

DOKTORI (PhD) ÉRTEKEZÉS TÉZISEI

**Borofloat, BK7 és B270 optikai üvegminták
ablációja és tranziens reflexió-növekedésének
vizsgálata ultrarövid lézerimpulzusokkal**

Andrásik Attila

Témavezetők:

dr. Budai Judit

Prof. Dr. Hopp Béla

egyetemi tanár

Fizikai Doktori Iskola

Szegedi Tudományegyetem

Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék



2022

1.Bevezetés

A nagyintenzitású lézer-anyag kölcsönhatás anyageltávolítással járó folyamata, más néven az ultrarövid impulzuslézeres abláció [1] mindig is a kutatások fókuszában volt, amióta az első erősített, fs-os impulzusokat létrehozták [2]. Az ultragyors folyamatokat előidéző fs-os impulzusos anyagmegmunkálásnak több speciális tulajdonsága is van, amelyek kívánatosá teszik az ipari alkalmazások terén. Ilyen tulajdonság például az abláció determinisztikus természete [3] és az ablált felület tisztasága [4].

Az első nagyenergiájú ultrarövid impulzusok megvalósítása óta kihívásteli feladat ezek intenzitásának növelése az ilyenkor egyre erőteljesebbé váló nemlineáris hatások miatt. A csúcshintenzitás növelésének két eltérő megvalósítási módszere az erősítő pumpálási energiájának növelése, illetve a megvilágított terület nagyságának csökkentése. Az utóbbi módszer sokkal hatásosabb, viszonylag könnyebben kivitelezhető és megbízhatóbb az impulzusenergia növelésénél. Azonban a besugárzott terület csökkentésének nagy hátránya, hogy az eltérő foltátmérőkkel kapott ablációs válaszfüggvények és paraméterek eltérhetnek egymástól [5]. Az ablációs válaszfüggvények meghatározásához a mintába mart gödrök geometriai méreteit kell ismerni. A gödörátmérők és mélységek változásának ismeretében az ablációs küszöb értéke meghatározható. További fontos szempont a mart gödrök morfológiája: az ablációs

gödrök alakja és felszínének simasága jó jellemzője a felületmegmunkálás minőségének. Mindezen paraméterek irodalmi adatiban nagy szórás tapasztalható.

Az ultrarövid impulzusok kontraszt-növelésére használt plazmatükrös berendezések [6] megjelenése miatt nagy az igény olyan átlátszó dielektrikumokra, amelyeket céltárgyként használva a lézeres besugárzás során, hatékonyan lehet magas reflexióval rendelkező plazmát generálni a megvilágított felületen. Mivel az ilyen alkalmazásokban használható többkomponensű optikai üvegek ablációjával kapcsolatos kísérleti eredmények hiányosak, ezért nagy szükség van a plazmatükör reflexió-növekedésének és ablációs viselkedésének vizsgálatára szisztematikusan változtatott lézerparaméterek és eltérő összetételű minták esetén.

2. Célkitűzés

Az irodalmi adatokban tapasztalható nagy szórás miatt célul tűztem ki annak megértését, hogy a foltátmérő változása miként hat a plazmatükör reflexiójára és az ablációs paraméterekre. Ennek vizsgálatához célul tűztem ki fs -os impulzusokkal besugározni BK7 üvegmintát eltérő besugárzott foltátmérők mellett. Meg kívántam határozni a mintába mart ablációs gödrök geometriai méreteit, valamint a különböző foltátmérőkhöz tartozó ablációs küszöböket. További céлом volt fotodiódával monitorozni a besugárzott területekről reflektálódott nyaláb energiáját. A vizsgálatok mellett célul tűztem ki a tapasztalt jelenségek magyarázatát.

