

PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM

Fizika Doktori Iskola

Lézerfizika, nemlineáris optika és spektroszkópia program

Ultrarövid lézerimpulzusok kölcsönhatása dielektrikumközegekkel

Tézisfüzet

Kalmárné Csajbók Viktória

Témavezető:

Dombi Péter

Wigner Fizikai Kutatóközpont



2022

A kutatások előzménye

Az elmúlt hatvan évben az impulzusüzemű lézerek technológiájában végbemenő hatalmas fejlődés legszembetűnőbb eredménye az volt, hogy egyre rövidebb lézerimpulzusokat állítottak elő, mind nagyobb impulzusenergiával. Ezen paraméterek nagyságrendeket javultak az első lézerek jellemzőihez képest. A kezdetben nanoszekundumos impulzusokat adó Q-kapcsolt lézereket gyorsan túlszárnyalták a módusszinkronizált pikoszekundumos, majd femtoszekundumos lézerek, melyeket egyre szofisztikáltabb optikai erősítőkkel egészítettek ki. Bármilyen tudományterületen megfigyelhető, hogy egy ilyen gyors ütemű fejlődés maga után vonja új kutatási és fejlesztési területek kialakulását is.

A lézerimpulzusok rövidülésével új kutatási területek alakultak ki az attoszekundumos fizikától kezdve az orvosi alkalmazásokon át egészen a lézeres mikro- és nanostrukturálási eljárásokig. Az 5-50 fs közötti impulzusokat előállítani képes szilárdtestlézerek és lézerezősítők (a titán-zafír kristály kiváló lézerfizikai tulajdonságaira építve) az 1990-es évek elején jelentek meg, megnyitva ezzel az utat a lézerfény és az anyag minden eddiginél magasabb intenzitás mellett végbemenő kölcsönhatásának tanulmányozása és ennek alkalmazásai előtt [1] [2].

Optikai elemek roncsolási küszöbével kapcsolatos kutatások

Az egyik újonnan kialakult kutatási terület a lézerimpulzusok energiája növekedésének köszönhető. A szilárdtestlézer-technológia továbbfejlesztésében kulcsszerepet játszik a lézerrendszerekben található optikai elemek roncsolási küszöbének tanulmányozása és növelése. Az impulzusenergia skálázásához és az ilyen lézerek megfelelő méretezéséhez egyre nagyobb optikai apertúrák váltak szükségessé azért, hogy a megnövelt teljesítményt is jól tűrjék az egyes tükrök, nyalábosztók, erősítőkristályok, rácsok stb. Az optikai elemek méretének növelésével erősen nemlineárisan növekszik az előállítási költség, így ha sikerül nagy roncsolási küszöbű komponenseket előállítani, azzal a teljes lézerrendszer összköltségét drasztikusan csökkenteni lehet azáltal, hogy nem szükséges nagy apertúrájú nyalábok használata.

A dolgozat egyik témája így ebből a szempontból kapcsolódik a nagy intenzitású fény-anyag kölcsönhatás területéhez. Különböző optikai elemek lézeres roncsolási küszöbét vizsgáltam egyidejűleg több szempontból. A tanulmány készítésekor fellelhető irodalomban hiányoztak az egyszerre több tükrőjellelmezőt magukba foglaló cikkek a látható/közeli infravörös tartományban működő femtoszekundumos impulzushosszúságú tartományban, így szisztematikus

vizsgálatokat végeztem erre vonatkozóan. A kísérleteim során a valós használatot jól közelítő körülmények között mértem abszolút roncsolási küszöböket, egy olyan módszerrel amely egy több optika összehasonlításához alkalmas gyors eljárás is egyben [3].

A német ipari együttműködésünknek köszönhetően (Layertec GmbH) nagyszámú mintadarabon végezhettem kísérletet. Ezen tükrök egy része kísérleti darab volt, részben pedig valós, általuk forgalmazott tükröket kaptam. Közös bennük, hogy mindegyik darabot femtoszekundumos alkalmazáshoz tervezték és állították elő. Összefüggéseket tudtam feltárni a gyártástechnológia, a rétegszám, a tükrök anyaga, a rétegeken belüli tervezett maximális térerősség, a reflektivitás, a csoportképlettetés-diszperzió és a roncsolási küszöb között. Ezen szempontokat együttesen figyelembe véve értékeltem ki a mérési eredményeket. A méréseket 1 kHz-es ismétlési frekvenciával végeztem 42 fs-os impulzusokkal 800 nm körüli hullámhosszon.

