringern, wurde sich in dieser Arbeit für eine zuverlässigere und indirekte Bestimmung der Beugungseffizienzen entschieden.

Anstelle der Vermessung aller höheren Beugungsordnungen wurde mit der CCD-Kamera die Lichtintensität nach Passieren des unstrukturierten Glases  $I_0(\lambda)$  und die Intensität der 0. Beugungsordnung nach Durchgang durch das Phasengitter  $I^{0th}(\lambda)$  gemessen. Die Intensitätsdifferenz  $(I_0 - I^{0th})$  entspricht dann offensichtlich der Summe der in höhere Beugungsordnungen gebeugten Intensitäten, wenn der Unterschied der Reflektion der Beugungsgitter vernachlässigbar im Vergleich zur Reflektion an der Glasoberfläche ist. Der relativ gemessene Unterschied der Reflektion zwischen unbestrahlten Regionen und Phasengitter enthaltenden Glasflächen wurde ebenfalls mit Hilfe der CCD-Kamera ermittelt und beträgt für alle verwendeten Wellenlängen weniger als 1 %. Für die experimentelle Beugungseffizienz  $\eta_{D,exp}$  gilt daher der Zusammenhang:

$$\eta_{D,exp}(\lambda) = \frac{I_0(\lambda) - I^{0th}(\lambda)}{I_0(\lambda)}$$
(6.1)

Um die Simulationsergebnisse im Detail mit den Werten aus dem Experiment vergleichen zu können, wurde ein Phasengitter mit einer Gitterperiode von 6  $\mu$ m und einer Gitterlinienbreite von 3  $\mu$ m hergestellt und charakterisiert. Simulationen, die mit diesen Gitterparametern durchgeführt wurden, weisen Bereiche hoher Effizienzen auf, wenn Strukturlängen von ca. 150  $\mu$ m verwendet werden. Aus diesem Grund wurden 150  $\mu$ m Strukturlänge experimentell umgesetzt, indem fs-Laserpulse mit einer Pulsenergie von 6  $\mu$ J durch das Mikroskopobjektiv MO\_0.65 ca. 650  $\mu$ m tief in die Glasprobe fokussiert wurden.

Laserdioden mit Emissionswellenlängen von 405, 514, 635 und 785 nm wurden genutzt, um das Gitter zu bestrahlen und die Beugungseffizienzen zu ermitteln. Zum Vergleich wurden entsprechende Simulationen bei gleichen Wellenlängen durchgeführt. In Abbildung 6.8 (1)-(4) sind die experimentellen Werte  $\eta_{D,exp}$  und die Simulationsergebnisse der Beugungseffizienz  $\eta_D$  für die vier untersuchten Wellenlängen als Funktion der Strukturlänge graphisch dargestellt.



Abb. 6.8.: Experimentelle  $(\eta_{D,exp})$  und Simulationsergebnisse  $(\eta_D)$  eines Phasengitters mit a = 6 µm, b = 3 µm und l = 150 µm für die Wellenlängen (1) 405 nm (2) 514 nm (3) 635 nm (4) 785 nm

Durch die Zuordnung der experimentell ermittelten Werte zu den entsprechenden Simulationsergebnissen (Phasengitter mit a = 6 µm und b = 3 µm) bei einer Strukturlänge von 150 µm und der jeweiligen Wellenlänge, konnte der im Glasvolumen induzierte wellenlängenabhängige Brechungsunterschied in einem Bereich von  $\Delta n = 0,0049 - 0,0061$ bestimmt werden. Der kleinste Wert für  $\Delta n$  wurde bei der kürzesten untersuchten Wellenlänge (405 nm) festgestellt. Die entsprechenden Simulationsergebnisse sind in Abbildung 6.8 als rot gestrichelte Linien dargestellt. Des Weiteren sind Simulationsergebnisse für den Mittelwert der bestimmten Brechungsindexerhöhungen der vier untersuchten Wellenlängen als schwarze Linien abgebildet. Die eingezeichneten Simulationsergebnisse sind als Schnitte der in Kapitel 5 präsentierten Konturzeichnungen bei einem festen Brechungsindexunterschied dargestellt. Die experimentell gemessenen Beugungseffizienzen  $\eta_{D,exp}$  sind als rote Punkte eingezeichnet.

Bei der Charakterisierung des hergestellten Phasengitters wurde ein maximaler Wert für  $\eta_{D,exp}$  von 54 % bei 405 nm Beleuchtung festgestellt. Dieser Wert sinkt mit steigender Wellenlänge bis auf 19 % bei 785 nm. Experimentell kann also bis zu 54 % des eintreffenden Lichtes in höhere Beugungsordnungen gebeugt werden. Das Absinken der berechneten Werte  $\eta_D$  mit steigender Wellenlänge konnte genauso wie bereits in Kapitel 5 beobachtet werden. Das periodische Verhalten mit steigender Strukturlänge l bleibt ebenfalls für verschiedene Wellenlängen erhalten. Größere Abweichungen zwischen Experiment und Simulation sind bei der Bestrahlung mit 405 nm zu beobachten. Eine mögliche Erklärung für die Differenz liegt in der Abweichung der Form der lasergenerierten Strukturen im Vergleich zum geometrisch idealisierten Phasengitterdesign in den Simulationen. Weiterhin ist eine Wellenlängen abhängigkeit des ermittelten Brechungsindexes erkennbar. Sie führt bei kleinen Wellenlängen zu Abweichungen vom berechneten Mittelwert.

Betrachtet man die durch den Vergleich der experimentellen und der Simulationsergebnisse erhaltenen Werte für den Brechungsindexunterschied, kann der Bereich für den induzierten Brechungsindex zu  $\Delta n = (5, 5 \pm 0, 6) \cdot 10^{-3}$  zusammengefasst werden. Dieser Bereich ist in guter Übereinstimmung mit der in [30, 98] berichteten Brechungsindexerhöhung von 0,01 bei der Bestrahlung mit einzelnen fs-Laserpulsen in Quarzglas. Da entlang eines Filaments Bereiche mit unterschiedlicher Verdichtung und somit auch verschiedener Brechungsindexunterschiede (vgl. Kapitel 2.3.3) auftreten, können die ermittelten Werte für den laserinduzierten Brechungsindexunterschied als mittlere bzw. effektive Werte verstanden werden. Entlang der Filamente treten also sowohl Bereiche mit höheren als auch niedrigeren Werten als der ermittelte Brechungsindex von  $\Delta n = (5, 5 \pm 0, 6) \cdot 10^{-3}$  auf.

Eine weitere Optimierung der Beugungseffizienzen im Bereich der untersuchten Wellenlängen ist realisierbar, wenn der Brechungsindexunterschied erhöht oder die Strukturlänge auf ca. 170 µm erweitert wird. Im Rahmen dieser Arbeit war es allerdings nicht möglich, den Brechungsindexunterschied über einen Wert von 0,006 zu erhöhen. Eine Vergrößerung der Strukturlänge auf 170 µm ist mit einer Laserwellenlänge von 515 nm und AL\_0.4 oder MO\_0.65 realisierbar, wurde in dieser Arbeit aber nicht durchgeführt. Der Fokus im weiteren Verlauf liegt auf der Erzeugung hocheffizienter Gitter, die im nächsten Kapitel eingeführt und erläutert werden.

Zusammenfassend stimmen die numerischen Rechnungen gut mit den experimentellen Ergebnissen des hergestellten einfachen Phasengitters überein. Es ist daher nachvollziehbar und begründet, den in Kalknatronglas erzeugten Brechungsindexunterschied durch fs-Laserbearbeitung aus diesem Vergleich abzuschätzen. Allgemein betrachtet, bietet die beschriebene Vorgehensweise eine ausreichend genaue und zuverlässige Möglichkeit den laser-induzierten Brechungsindexunterschied in transparenten Materialien zu bestimmen, welcher sonst auf Grund seiner geringen Größe häufig schwierig experimentell zu bestimmen ist.

Nach Optimierung der Strukturparameter sind die hergestellten einfachen Phasengitter in der Lage im photovoltaisch relevanten Wellenlängenbereich bis zu 54 % des eintreffenden Lichtes in höhere Beugungsordnungen umzuleiten (405 nm). Die ermittelte Beugungseffizienz sinkt mit steigender Wellenlänge auf 19 % ab (785 nm). Da das Sonnenspektrum auf der Erde AM1.5G (Abbildung siehe Anhang) im Bereich kürzerer Wellenlängen zwischen 400 und 700 nm besonders intensiv ist, bieten die beschriebenen Beugungsgitter gute Eigenschaften für die Verbesserung der Lichteinkopplung in Solarmodule. Anhand der bisher ermittelten Abhängigkeit der Beugungseffizienzen von der Wellenlänge, ist anzunehmen, dass die Effizienz bei höheren Wellenlängen weiter sinken wird. Da die Intensität im Sonnenspektrum bei höheren Wellenlängen abnimmt, wird sich die sinkende Beugungseffizienz vermindert auf den durch die verbesserte Lichteinkopplung erzeugten Photostrom auswirken.

## KAPITEL 7 : Auslegung hocheffizienter Phasengitter

Im vorherigen Kapitel wurden die experimentell umsetzbaren optimalen Strukturparameter eines einfachen Phasengitters ermittelt. Im Folgenden wird von der einfachen Phasengitteranordnung abgewichen und ein leistungsfähigeres Gitterkonzept erläutert. Zu Beginn dieses Kapitels werden Ergebnisse numerischer Studien zu hocheffizienten geblazsten Phasengittern präsentiert. Ziel ist es, anhand der präsentierten Rechnungen einen Satz von Strukturparametern für hocheffiziente Phasengitter zu finden, der maximale Beugungseffizienzen in höhere Beugungsordnungen gewährleistet.

Nachdem optimale Strukturparameter mit Hilfe der Simulationen ermittelt wurden, werden Blaze-Phasengitter experimentell hergestellt und charakterisiert. Aus dem Vergleich zwischen Experiment und Simulation wird analog zu Kapitel 6.3 der laserinduzierte Brechungsindexunterschied bestimmt.

Um einen Ausblick auf die maximale Leistungsfähigkeit des gefundenen hocheffizienten Phasengitterkonzepts zu ermöglichen, werden numerische Studien mit theoretisch möglichen aber in dieser Arbeit nicht realisierbaren Strukturparametern präsentiert.

## 7.1. Numerische Studien zum Design optimierter Phasengitter innerhalb der Grenzen der benutzten Versuchsanordnung

Ein Phasengitter mit annähernd dreieckiger Querschnittsfläche begünstigt die Beugung des eintreffenden Lichtes in höhere Ordnungen und unterdrückt die 0. Beugungsordnung (Kapitel 3). In dieser Arbeit wurden vielfältige Simulationen durchgeführt, um das für die beabsichtigte Anwendung optimale Gitterdesign zu finden. Diverse Ansätze wie die Berechnung von Effizienzen eines symmetrisch geblazsten Gitters stellten sich für die beabsichtige Anwendung im photovoltaisch relevanten Wellenlängenbereich als weniger effizient heraus. Als ideales Design für hocheffiziente Gitter auf Grundlage der durchgeführten Simulationen und als Weiterentwicklung der bereits charakterisierten einfachen Phasengitter konnte ein asymmetrisches geblazstes Phasengitterdesign identifiziert werden. Um die Rechen- und vor allem Bearbeitungszeit bei der experimentellen Herstellung zu senken, wurde das geblazste Gitterdesign sowohl experimentell als auch in den numerischen Rechnungen mit einem Stufengitter approximiert.

In Abbildung 5.1 ist eine schematische Darstellung eines dreistufigen geblazsten Phasengitters zu sehen. Das Gitter kann dabei mit folgenden Parametern beschrieben werden: Gitterperiode a, Gitterlinienbreite b, Brechungsindex des unbehandelten Glases  $n_1$ , lokal erhöhter Brechungsindex des bestrahlten Glases  $n_2$ , Strukturlänge des Gitters l und Wellenlänge des eingestrahlten Lichts  $\lambda$ . Die Strukturlängen erhöhen sich von Stufe zu Stufe um jeweils ein Drittel des angegebenen Strukturlängenwertes.



Abb. 7.1.: Schema eines geblazsten Phasengitters inklusive der für die numerischen Rechnungen verwendeten Parameter

Ziel der numerischen Simulationen ist es, einen Satz von Strukturparametern für hocheffiziente Phasengitter zu finden, der maximale Beugungseffizienzen in höhere Beugungsordnungen gewährleistet. Experimentell war es in dieser Arbeit auf Grund der dynamischen und komplexen Balance zwischen den nichtlinearen Antworten des Materials nicht möglich, feinere Linien als 2 µm anzufertigen (siehe Kapitel 6). Daher wird zu Beginn des Kapitels vorerst auf die Diskussion des Einflusses der Gitterlinienbreite verzichtet. Eine separate Berechnung der Leistungsfähigkeit feinerer Gitter schließt sich in Abschnitt 7.3 an.

Wie in Abbildung 7.1 bereits angedeutet, ist bei diesem Gitterkonzept die Gitterperiode mit der Anzahl der Stufen verknüpft. Zuerst wird daher die Gitterperiode der geblazsten Gitter variiert, indem die Anzahl der Stufen mit 2 µm Breite verändert wurde. Die Ergebnisse der Simulationen für ein zwei-, drei- und vierstufiges Design mit entsprechenden Gitterperioden von 6, 8 und 10 µm sind in Abbildung 7.2 in Abhängigkeit der maximalen Strukturlänge l (Länge der größten Stufe) und des induzierten Brechungsindexunterschiedes  $\Delta n$  angegeben. Der Maximalwert für  $\Delta n$  wurde auf 0,01 beschränkt, da für einfache Phasengitter ein erzeugter Brechungsindex von  $\Delta n = (5, 5 \pm 0, 6) \cdot 10^{-3}$  im Glas bestimmt werden konnte. Für das einfallende Licht wurde wiederum 0° Einfallswinkel und eine Wellenlänge von  $\lambda = 700 \ nm$  gewählt. Das Farbschema für  $\eta_D$  ist als Legende auf der rechten Seite des Bildes angegeben.

In der Darstellung ist eine steigende summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  mit größerer Anzahl an Stufen erkennbar. Dieses Ergebnis kann mit der besseren Approximation des Stufengitters an das angestrebte geblazste Gitter mit steigender Anzahl der Stufen erklärt werden. Die berechneten Werte für  $\eta_D$  zeigen, dass bis zu 79 % des einfallenden Lichtes in höhere Beugungsordnungen gebeugt werden können (siehe Abb. 7.2 (1)), wenn ein zweistufiges Gitterdesign verwendet wird. Dieser Wert steigt für ein vierstufiges geblazstes Phasengitter bis auf 100 % an, wenn geeignete Parameter wie l = 160m und  $\Delta n = 0,007$  verwendet werden (Abb. 7.2 (3)). Während mit wachsender Anzahl der Stufen auch die Breite der Regionen hoher Effizienzen steigt, ist weiterhin zu beobachten, dass geringere Brechungsindexunterschiede  $\Delta n$  für hohe Effizienzen  $\eta_D$  notwendig sind. Auf Grund der breiten hocheffizienten Regionen stellen die Blaze-Phasengitter ein robustes Design dar, wenn es bei der Herstellung zu geringen Abweichungen in der Strukturlänge kommt.