Kutatómunkám második részében céлом volt megvizsgálni, hogy az üvegek összetétele milyen hatással van a besugárzásuk során kialakuló plazma reflexiójára és az ablációs paraméterekre. Ennek megvalósításához három eltérő típusú üveget sugároztam be 34 fs-os lézerimpulzusokkal azzal a céllal, hogy megtaláljam azt az üvegtípust, mellyel a legnagyobb tranziens reflexiójú plazmatükör felületet lehet létrehozni és hogy megmagyarázzam a reflexiókban tapasztalt különbségeket a különböző üvegtípusok esetén. Célul tűztem ki ezeken túl, hogy az üvegmintákba mart gödrök morfológiáját, ablációs paramétereit összevessem egymással és magyarázatot adjak a megfigyelt eltérésekre, hasonlóságokra.

3. Alkalmazott módszerek

A minták egylovéses megmunkálásához 34 fs-os impulzusokat használtam. Ehhez az Optikai és Kvantumelektronikai Tanszék TeWaTi laboratóriumának 800 nm-es központi hullámhosszúságú sugárzást kibocsátó oszcillátorából és a hozzá tartozó erősítőjéből álló rendszert használtam. Az impulzusenergiát a kísérletek során a 10 μ J és 420 μ J közötti tartományban változtattam egy polarizációs nyaláb-attenuátorral. A kísérleteket minden esetben atmoszférikus levegő környezetben végeztem el.

A Schott cég Borofloat, BK7 és B270 üvegtípusait választottam ki a vizsgálandó mintáknak. A beérkező nyalábhoz képest 45 fokos beesési szögben rögzítettem a mintákat egy mintatartó adapterben. A mintafelület síkjával párhuzamos, vertikális és horizontális mozgítás

céljából a mintatartót egy x - y irányú eltolóhoz rögzítettem. A lézerimpulzusok között a mintatartót úgy mozgattam el, hogy a besugárzott foltok ne fedjenek át. A nyalábot fókuszáló tükör mozgatását, biztosítva a minta felületén a nyalábméret változtatását, egy z -irányú eltolóval hajtottam végre a nyaláb terjedési irány mentén. A mintáról visszavert nyalábot ráfókuszáltam egy fotodióda érzékelő felületére. Ez lehetővé tette, hogy a fotodióda jelének mérésével monitorozni tudjam a lézeres besugárzás által előidézett reflexió-változást a minta besugárzott foltjain.

Az anyagmegmunkálási kísérleteim során minden beállított impulzusenergián 11 gödröt abláltam a minták felületébe. A besugárzásokkal egyidejűleg a reflektált nyaláb által keltett diódajel is feljegyeztem. A mart gödröket ezután profilométeres vizsgálatoknak vettem alá.

A gödrök vizsgálatához egy DEKTAK8 'stylus' típusú profilométert használtam. Ezzel az eszközzel minden mintába mart ablációs gödör profilját lemértem. A profilok segítségével a gödrök átmérőjét és mélységeit is meghatároztam.

4. Tézispontok

T1.1. Elemeztem az ablációs gödrök átmérőjének és mélységének energiasűrűségtől való függését. Az eredmények alapján megállapítottam, hogy miközben a foltátmérőt $52.2\ \mu\text{m}$ -ról $27.0\ \mu\text{m}$ -re változtattam, a minta ablációs küszöbe $6.5\ \text{J}/\text{cm}^2$ értékről $5.1\ \text{J}/\text{cm}^2$ -re csökken. Megfigyeltem azonban, hogy a foltátmérő további

csökkentésével 23.4, illetve 20.2 μm -es értékekre, az ablációs küszöb rendre 6.7 J/cm², illetve 10.6 J/cm² értékekre nőtt. A tézispont állításait a következő tézispontok eredményei alapján magyaráztam.

T1.2. Kimutattam, hogy 40.0 μm -os foltátmérőnél a tranzienst reflexiót jellemző dióda jel az energia függvényében 3 karakterisztikus meredekséggel megkülönböztethető lineáris szakasszal illeszthető: 1.: $s_1=0.30 \pm 0.05$ mV/ μJ , 2.: $s_2=0.90 \pm 0.10$ mV/ μJ , 3.: $s_3=0.25 \pm 0.05$ mV/ μJ . Ennél nagyobb foltátmérőnél (52 μm) csak 2 lineáris szakasz figyelhető meg, melyeket be is azonosítottam és az 1., 2. kategóriákba soroltam. 40 μm -nél kisebb foltátmérők esetén ugyancsak 2 lineáris szakasz figyelhető meg, ezeket azonban a 2.-es és 3.-as típussal azonosítottam. Az egyes szakaszokhoz tartozó meredekségek hányadosa a reflexió-változást jellemzi.