Optikai úton indukált áramkeltés dielektrikumközegben

A lézerfény és dielektrikumközegek kölcsönhatásának egy másik érdekes jelensége az optikailag indukált tranziens fémesedés. Ez az újonnan felfedezett jelenség a már korábban Jacob Khurgin által megjósolt folyamat [4], miszerint lehetséges tiltott sávval rendelkező anyagokban optikai úton áramot kelteni előfeszítés nélkül. Ezt az új jelenséget kísérletileg 2013-ban sikerült először kimutatni. [5] Azóta egyre több tanulmány született ebben a témakörben. Bár a szigetelőkben optikai úton keltett áramok eredetének kutatása még mindig aktív terület, már számos alkalmazásbeli ötletet igyekeznek életre kelteni. Magának a jelenségnek a lényege, hogy kevés optikai ciklusú, de nagy intenzitású lézimpulzussal megvilágítva egy dielektrikumközeget, az impulzus áthaladásának idejére vezetővé válik és az impulzus elektromos terének hatására áram folyik a dielektrikum felületén elhelyezett fémelektrodák között. Ennek a keltett áramnak a nagysága és az iránya kapcsolatban áll az impulzus alakjával.

Az optikai úton keltett áramok alkalmazását továbbvittem könnyebben elérhető felhasználási irányokba. Ennek a folyamatnak a megvalósítását elsőként végeztem el egy olyan kompakt titán-zafír oszcillátorral, amivel korábban ezt a jelenséget még nem demonstrálták. Ehhez rendelkezésre állt egy egyedülálló, a Venteon GmbH által gyártott oszcillátor, amely <6 fs időtartamú impulzusokat képes biztosítani kb. 270 mW átlagteljesítménnyel, 80 MHz ismétlési frekvenciával. Ezen peremfeltételek ismeretében terveztem és építettem meg reflektív optikai

elemekből egy erős fókuszálást biztosító kísérleti elrendezést az optikai úton keltett áramok méréséhez.

A kísérlet nehézsége, hogy a nyalábtágítás az extrém rövid impulzushossz miatt csak reflektív elemekkel oldható meg, hogy végül egy egyedi optikai rendszer segítségével $2\ \mu\text{m}$ közeli fókuszfolttal elérhetővé váljon a szükséges intenzitás. Mivel az optikai úton történő áramkeltéshez szükséges intenzitás a $\sim 10^{13}\ \text{W}/\text{cm}^2$ közelébe esik, és ezzel egyidejűleg biztosítani kell, hogy a minta felületére érkező impulzus időtartama $5,5\ \text{fs}$ körül maradjon, ezért a rendelkezésre álló oszcillátorral minden elvégzett kísérletnél szűk az optimális működési tartomány.

Optikai erősítők kihagyásával, nJ alatti nagyságrendű impulzusenergiákkal elsőként bizonyítottam, hogy lehetséges optikai úton, külső elektromágneses térrel áramot kelteni tiltott sávval rendelkező anyagokban, amelyeket a szigetelők felületén alkalmasan elhelyezett elektródákkal mérni is lehet. Innen már tovább lehet lépni az áramkeltés és -vezérlés optimalizálása és annak alkalmazásai felé, hiszen a minden eddiginél nagyobb ismétlési frekvencia teszi lehetővé a jelenség tényleges alkalmazásait.

Tézispontok

Mindezek alapján saját kutatási eredményeimre építve a következő tézispontokat fogalmazom meg.

1. tézispont:

A nagy reflexiójú femtoszekundumos lézertükrök nagy törésmutatójú dielektrikumrétegein belül nemlineáris folyamatok, pl. sokfotonos gerjesztési folyamatok játszódhatnak le. 29 különböző rétegrendszer átfogó kísérleti vizsgálatával megmutattam, hogy a nagy törésmutatójú anyagként leggyakrabban használt, 3,3 eV-os tiltott sávú TiO_2 (3,3 eV tiltott sáv) helyett az 1-2 eV-tal nagyobb tiltott sávval rendelkező anyagok használatával (Ta_2O_5 , ZrO_2 , HfO_2 , rendre 4,2 eV, 4,7 eV és 5,5 eV tiltott sávokkal) és egyidejűleg az ezen rétegekben kialakuló állóhullámú tér csökkentésével a roncsolási küszöb jelentősen növelhető. Ezt a két módszert ötvözve a roncsolási küszöb akár 2,4-szeresére növelhető a manapság leginkább érdekes <50 fs-os impulzusok esetén [T1].

2. tézispont: Megvizsgáltam újfajta fém-dielektrikum hibridtükrök roncsolási viselkedését <50 fs-os impulzusokra. Az ilyen tükrök tipikusan a szubsztrátra felvitt ezüstrétegből és az arra párologtatott (vagy porlasztott) mindössze 3-7 rétegpárból állnak a hagyományos nagy reflexiójú (HR) tükrök akár 20-30 rétegpárjával szemben. Megmutattam, hogy fém-dielektrikum hibridtükrök esetén az ezüstréteg jelenléte nem gátolja a femtoszekundumos felhasználást, vagyis egyidejűleg elérhető a magas (hagyományos HR tükrökkel összemérhető) roncsolási küszöb és a 730-880 nm-es tartományban alacsony csoportkésleltetés-diszperzió [T1, T2]. Azt tapasztaltam, hogy mindezek mellett a reflexiós sáv szélességet is növeli az ezüstréteg jelenléte. Mindezen tulajdonságok alkalmassá teszik a fém-dielektrikum hibridtükröket 10 fs-nál rövidebb impulzusokkal történő felhasználáshoz is. Így ezzel megmutattam azt is, hogy a fém-dielektrikum hibridtükrök lényegesen alacsonyabb rétegszámmal

képesek teljesíteni a HR tükrökkel szemben femtoszekundumos alkalmazásokhoz megkövetelt feltételeket [T1].