Abb. 7.2.: Summierte Beugungseffizienz  $\eta_D$  geblazster Phasengitter mit unterschiedlicher Anzahl an Stufen und Gitterperioden a bei senkrecht einfallendem Licht mit einer Wellenlänge von  $\lambda = 700$  nm (1) zweistufig a = 6 µm b = 2 µm (2) dreistufig a = 8 µm b = 2 µm (3) vierstufig a = 10 µm b = 2 µm

Wie bereits in Kapitel 5 beschrieben, kann für die angestrebte Anwendung der Phasengitter als lichtleitende Strukturen in Solarmodulen nur dann optimale Funktionalität gewährleistet werden, wenn bereits der Beugungswinkel für die 1. Beugungsordnung groß genug ist, um das senkrecht einfallende Licht vollständig um die Kontaktfinger zu leiten. Aus diesem Grund wird im Folgenden eine maximale Gitterperiode von 8 µm für geblazste Phasengitter verwendet. Ein weiterer Vorteil des dreistufigen Gitterdesigns ist die vereinfachte Fertigung und höhere Schreibgeschwindigkeit. Auf Grund der präsentierten positiven Eigenschaften bei der Beleuchtung mit monochromatischem Licht wurde für das dreistufige Blaze-Phasengitter die spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  berechnet. Die Simulationsergebnisse für  $\eta_{PV}$  in einem Wellenlängenbereich von 300 - 1100 nm sind in Abhängigkeit der maximalen Strukturlänge und des induzierten Brechungsindexunterschiedes in Abbildung 7.3 dargestellt.

Die berechneten Werte für  $\eta_{PV}$  zeigen, dass eine gemittelte Beugungseffizienz von bis zu 70 % für weißes Licht erreicht werden kann, wenn maximale Strukturlängen zwischen 100 und 150 µm und ein Brechungsindexunterschied von 0,006 (wie in Kapitel 6.3 bestimmt) angenommen wird. Ein dreistufiges geblazstes Gitter mit einer Gitterperiode von 8 µm und 2 µm Gitterlinienbreite (vgl. Schema in Abb. 7.1) ist damit das für die Anwendung in der Photovoltaik effizienteste Phasengitter, das mit Hilfe von numerischen Studien im Rahmen dieser Arbeit berechnet werden konnte.



Abb. 7.3.: Spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  eines Blaze-Phasengitters mit Gitterperiode von 8 µm und Gitterlinienbreite von 2 µm bei senkrecht einfallendem Licht und einem Wellenlängenbereich von  $\lambda = 300$  bis 1100 nm

Um die Verteilung der gebeugten Lichtintensitäten auf die einzelnen Beugungsordnungen besser zu verstehen, wurden in Abbildung 7.4 die Werte von  $\eta_{PV}$  für die erste und zweite Beugungsordnung dargestellt. Dabei wurden jeweils die +1. und -1. (Abb. 7.4 (1)) bzw. +2. und -2. Beugungsordnung (Abb. 7.4 (2)) zusammengefasst.



Abb. 7.4.: Spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  eines Blaze-Phasengitters mit Gitterperiode von 8 µm und Gitterlinienbreite von 2 µm bei senkrecht einfallendem Licht und einem Wellenlängenbereich von  $\lambda = 300$  bis 1100 nm (1)  $\eta_{PV}$  der 1. Beugungsordnung (2)  $\eta_{PV}$  der 2. Beugungsordnung

Die höheren Beugungsordnungen werden auf Grund ihrer geringen Intensität an dieser Stelle nicht betrachtet. Es ist deutlich zu erkennen, dass die erste Beugungsordnung die summierte spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  (dargestellt in Abbildung 7.3) dominiert. Je nach gewählten Werten für die Strukturlänge und den Brechungsindexunterschied, werden bis zu 65 % des eingestrahlten Lichtes in die erste Beugungsordnung gebeugt. Nur ein geringer Teil des eintreffenden Lichtes wird in die zweite Ordnung gebeugt. Das hier betrachtete Gitter befindet sich offenbar an der Grenze zwischen einem intermediate Gitter und einem dicken Gitter, welches sich durch das Auftreten von nur einer Beugungsordnung auszeichnen (Kapitel 3.2).

## 7.2. Herstellung und Charakterisierung eines optimierten Phasengitters

Auf Grund der dargestellten hohen Effizienzen und positiven Eigenschaften wurde ein dreistufiges geblazstes Phasengitter mit einer Gitterperiode von 8 µm hergestellt, indem Gitterlinien mit unterschiedlichen Pulsenergien nebeneinander geschrieben wurden (vgl. Schema in Abb. 7.1). Für die Herstellung im Glasvolumen wurde der Pharos-Laser mit einer Wellenlänge von 1030 nm und das Mikroskopobjektiv MO\_0.65 verwendet. Die unterschiedlichen Strukturlängen von 150, 100 und 50 µm wurden mit Pulsenergien von 8,0; 3,0 und 1,5 µJ realisiert.

Die experimentell ermittelten Beugungseffizienzen  $\eta_{D,exp}$  wurden anhand von Gleichung (6.1) ermittelt. Für die Bestrahlung des Gitters wurden Laserdioden mit Emissionswellenlängen von 405, 514, 635 und 785 nm genutzt. Zum Vergleich wurden entsprechende Simulationen bei gleichen Wellenlängen durchgeführt. In Abbildung 7.5 (1)-(4) sind die experimentellen Werte  $\eta_{D,exp}$  und die Simulationsergebnisse der Beugungseffizienz  $\eta_D$  für die vier untersuchten Wellenlängen als Funktion der Strukturlänge graphisch dargestellt. Durch die Zuordnung der experimentell ermittelten Werte (rote Punkte) zu den entsprechenden Simulationsergebnissen (rot gestrichelte Linien) bei einer maximalen Strukturlänge von 150 µm und der jeweiligen Wellenlänge, konnte ein im Glasvolumen induzierter wellenlängenabhängiger Brechungsunterschied von  $\Delta n = 0,0017 - 0,0029$  ermittelt werden. Die Simulationsergebnisse für den Mittelwert der bestimmten Brechungsindexerhöhungen ist als schwarze Linie abgebildet.



Abb. 7.5.: Experimentelle  $(\eta_{D,exp})$  und Simulationsergebnisse  $(\eta_D)$  eines Blaze-Phasengitters mit a = 8 µm, b = 2 µm und l = 150 µm für die Wellenlängen (1) 405 nm (2) 514 nm (3) 635 nm (4) 785 nm

Experimentell konnten bis zu 77 % des eintreffenden Lichtes in höhere Beugungsordnungen gebeugt werden, wenn mit 405 und 514 nm beleuchtet wurde. Ein Absinken der Effizienz mit steigender Wellenlänge konnte sowohl in den berechneten als auch in den gemessenen Ergebnissen beobachtet werden. Selbst bei größeren Wellenlängen wird 43 % des eintreffenden Lichtes in höhere Ordnungen gebeugt. Geringe Abweichungen zwischen Experiment und Simulation sind bei der Bestrahlung mit 405 und 785 nm zu beobachten. Wie bereits in Kapitel 6.3 erwähnt, liegt eine mögliche Erklärung dafür in der Abweichung der Form der lasergenerierten Strukturen im Vergleich zum geometrisch idealisierten Phasengitterdesign in den Simulationen. Eine Wellenlängenabhängigkeit des ermittelten Brechungsindexes ist auch im Fall der Blaze-Gitter erkennbar. Sie führt bei kleinen und großen Wellenlängen zu Abweichungen vom berechneten Mittelwert.

Der kleinste Wert für  $\Delta n$  konnte bei der kürzesten untersuchten Wellenlänge (405 nm) festgestellt werden. Der durch den Vergleich zwischen experimentellen und Simulationsergebnissen erhaltenen mittlere induzierte Brechungsindexunterschied beträgt  $\Delta n = (2, 3 \pm 0, 6) \cdot 10^{-3}$ .

Im Vergleich zu den einfachen Phasengittern ist der ermittelte Wert für  $\Delta n$  um einen Faktor 2 geringer. Eine mögliche Ursache für diese Differenz ist die Variation der eingestrahlten Pulsenergie, um verschiedene Strukturlängen von 150, 100 und 50 µm zu erzeugen. Die unterschiedliche Pulsenergie kann verschiedene Werte für  $\Delta n$  in den drei Stufen erzeugen. Die Simulation kann dann offensichtlich nur einen effektiven, gemittelten Wert für den Brechungsindexunterschied  $\Delta n$  liefern. Eine weitere mögliche Ursache für die Abweichung liegt im geringen Abstand der produzierten Stufen. Die Nähe zueinander sorgt für unterschiedliche Eingangsbedingungen, wenn die zweite oder dritte Stufe geschrieben wird. Abschließend muss darauf hingewiesen werden, dass die Absorption des eintreffenden Laserpulses ein stark nichtlinearer Prozess ist, sodass bereits kleine Abweichungen in den Laserparametern (wie Pulsenergie oder Fokusbreite) großen Einfluss auf den erzeugten Brechungsindex  $\Delta n$  haben.

Nach Optimierung der Strukturparameter sind die hergestellten dreistufigen Blaze-Phasengitter in der Lage im photovoltaisch relevanten Wellenlängenbereich bis zu 77 % des eintreffenden Lichtes in höhere Beugungsordnungen umzuleiten (405 nm). Bei größeren Wellenlängen werden bis zu 43 % Effizienz erzielt (785 nm). Im Hinblick auf die Anwendung der hocheffizienten Gitter in Deckgläsern von Solarmodulen hat die erhöhte Lichteinkopplung einen positiven Effekt auf den Wirkungsgrad. Nimmt man eine durch Kontakte abgeschattete Fläche von 5 %, einen Zellwirkungsgrad von 22 % und einen Kurzschlussstrom der Solarzelle von 40  $\frac{mA}{cm^2}$  an, kann das Verbesserungspotential für den Solarzellenwirkungsgrad durch das verbessere Lichtmanagement auf ca. 0,8 % absolut (ca. 3,5 % relativ) abgeschätzt werden [31].

## 7.3. Numerische Studien zum optimierten Design für theoretisch erreichbare Strukturparameter

Bei der Herstellung hocheffizienter Blaze-Phasengitter wirken sich hohe induzierte Brechungsindexunterschiede  $\Delta n$  vorteilhaft auf die Beugungseffizienz aus. Dies bestätigen die in Abbildung 7.3 und 7.5 dargestellten Simulationsergebnisse. Laut den durchgeführten Simulationen ist es mit höheren Werten für  $\Delta n$  möglich, die gemittelte Beugungseffizienz

für den Wellenlängenbereich 300 - 1100 nm bis auf 90 % zu steigern. Nach aktuellem Stand der Forschung ist die Erzeugung höherer Brechungsindexunterschiede möglich. Eaton et al. [92] können Wellenleiter mit einem Brechungsindexunterschied von 0,02 in Quarzglas herstellen, wenn für die Produktion fs-Lasersysteme mit hoher Repetitionsrate verwendet werden (500 kHz). Erst kürzlich zeigten Hashimoto et al., dass sie Brechungsindexunterschiede von bis zu 0,03 durch Bestrahlung mit einer Laserquelle mit geringer Repetitionsrate (1 kHz) in Quarzglas erzeugen können [91]. Mit den vorhandenen Laserquellen und Fokussieroptiken konnte in dieser Arbeit ein maximaler Brechungsindexunterschied von 0,006 erzeugt werden.

In Abbildung 7.4 ist erkennbar, dass ein Großteil des eintreffenden Lichtes vom Phasengitter in die erste Beugungsordnung gebeugt wird. Das ist im Hinblick auf die photovoltaische Anwendung in Solarmodulen ungünstig, weil die Beugungsgitter auf Grund der geringen Beugungswinkel der ersten Ordnung in einem großen vertikalen Abstand zu den Solarzellen positioniert werden müssen. Weiterhin kann die optimale Wirkung und die maximale Beugungseffizienz der Gitter nur bei direktem Lichteinfall erreicht werden.

Ein möglicher Lösungsansatz ist es, den Beugungswinkel für die erste Ordnung zu vergrößern oder mehr Licht in höhere Ordnungen zu beugen. Da die Beugungswinkel von der Periode des Gitters abhängen, ist es möglich, größere Winkel mit Hilfe von feinen Gittern mit kleinen Gitterperioden zu realisieren. Im Folgenden werden daher Rechnungen zu Beugungseffizienzen von geblazsten Gittern mit kleinen Gitterperioden betrachtet.

Die minimale Gitterlinienbreite ist abhängig von der verwendeten Laserwellenlänge. Bei der Verwendung von Ultrakurzpuls-Lasern mit üblichen Wellenlängen ist der Filamentdurchmesser und damit die Gitterlinienbreite beugungsbedingt auf ca. 0,5 µm limitiert. Kleinere Strukturen können mit Hilfe von Lasern mit Emissionswellenlängen im sichtbaren Bereich nicht generiert werden. Dieser theoretische Wert konnte in dieser Arbeit weder durch Variation der Laserwellenlänge, noch durch verschiedene Fokussieroptiken oder Pulsenergien erreicht werden. Der Durchmesser der erzeugten Filamente ist ein Resultat der Balance der nichtlinearen Effekte im Medium und beträgt auf Grund der Wechselwirkung von Selbst- und Defokussierung materialabhängig nur einige µm. Es ist durchaus vorstellbar, dass ein Material eine schnellere dynamische nichtlineare Antwort auf die eingestrahlten ultrakurzen Laserpulse zeigt als das in dieser Arbeit prozessierte Natronglas. Auf diesem Weg oder durch Anpassung weiterer Bestrahlungsparameter ist eine Verringerung des Filamentdurchmessers denkbar.

Um einen Überblick über die Leistungsfähigkeit feiner Gitter zu bekommen, wird in den folgenden Studien die beugungsbedingte Gitterlinienbreite von 0,5 µm verwendet. Die spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  eines dreistufigen Blazegitters mit einer Gitterperiode von 2 µm und einer Gitterlinienbreite von 0,5 µm ist in Abbildung 7.6 dargestellt. Das


Farbschema für  $\eta_{PV}$  ist als Legende auf der rechten Seite des Bildes angegeben.

