

Dottorando: GIANNUZZI Giuseppe
Tutor: ANCONA Antonio

Progetto di ricerca:

Microlavolazioni con burst di impulsi laser ultrabrevi

1. Introduzione

Lo studio e la comprensione dell'interazione burst di impulsi¹ con la materia ed in particolare con superfici metalliche, si è incentrato durante il secondo anno di dottorato nella caratterizzazione delle strutture superficiali periodiche indotte via laser, note come LIPSS (Laser-Induced Periodic Surface Structure) prodotte con l'uso dei burst (Bursts Mode – BM).

Quasi tutti i lavori presenti in letteratura sulle LIPSS sono tuttavia relativi a strutturazioni eseguite con singoli impulsi laser o treni di impulsi (Normal Pulse Mode -NPM) [1]. Resta quindi poco esplorata la generazione di strutture periodiche con burst di impulsi al femtosecondo, con separazioni temporali nel range dei picosecondi, dove diversi meccanismi di assorbimento della radiazione entrano in gioco (il tempo di accoppiamento elettrone-fonone è inferiore a 100 ps [2]).

In questo report, descrivo gli studi sperimentali condotti sulla morfologia delle superfici di acciaio irradiate in Burst Mode al variare del numero di sotto-impulsi e loro separazione temporale. Tali studi rivelano una dipendenza della morfologia dai parametri investigati a parità di altri parametri (fluenza del burst, velocità di scansione della superficie, polarizzazione incidente). Tuttavia l'orientazione delle LIPSS resta invariata rispetto a quelle prodotte in Normal Pulse Mode, ovvero perpendicolari rispetto alla polarizzazione lineare incidente sulla superficie.

Nella sezione successiva sarà effettuata una breve introduzione riguardo queste strutture, prima di presentare i risultati sperimentali raggiunti.

2. Nanostrutturazione laser

Nella strutturazione superficiale e nelle lavorazioni di un'ampia gamma di materiali, l'irradiazione con impulsi laser ultrabrevi ha mostrato numerosi vantaggi rispetto a quella con impulsi di durata maggiore a causa dei ridotti danni termici e meccanici della zona circostante a quella trattata. In tali lavorazioni, la risoluzione spaziale è generalmente limitata all'ordine della lunghezza d'onda del fascio laser incidente (limite di diffrazione). Ciò nonostante, gli impulsi laser ultrabrevi sono in grado di produrre nanostrutture periodiche, anche chiamate *ripples*, sulla superficie di diversi materiali, quali semiconduttori, metalli, dielettrici e le cui dimensioni delle strutture possono essere anche molto minori della lunghezza d'onda che le hanno generate. Numerosi studi sono stati condotti per comprendere la fisica di questo tipo di interazione laser-materia [3,4]. Tali nano-superfici sono di grande interesse in diversi ambiti scientifici ed applicazioni industriali. Infatti, queste superfici hanno mostrato dei cambiamenti nelle proprietà tribologiche, ottiche e di bagnabilità delle superfici [1].

Dallo studio delle proprietà delle nanostrutture, esse risultano funzione dei parametri laser, come la lunghezza d'onda (λ), la polarizzazione del fascio laser, la fluenza e la sovrapposizione del numero di impulsi.

¹ Sequenza di n impulsi distanziati temporalmente meno di 1 μ s.

L'irradiazione con impulsi laser linearmente polarizzati porta alla formazione delle strutture periodiche, LIPSS che possono risultare parallele o perpendicolari alla direzione del campo elettrico degli impulsi laser. In generale tali strutture vengono classificate in due tipologie in base alla loro periodicità: LIPSS a bassa frequenza spaziale, LSFL (Low Spatial Frequency LIPSS) e ad alta frequenza spaziale, HSFL (High Spatial Frequency LIPSS) [1]. Le LSFL sono caratterizzate da un periodo spaziale vicino alla λ di irradiazione e la loro formazione è spiegata dall'interferenza ottica tra la radiazione laser incidente e l'onda elettromagnetica superficiale creata durante l'irradiazione [3]. Le HSFL hanno un periodo spaziale minore della lunghezza d'onda laser. Tra i possibili meccanismi che portano alla loro formazione, citiamo l'eccitazione dei plasmoni polaritoni di superficie (SPPs) e la generazione di seconda armonica (SHG) [3].