T1.3. Megállapítottam, hogy 52.2 μm és 40.0 μm -es foltátmérőkön az ablációs küszöb és az az energiasűrűség, ahol az 1.-es és 2.-es szakaszok metszik egymást, jó közelítéssel egybeesnek. Ez alapján arra következtettem, hogy az 1.-es szakasszal jellemzett energiatartomány az üvegre jellemző permanens reflexióhoz tartozik. A második és az első szakaszok meredekségének hányadosa minden vizsgált esetben egynél nagyobb volt, amely reflexió növekedést jelez. Ezt az anyageltávolítást megelőzően kialakuló plazmatükör okozta reflexió növekedéssel magyaráztam.

T1.4. Megállapítottam, hogy az s_2/s_1 hányados a foltméret függvényében ugyanúgy változik, mint az ablációs küszöb értékek

(T1.1): a foltátmérőt 52.2 μm -ról 40 μm -re változtatva, értéke 3.2-ről 3.0-ra csökken. A folt átmérőjének további csökkentésével 27, 23.4, illetve 20.2 μm -es értékekre, a s_2/s_1 hányados rendre 3.2, 3.5, illetve 4.3 értékekre nőtt. A fenti eredmények alapján megállapítottam, hogy a legkisebb vizsgált foltátmérőknél a plazmakeltés következtében megnövekvő reflexió eredményezi az ablációs küszöb növekedését.

T1.5. Megállapítottam, hogy 52.2 μm -nél kisebb foltátmérőknél a 3.-as szakasz meredeksége mindig kisebb, mint a 2.-es szakaszé, amely a reflexió értékének csökkenésére utal. A reflexió csökkenését az ezen energiasűrűség felett bekövetkező levegőionizáció hatásával magyaráztam. Az impulzus további része szóródik az ionizált levegőrétegen, ez a foltméret és a maratási gödör átmérőjének megfigyelt növekedését és a maratási mélység telítődését okozza.

T2.1. Meghatároztam a három vizsgált optikai üvegminta besugárzott területein a plazmatükör kialakulásából következő reflexió változást az energiasűrűség függvényében 0.68 J/cm² – 28 J/cm² értékek között. A kapott reflexió értékek összehasonlításával megállapítottam, hogy 25 J/cm² energiasűrűsége a Borofloat esetében 400%-kal, a BK7 esetében 200 %-kal, a B270 esetében 135%-kal növekszik a reflexió a permanens értékeikhez képest.

T2.2. Kimutattam, hogy az egységnyi mennyiségű anyagra számolt gerjeszthető valenciaelektronok száma a három vizsgált üvegre egymáshoz képest ugyanúgy változik, mint a reflexió növekedésük mértéke. A reflexió és az elektronszám ezen korrelációja miatt a

reflexiós különbségeket az üvegek sztöchiometriai összetételeiben jelen lévő eltérésekkel magyaráztam.

T3.1. Meghatároztam a vizsgált üvegmintákba mart ablációs gödrök átmérőjét és mélységét az energiasűrűség függvényében. Megállapítottam, hogy az ablációs küszöbök felett az átmérők logaritmikus függvényt követnek mindhárom üveg esetében. Az átmérő értékekre illesztett logaritmikus függvény linearizálásával meghatároztam a három vizsgált üvegmintára az ablációs küszöböket, melyek $5.85 - 6.43 \text{ J/cm}^2$ értékek közé esnek. A mélység értékekre a többfotonos abszorpciós függvényt illesztve megállapítottam, hogy a modell háromfotonos abszorpcióra vonatkozó formája mindhárom üvegre jól leírja a mélység értékek fejlődését az energiasűrűség függvényében. A kapott illesztési görbe paramétereiből is meghatároztam az ablációs küszöböket, melyek $5.65 - 6.65 \text{ J/cm}^2$ értékek közé esnek. A kétféle módszerrel meghatározott ablációs küszöbök jó egyezést mutatnak.