Abb. 7.6.: Spektrale Beugungseffizien<br/>z $\eta_{PV}$ eines Blaze-Phasengitters mit Gitterperiode von 2 µm und Gitterlinien<br/>breite von 0,5 µm bei senkrecht einfallendem Licht und einem Wellenlängenber<br/>eich von  $\lambda = 300$  bis 1100 nm

Die Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  beträgt maximal ca. 11 %, wenn geeignete Werte für Strukturlänge und Brechungsindex gewählt werden. Dieser Wert ist im Vergleich zu Beugungseffizienzen der Gitter mit größerer Gitterperiode (vgl. Abb. 7.2) deutlich niedriger. Bezogen auf die Strukturlänge sind die Regionen hoher Effizienz schmal. Eine mögliche Ursache der deutlich verringerten Beugungseffizienz liegt in der Kombination aus großen Beugungswinkeln und langen Gitterstrukturen. Für die niedrigste für die Silizium-Photovoltaik relevante Wellenlänge von 300 nm beträgt der Beugungswinkel für die 1. Ordnung bei einer Gitterperiode von 2 µm ca. 8, 6°. Das unter diesen Winkeln gebeugte Licht durchquert die Gitterlinien auf dem Weg durch das Gitter mehrfach, sodass es aus diesem Grund zu wiederholt auftretender Beugung kommt. Dies wirkt sich negativ auf die resultierende spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  aus.

Um die mehrfache Beugung des Lichtes auf dem Weg durch das Phasengitter zu minimieren, wurden Rechnungen mit kürzeren Strukturlängen durchgeführt. Um eine vergleichbare optische Weglänge  $\Delta n \cdot l$  zu gewährleisten, wurde der Brechungsindexunterschied entsprechend  $\Delta n$  vergrößert. Während in der folgenden Simulation die Strukturlängen in einem Bereich zwischen 0 und 30 µm variiert werden, wird in Anlehnung an den ermittelten Brechungsindexunterschied von Hashimoto et al. [91] ein maximaler Wert von 0,03 für  $\Delta n$  gewählt. Das Ergebnis der Rechnung für ein geblazstes Phasengitter mit 2 µm Gitterperiode und 0,5 µm Gitterlinienbreite mit Strukturlängen bis 30 µm ist in Abbildung 7.7 zusammengefasst. Das entsprechende Farbschema ist als Legende angegeben.



Abb. 7.7.: Spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  eines Blaze-Phasengitters mit Gitterperiode von 2 µm und Gitterlinienbreite von 0,5 µm bei senkrecht einfallendem Licht und einem Wellenlängenbereich von  $\lambda = 300$  bis 1100 nm

Die erreichbare maximale spektrale Beugungseffizienz steigt im Vergleich zu Gittern mit langen Strukturen deutlich an. Werte für  $\eta_{PV}$  von bis zu 40 % können erzielt werden, wenn Brechungsindexunterschiede von mehr als 0,025 verwendet werden. Mit unserem experimentellen Aufbau waren diese Werte nicht realisierbar. Für Anwendungen bei denen Anforderungen an große Beugungswinkel bestehen z.B. um Light Trapping Effekte auszunutzen, bietet das Laserschreiben einzelner feiner Gitter mit hohem Brechungsindexkontrast eine geeignete Alternative.

Auf Grund der geringen Dicke der feinen Phasengitter von maximal 10-20 µm ergibt sich die Möglichkeit, diese Strukturen zu stapeln, um die resultierende Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  zu steigern. Da es sich bei dem geblazsten Gittern um ein unsymmetrisches Design handelt, treten für jeden neuen Stapel verschiedene Einfallswinkel des eintreffenden Lichtes auf. Eine Optimierung der Phasengitter für unterschiedliche Einfallswinkel ist notwendig. Zusätzlich steigt die Bearbeitungszeit zur Erzeugung der Gitter um ein Vielfaches an, da die Strukturen übereinander geschrieben werden müssen. Aus diesen Gründen stellt das Stapeln der feinen und kurzen Gitter keine geeignete Alternative für die Anwendung und Verbesserung der Lichteinkopplung in Solarmodule dar.

# KAPITEL 8 : Umsetzung und Bewertung im Hinblick auf PV-Anwendung

In diesem Abschnitt wird die Anwendung der Beugungsgitter für das verbesserte Lichtmanagement in der Photovoltaik beschrieben. Die in Kapitel 7 untersuchten hocheffizienten geblazsten Beugungsgitter werden in das Deckglas eines Miniatur-Solarmoduls geschrieben und die verbesserte Lichteinkopplung in die Solarzelle mit Hilfe von ortsaufgelösten Messungen der externen Quanteneffizienz untersucht. Aus diesen Messwerten wird der resultierende erhöhte Photostrom für das gesamte Modul bei Sonnenbestrahlung berechnet. Anschließend wird anhand dieser Daten der durch die Verbesserung der Lichteinkopplung erhöhte Wirkungsgrad des Miniatur-Solarmoduls abgeschätzt.

Abschließend wird in einem Ausblick eine Wirtschaftlichkeitsbetrachtung für den Laserschreibprozesses zur Bearbeitung von Solarmodulen in der Produktion durchgeführt.

Da bisher exklusiv die Wirkung der Beugungsgitter bei senkrechtem Lichteinfall betrachtet wurde, schließt sich in Kapitel 8.2 eine Abschätzung zur Effizienz der beschriebenen Phasengitter auf ein stationäres Solarmodul bei schrägem Lichteinfall an.

#### 8.1. Lichtlenkung im Miniatur-Solarmodul

Zu Beginn dieses Kapitels wird beschrieben, wie die geblazsten dreistufigen Phasengitter in das Deckglas eines Miniatur-Solarmoduls integriert wurden und anschließend untersucht, inwiefern dadurch die Lichteinkopplung in die Solarzelle verbessert werden kann. Für die Verringerung der Abschattung der aktiven Solarzellenflächen durch Busbars existieren bereits vielversprechende Ansätze [25, 99], sodass sich diese Arbeit auf die Verbesserung des Lichtmanagements im Bereich der Kontaktfinger konzentriert.

Durch das Fraunhofer-Zentrum für Silizium-Photovoltaik CSP wurde für diese Untersuchungen ein Miniatur-Solarmodul bereitgestellt. Dieses beinhaltet analog zu Standard-Solarmodulen eine Verkapselungfolie aus EVA und ein Deckglas an der Vorderseite. Rückseitig ist das Modul mit einer Tedlar-Folie laminiert. Die Schichtfolge der einzelnen Komponenten wurde bereits in der Einleitung in Abbildung 1.1 dargestellt. Die monokristalline Silizium-Solarzelle im Modul wurde von der Firma Hanwha Q-Cells produziert. Durch die Monokristallinität ist eine hohe Homogenität der Solarzelle gewährleistet, welche bei den ortsaufgelösten Messungen eine gute Vergleichbarkeit zwischen den charakterisierten Bereichen des Moduls sicher stellt.

Für die Bestrahlung des Miniatur-Solarmoduls wurde das hocheffiziente dreistufige Blazegitterdesign mit einer Gitterperiode von 8 µm und 2 µm Gitterlinienbreite gewählt, da es in Kapitel 7 bereits als das effizienteste Phasengitter berechnet und seine Effizienz experimentell validiert wurde. Der in Kapitel 4.2.2 beschriebene Versuchsaufbau wurde beibehalten. Aufgrund eines ungenügend genauen Positionierungssystems im Bestrahlungsaufbau wurden die Beugungsgitter unter einem Winkel zu den Kontaktfingern mit dem Pharos-Laser in das Deckglas des Moduls geschrieben. Auf diese Weise kann ein kompletter Überlapp zwischen den Phasengittern und den Kontaktfingern in einigen Bereichen der Solarzelle garantiert werden. Die beschriebene Positionierung ist in Abbildung 8.1 schematisch dargestellt. Der verwendete Winkel  $\alpha$  zwischen den lasergeschriebenen Beugungsstrukturen und den Kontaktfingern betrug ca. 3 °.



Abb. 8.1.: Schematische Darstellung der Beugungsstrukturen (orange), die durch Laserbestrahlung in das Deckglas des Miniatur-Solarmoduls eingebracht wurden

Die Breite der Kontaktfinger wurde im Lichtmikroskop zu ca. 70  $\mu$ m vermessen. Um die Abschattung eines Fingers zu reduzieren, wurden unter einem Winkel von ca. 5 ° auf einer Breite von 104  $\mu$ m dreizehn dreistufige geblazste Beugungsgitter nebeneinander in das Deckglas geschrieben. Die Breite der Beugungsgitter wurde dabei bewusst größer als Kontaktfingerbreite gewählt, um die Fläche des Überlapps zu erhöhen. Die Laserbehandlung geschah dabei analog zur Vorgehensweise in Kapitel 7.2. Auf diese Weise wurde das Deckglas über zwölf Kontaktfingern des Minimoduls bearbeitet.

Um die Wirkung der Beugungsstrukturen charakterisieren zu können, wurden ortsaufgelöste Messungen der externen Quanteneffizienz (kurz EQE) am LOANA-System der Firma pv-tools durchgeführt. Laserdioden mit Emissionswellenlängen von 405, 532, 658, 780, 960 und 980 nm wurden verwendet, um die EQE ortsaufgelöst in dem Gebiet zu bestimmen, welches mit Beugungsstrukturen versehen wurde. Die Laserdiodenspotgröße beträgt dabei laut Hersteller wellenlängenabhängig 100 - 200 µm. Die Beugungsgitter werden auf diese Weise komplett und mit parallelem Licht beleuchtet. Die Polarisation des Abtastlasers ist linear. Um gleichzeitig die Reflektion des Miniaturmoduls für die Berechnung der internen Quanteneffizienz (kurz IQE) zu bestimmen, wird das Rastern der Probe unter einem Einfallswinkel von 8° (Einfallswinkel auf die Beugungsgitter im Glas entsprechend ca. 5,3 °) durchgeführt. Die Beleuchtung des Moduls durch die Laserdioden erfolgte entlang der bzw. parallel zu den Kontaktfingern mit einer Schrittweite in der Ebene von 60 µm. Auf diese Weise wird gewährleistet, dass Kontaktfinger und die geschriebenen Beugungsgitter aus Sicht des Abtastlasers bei der Charakterisierung in der gleichen Ebene liegen. In Bezug auf die Beugungsrichtung der Gitter ist die Einfallsrichtung des Lasers weiterhin senkrecht.

Als Quanteneffizienz  $EQE(\lambda)$  bei einer bestimmten Wellenlänge wird die Wahrscheinlichkeit bezeichnet, mit der einfallende monochromatische Photonen Elektronen-Loch-Paare erzeugen, die zum Photostrom beitragen. In die EQE geht auch der Anteil des einfallenden Lichtes ein, das vom Solarmodul reflektiert wird. Werden nur die absorbierten Photonen berücksichtigt, ergibt sich die IQE.

$$EQE(\lambda) = \frac{Anzahl \ der \ zum \ Photostrom \ beitragenden \ Elektronen}{Anzahl \ der \ eingestrahlten \ Photonen}$$
(8.1)

Da bereits gemessen wurde, dass die lasererzeugten Beugungsgitter im Vergleich zum unbehandelten Glas keine erhöhte Reflektion aufweisen, kann an dieser Stelle ein direkter Vergleich der EQE-Werte zwischen bestrahlten und unbestrahlten Bereichen erfolgen.

Das Ergebnis einer ortsaufgelösten EQE-Vermessung des Solarmoduls, die mit Laserlicht mit 405 nm Wellenlänge durchgeführt wurde, ist in Abbildung 8.2 dargestellt. Beispielhaft wird an dieser Stelle nur das Ergebnis für die Vermessung mit 405 nm gezeigt. (Alle weiteren EQE-Ergebnisse können im Anhang gefunden werden.

Auf der linken Seite des Bildes ist schwarz ein Busbar des Miniaturmoduls zu sehen. Da dieser die aktive Zellfläche abschattet, ist die EQE in diesem Bereich gering. Auf der rechten Seite ist der Rand der Solarzelle mit ebenfalls geringen EQE-Werten erkennbar. Die Kontaktfinger können an den Bereichen verminderter EQE auf der aktiven Solarzellenfläche als Grautöne erkannt werden. Die höchsten Werte der externen Quanteneffizienz wurden auf der unbehandelten aktiven Solarzellenfläche gemessen. Das Farbschema ist auf der rechten Seite des Bildes als Legende angegeben. Insgesamt wurde ein Bereich von 25 mm x 40 mm Größe untersucht. Abgebildet ist in diesem Fall ein Ausschnitt mit vier Kontaktfingern, mit denen die Beugungsstrukturen in einem Bereich von 1,5 - 2 mm Breite (X-Richtung) komplett überlappen. Diese Überlappbereiche sind deutlich an den helleren Grautönen auf und den Verjüngungen an der Kontaktfingern in Abbildung 8.2 zu erkennen. Die Positionen an denen sich Beugungsgitter und Finger überlagern, bewegen sich mit sinkender Nummerierung in der Abbildung auf den Fingern von links nach rechts.



Abb. 8.2.: Darstellung einer ortsaufgelösten Messung des externen Quanteneffizienz eines Teils des bearbeiteten Minimoduls, gemessen mit einem Laser mit 405 nm Wellenlänge, in den rot markierten Flächen wurden die EQE-Werte summiert und verglichen

Da die Beugungsstrukturen unter einem Winkel von 5° in das Deckglas eingebracht sind,

überlappen sie teilweise die darunter liegende aktive Zellfläche. In diesen Bereichen werden geringere EQE-Werte gemessen. Dies ist an leichten Schattierungen auf der hellen aktiven Solarzellenfläche in Abbildung 8.2 zu erkennen. Da das Licht von der nullten in höhere Beugungsordnungen gebeugt wird, trifft es örtlich versetzt auf das Absorbermaterial. In den Bereichen um die Abschattungen herum sind daher die EQE-Werte erhöht.

Weiterhin ist in Abbildung 8.2 eine reduzierte EQE auf den Kontaktfingern in den Bereichen direkt vor und nach dem Überlapp zwischen Beugungsstruktur und Metallisierung (Überlapp ist rot markiert) erkennbar. Da die Beugungsstrukturen unter einem Winkel eingebracht und sie mit ihrer Breite von 104 µm größer als die Kontaktfinger sind, wird an diesen Stellen Licht auf die Metallisierung gebeugt, das eigentlich auf die aktive Zellfläche treffen würde. Als Resultat ist die beschriebene reduzierte EQE auf den Kontaktfingern erkennbar.

Anhand der eben beschriebenen Ergebnisse der EQE-Messungen wird deutlich, dass bei einer ungeeigneten Positionierung der Beugungsstrukturen im Deckglasvolumen ein ungewolltes nachteiliges Lichtmanagement entstehen kann, welches zu einer verminderten Lichteinkopplung in das Modul führt, weil es Licht von der aktiven Zellfläche auf die Metallisierung beugt. Eine der größten Herausforderungen für die zukünftige Anwendung wird daher die exakte Positionierung der Beugungsstrukturen entsprechend des Solarmoduldesigns sein.