I meccanismi di formazione delle LSFL ed il loro periodo spaziale è stato ampiamente investigato. Per incidenza normale sul campione di impulsi polarizzati linearmente, il periodo spaziale Λ delle ripples formate a causa dell'interferenza tra la radiazione laser ed i plasmoni superficiali eccitati dipende dalle proprietà ottiche dei metalli ed è dato dalla relazione

$$\Lambda = \lambda_S = \lambda \left(\frac{\varepsilon' + \varepsilon_d}{\varepsilon' \varepsilon_d} \right)^{1/2},$$

dove λ_S è la lunghezza d'onda dei plasmoni superficiali, $\varepsilon = \varepsilon' + i\varepsilon'' = (n + i\kappa)^2$ è la costante dielettrica complessa del metallo (n è la parte reale dell'indice di rifrazione del metallo, κ è la sua parte immaginaria detta coefficiente di estinzione). ε_d è la costante dielettrica relativa al mezzo dielettrico a contatto con la superficie metallica. Prendendo in considerazione la costante dielettrica dell'acciaio, $\varepsilon = -7.98 + 28.76 i$ [5], per $\lambda = 1030 \text{ nm}$ e relativo all'interfaccia aria-metallo ($\varepsilon_d = 1$), la lunghezza d'onda del SPP risulta essere $\lambda_S = 1025 \text{ nm}$.

Il periodo spaziale delle LIPSS ottenuto sperimentalmente da Gnilytskyi relativo a superfici di acciaio nel caso NPM risulta $\Lambda = 901 \pm 388 \text{ nm}$ [5].

La discrepanza tra il valore determinato teoricamente e quello determinato sperimentalmente è stato riportato in letteratura per vari metalli (Au, Pt, Cr, Nb) [5]. Il valore della costante dielettrica utilizzato è quello relativo alla superficie metallica a temperatura ambiente e sotto condizioni di equilibrio, che potrebbe rivelarsi inadatto quando la superficie viene riscaldata dagli impulsi laser, e modificata la sua nano e microstruttura. La rugosità superficiale generata dall'irradiazione laser determina un incremento della parte reale dell'indice di rifrazione effettivo all'interfaccia aria-metallo [6]. Inoltre altri fenomeni fisici descritti da Drude contribuiscono a stimare un miglior valore della costante dielettrica [7].

3. Attività di ricerca

L'attività di ricerca del secondo anno di dottorato si è incentrata principalmente sullo studio e caratterizzazione delle LIPSS prodotte in Burst Mode (BM) al variare delle caratteristiche del burst, quali numero di sotto-impulsi n e loro separazione temporale Δt .

Il set-up sperimentale impiegato per la generazione di LIPSS su superfici metalliche con burst di impulsi è rappresentato in Fig. 1.

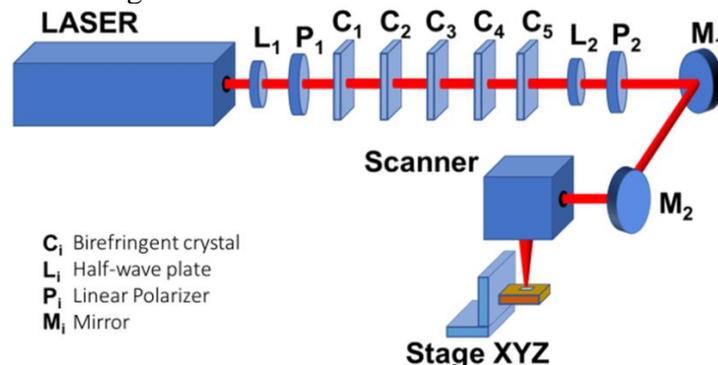


Fig. 1 Setup sperimentale per la generazione di LIPSS in Burst Mode.

Il laser utilizzato è un laser impulsato a fibra ottica - Light Conversion Pharos - ad impulsi ultrabrevi, con durate dell'impulso selezionabili nel range 200 fs – 10 ps alla lunghezza d'onda di 1030 nm e frequenze di ripetizione da 1 kHz ad 1 MHz, raggiungendo una potenza media massima di 6 Watt ed energie per impulso fino a 1.5 mJ. I parametri laser relativi alla durata dell'impulso ed alla frequenza sono stati fissati rispettivamente a 200 fs e 200 kHz.

Gli impulsi laser con polarizzazione lineare nota (definita da P_1 in Fig.1), attraversano il generatore di burst, costituito da un array di cinque cristalli birifrangenti. In base all'orientazione dell'asse ottico di ciascun cristallo² rispetto alla polarizzazione lineare degli impulsi incidenti, è possibile originare burst con $n = 2, 4, 8, 16, 32$ sotto-impulsi. La separazione temporale Δt tra i sotto-impulsi del burst è dell'ordine del picosecondo e può assumere valori 1.5, 3, 6, 12 e 24 ps.