T3.2. Profilometriai felvételek elemzésével megvizsgáltam az ablált foltok morfológiáját. Megállapítottam, hogy a három üveg közül a B270 rendelkezik a legsimább ablált gödörös felülettel ($R_a = 3.0 \text{ nm}$), a Borofloat a két másik üveghez képest közepes simaságú ($R_a = 4.7 \text{ nm}$) és a BK7 esetében figyeltem meg a legnagyobb mértékű felületi egyenetlenségeket ($R_a = 10.1 \text{ nm}$) a gödörprofilokon.

T3.3. Az ablációs gödrök mélységeire illesztett függvényekből meghatároztam a vizsgált üvegminták háromfotonos abszorpciós

együtthatóit. Borofloat-ra $5.45 \times 10^{-25} \text{ cm}^3/\text{W}^2$, BK7-re $6.35 \times 10^{-25} \text{ cm}^3/\text{W}^2$, B270-re $8.28 \times 10^{-25} \text{ cm}^3/\text{W}^2$ értékeket kaptam. Ezek felhasználásával magyaráztam az egyes üvegek reflexió-növekedésében, illetve gödör morfológiájában tapasztalt eltéréseket.

T3.4. Kimutattam mindhárom üveg esetén, hogy a maratási térfogatok lineárisan növekednek a beérkező impulzus energiasűrűségével a $20 \text{ J}/\text{cm}^2$ -es értékig, amely felett a térfogatnövekedés lassulását tapasztaltam. Az ablációs küszöbök és a gödör paramétereinek hasonlóságából megállapítottam, hogy a három vizsgált üveg ablációs válasz szempontjából nem tér el egymástól, ellentétben reflexiós viselkedésükkel. Ezt az eltérést azzal magyaráztam, hogy az abláció és a reflexió-növekedés eltérő folyamatok következtében jön létre és a plazmakeltést elsősorban a minták valencia-elektronjainak eltérő száma, az anyageltávolítást viszont a minták közel azonos termális jellemzői befolyásolják.

5. Publikációk

A tézispontok alapjául szolgáló tudományos közlemények:

[**T2.1, T2.2, T3.4**] **A. Andrásik**, R. Flender, J. Budai, T. Szörényi, B. Hopp, Time integrated transient reflectivity versus ablation characteristics of Borofloat, BK7, and B270 optical glasses ablated by 34 fs pulses, *Optical Materials Express* **10**(2) pp 549-560 (2020), MTMT azonosító: **31137745**

[**T3.1, T3.2, T3.3**] **A. Andrásik**, R. Flender, J. Budai, T. Szörényi, B. Hopp, Processing of optical glasses by single, 34 fs pulses in the strong

field ionization domain: ablation characteristics and crater morphology, Applied Physics A – Materials Science and Processing **126**(12) 936 (2020), MTMT azonosító: **31664065**

[**T1.1, T1.2, T1.3, T1.4, T1.5**] **A. Andrásik**, J. Budai, T. Szörényi, Cs. Vass, R. Flender, B. Hopp, Spot size dependence of the ablation threshold of BK7 optical glass processed by 34 fs pulses, Laser Physics (2022) MTMT azonosító: **33062901**

Egyéb nemzetközi, referált folyóiratcikkek:

[**4**] E. Nagy, **A. Andrásik**, T. Smausz, T. Ajtai, F. Kun-Szabó, J. Kopniczky, Z. Bozóki, P. Szabó-Révész, R. Ambrus, B. Hopp, Fabrication of Submicrometer-Sized Meloxicam Particles Using Femtosecond Laser Ablation in Gas and Liquid Environments, Nanomaterials, **11**(4) 996 (2021) MTMT azonosító: **31971131**