Die rot markierten Bereiche wurden so gewählt, dass in ihnen das Verhältnis zwischen Kontaktfinger- und aktiver Zellfläche ca. 5 % beträgt. Die verwendete Silizium-Solarzelle besitzt das gleiche Verhältnis zwischen Frontseitenkontaktierung und Gesamtzellfläche. Da die Länge der Flächen (Y-Richtung) dem Abstand zwischen zwei Kontaktfingern (ca. 1,8 mm) entspricht, ist es (mit Ausnahme der Busbars, die in diesem Experiment nicht berücksichtigt werden sollen) möglich, aus diesen Bereichen die komplette Solarzellenfläche zu rekonstruieren. Die rot markierten Flächen sind also repräsentativ für das Miniatur-Solarmodul.

Die Summen der EQE-Werte innerhalb dieser Bereiche sind also ebenfalls repräsentativ für das gesamte Modul. Im Folgenden wurden daher die EQE-Werte in diesen Abschnitten summiert. Eine Fläche wurde in einem Bereich des Kontaktfingers positioniert, in der ein kompletter Überlapp zwischen dem Finger und den im Deckglas eingebrachten Beugungsstrukturen vorliegt. Die Vergleichsfläche wurde auf dem gleichen Kontaktfinger an einer unbehandelten Stelle positioniert. Die Summen beider Bereiche wurden anschließend miteinander verglichen. Diese Vorgehensweise wurde beispielhaft an den Kontaktfingern 3 und 4 für alle verwendeten Laserdiodenwellenlängen des LOANA-Systems durchgeführt. Der relative Anstieg der EQE im Bereich des Überlapps zwischen Beugungsgitter und Finger  $EQE_{Ueberlapp}(\lambda)$  im Verhältnis zum unbehandelten Kontaktfinger  $EQE_{unbehandelt}(\lambda)$  wird folgend als  $EQE_{+}(\lambda)$  bezeichnet

$$EQE_{+}(\lambda) = \frac{EQE_{Ueberlapp}(\lambda)}{EQE_{unbehandelt}(\lambda)} - 1$$
(8.2)

und ist in Tabelle 8.1 für zwei Kontaktfinger und die sechs verwendeten Wellenlängen zusammengefasst.

$EQE_{+}(\lambda)$	405  nm	532  nm	$658 \mathrm{~nm}$	780  nm	960  nm	980 nm
3. Kontaktfinger	$0,\!032$	0,021	0,0086	$0,\!0041$	$0,\!0019$	$0,\!0034$
4. Kontaktfinger	$0,\!017$	$0,\!011$	$0,\!0060$	0,0129	$0,\!0061$	0,0020

Tab. 8.1.: Zusammenfassung der ermittelten zusätzlichen externen Quanteneffizien<br/>z $EQE_+(\lambda)$ 

Der relative Anstieg  $EQE_{+}(\lambda)$  ist für alle vermessenen Wellenlängen positiv. Die Integration der Beugungsstrukturen in das Deckglasvolumen bewirkt also eine erhöhte Lichteinkopplung in das Solarmodul. Weiterhin ist übereinstimmend mit den Ergebnissen aus Simulation und Experiment (vgl. Kapitel 7.2) eine Abnahme von  $EQE_{+}(\lambda)$  mit steigender Wellenlänge zu beobachten. Da die Effizienz der geblazsten Beugungsgitter sinkt, kann weniger Licht um die Kontaktfinger gebeugt werden, sodass die erhöhte Quanteneffizienz in diesem Bereich sinkt. Die EQE konnte im Rahmen dieses Experimentes durch das Schreiben von Beugungsstrukturen in das Deckglas des Moduls in den in Abbildung 8.2 rot markierten Überlappbereichen zwischen Kontaktfinger und Beugungsgitter um bis zu 3.2~% erhöht werden (405 nm). Diese ermittelten Werte für den relativen Anstieg der EQE sind auf Grund des gleichen Verhältnisses zwischen Frontseitenkontaktierung und Zellfläche repräsentativ für das gesamte Modul. Die ermittelten Werte für die zwei untersuchten Kontaktfinger unterscheiden sich teilweise um einen Faktor 2. Während beim 3. im Vergleich zum 4. Kontaktfinger die  $EQE_{+}(\lambda)$  bei kleinen Wellenlängen höhere Werte annimmt, kehrt sich die Quote bei größeren Wellenlängen um. Eine mögliche Erklärung liegt in der Auflösung der Messungen mit ca. 60 µm Schrittweite und einer unterschiedlichen Abrasterung der beiden Finger. Dabei können leichte Abweichung in den EQE-Messungen entstehen. Ein weitere mögliche Erklärung liegt in der Inhomogenität der Silberkontaktfinger. Die gemessenen EQE-Werte auf dem 4. Kontaktfinger sind im Vergleich zu den anderen drei Kontaktfinger höher. Dies ist auch in Abbildung 8.2 im rot markierten Bereich auf dem unbehandelten Finger erkennbar. Es ist daher in den folgenden Rechnungen sinnvoll, den Mittelwert aus den Messungen für beide Kontaktfinger zu berücksichtigen.

Um abschätzen zu können wie sich die erhöhte Lichteinkopplung durch die lasergenerierten Beugungsgitter in das Solarmodul auf den Wirkungsgrad auswirkt, muss im Vorfeld der Kurzschlussstrom berechnet werden. In guter Näherung entspricht der Kurzschlussstrom  $I_{SC}$  einer Solarzelle dem erzeugten Photostrom  $I_{Ph}$ . Für den Kurzschlussstrom  $I_{SC}$  der verwendeten Solarzelle besteht der folgende Zusammenhang

mit Näherung 
$$I_{Ph} = I_{SC}$$
 gilt  $I_{SC} = \int_{300nm}^{1100nm} \frac{e \ \lambda \ EQE(\lambda) \ I_{AM1.5G}(\lambda)}{h \ c_0} d\lambda$  (8.3)

wobei e der elektrischen Ladung,  $I_{AM1.5G}$  dem globalen Sonnenspektrum mit AirMass 1,5 für ein Solarmodul mit 37 ° Neigung zur Horizontalen, h dem planckschen Wirkungsquantum und  $c_0$  der Lichtgeschwindigkeit im Vakuum entspricht.

Eine Messung der EQE( $\lambda$ ) wurde in einem unbehandelten Bereich der Solarzelle ebenfalls mit dem LOANA-System mit einer Schrittweite von  $\Delta \lambda = 20 \ nm$  durchgeführt. Die erhaltenen Werte wurden interpoliert und in Wellenlängenschritten von 0,1 nm mit dem Sonnenspektrum AM1.5G (Spektrum siehe Anhang) gefaltet und über den für die Silizium-Photovoltaik relevanten Wellenlängenbereich integriert.

Es ergibt sich ein Kurzschlussstrom für die unbehandelte Solarzelle von  $I_{SC} = 36, 36 \frac{mA}{cm^2}$ . Der durch die verbesserte Lichteinkopplung erhöhte Kurzschlussstrom  $I_{SC+}$  kann bestimmt werden, indem die erhöhten Werte für die externe Quanteneffizienz in Gleichung (8.3) berücksichtigt werden. Die gemessenen Werte für  $EQE_+(\lambda)$  wurden ebenfalls in einem Wellenlängenbereich von 300 bis 1100 nm auf 0,1 nm Schritte interpoliert. Es ergibt sich folgender Zusammenhang:

$$I_{SC+} = \int_{300nm}^{1100nm} \frac{e \ \lambda \ EQE(\lambda)(1 \ + \ EQE_{+}(\lambda)) \ I_{AM1.5G}(\lambda)}{h \ c_{0}} d\lambda \tag{8.4}$$

Für die Messungen, die am 3. Kontaktfinger durchgeführt wurden, ergibt sich ein erhöhter Kurzschlussstrom von  $I_{SC+}(3. \text{Finger}) = 36,76 \frac{mA}{cm^2}$ . Der ermittelte Wert, dem die Betrachtungen am 4. Kontaktfinger zu Grunde gelegt wurden, ist mit  $I_{SC+}(4. \text{Finger}) = 36,64 \frac{mA}{cm^2}$  niedriger. Wie bereits beim Vergleich der Werte der erhöhten externen Quanteneffizienz  $EQE_+(\lambda)$  erwähnt, ist es sinnvoll im Folgenden mit einem Mittelwert aus beiden Ergebnissen zu rechnen. Um die Auswirkungen der angestiegenen Kurzschlussströme auf den Wirkungsgrad  $\eta$  zu bestimmen, ist es notwendig eine Differenz aus  $I_{SC+}$ und Zellkurzschlussstrom  $I_{SC}$  zu bilden. Diese Größe wird als  $\Delta I_{SC+}$  bezeichnet und gibt die Differenz zwischen dem ermittelten erhöhten Kurzschlussstrom und dem Strom der unbehandelten Solarzelle an - also genau den Wert, der durch die verbesserte Lichteinkopplung durch die lasergenerierten Beugungsstrukturen im Deckglas des Moduls erreicht wurde. Alle auf diese Weise berechneten Ergebnisse sind als Übersicht in Tabelle 8.2 zusammengefasst.

	Solarzelle	3. Kontaktfinger	4. Kontaktfinger	Mittelwert
$I_{SC} \left[ \frac{mA}{cm^2} \right]$	$36,\!36$	-	-	-
$I_{SC+}\left[\frac{mA}{cm^2}\right]$	-	36,76	36,64	$36,\!70$
$\Delta I_{SC+} \left[ \frac{mA}{cm^2} \right]$	-	$0,\!40$	$0,\!30$	$0,\!35$

Tab. 8.2.: Zusammenfassung der ermittelten Kurzschlussströme ${\cal I}_{SC}$ 

Der Wirkungsgrad einer Solarzelle kann über folgende Gleichung berechnet werden.

$$\eta = \frac{I_{SC} \ V_{OC} \ FF}{\Gamma} \tag{8.5}$$

Für die Ermittlung der Differenz im Wirkungsgrad durch die im Deckglas eingebrachten Beugungsstrukturen sind nur der Kurzschlussstrom der Solarzelle und der zusätzlich erreichte Kurzschlussstrom relevant, da sich der Füllfaktor FF, die Leerlaufspannung  $U_{OC}$ und die Einstrahlleistung der Sonne  $\Gamma$  nicht ändern. Der relative Anstieg des Wirkungsgrades kann daher auf folgende Weise berechnet werden:

$$\frac{\Delta\eta}{\eta} = \frac{\Delta I_{SC+}}{I_{SC}} \tag{8.6}$$

Unter Berücksichtigung des berechneten Mittelwertes von  $\Delta I_{SC+}$  ergibt sich eine relative Erhöhung des Wirkungsgrades um 1 %. Dieser Wert ist niedriger als in Kapitel 7.2 abgeschätzt. Dort wurde der relative Anstieg zu optimistisch abgeschätzt. Als Grundlage für die dort durchgeführte Rechnung diente eine Beugungseffizienz in höhere Ordnungen von 77 %. Eine Wichtung des Sonnenspektrums nach der wellenlängenabhängigen Beugungseffizienz passierte nicht. Weiterhin wurde die Rechnung für eine sehr effiziente Solarzelle durchgeführt, sodass die resultierenden Ergebnisse die im Rahmen dieses Kapitels ermittelte Wirkungsgraderhöhung überschreiten.

Der durch die verbessere Lichteinkopplung gemessene erhöhte Photostrom und der damit gesteigerte Wirkungsgrad sind in guter Übereinstimmung mit Werten anderer Verfahren, die die optischen Verluste an Solarmodulen reduzieren [17, 26, 100]. Das beschriebene Verfahren der Laserbehandlung der Solarmodule ist allerdings flexibel auf unterschiedliche Solarzellendesigns anpassbar. Weiterhin findet die Behandlung als Lasernachbearbeitung am fertigen Modul statt. Durch die Bestrahlung des Deckglases mit ultrakurzen Laserpulsen kann das Modul bearbeitet werden, ohne die darunter liegenden Solarzellen zu beeinflussen. Dies ist für mögliche Anwendungen in der Industrie von großem Vorteil, da nicht in die empfindliche Zell-Produktion eingegriffen werden muss. Auch ein Recycling älterer Solarzellen ist auf diese Weise realisierbar. Mit einem fs-Lasersystem mit einer Repetitionsrate von 1 MHz und einem optimalen Positionierungssystem, das idealisiert keine Leerlaufzeiten zwischen dem Schreiben einzelner Linien hat, ist es möglich, ein Standardmodul mit 60 Solarzellen in etwa 3,5 Stunden komplett zu bearbeiten. Für die Bestrahlung einer einzelnen Solarzelle sind ca. 3 Minuten notwendig, wenn eine Fingerbreite von 72  $\mu$ m und eine Kantenlänge der Solarzellen von 15,6 cm angenommen wird.

Kommerziell verfügbare Ultrakurzpuls-Industrielaser bieten bei einer Pulswiederholrate von 1 MHz noch bis zu 40  $\mu$ J Pulsenergie. Da für das Laserschreiben eines dreistufigen geblazsten Phasengitters maximal 8  $\mu$ J benötigt werden, besteht die Möglichkeit den Laserprozess über Multilinsensysteme zu parallelisieren. Auf diese Weise könnte die benötigte Bearbeitungszeit um einen Faktor 5 reduziert werden, sodass ein komplettes Solarmodul aus 60 Zellen in ca. 42 Minuten komplett bestrahlt werden kann.

Bei einem 250 Wp Solarmodul entspricht eine Zunahme von 1 % pro Jahr gerechnet bei einer Vergütung von 10ct/kWh etwa 4€ Gewinn. Im Dauerbetrieb des Lasers und mit der Verwendung eines Multilinsensystems ist es möglich, ca. 12515 Module im Jahr zu bearbeiten. Es können auf diese Weise also ca. 50100 € Investitionskosten pro Jahr refinanziert werden. Bei einem Kaufpreis eines fs-Lasersystems von ca. 220.000 €, zusätzlichen Kosten für ein geeignetes Positionier-, Justier- und Fokussiersystem und der anfallenden Betriebskosten, kann die Investition in weniger als 4,5 Jahren refinanziert werden.

Diese Rechnung gilt unter diesen Annahmen nur für nachgeführte Module, da die berücksichtigten Rechnungen auf einem Einfallswinkel des Lichtes von 0° beruhen. Eine Abschätzung über die Leistungsfähigkeit der Beugungsstrukturen bei stationären Modulen wird im folgenden Kapitel durchgeführt.