Infine il fascio laser viene focalizzato sul target, lamierini di 150 μm di spessore in acciaio, mediante una lente f-theta di lunghezza focale di 56 mm. Il campione viene fissato su uno stage traslazionale XYZ.

La strutturazione superficiale del campione viene realizzata usando un galvo-scanner che muove il fascio laser lungo il cammino rappresentato in Fig. 2, producendo superfici quadrate (o rettangolari) testurizzate sul target. La sovrapposizione tra i vari spot laser sul campione dovuti a ciascun burst determina un *overlap* O nella direzione di scansione (direzione verticale in Fig.2), definito come $O = 100\% * (D - p)/D$, dove D rappresenta il diametro dello spot laser sul campione e p è la distanza tra 2 spot successivi valutata a partire dalla velocità di scansione v e dalla frequenza di ripetizione del laser f ($p = v/f$). D'altra parte, le varie linee di scansione sono separate da una distanza fissa h (hatch). O ed h risultano invariati per tutti i campioni descritti in questo report, rispettivamente pari ad 67% e 10 μm .

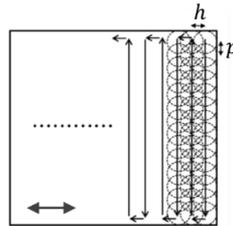


Fig. 2 Percorso del fascio laser sulla superficie del campione, per mezzo del galvo-scanner.

Come descritto precedentemente, fluenza e polarizzazione del fascio incidente sul campione costituiscono parametri importanti nella generazione delle LIPSS. La fluenza incidente è stata controllata usando in cascata una lamina a mezz'onda ed un polarizzatore³ (L_1 e P_1 in Fig.1).

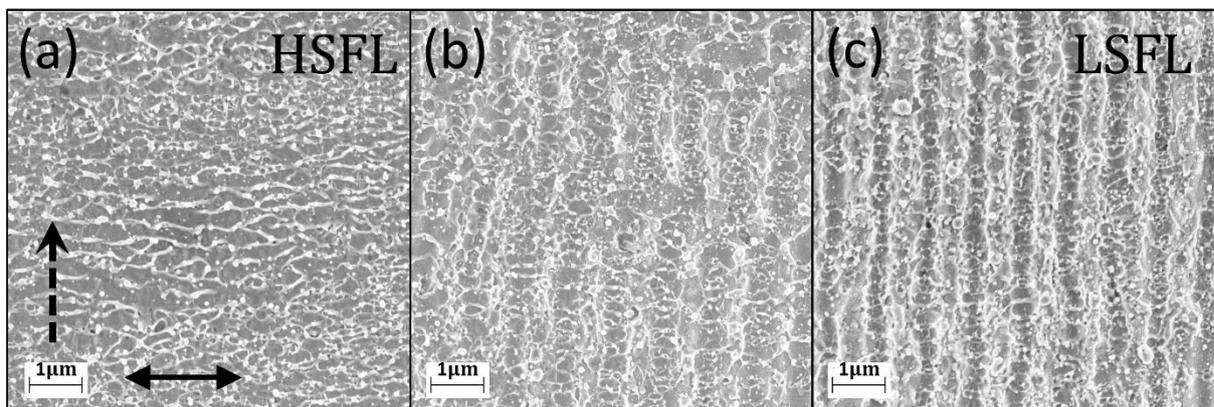


Fig. 3 Immagini SEM relative ad aree testurizzate in NPM al variare della fluenza: (a) 0.05 J/cm²; (b) 0.25 J/cm²; (c) 0.45 J/cm². La freccia tratteggiata indica la direzione di scansione mentre la doppia freccia indica la polarizzazione degli impulsi incidenti.

Le immagini SEM di Fig.3 mostrano l'effetto della fluenza sulla morfologia superficiale di aree testurizzate con direzione di scansione ($v = 1\text{m/s}$) indicata con la freccia tratteggiata

² L'asse ottico di ciascun cristallo risulta parallelo alla faccia del cristallo sulla quale incide il fascio laser.

³ Il polarizzatore stabilisce anche la direzione di polarizzazione degli impulsi in ingresso al generatore di burst.

perpendicolare rispetto alla polarizzazione del fascio indicata dalla doppia freccia nell'immagine di Fig. 3a.

Per quanto riguarda la polarizzazione del burst, questa viene fissata mediante una seconda coppia lamina a mezz'onda e polarizzatore (L_2 e P_2 in Fig.1). In particolare, l'asse ottico del polarizzatore è fissato in modo da garantire la polarizzazione lineare del burst⁴, indicata dalla doppia freccia in Fig.2, perpendicolare rispetto alla direzione lineare di scrittura dello scanner.