3. tézispont: 8 darab innovatív, femtoszekundumos dielektrikum illetve fém-dielektrikum hibridtükör roncsolási tesztelésével megmutattam, hogy a kísérleteknél alkalmazott lövések száma a $10\text{-}10^5$ -lövéses tartományban csak csekély mértékben befolyásolja a roncsolási küszöböt, valamint hogy a lövésszám-roncsolási küszöb karakterisztika a tükrök típusától függetlenül közel azonos [T2]. Megállapítottam azt is, hogy a roncsolási küszöb csökkenése a $10\text{-}10^5$ -lövéses tartományban egyik tükör esetén sem volt nagyobb 20%-nál, ami a roncsolás szempontjából meghatározó és ezért intenzíven kutatott inkubációs hatások elhanyagolható jelenlétére utal [T2].

4. tézispont: Megmutattam, hogy dielektrikumközegekben (kvarcüvegben és HfO_2 -ban) már nJ alatti energiájú lézerimpulzusokkal is elő lehet idézni a közeg tranziens fémesedését [T3], ami nemrég felfedezett ultragyors optikai jelenségként a nemzetközi kutatások középpontjában áll. Ezáltal optikai úton áramot lehet kelteni az (ebből a szempontból) új anyagként tesztelt HfO_2 mellett nagy tiltott sávval rendelkező dielektrikumban is, mint például a kvarcüvegben. Az impulzusok vivő-burkoló fázisával az így keltett áram irányát kontrollálni lehet az egyik, illetve a másik elektróda irányába. Ezt a jelenséget korábban csak legalább 30-40 nJ-os impulzusokkal tudták kimutatni, komplex, erősített lézerrendszerek segítségével. A kísérletet én elsőként egy 80 MHz ismétlési frekvenciájú, kompakt lézeroszillátorra alapozva építettem fel, egy reflektív parabolatükör-rendszer optimalizálásával, amelynek segítségével mind a szoros fókuszálás mind a fókuszbeli rövid impulzushossz elérhetővé vált [T3]. Így mind az ismétlési frekvencia, mind az impulzusenergia tekintetében 2 nagyságrendet javítottam az áramkontroll megvalósításához szükséges paramétereken, megnyitva ezzel az utat kompakt lézerekre épülő PHz-es optoelektronikai eszközök megvalósítása előtt.

Tézispontokhoz használt saját publikációk

- [T1] **V. Csajbók**, L. Szikszai, B. J. Nagy, és P. Dombi, "Femtosecond damage resistance of femtosecond multilayer and hybrid mirrors," *Opt. Lett.* 41, 3527-3530 (2016)
- [T2] **V. Csajbók**, Z. Bedőházi, B. J. Nagy, és P. Dombi, "Ultrafast multipulse damage threshold of femtosecond high reflectors," *Appl. Opt.* 57, 340-343 (2018)
- [T3] V. Hanus, **V. Csajbók**, Z. Pápa, J. Budai, Z. Márton, G Z. Kiss, P. Sándor, P. Paul, A. Szeghalmi, Z. Wang, B. Bergues, M. F. Kling, G. Molnár, J. Volk, és P. Dombi, "Light-field-driven current control in solids with pJ-level laser pulses at 80 MHz repetition rate," *Optica* 8, 570-576 (2021)

Irodalomjegyzék

- [1] T. Brabec és F. Krausz, „Intense few-cycle laser fields: Frontiers of nonlinear optics,” *Rev. Mod. Phys.* 72, 545, (2000)
- [2] F. Krausz és M. I. Stockman, „Attosecond metrology: from electron capture to future signal processing,” *Nature Photonics* 8, 205-213, (2014)
- [3] B. J. Nagy, L. Gallais, L. Vámos, D. Oszetzky, P. Rácz és a. D. P., „Direct comparison of kilohertz- and megahertz-repetition-rate femtosecond damage threshold”, *Optics Letters* 40, 2525, (2015)
- [4] J. B. Khurgin, „Generation of the terahertz radiation using $x(3)$ in semiconductor,” *J. Nonlinear Opt. Phys. Mater.* 4, 163-189, (1995)
- [5] A. Schiffrin, T. Paasch-Colberg, N. Karpowicz, V. Apalkov, D. Gerster, S. Mühlbrandt, M. Korbman, J. Reichert, M. Schultze, S. Holzner, J. V. Barth, R. Kienberger, R. Ernstorfer és V. S. Yakovlev, „Optical-field-induced current in dielectrics,” *Nature* 493, 70–74, (2013)