# 8.2. Einschätzung des Verbesserungspotentials für feststehende Solarmodule

In dieser Arbeit wurde bisher das durch Phasengitter verbesserte Lichtmanagement in Solarmodulen bei senkrechtem Lichteinfall betrachtet. Ein Einfallswinkel von 0° kann gewährleistet werden, wenn Module der Sonne zweiachsig nachgeführt werden. Die Einfallswinkel des Sonnenlichtes auf das Modul bzw. die Beugungsgitter ändern sich bei feststehenden oder einachsig nachgeführten Photovoltaiksystemen. In Abbildung 8.3 ist der Einfall des Sonnenlichtes auf ein feststehendes Solarmodul dargestellt. Eingezeichnet sind der feste Modulneigungswinkel  $\beta$ , der Azimutwinkel der Sonne  $\alpha$  und der Einfallswinkel des Sonnenlichtes auf das Solarmodul  $\theta_S$ . Der Zenitwinkel der Sonne  $\theta_Z$  ist aus Gründen der Übersichtlichkeit nicht eingezeichnet. Er befindet sich zwischen der Vertikalen und dem einfallenden Sonnenstrahl. Der Azimutwinkel beträgt 0°, wenn sich das Modul auf der Nordhalbkugel der Erde befindet und nach Süden ausgerichtet ist.

Für den im Folgenden betrachteten Einfallswinke<br/>l $\theta_S$ zwischen Sonne und Modulnormale gilt der Zusammenhang

$$|\theta_Z - \beta| = \theta_S \quad . \tag{8.7}$$

Zur Einschätzung der Effizienz bei feststehenden Solarmodulen wurden die Standorte Halle und Madrid ausgewählt. Die geometrischen Daten der beiden Städte, die nun im Detail betrachtet werden sollen, sind:

> Halle: Breitengrad  $\phi = 51,496^{\circ}$ , Längengrad  $\gamma = 11,968^{\circ}$ Madrid: Breitengrad  $\phi = 40,416^{\circ}$ , Längengrad  $\gamma = -3,683^{\circ}$



Abb. 8.3.: Schema eines Solarmoduls bei Sonneneinstrahlung mit Modulneigungswinkel  $\beta$ , Azimutwinkel der Sonne  $\alpha$  und Einfallswinkel auf das Solarmodul  $\theta_S$  [101]

Aus diesen geometrischen Daten der beiden Städte lässt sich der jeweils optimale Neigungswinkel  $\beta_{opt}$  für nach Süden ausgerichtete Solarmodule (Module auf der Südhalbkugel der Erde sind im Idealfall nach Norden - also zum Äquator - ausgerichtet) berechnen [101]:

$$\beta_{opt} = 3,7+0,69 \ |\phi| \tag{8.8}$$

Für Halle und Madrid ergeben sich dabei optimale Modulneigungswinkel von

$$\beta_{opt}$$
(Halle) = 38,9°  
 $\beta_{opt}$ (Madrid) = 31,6°

Bei dieser Berechnung wird auch der diffuse Anteil des Lichtes berücksichtigt, der in der folgenden Abschätzung aber vernachlässigt werden soll, da die Beugungsstrukturen vorrangig das Ziel haben, das senkrecht eintreffende Licht um die Frontkontakte zu beugen. Die diffuse Strahlung ist auch der Grund, weshalb die Modulneigung mit steigendem Breitengrad zunimmt.

Auf der Grundlage von aufgezeichneten Sonnendaten des Jahres 2015 wurde der mittlere Zenitwinkel der Sonne zur Mittagszeit berechnet [102]. Da in den Regionen Halle und Madrid zur Mittagszeit die Strahlung der Sonne im Mittel am intensivsten ist, wird dieser Zeitraum zur Abschätzung verwendet. Diese Betrachtung trifft detailliert nur für der Sonne einachsig nachgeführte Solarmodule zu, soll mit der vorangestellten Begründung aber auch für feststehende Module zutreffende Abschätzungen ermöglichen.

Im Folgenden wird also der direkte Lichteinfall für einachsig nachgeführte, nach Süden ausgerichtete (Azimutwinkel  $\alpha = 0^{\circ}$ ) unter dem optimalen Neigungswinkel  $\beta_{opt}$  aufgestellte Solarmodule betrachtet. Aus dem über das Jahr 2015 gemittelten mittleren Zenitwinkel der Sonne zur Mittagszeit  $\overline{\theta_Z}$  am jeweiligen Betrachtungsort kann mit Gleichung (8.7) der mittlere Einfallswinkel  $\overline{\theta_S}$  des Lichtes auf das Modul angegeben werden:

Halle: 
$$\overline{\theta_Z} = 51, 1^\circ$$
 und somit  $\overline{\theta_S} = 12, 2^\circ$   
Madrid:  $\overline{\theta_Z} = 40, 0^\circ$  und somit  $\overline{\theta_S} = 8, 4^\circ$ 

Der Einfallswinkel des Sonnenlichtes ist wie erwartet bei geringeren Breitengraden (also näher zum Äquator) höher. Trotz des angepassten optimalen Modulneigungswinkels ist der Einfallswinkel des Lichtes auf das Modul in Madrid niedriger.

Auf Grund des Brechungsindexes des Glases reduziert sich der Einfallswinkel auf die Phasengitter im Vergleich zum mittleren Moduleinfallswinkels  $\overline{\theta_Z}$ . Mit Hilfe der Brechungsgesetzes (Gleichung (3.2)) lässt sich der Winkel  $\overline{\theta_{BG}}$  berechnen, mit dem das Sonnenlicht auf die Beugungsstrukturen trifft.

$$\overline{\theta_{BG}} = \arcsin\left(\frac{n_{\text{Luft}}}{n_{\text{Glas}}}\sin\overline{\theta_S}\right) \tag{8.9}$$

Die mittleren Einfallswinkel  $\overline{\theta_{BG}}$  auf die im Deckglas eingearbeiteten Beugungsstrukturen (mit Brechungsindex  $n_{\text{Glas}} = 1, 52$ ) betragen dann:

$$\overline{\theta_{BG}} \text{ (Halle)} = 8,0^{\circ} \\ \overline{\theta_{BG}} \text{ (Madrid)} = 5,5^{\circ}$$

Analog zu den Moduleinfallswinkeln ist auch  $\overline{\theta_{BG}}$  in Madrid geringer als in Halle. Es wurde davon ausgegangen, dass die Kontaktfinger und somit ebenso die Beugungsstrukturen horizontal ausgerichtet sind. Das Sonnenlicht trifft senkrecht zu den Beugungsstrukturen unter dem entsprechenden Zenitwinkel auf. Entsprechend dieser berechneten mittleren Einfallswinkel auf die Beugungsgitter wurden Simulationen durchgeführt, die die spektrale Effizienz  $\eta_{PV}$  angeben. Die spektrale Beugungseffizienz  $\eta_{PV}$  im Wellenlängenbereich 300 - 1100 nm für ein dreistufiges geblazstes Phasengitter bei Einfallswinkeln des Lichtes von 5,5° und 8,0° sind in Abbildung 8.4 dargestellt. Die eingezeichneten Linien markieren die in dieser Arbeit effektivsten hergestellten Gitter mit einer maximalen Strukturlänge von 150 µm und einem ermittelten Brechungsindexunterschied  $\Delta n = (2, 3 \pm 0, 6) \cdot 10^{-3}$ .



Abb. 8.4.: Spektrale Beugungseffizienzen  $\eta_{PV}$  eines dreistufigen geblazsten Beugungsgitters bei einem Einfallswinkel von (1) 5,5° und (2) 8,0°

Die spektrale Effizienz der Gitter  $\eta_{PV}$  unter Einfallswinkeln von 5,5° und 8,0° bei  $\Delta n = 2, 3 \cdot 10^{-3}$  und 150 µm Strukturlänge beträgt:

$$\eta_{PV}$$
(Halle, 8, 0°) = 8, 82%  
 $\eta_{PV}$ (Madrid, 5, 5°) = 11, 45%

Während am Standort Halle eine maximale Effizienz von ca. 8,8 % berechnet werden kann, beträgt der Wert in Madrid noch ca. 11,5 %. Maximal 11,5 % des eintreffenden Lichtes im Wellenlängenbereich zwischen 300 und 1100 nm kann um die Frontkontakte gebeugt und auf die aktive Solarfläche geleitet werden. Im Vergleich dazu wurde  $\eta_{PV}$  bei 0 ° Einfallswinkel (also für zweiachsig nachgeführte Module) und  $\Delta n = (2, 3\pm 0, 6) \cdot 10^{-3}$  mit  $\approx$ 55% gemessen. Die Effizienz der Beugungsstrukturen sinkt im Bezug auf den senkrechten Lichteinfall auf 16 bzw. 21 % ab.

$$\frac{\eta_{PV}(8,0^{\circ})}{\eta_{PV}(0^{\circ})} = 16\%$$
$$\frac{\eta_{PV}(5,0^{\circ})}{\eta_{PV}(0^{\circ})} = 21\%$$

Aus dem Verhältnis der Effizienzen der Beugungsgitter bei unterschiedlichen Einfallswinkeln lässt sich die durch die zusätzliche Lichteinkopplung in das Modul erhöhte externe Quanteneffizienz  $EQE_+$  und damit der zusätzlich erzielte Photostrom  $\Delta I_{SC+}$  analog zu Kapitel 8.1 abschätzen. Die Rechnung ergibt, dass bei schrägen Einfallwinkeln von 5,5° und 8° der relative Anstieg im Kurzschlussstrom  $\Delta I_{SC+}$  auf 0,16 bzw. 0,21 % sinkt. Nach Gleichung (8.6) entspricht somit der relative Anstieg des Solarzellenwirkungsgrades ebenfalls 0,16 bzw. 0,21 %.

Zusammenfassend ist deutlich ein Abfall der spektralen Effizienz  $\eta_{PV}$  mit steigendem Lichteinfallswinkel zu erkennen. Bei senkrechtem Einfall können bis zu 55 % des Lichtes von den Frontkontakten auf die aktive Solarzellenfläche umgeleitet werden. Im Vergleich dazu sinkt die Effektivität bei Einfallswinkeln von 5,5° und 8,0° auf ca. 9 bzw. 11,5 % ab. Für zweiachsig nachgeführte Module kann ein relativer Anstieg des Photostromes und Wirkungsgrades von 1 % abgeschätzt werden, wenn geeignete Beugungsstrukturen im Deckglas über den Kontaktfingern angebracht werden. Wird das Modul nur einachsig der Sonne nachgeführt oder steht fixiert, sinkt der relative Anstieg im Wirkungsgrad auf maximal 0,21 % (Standort Madrid) bzw. 0,16 % (Standort Halle).

Da die Leistungsfähigkeit der in dieser Arbeit untersuchten Beugungsstrukturen bei senkrechtem Lichteinfall maximal ist, eignen sie sich besonders für die Anwendung in zweiachsig der Sonne nachgeführten hocheffizienten Solarmodulen. Bei hocheffizienten Modul-System sind weiterhin die Produktionskosten zweitrangig, sodass der in Kapitel 8.1 berechnete Refinanzierungszeitraum von 4 Jahren wenig relevant ist.

Hocheffiziente Solarmodule werden beispielsweise im Weltraum eingesetzt. Hier werden die Module permanent der Sonne nachgeführt, sodass die Lichteinkopplung durch Beugungsstrukturen im Deckglas um bis zu 55 % erhöht wird. Zusätzlich existiert im Weltraum kaum diffuses Licht, sodass die Berechnungen aus Kapitel 7 und 8 direkt angewendet werden können. Dass die Laserbehandlung der Module keine Gewichtszunahme bewirkt, ist ein weiterer Vorteil für den Betrieb im Weltraum.

### KAPITEL 9 : Zusammenfassung

Ziel dieser Arbeit ist es, mit Hilfe von ultrakurzen Laserpulsen optische Strukturen in Deckgläsern von Solarmodulen zu erzeugen, um auf diese Weise die Lichteinkopplung in diese zu erhöhen. Dabei liegt der Fokus auf der Umleitung des Lichtes, das ohne zusätzliche Vorkehrungen an den Kontaktfingern der Solarzelle absorbiert oder reflektiert wird und somit nicht für die Energiekonversion zur Verfügung steht.

Die Bearbeitung der Deckgläser am fertiggestellten Solarmodul statt, sodass sicher gestellt sein muss, dass bei der Laserbestrahlung der Deckgläser keine Modifikation benachbarter Modulbestandteile stattfindet. Aus diesem Grund muss eine präzise Kontrolle der optischen Strukturen bei der Laserbestrahlung mit ultrakurzen Laserpulsen gewährleistet werden. Dies gilt sowohl bei der Erzeugung als auch bei der exakten Positionierung der Mikrostrukturen im Material. Deshalb wurden im Rahmen dieser Arbeit Glasproben mit unterschiedlichen Lasersystemen mit verschiedenen Emissionswellenlängen (515, 800 und 1030 nm) und Pulsdauern (120 und 270 fs) bestrahlt. Die Positionierbarkeit im Material wurde ebenfalls untersucht und festgestellt, dass die optischen Mikrostrukturen bei geeigneter Parameterwahl frei in der Probe positioniert werden können, ohne dass dabei die Vorder- oder Rückseite des Glases modifiziert wird. Weiterhin wurde in dieser Arbeit der Einfluss unterschiedlicher Fokussieroptiken (asphärische Linsen und Mikroskopobjektive) auf die Erzeugung optischer Strukturen im Glasvolumen analysiert.

Aus anderen Arbeiten ist bereits bekannt, wie ultrakurze Laserpulse mit transparenten Halbleitern wechselwirken. Durch nichtlineare Absorption der im Rahmen dieser Arbeit eingestrahlten Femtosekundenlaserpulse ist es möglich, Materialien zu bearbeiten, deren Bandlücke größer als die verwendete Photonenenergie ist. Während der Bestrahlung führen diverse Intra- und Interbandübergänge zu einem lokalen, lawinenartigen Anstieg der Dichte freier Ladungsträger, sodass ein hochabsorbierender plasmaartiger Zustand im Material entsteht. Da Femtosekundenlaserpulse hohe Spitzenintensitäten besitzen, findet durch den optischen Kerr-Effekt eine Selbstfokussierung des eingestrahlten Lasers statt. Durch das Gleichgewicht zwischen Selbstfokussierung des Laserstrahls und Defokussierung durch das entstehende Plasma entstehen Filamente, deren Länge ein Vielfaches der Rayleighlänge des Laserstrahls beträgt. Weitere nichtlineare Effekte, wie die Gruppengeschwindigkeitsdisperion und Selbstphasenmodulation, haben ebenfalls einen wesentlichen Einfluss. Die Filamentlänge konnte im Rahmen dieser Arbeit durch Variation der Wellenlänge, Pulsenergie und Fokussieroptik beeinflusst werden. Entlang der Filamente wird das Material verdichtet, sodass im Medium Brechungsindexunterschiede induziert werden. Eine Kombination dieser erzeugten Brechungsindexunterschiede eignet sich für die Erzeugung von Phasengittern im behandelten eisenarmen Natronglas. Die Charakterisierung der erzeugten Filamente wurde dabei mit einem Lichtmikroskop in Phasenkontrastmodus durchgeführt.