Sono state prodotte superfici testurizzate per le diverse configurazioni dei bursts, ovvero al variare del numero di sotto-impulsi nel burst e del ritardo temporale tra questi. Ciascuna regione è stata ottenuta a fissata velocità di scansione del fascio e con fluensa incidente fissata⁵.

Per confronto, analoghi esperimenti a quelli condotti con bursts sono stati riprodotti in NPM con stesso valore di fluensa di quello in BM.

I campioni sono stati sonicati in alcool isopropilico prima e dopo il trattamento laser.

Come già mostrato dalla Fig.3, la caratterizzazione morfologica delle superfici è stata effettuata con il microscopio a scansione elettronica (SEM). Differenti morfologie superficiali sono state osservate. Fig. 3a mostra strutture periodiche orientate parallelamente rispetto alla direzione della polarizzazione laser e con periodo spaziale significativamente minore della lunghezza d'onda laser. Tali strutture corrispondono alle HSFL ($\Lambda_{HSFL} < 0.4 \lambda$). In Fig. 3c sono ben visibili altre strutture periodiche, orientate perpendicolarmente rispetto alla polarizzazione del fascio laser incidente.

In Fig. 3b si osserva la coesistenza di HSFL ed LSFL sulla superficie del metallo in seguito all'irraggiamento con impulsi ultrabrevi.

La compresenza di entrambe le tipologie di LIPSS, su superfici metalliche irradiate con femto-impulsi in aria, è stata riportata in letteratura [4].

In questo report, la caratterizzazione morfologica delle LIPSS prodotte con burst è stata limitata alle sole LSFL.

Le immagini SEM relative alle superfici testurizzate con burst sono riportate in Fig.4. Per confronto Fig. 4a riporta una superficie testurizzata in NPM. Le immagini della colonna di destra di Fig.4 (Fig. 4b, 4d, 4f, 4h, 4l) sono generate da burst con due sotto-impulsi ($n = 2$) al variare della separazione temporale (Δt). Viceversa le immagini 4b, 4c, 4e, 4g e 4i corrispondono rispettivamente alle strutture generate da burst con fissata separazione temporale ($\Delta t = 1.5ps$) tra i sotto-impulsi e differente n .

In ogni regione sono state osservate le LIPSS, orientate perpendicolarmente rispetto alla direzione di polarizzazione degli impulsi laser ed il cui periodo risulta prossimo a quello della lunghezza d'onda del laser, pertanto classificate come LSFL.

I riquadri in ciascuna delle immagini di Fig. 4, riportano un maggior ingrandimento dell'area testurizzata.

Per caratterizzare la morfologia delle LIPSS in modo ripetibile, è stato utilizzato un approccio sistematico, sulla base delle procedure note in letteratura. Orientazione e periodo delle LIPSS sono determinati dalla trasformata di Fourier 2D (2D-FT) delle immagini SEM (non riportate in questo report).

Il periodo spaziale delle LIPSS ottenuto sperimentalmente nel caso NPM risulta $\Lambda = 898.6 \pm 9.3 \text{ nm}$, in accordo con quanto ritrovato in letteratura da Gnilitskyi [5] con durata dell'impulso simile a quella adoperate.

⁴ Per burst con polarizzazione lineare si intende che tutti i suoi sotto-impulsi abbiano la medesima polarizzazione lineare.

Infatti i sotto-impulsi generati dal generatore di burst sono caratterizzati dal fatto che metà di essi hanno polarizzazione lineare ortogonale all'altra metà. La lamina a mezz'onda permette quindi di ruotare le polarizzazioni lineari dei sotto-impulsi in modo che l'asse ottico del polarizzatore seguente sia orientato secondo la bisettrice delle polarizzazioni ortogonali dei sotto-impulsi del burst.

⁵ Il valore della fluensa si riferisce alla fluensa dell'intero burst.