[**5**] K. Ludasi, O. Jójárt-Laczkovich, T. Sovány, B. Hopp, T. Smausz, **A. Andrásik**, T. Gera, Zs. Kovács, G. Regdon jr, Anti-counterfeiting protection, personalized medicines - Development of 2D identification methods using laser technology, International Journal of Pharmaceutics, **605** 120793 (2021), MTMT azonosító: **32101093**

Konferencia előadások és poszterek

[**6**] **A. Andrásik**, R. Flender, J. Budai, T. Szörényi, B. Hopp, Single-shot surface ablation and transient reflectivity changes of optical glasses induced by 34 fs laser pulses, In: P. Bakule, CL Haefner, Short-pulse High-energy Lasers and Ultrafast Optical Technologies, Bellingham (WA): International Society for Optical Engineering

(SPIE), Paper 110340T (2019) (Proceedings of SPIE 0277-786X 1996-756X;11034) MTMT azonosító: **30823508**

[7] **A. Andrásik**, R. Flender, J. Budai, T. Szörényi, B. Hopp, Surface processing of optical glasses with 34 fs pulses: ablation thresholds and crater shape, In: P. Földi, I. Magashegyi Kvantumelektronika 2021: Szimpózium a hazai kvantumelektronikai kutatások eredményeiről, Szeged: Szegedi Tudományegyetem TTIK Fizikai Intézet, pp 1-6 (2020), MTMT azonosító: **31832820**

[8] **A. Andrásik**, R. Flender, J. Budai, T. Szörényi, B. Hopp, Characterization of plasma reflectivity response of optical glasses processed by 34 fs pulses: analysis in the context of ablation parameters, In: P. Földi, I. Magashegyi Kvantumelektronika 2021: Szimpózium a hazai kvantumelektronikai kutatások eredményeiről, Szeged: Szegedi Tudományegyetem TTIK Fizikai Intézet, pp 7-12 (2020), MTMT azonosító: **31832830**

[9] **A. Andrásik**, Sz. Toth, R. S. Nagymihály, P. Jójárt, R. Flender, Á. Börzsönyi, K. Osvay, Development of few cycle Ti:Sapphire and NOPA amplifiers at 80 MHz repetition rate, SPIE Optics + Optoelectronics, Konferencia helye, ideje: Prága, Csehország 2017.04.24 - 2017.04.27. pp 143-143 (2017), MTMT azonosító: **3262077**

[10] **A. Andrásik**, P. Jójárt, Sz. Toth, R. S. Nagymihály, Á. Börzsönyi, K. Osvay, 10 W-os többpasszos Ti:S erősítő 80 MHz-es ismétlődési

frekvencián, Magyar Fizikus Vándorgyűlés, poszter prezentáció (2016), MTMT azonosító: **3304964**

[11] Sz. Toth, R. S. Nagymihály, P. Jójárt, R. Flender, **A. Andrásik**, Á. Börzsönyi, K. Osvay, 80 MHz ismétlődési frekvencián működő optikai parametrikus erősítő fejlesztése, konferencia poszter, Magyar Fizikus Vándorgyűlés Szeged, MTA Biológiai Kutatóközpont 2016. augusztus 24.-27. (2016), MTMT azonosító: **3180996**

6. Hivatkozások

[1] E. G. Gamaly, A. V. Rode, B. L. Davies, V. T. Tikhonchuk, Phys. Plasmas 9 (2002) 949

[2] D. Strickland, G. Mourou, Opt. Comm. 55 (1985) 447-449

[3] A.P. Joglekar, H. Liu, G.J. Spooner, E. Meyhöfer, G. Mourou, A.J. Hunt, Appl. Phys. B 77 (2003) 25-30

[4] M. Lenzner, J. Krüger, W. Kautek, F. Krausz, Appl. Phys. A 68 369-371 (1999) 369-371

[5] L.G. DeShazer, B.E. Newnam, K.M. Leung, Appl. Phys. Lett. 23 (1973) 607

[6] H. C. Kapteyn, M. M. Murnane, A. Szoke, R. W. Falcone, Opt. Lett. 16 (1991) 490-492