Um die Lichteinkopplung der Sonnenstrahlung im photovoltaisch relevanten Wellenlängenbereich zu optimieren, wurden im Rahmen dieser Arbeit durch die Bestrahlung mit Femtosekundenlaserpulsen effiziente Phasengitter im Volumen von eisenarmen Natronglas erzeugt. Bis zu 54 % des senkrecht eintreffenden Lichtes mit einer Wellenlänge von 405 nm konnte in höhere Beugungsordnungen gebeugt werden, wenn ein einfaches Phasengitterdesign mit optimierten Gitterparametern genutzt wurde. Optische Simulationen, die auf der *rigorous coupled wave analysis* Theorie basieren, wurden durchgeführt, um optimale Gitterparameter für maximale Beugungseffizienzen zu ermitteln.

Durch den Vergleich zwischen experimentell bestimmten Beugungseffizienzen und berechneten Simulationsergebnissen wurde der effektive induzierte Brechungsindexunterschied zu  $\Delta n = (5, 5 \pm 0, 6) \cdot 10^{-3}$  bestimmt. Diese Vorgehensweise bietet eine ausreichend genaue und zuverlässige Möglichkeit den laser-induzierten Brechungsindexunterschied in transparenten Materialien zu bestimmen, welcher sonst auf Grund seiner geringen Größe häufig aufwendig experimentell zu bestimmen ist.

Aufbauend auf diesen Ergebnissen wurden numerische Studien für ein verbessertes Phasengitterdesign durchgeführt. Ein dreistufig geblazstes Phasengitter wurde auf Grundlage von ausführlichen Simulationen mit diversen Gitterdesigns für die geplante Verbesserung der Lichteinkopplung in Solarmodule als hocheffizientes Beugungsgitter identifiziert. Um die Simulationsergebnisse zu bestätigen, wurden dreistufige geblazste Transmissionsgitter produziert. Bei der Charakterisierung der Beugungseffizienzen wurden Werte von bis zu 70 % für senkrecht eingestrahltes weißes Licht (300 - 1100 nm) gemessen. Durch den Vergleich der experimentellen und simulierten Ergebnisse wurde der mittlere laser-induzierte Brechungsindexunterschied zu  $\Delta n = (2, 3 \pm 0, 6) \cdot 10^{-3}$  bestimmt. Da für die Erzeugung der drei Stufen des Phasengitters unterschiedliche Laserpulsenergien verwendet werden, kann nur ein effektiver Brechungsindexunterschied der drei Stufen angegeben werden.

In einem Ausblick wurde im Rahmen dieser Arbeit berechnet, dass feine Gitter (mit geringen Gitterperioden und beugungsbegrenzten Gitterlinienbreiten von  $0.5 \mu m$ ) maximal 40

% des eingestrahlten weißen Lichtes in höhere Beugungsordnungen beugen können, wenn geeignete Parameter gewählt werden. Feine Gitter können in Anwendungen zum Einsatz kommen, bei denen Beugungswinkel für die erste Ordnung von mehr als 8° notwendig sind.

Um die verbesserte Lichteinkopplung der Sonnenstrahlung im photovoltaisch relevanten Wellenlängenbereich durch das produzierte dreistufige geblazste Phasengitter zu untersuchen, wurde ein Miniatur-Solarmodul mit einer monokristallinen Siliziumsolarzelle mit diesen Beugungsstrukturen versehen. Die geblazsten Beugungsgitter wurden über den Kontaktfingern in das Deckglas des fertigen Modul eingebracht, ohne umliegende Komponenten des Moduls zu modifizieren. Eine ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz bei verschiedenen Wellenlängen (405 - 980 nm) in diesem Bereich zeigte durch die verbesserte Lichtleitung um die Kontaktfinger herum einen Anstieg der externen Quanteneffizienz um maximal 3,2 %, wenn mit einer Laserdiode mit 405 nm charakterisiert wurde.

Durch eine Interpolation und anschließender Faltung der ermittelten erhöhten Quanteneffizienz in einem Wellenlängenbereich zwischen 300 und 1100 nm mit dem Sonnenspektrum AM 1.5G wurde ein erhöhter Kurzschlussstrom der Solarzelle von 0,35  $\frac{mA}{cm^2}$  ermittelt. Dieser führt zu einer relativen Erhöhung des photovoltaischen Wirkungsgrades der Solarzelle im Miniatur-Solarmodul um 1 %.

Im Rahmen dieser Arbeit wurde ebenfalls gezeigt, dass der Einfallswinkel des Lichtes senkrecht zu den Beugungsstrukturen einen wesentlichen Einfluss auf die Beugungseffizienz der präsentierten Beugungsgitter hat. Die beschriebenen Berechnungen für den senkrechten Lichteinfall gelten so nur für zweiachsig der Sonne nachgeführte Solarmodule. Um den Einfluss des Einfallswinkels auf die Effizienz des Beugungsgitter zu untersuchen, wurden für die Standorte Halle und Madrid die mittleren Zeniteinfallswinkel zur Mittagszeit für das Jahr 2015 berechnet. Für nach Süden ausgerichtete und unter dem für den jeweiligen Breitengrad optimalen Neigungswinkel aufgestellte Solarmodule sinkt der relative Anstieg des Solarzellenwirkungsgrades auf 0,16 (Halle) bzw. 0,21 % (Madrid) ab.

Die im Rahmen dieser Arbeit untersuchten Beugungsgitter eignen sich inbesondere für der Sonne nachgeführte Solarmodule und können in hocheffizienten Solarmodulen zur Verbesserung des Wirkungsgrades zum Einsatz kommen. Vor allem für die Anwendung im Weltall sind die untersuchten Beugungsgitter in hohem Maße geeignet.

#### Literaturverzeichnis

- Baerbel Rethfeld. "Free electron generation in laser-irradiated dielectrics". In: ICO-NO 2005: Nonlinear Optical Phenomena. International Society for Optics und Photonics. 2006, S. 62590C-62590C.
- [2] EN Glezer, M Milosavljevic, L Huang u.a. "Three-dimensional optical storage inside transparent materials". In: Optics Letters 21.24 (1996), S. 2023–2025.
- [3] Wataru Watanabe, Tadamasa Toma, Kazuhiro Yamada u.a. "Optical seizing and merging of voids in silica glass with infrared femtosecond laser pulses". In: Optics letters 25.22 (2000), S. 1669–1671.
- [4] S Richter, S Döring, A Tünnermann und S Nolte. "Bonding of glass with femtosecond laser pulses at high repetition rates". In: Applied Physics A 103.2 (2011), S. 257-261.
- [5] Isamu Miyamoto, Alexander Horn, Jens Gottmann, Dirk Wortmann und Fumiyo Yoshino. "Fusion welding of glass using femtosecond laser pulses with high-repetition rates". In: Zvaranie/Svarovani 60.3-4 (2011), S. 59–66.
- [6] Takayuki Tamaki, Wataru Watanabe, Junji Nishii und Kazuyoshi Itoh. "Welding of transparent materials using femtosecond laser pulses". In: Japanese Journal of Applied Physics 44.5L (2005), S. L687.
- [7] K Miura Davis, K Miura, Naoki Sugimoto und Kazuyuki Hirao. "Writing waveguides in glass with a femtosecond laser". In: Optics letters 21.21 (1996), S. 1729– 1731.
- [8] C Hnatovsky, RS Taylor, E Simova u.a. "Fabrication of microchannels in glass using focused femtosecond laser radiation and selective chemical etching". In: Applied Physics A 84.1-2 (2006), S. 47–61.
- [9] Dirk Wortmann, Jens Gottmann, Nelli Brandt und Herbert Horn-Solle. "Microand nanostructures inside sapphire by fs-laser irradiation and selective etching". In: Optics Express 16.3 (2008), S. 1517–1522.
- [10] Christian Voigtländer, Daniel Richter, Jens Thomas, Andreas Tünnermann und Stefan Nolte. "Inscription of high contrast volume Bragg gratings in fused silica with femtosecond laser pulses". In: Applied Physics A 102.1 (2011), S. 35–38.

- [11] Igor V Ciapurin, Leonid B Glebov und Vadim I Smirnov. "Modeling of phase volume diffractive gratings, part 1: transmitting sinusoidal uniform gratings". In: *Optical Engineering* 45.1 (2006), S. 015802–015802.
- [12] Tina Clausnitzer, Thomas Kämpfe, Frank Brückner u. a. "Highly dispersive dielectric transmission gratings with 100% diffraction efficiency". In: *MOEMS-MEMS* 2008 Micro and Nanofabrication. International Society for Optics und Photonics. 2008, 68830U-68830U.
- [13] "International Technology Roadmap for Photovoltaic, ITRPV Edition 2015". In:
   (2015). URL: http://www.itrpv.net/Reports/Downloads/.
- [14] E.E. Bende und B.B. van Aken. "The Effect of Reduced Silver Paste Consumption on the Cost Per Wp for Tab-based Modules and Conductive-foil Based Modules". In: *Energy Procedia* 67 (2015). Proceedings of the Fifth Workshop on Metallization for Crystalline Silicon Solar Cells, S. 163-174. ISSN: 1876-6102. DOI: http://dx. doi.org/10.1016/j.egypro.2015.03.300. URL: http://www.sciencedirect. com/science/article/pii/S1876610215006062.
- [15] K Agroui, B Koll, G Collins u.a. "Characterization of encapsulant materials for photovoltaic solar energy conversion". In: Solar Energy+ Applications. International Society for Optics und Photonics. 2008, 70480G–70480G.
- [16] Takao Yamada, Hiroyuki Nakamura, Tadatoshi Sugiura, Koichi Sakuta und Kousuke Kurokawa. "Reflection loss analysis by optical modeling of PV module". In: *Solar energy materials and solar cells* 67.1 (2001), S. 405–413.
- [17] Jens Schneider, Marko Turek, Marcel Dyrba u.a. "Combined effect of light harvesting strings, anti-reflective coating, thin glass, and high ultraviolet transmission encapsulant to reduce optical losses in solar modules". In: Progress in Photovoltaics: Research and Applications 22.7 (2014), S. 830–837.
- [18] Joachim Müller, Bernd Rech, Jiri Springer und Milan Vanecek. "TCO and light trapping in silicon thin film solar cells". In: Solar Energy 77.6 (2004), S. 917–930.
- [19] Gerhard Seifert, Isolde Schwedler, Jens Schneider und Ralf B Wehrspohn. Light Management in Solar Modules. Wiley Online Library, 2015, S. 323–346.
- [20] Andrew W Blakers, Aihua Wang, Adele M Milne, Jianhua Zhao und Martin A Green. "22.8% efficient silicon solar cell". In: Applied Physics Letters 55.13 (1989), S. 1363–1365.
- [21] C Ballif, J Dicker, D Borchert und T Hofmann. "Solar glass with industrial porous SiO 2 antireflection coating: measurements of photovoltaic module properties improvement and modelling of yearly energy yield gain". In: Solar energy materials and solar cells 82.3 (2004), S. 331–344.

- [22] John Wohlgemuth, Daniel Cunningham, Jay Shaner u. a. "Crystalline silicon photovoltaic modules with anti-reflective coated glass". In: *Photovoltaic Specialists Conference, 2005. Conference Record of the Thirty-first IEEE*. IEEE. 2005, S. 1015– 1018.
- [23] T. Keyser. Herstellung und Veredlung von Dünnglas für PV-Anwendungen. 9.
   Workshop "Photovoltaik-Modultechnik"TÜV Rheinland, Köln. 2012.
- [24] Indeok Chung, Hyun young Son, Hoon Oh u. a. "Light Capturing Film on interconnect ribbon for current gain of crystalline silicon PV modules". In: 2013 IEEE 39th Photovoltaic Specialists Conference (PVSC). 2013, S. 1478–1480.
- [25] Joachim Jaus, Matthias Duell, Johannes Eckert u. a. "Approaches to improving energy yield from PV modules". In: SPIE Solar Energy+ Technology. International Society for Optics und Photonics. 2010, 77730S-77730S.
- [26] Ladislav Kuna, Gabriele C Eder, Claude Leiner und Gerhard Peharz. "Reducing shadowing losses with femtosecond-laser-written deflective optical elements in the bulk of EVA encapsulation". In: Progress in Photovoltaics: Research and Applications 23.9 (2015), S. 1120–1130.
- [27] Gerhard Peharz, Ladislav Kuna und Claude Leiner. "Laser-assisted manufacturing of micro-optical volume elements for enhancing the amount of light absorbed by solar cells in photovoltaic modules". In: SPIE OPTO. International Society for Optics und Photonics. 2015, 93581B–93581B.
- [28] JW Chan, TR Huser, SH Risbud und DM Krol. "Modification of the fused silica glass network associated with waveguide fabrication using femtosecond laser pulses". In: Applied Physics A 76.3 (2003), S. 367–372.
- [29] Wataru Watanabe, Takayuki Tamaki, Yasuyuki Ozeki und Kazuyoshi Itoh. Filamentation in ultrafast laser material processing. Springer, 2010, S. 161–181.
- [30] DM Krol. "Femtosecond laser modification of glass". In: Journal of Non-Crystalline Solids 354.2 (2008), S. 416–424.
- [31] Markus Muchow, Torsten Büchner, Alexander Sprafke und Gerhard Seifert. "Femtosecond laser-written high-efficiency blazed phase gratings in the volume of soda lime glass for light management in solar modules". In: *Opt. Express* 23.26 (Dez. 2015), S. 33540-33549. DOI: 10.1364/OE.23.033540. URL: http://www.opticsexpress.org/abstract.cfm?URI=oe-23-26-33540.
- [32] M Rubin. "Optical properties of soda lime silica glasses". In: Solar energy materials 12.4 (1985), S. 275–288.

- [33] Kazem Jamshidi-Ghaleh, Nastaran Mansour und Abdorrahman Namdar. "Nonlinear optical properties of soda-lime glass at 800-nm femtosecond irradiation". In: *LASER PHYSICS-LAWRENCE*- 15.12 (2005), S. 1714.
- [34] H Hora. "YR Shen, The Principles of Nonlinear Optics, John Wiley & Sons, New York, 1984, 576 pages." In: Laser and Particle Beams 4.02 (1986), S. 318–319.
- [35] SS Mao, Fabien Quéré, Stéphane Guizard u.a. "Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics". In: *Applied Physics A* 79.7 (2004), S. 1695–1709.
- [36] David Huang, Morrison Ulman, Lucio H Acioli, Hermann A Haus und James G Fujimoto. "Self-focusing-induced saturable loss for laser mode locking". In: Optics letters 17.7 (1992), S. 511–513.
- [37] JH Marburger. "Self-focusing: theory". In: Progress in Quantum Electronics 4 (1975), S. 35–110.
- [38] JH Marburger und E Dawes. "Dynamical formation of a small-scale filament". In: *Physical Review Letters* 21.8 (1968), S. 556.
- [39] M Kolesik, G Katona, JV Moloney und EM Wright. "Physical factors limiting the spectral extent and band gap dependence of supercontinuum generation". In: *Physical review letters* 91.4 (2003), S. 043905.
- [40] Mahesh R Junnarkar. "Short pulse propagation in tight focusing conditions". In: Optics communications 195.1 (2001), S. 273-292.
- [41] GG Luther, EM Wright, JV Moloney und AC Newell. "Self-focusing threshold in normally dispersive media". In: Optics letters 19.12 (1994), S. 862–864.
- [42] F DeMartini, CH Townes, TK Gustafson und PL Kelley. "Self-steepening of light pulses". In: *Physical Review* 164.2 (1967), S. 312.
- [43] Joshua E Rothenberg. "Pulse splitting during self-focusing in normally dispersive media". In: Optics letters 17.8 (1992), S. 583–585.
- [44] Gadi Fibich und GC Papanicolaou. "Self-focusing in the presence of small time dispersion and nonparaxiality". In: *Optics letters* 22.18 (1997), S. 1379–1381.
- [45] Jinendra K Ranka und Alexander L Gaeta. "Breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of ultrashort pulses". In: Optics Letters 23.7 (1998), S. 534–536.
- [46] Tino Rublack. "Schädigungsfreie Ablation dielektrischer Schichten auf Silizium mittels ultrakurzer Laserimpulse". Diss. Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg, Naturwissenschaftliche Fakultät II, Institut für Physik, 2012. URL: urn:nbn:de: gbv:3:4-8893.

- [47] Antoine Rousse, Christian Rischel, S Fourmaux u. a. "Non-thermal melting in semiconductors measured at femtosecond resolution". In: *Nature* 410.6824 (2001), S. 65–68.
- [48] A Kaiser, B Rethfeld, M Vicanek und G Simon. "Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses". In: *Physical Review B* 61.17 (2000), S. 11437.
- [49] MD Feit und JA Fleck Jr. "Effect of refraction on spot-size dependence of laserinduced breakdown". In: *Applied Physics Letters* 24.4 (1974), S. 169–172.
- [50] Eli Yablonovitch. "Self-phase modulation and short-pulse generation from laserbreakdown plasmas". In: *Physical review A* 10.5 (1974), S. 1888.
- [51] EG Gamaly, AV Rode, VT Tikhonchuk und B Luther-Davies. "Electrostatic mechanism of ablation by femtosecond lasers". In: *Applied surface science* 197 (2002), S. 699–704.
- [52] B Rethfeld, K Sokolowski-Tinten, D Von der Linde und SI Anisimov. "Ultrafast thermal melting of laser-excited solids by homogeneous nucleation". In: *Physical review B* 65.9 (2002), S. 092103.
- [53] SI Anisimov, NA Inogamov, AM Oparin u.a. "Pulsed laser evaporation: equationof-state effects". In: *Applied Physics A* 69.6 (1999), S. 617–620.
- [54] K Sokolowski-Tinten, J Bialkowski, M Boing, A Cavalleri und D Von Der Linde. "Thermal and nonthermal melting of gallium arsenide after femtosecond laser excitation". In: *Physical Review B* 58.18 (1998), R11805.
- [55] Brent C Stuart, Michael D Feit, Steve Herman u.a. "Optical ablation by high-power short-pulse lasers". In: JOSA B 13.2 (1996), S. 459–468.
- [56] A Saliminia, NT Nguyen, SL Chin und R Vallée. "The influence of self-focusing and filamentation on refractive index modifications in fused silica using intense femtosecond pulses". In: Optics communications 241.4 (2004), S. 529–538.
- [57] SL Chin, Y Chen, O Kosareva, VP Kandidov und F Théberge. "What is a filament?" In: Laser Physics 18.8 (2008), S. 962–964.
- [58] N Akoezbek, CM Bowden, A Talebpour und SL Chin. "Femtosecond pulse propagation in air: variational analysis". In: *Physical Review E* 61.4 (2000), S. 4540.
- [59] A Couairon. "Dynamics of femtosecond filamentation from saturation of self-focusing laser pulses". In: *Physical Review A* 68.1 (2003), S. 015801.
- [60] Ole Bang, Wieslaw Krolikowski, John Wyller und Jens Juul Rasmussen. "Collapse arrest and soliton stabilization in nonlocal nonlinear media". In: *Physical Review* E 66.4 (2002), S. 046619.

- [61] P Chernev und V Petrov. "Self-focusing of light pulses in the presence of normal group-velocity dispersion". In: *Optics letters* 17.3 (1992), S. 172–174.
- [62] Gadi Fibich, VM Malkin und GC Papanicolaou. "Beam self-focusing in the presence of a small normal time dispersion". In: *Physical Review A* 52.5 (1995), S. 4218.
- [63] Michal Mlejnek, Ewan M Wright und Jerome V Moloney. "Moving-focus versus self-waveguiding model for long-distance propagation of femtosecond pulses in air".
   In: Quantum Electronics, IEEE Journal of 35.12 (1999), S. 1771–1776.
- [64] Eli Yablonovitch und N Bloembergen. "Avalanche ionization and the limiting diameter of filaments induced by light pulses in transparent media". In: *Physical Re*view Letters 29.14 (1972), S. 907.
- [65] Stellios Tzortzakis, Lionel Sudrie, Michel Franco u. a. "Self-guided propagation of ultrashort IR laser pulses in fused silica". In: *Physical review letters* 87.21 (2001), S. 213902.
- [66] Alfredo Pasquarello und Roberto Car. "Identification of Raman defect lines as signatures of ring structures in vitreous silica". In: *Physical Review Letters* 80.23 (1998), S. 5145.
- [67] Alexander Szameit und Stefan Nolte. "Discrete optics in femtosecond-laser-written photonic structures". In: Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics 43.16 (2010), S. 163001.
- [68] JW Chan, Thomas Huser, S Risbud und DM Krol. "Structural changes in fused silica after exposure to focused femtosecond laser pulses". In: Optics letters 26.21 (2001), S. 1726–1728.
- [69] F. Vega, J. Armengol, V. Diez-Blanco u. a. "Mechanisms of refractive index modification during femtosecond laser writing of waveguides in alkaline lead-oxide silicate glass". In: Applied Physics Letters 87.2, 021109 (2005). DOI: http://dx.doi.org/ 10.1063/1.1994927. URL: http://scitation.aip.org/content/aip/journal/ apl/87/2/10.1063/1.1994927.
- [70] Yan Li, Wataru Watanabe, Kazuyoshi Itoh und Xiudong Sun. "Holographic data storage on nonphotosensitive glass with a single femtosecond laser pulse". In: Applied Physics Letters 81.11 (2002), S. 1952-1954. DOI: http://dx.doi.org/10.1063/1.1506410. URL: http://scitation.aip.org/content/aip/journal/apl/81/11/10.1063/1.1506410.
- [71] Kuan-Han Sun, Kurd W Safford und Alexander Silverman. "REVIEW OF THE RELATION OF DENSITY AND REFRACTIVE INDEX TO THE COMPOSI-TION OF GLASS: II". In: Journal of the American Ceramic Society 23.12 (1940), S. 343-354.

- [72] Shane M Eaton, Haibin Zhang, Mi Li Ng u.a. "Transition from thermal diffusion to heat accumulation in high repetition rate femtosecond laser writing of buried optical waveguides". In: *Optics express* 16.13 (2008), S. 9443–9458.
- [73] Isamu Miyamoto, Alexander Horn, Jens Gottmann, Dirk Wortmann und Fumiyo Yoshino. "Fusion welding of glass using femtosecond laser pulses with high-repetition rates". In: Zvaranie/Svarovani 60.3-4 (2011), S. 59–66.
- [74] Shingo Kanehira, Kiyotaka Miura und Kazuyuki Hirao. "Ion exchange in glass using femtosecond laser irradiation". In: *Applied Physics Letters* 93.2 (2008), S. 023112.
- Shane Eaton, Haibin Zhang, Peter Herman u. a. "Heat accumulation effects in femtosecond laser-written waveguides with variable repetition rate". In: Optics Express 13.12 (2005), S. 4708–4716.
- [76] Alexander M Streltsov und Nicholas F Borrelli. "Study of femtosecond-laser-written waveguides in glasses". In: JOSA B 19.10 (2002), S. 2496–2504.
- [77] Joseph W Goodman. Introduction to Fourier optics. Roberts und Company Publishers, 2005.
- [78] Eugene Hecht. Optik. Oldenbourg Verlag, 2005.
- [79] Heinz Haferkorn. Optik: physikalisch-technische Grundlagen und Anwendungen. John Wiley & Sons, 2008.
- [80] CV Raman und NS Nagendra Nath. "The diffraction of light by high frequency sound waves. Part I". In: Proceedings of the Indian Academy of Sciences, Section A. Bd. 2. 4. Indian Academy of Sciences. 1935, S. 406-412.
- [81] JW Goodman. Introduction to Fourier Optics, McGaw-Hill Physical and Quantum Electronics Series. 1968.
- [82] Herwig Kogelnik. "Coupled wave theory for thick hologram gratings". In: Bell System Technical Journal 48.9 (1969), S. 2909–2947.
- [83] Richard C Extermann. Théorie de la diffraction de la lumière par des ultra-sons.
   E. Birkhäuser & Cie, SA, 1938.
- [84] MG Moharam, TK Gaylord und R Magnusson. "Criteria for Bragg regime diffraction by phase gratings". In: Optics Communications 32.1 (1980), S. 14–18.
- [85] MG Moharam, TK Gaylord und R Magnusson. "Criteria for Raman-Nath regime diffraction by phase gratings". In: *Optics Communications* 32.1 (1980), S. 19–23.
- [86] Victor Liu und Shanhui Fan. "S 4: A free electromagnetic solver for layered periodic structures". In: *Computer Physics Communications* 183.10 (2012), S. 2233–2244.
- [87] MG Moharam und Thomas K Gaylord. "Diffraction analysis of dielectric surfacerelief gratings". In: JOSA 72.10 (1982), S. 1385–1392.

- [88] MG Moharam und TK Gaylord. "Rigorous coupled-wave analysis of metallic surfacerelief gratings". In: JOSA a 3.11 (1986), S. 1780–1787.
- [89] Frits Zernike. "Phase contrast, a new method for the microscopic observation of transparent objects". In: *Physica* 9.7 (1942), S. 686–698.
- [90] Hermann Beyer. Theorie und Praxis des Phasenkontrastverfahrens. Bd. 17. Akademische Verlagsgesellschaft Geest & Portig, 1965.
- [91] Fumiya Hashimoto, Tomoki Yoshino, Yasuyuki Ozeki und Kazuyoshi Itoh. "Large increase in refractive index inside silica glass after the movement of voids caused by femtosecond laser pulses". In: Japanese Journal of Applied Physics 53.4 (2014), S. 042601.
- [92] Shane M Eaton, Mi Li Ng, Roberto Osellame und Peter R Herman. "High refractive index contrast in fused silica waveguides by tightly focused, high-repetition rate femtosecond laser". In: *Journal of Non-Crystalline Solids* 357.11 (2011), S. 2387– 2391.
- [93] René Berlich, Jiyeon Choi, Clarisse Mazuir u. a. "Spatially resolved measurement of femtosecond laser induced refractive index changes in transparent materials". In: Optics letters 37.14 (2012), S. 3003-3005.
- [94] I Miyamoto, Y Okamoto, R Tanabe und Y Ito. "Characterization of Plasma in Microwelding of Glass Using Ultrashort Laser Pulse at High Pulse Repetition Rates". In: *Physics Procedia* 56 (2014), S. 973–982.
- [95] JB Lonzaga, SM Avanesyan, SC Langford und JT Dickinson. "Color center formation in soda-lime glass with femtosecond laser pulses". In: *Journal of applied physics* 94.7 (2003), S. 4332–4340.
- [96] Shane M Eaton, Giulio Cerullo und Roberto Osellame. "Fundamentals of Femtosecond Laser Modification of Bulk Dielectrics". In: *Femtosecond Laser Micromachining*. Springer, 2012. Kap. 1, S. 3–18.
- [97] Jinendra K Ranka, Robert W Schirmer und Alexander L Gaeta. "Observation of pulse splitting in nonlinear dispersive media". In: *Physical review letters* 77.18 (1996), S. 3783.
- [98] D Homoelle, S Wielandy, Alexander L Gaeta, NF Borrelli und Charlene Smith. "Infrared photosensitivity in silica glasses exposed to femtosecond laser pulses". In: Optics Letters 24.18 (1999), S. 1311–1313.
- [99] Cheng-Yu Peng, Zhong-Jia Ji, Shang-Yeh Wen und Huei-Ting Yan. "Performance enhancement of a shaded light trapping solar module". In: *Photovoltaic Specialist Conference (PVSC)*, 2015 IEEE 42nd. IEEE. 2015, S. 1–3.

- [100] Emanuel M Sachs, J Serdy, AM Gabor, F Van Mierlo und T Booz. "Light-Capturing Interconnect Wire for 2% Module Power Gain". In: Proceedings of the 24th European Photovoltaic Solar Energy Conference and Exhibition, 4CO. Bd. 2. 2009.
- [101] Antonio Luque und Steven Hegedus. Handbook of photovoltaic science and engineering. John Wiley & Sons, 2011.
- [102] Manuel Blanco-Muriel, Diego C Alarcon-Padilla, Teodoro Lopez-Moratalla und Martin Lara-Coira. "Computing the solar vector". In: Solar Energy 70.5 (2001), S. 431–441.

# Abbildungsverzeichnis

1.1.	Bestandteile eines Solarmoduls vor der Laminierung, abgebildet sind Front-	4
1.0	glas, Polymerionen, vordersettig kontaktierte Solarzene und Kucksettemone	4
1.2.	Schematische Darstellung von Beugungsstrukturen im Deckglasvolumen ei-	-
1.0	nes Solarmoduls	Э
1.3.	Schematische Darstellung der Beugungswirkung einer idealen Beugungs-	-
	struktur im Glasvolumen	7
2.1.	Mechanismen zur Anregung von Ladungsträgern in Festkörpern mit Band-	
	lücke [46]	15
2.2.	Schematische Darstellung der Balance zwischen Selbstfokussierung des La-	
	serstrahls und Defokussierung durch das entstehende Elektronenplasma;	
	durch den skizzierten Kreislauf entstehen Filamente mit einigen Mikrome-	
	tern Länge im Material	20
2.3.	Schematisches Aufspalten der neun-gliedrigen Ringe im Glas durch Be-	
	strahlung mit fs-Laserpulsen und Rekombination zu kleineren Ringen im	
	Glasnetzwerk, übernommen aus [67]	21
2.4.	Ramanspektren eines mit ultrakurzen Laserpulsen bestrahlten Glases in	
	Abhängigkeit von der verwendeten Pulsenergie, übernommen aus [28]	22
3.1.	Verschiedene Gittertypen auf der Oberfläche eines Trägermaterials ange-	
	bracht (a) binäres symmetrisches Gitter (b) binäres asymmetrisches Gitter	
	(c) geblazstes Gitter (d) geblazstes Stufengitter	24
3.2.	Beugungsordnungen eines Phasengitters	25
3.3.	Unterteilung eines Gitterproblems in drei Regionen, dargestellt sind die	
	transmittierten und reflektierten Beugungsordnungen, Ordnungen die sich	
	innerhalb des Gitters bewegen werden als evaneszent bezeichnet $\ldots$ .	28
3.4.	Schematische Abbildung eines Schichtstapels und Definition der Einheits-	
	zelle für die Berechnung mit Hilfe der RCWA-Theorie im Sofwarepaket S4 $$	
	[86]	29
4.1.	Transmissions- und Reflektion und daraus berechneter Brechungsindex der	
	verwendeten Gläser	31

4.2.	Bestrahlungsaufbau: (1) zu bestrahlendes Miniaturmodul (alternativ Glas- probe) (2) Fokussieroptik (Mikroskopobjektiv oder Asphärische Linse) (3) Umlenkspiegel (3) computergesteuerter X-Y-Piezotisch mit Vakuumchuck zur Probenfixierung	33
4.3.	Glasprobe, in die ein Phasengitter geschrieben wurde. Zu sehen ist das Beu- gungsmuster, welches bei der monochromatischen Beleuchtung der Gitters entsteht.	34
4.4.	Schema eines Lichtmikroskops im Phasenkontrastaufbau	35
5.1.	Schema eines einfachen Phasengitters inklusive der für die numerischen Rechnungen verwendeten Parameter	38
5.2.	Summierte Beugungseffizienz $\eta_D$ eines Phasengitters mit Gitterperiode a = 6 µm, Gitterlinienbreite b = 3 µm in Abhängigkeit des Brechungsindexun- terschiedes $\Delta n$ und der Strukturlänge l bei senkrecht einfallendem Licht mit einer Wellenlänge von $\lambda = 700$ nm	39
5.3.	Summierte Beugungseffizienz $\eta_D$ symmetrischer Phasengitter mit unter- schiedlichen Gitterperioden a bei senkrecht einfallendem Licht mit einer Wellenlänge von $\lambda = 700$ nm (1) a = 4 µm b = 2 µm (2) a = 6 µm b = 3 µm (3) a = 8 µm b = 4 µm	41
5.4.	Summierte Beugungseffizienz $\eta_D$ asymmetrischer Gitter mit einer Gitter- periode von a = 8 µm und unterschiedlichen Gitterlinienbreiten b bei senk- recht einfallendem Licht mit einer Wellenlänge von $\lambda = 700$ nm (1) b = 2 µm (2) b = 3 µm (3) b = 4 µm	42
5.5.	Summierte Beugungseffizienz $\eta_D$ eines Gitters mit Gitterperiode von 8 µm, Gitterlinienbreite von 4 µm bei senkrecht einfallendem Licht mit einer Wel- lenlänge von $\lambda = (1)$ 300 und (2) 1100 nm	43
5.6.	Spektrale Beugungseffizienz $\eta_{PV}$ eines Gitters mit Gitterperiode von 8 µm und Gitterlinienbreite von 4 µm bei senkrecht einfallendem Licht und einem Wellenlängenbereich von $\lambda = 300$ bis 1100 nm	44
6.1.	Tiefeneinstellbarkeit der Modifikationen im Glasvolumen, durchgeführt mit verschiedenen Fokussieroptiken bei einer Laserwellenlänge von 1030 nm und 5 µJ Pulsenergie	46
6.2.	Lichtmikroskopaufnahme im Phasenkontrastmodus einer Seitenansicht von Modifikationen im Glasvolumen erzeugt mit einer Laserwellenlänge von 1030 nm bei unterschiedlichen Pulsenergien (abnehmend von links nach	
	rechts) $\ldots$	48

6.3.	Erzeugte Modifikationslänge im Glasvolumen in Abhängigkeit der einge-	
	strahlten Pulsenergie und der verwendeten Fokussieroptik bei einer Laser-	
	wellenlänge von 515 nm	49
6.4.	Erzeugte Modifikationslänge im Glasvolumen in Abhängigkeit der einge-	
	strahlten Pulsenergie und der verwendeten Fokussieroptik bei einer Laser-	
	wellenlänge von 800 nm	51
6.5.	Lichtmikroskopaufnahme im Phasenkontrastmodus einer Seitenansicht von	
	Modifikationen mit Rissen im Glasvolumen erzeugt mit einer Laserwellen-	
	länge von 800 nm, 8,5 µJ Pulsenergie und Fokussieroptik MO 0.65	51
6.6.	Erzeugte Modifikationslänge im Glasvolumen in Abhängigkeit der einge-	
0.0.	strahlten Pulsenergie und der verwendeten Fokussieroptik bei einer Laser-	
	wellenlänge von 1030 nm	52
67	Lichtmikroskopaufnahme im Phasenkontrastmodus einer Seitenansicht von	0
0.1.	Modifikationen im Glasvolumen erzeugt mit einer Laserwellenlänge von	
	1030 nm 6 u.I. Pulsenergie und Fokussieroptik MO 0.65	53
68	Experimentalle $(n_{-})$ und Simulationsorgabnisse $(n_{-})$ gives Physon effectives	00
0.8.	Experimentene $(\eta_{D,exp})$ und Simulationsergebnisse $(\eta_D)$ entes i has engitters mit $x = 6$ µm, $b = 3$ µm, und $l = 150$ µm für die Wellenlängen (1) 405 nm	
	(2) 514  pm (3) 635  pm (4) 785  pm	58
	(2) 514 mm (5) 655 mm (4) 765 mm $\ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots \ldots$	00
7.1.	Schema eines geblazsten Phasengitters inklusive der für die numerischen	
	Rechnungen verwendeten Parameter	62
7.2.	Summierte Beugungseffizienz $\eta_D$ geblazster Phasengitter mit unterschied-	
	licher Anzahl an Stufen und Gitterperioden a bei senkrecht einfallendem	
	Licht mit einer Wellenlänge von $\lambda = 700$ nm (1) zweistufig a = 6 µm b =	
	$2 \ \mu m \ (2) \ dreistufig a = 8 \ \mu m \ b = 2 \ \mu m \ (3) \ vierstufig a = 10 \ \mu m \ b = 2 \ \mu m$	63
7.3.	Spektrale Beugungseffizienz $\eta_{PV}$ eines Blaze-Phasengitters mit Gitterperi-	
	ode von 8 µm und Gitterlinienbreite von 2 µm bei senkrecht einfallendem	
	Licht und einem Wellenlängenbereich von $\lambda = 300$ bis 1100 nm	64
7.4.	Spektrale Beugungseffizienz $\eta_{PV}$ eines Blaze-Phasengitters mit Gitterperi-	
	ode von 8 µm und Gitterlinienbreite von 2 µm bei senkrecht einfallendem	
	Licht und einem Wellenlängenbereich von $\lambda = 300$ bis 1100 nm (1) $\eta_{PV}$ der	
	1. Beugungsordnung (2) $\eta_{PV}$ der 2. Beugungsordnung	65
7.5.	Experimentelle $(n_{D, crm})$ und Simulationsergebnisse $(n_D)$ eines Blaze-Phasengitt	ers
	mit $a = 8 \mu m$ , $b = 2 \mu m$ und $l = 150 \mu m$ für die Wellenlängen (1) 405 nm	
	(2) 514 nm (3) 635 nm (4) 785 nm	66
7.6	Spektrale Beugungseffizienz $n_{PV}$ eines Blaze-Phasengitters mit Gitterperi-	
	ode von 2 µm und Gitterlinienbreite von 0.5 µm bei senkrecht einfallendem	
	Licht und einem Wellenlängenbereich von $\lambda = 300$ bis 1100 nm	69
	U U	

7.7.	Spektrale Beugungseffizien z $\eta_{PV}$ eines Blaze-Phasengitters mit Gitter peri-
	ode von 2 µm und Gitterlinienbreite von 0,5 µm bei senkrecht einfallendem
	Licht und einem Wellenlängenbereich von $\lambda = 300$ bis 1100 nm 70
8.1.	Schematische Darstellung der Beugungsstrukturen (orange), die durch La-
	serbestrahlung in das Deckglas des Miniatur-Solarmoduls eingebracht wurden $\ 72$
8.2.	Darstellung einer ortsaufgelösten Messung des externen Quanteneffizienz
	eines Teils des bearbeiteten Minimoduls, gemessen mit einem Laser mit
	$405~\mathrm{nm}$ Wellenlänge, in den rot markierten Flächen wurden die EQE-Werte
	summiert und verglichen
8.3.	Schema eines Solarmoduls bei Sonneneinstrahlung mit Modulneigungswin-
	kel $\beta,$ Azimutwinkel der Sonne $\alpha$ und Einfallswinkel auf das Solarmodul $\theta_S$
	$[101] \ldots \ldots$
8.4.	Spektrale Beugungseffizienzen $\eta_{PV}$ eines dreistufigen geblaz sten Beugungs-
	gitters bei einem Einfallswinkel von (1) $5, 5^{\circ}$ und (2) $8, 0^{\circ} \ldots \ldots \ldots 82$
A.1.	Sonnenspektrum AM1.5
A.2.	Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem
	Laser mit 532 nm Wellenlänge
A.3.	Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem
	Laser mit 658 nm Wellenlänge
A.4.	Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem
	Laser mit 780 nm Wellenlänge
A.5.	Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem
	Laser mit 960 nm Wellenlänge
A.6.	Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem
	Laser mit 980 nm Wellenlänge

## Tabellenverzeichnis

4.1.	Chemische Zusammensetzung der verwendeten eisenarmen Natriumglas-	
	proben	30
4.2.	Übersicht verwendeter Laserquellen für die Bestrahlung der Glasproben $\ .$ .	32
8.1.	Zusammenfassung der ermittelten zusätzlichen externen Quanteneffizienz	
	$EQE_{+}(\lambda)$	76
8.2.	Zusammenfassung der ermittelten Kurzschlussströme $I_{SC}$	78



Abb. A.1.: Sonnenspektrum AM1.5



Abb. A.2.: Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem Laser mit 532 nm Wellenlänge



Abb. A.3.: Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem Laser mit 658 nm Wellenlänge



Abb. A.4.: Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem Laser mit 780 nm Wellenlänge



Abb. A.5.: Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem Laser mit 960 nm Wellenlänge



Abb. A.6.: Ortsaufgelöste Messung der externen Quanteneffizienz, gemessen mit einem Laser mit 980 nm Wellenlänge

## ANHANG B : Eidesstattliche Erklärung

Hiermit versichere ich an Eides statt, dass ich die vorliegende Arbeit mit dem Thema

Mit Femtosekundenlaserpulsen erzeugte optische Strukturen im Glasvolumen zum Lichtmanagement in Solarmodulen

selbstständig und ohne fremde Hilfe verfasst und keine anderen als die angegebenen Quellen und Hilfsmittel verwendet habe.

Die den benutzten Werken wörtlich oder inhaltlich entnommenen Stellen habe ich als solche kenntlich gemacht.

Eine Anmeldung der Promotionsarbeit habe ich an keiner anderen Fakultät einer Universität oder Hochschule beantragt.

Halle (Saale), den 22. September 2016

Markus Muchow
## Danksagung

Hiermit möchte ich mich bei all jenen bedanken, die mich auf verschiedenen Wegen oder in unterschiedlichen Formen im Verlauf meiner Promotion unterstützt und motiviert haben und somit zum Gelingen der hier vorgestellten Arbeit beigetragen haben.

An erster Stelle gilt mein Dank PD Dr. Gerhard Seifert für seine umfassende Unterstützung auf dem Weg und beim Anfertigen dieser Arbeit. Vielen Dank für die gute Zusammenarbeit und dein stets konstruktives Feedback. Es freut mich, dass die Kommunikation vor allem seit 2015 auch trotz der räumlichen Distanz immer zeitnah und immer sehr erkenntnisbringend funktioniert hat - vielen Dank dafür.

Für die Übernahme der Betreuung vor Ort möchte ich mich bei Jun.-Prof. Jörg Schilling bedanken. Danke für die lehrreichen Diskussionen und dein offenes Ohr.

Bei Prof. Norbert Bernhard möchte ich mich für die Betreuung an der Hochschule in Köthen im Rahmen des Studienkollegs StrukturSolar bedanken.

Ein besonderer Dank richtet sich auch an Prof. Dr. Georg Woltersdorf und die Mitgliedern der Fachgruppe Optik. Ich weiß es zu schätzen, dass ich in meiner Promotionszeit als Gast freien Zugang zu den Laserlaboren hatte. Für die gute Atmosphäre und zahlreiche aufschlussreiche Diskussionen möchte ich der gesamten Arbeitsgruppe danken. Ein ganz besonderer Dank geht an dieser Stelle an Dr. Jens Lange. Die fachlichen Diskussionen, angenehmen Gespräche und deine experimentelle Unterstützung haben maßgeblich zum Fortschritt dieser Arbeit beigetragen.

Bei Torsten Büchner möchte ich mich für die gute experimentelle Zusammenarbeit während seiner Masterarbeit bedanken. Deine fleißige Arbeitsweise und experimentellen Ergebnisse machen einen wichtigen Teil dieser Arbeit aus.

Tino Rublack und Alexander Sprafke sei an dieser Stelle für das Korrekturlesen der Arbeit und die zahlreichen sehr aufschlussreichen Diskussionen per Mail oder auf mündlichem Wege gedankt.

Meiner Familie gilt an dieser Stelle mein ganz besonderer Dank für ihre Liebe und bedingungslose Unterstützung während meines gesamten Lebensweges; aber vor allem auch während der Anfertigung dieser Arbeit.

## Lebenslauf

## Persönliche Daten

Name: Geburtsdatum: Geburtsort: Staatsangehörigkeit: Anschrift: Familienstand:	Markus Muchow 03.03.1987 Schönebeck (Elbe) deutsch Jägerplatz 16 06108 Halle ledig
Schulbildung	
1993 - 1999 1999 - 2006	Käthe-Kollwitz-Schule, Schönebeck Dr. Carl-Hermann-Gymnasium, Schönebeck
Studium	
10/2007 - 09/2010	Bachelor of Science in Physik an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg Bachelorarbeit in der FG Optik
10/2010 - 09/2012	Master of Science in Physik an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg Masterarbeit in der FG Positronenannihilation
10/2012 - 03/2016	Dissertation unter der Leitung von PD Dr. Gerhard Seifert an der Martin-Luther-Universität Halle-Wittenberg im Forschungskolleg StrukturSolar

Ort, Datum

Unterschrift