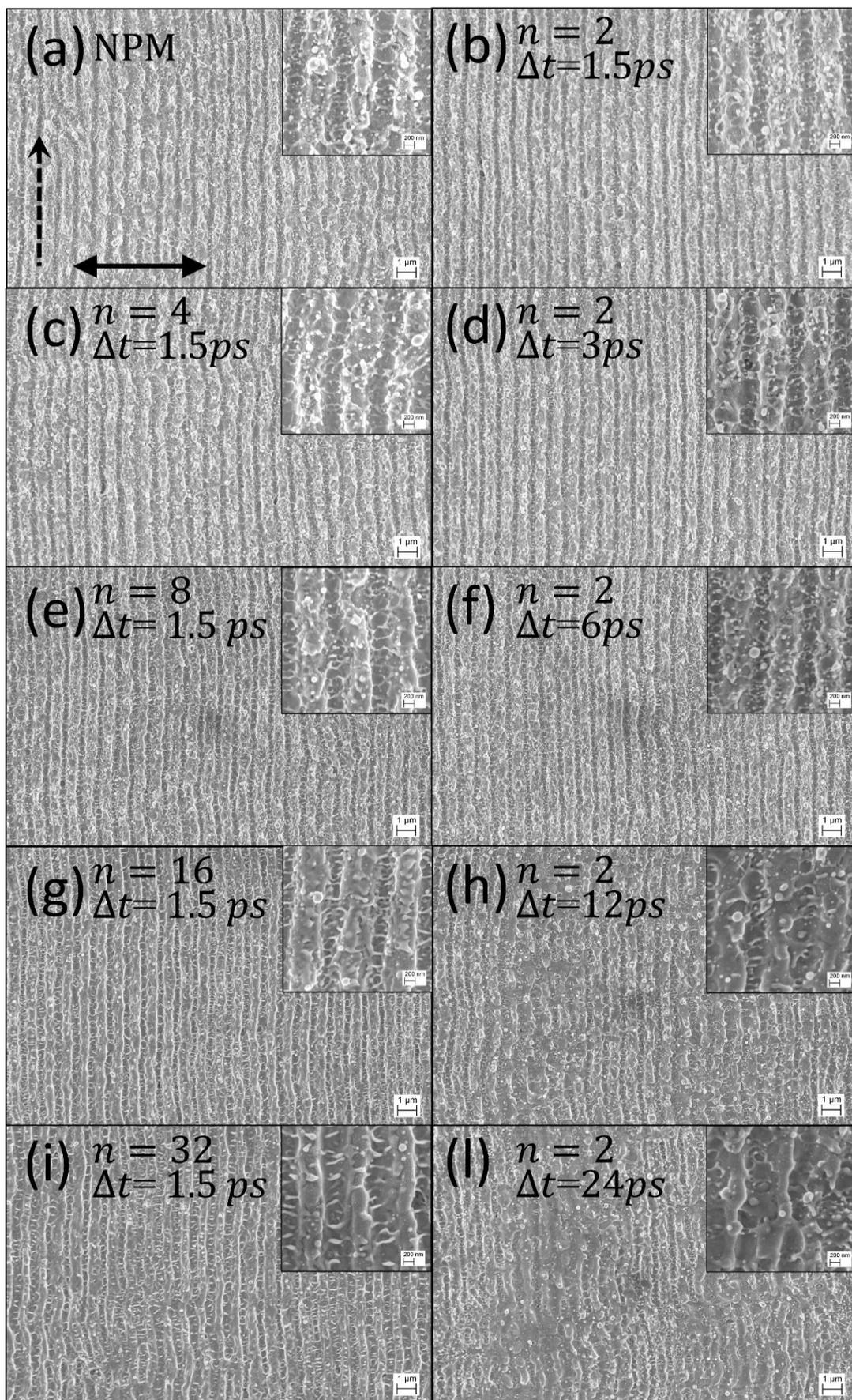


Fig. 4 Immagini SEM relative alle Le immagini SEM relative alle superfici testurizzate in BM ed in (a) NPM per confronto. Le immagini della colonna di destra sono generate da burst con due sotto-impulsi ($n=2$) al variare della separazione temporale (Δt), (b) 1.5ps, (d)

3ps, (f) 6ps, (h) 12ps e (l) 24ps. Viceversa le restanti immagini corrispondono alle strutture generate da burst con fissata separazione temporale ($\Delta t=1.5ps$) al variare del numero di sotto-impulsi, (c) $n=4$, (e) $n=8$, (g) $n=16$ ed (i) $n=32$.

Fig. 5a riporta l'andamento del periodo spaziale delle LSFL in funzione del numero di sotto-impulsi nel burst n . Il valore del periodo e la barra di errore sono stati determinati come valor medio e deviazione standard delle misure effettuate su diverse immagini SEM dello stesso campione. Il periodo spaziale delle LIPSS prodotte in NPM è rappresentato nel grafico in corrispondenza di $n=1$.

Il grafico mostra un incremento del periodo spaziale Λ all'aumentare del numero di sotto-impulsi.

Inoltre, il periodo spaziale cresce al crescere del ritardo temporale tra i due sotto-impulsi, come graficato in Fig. 5b.

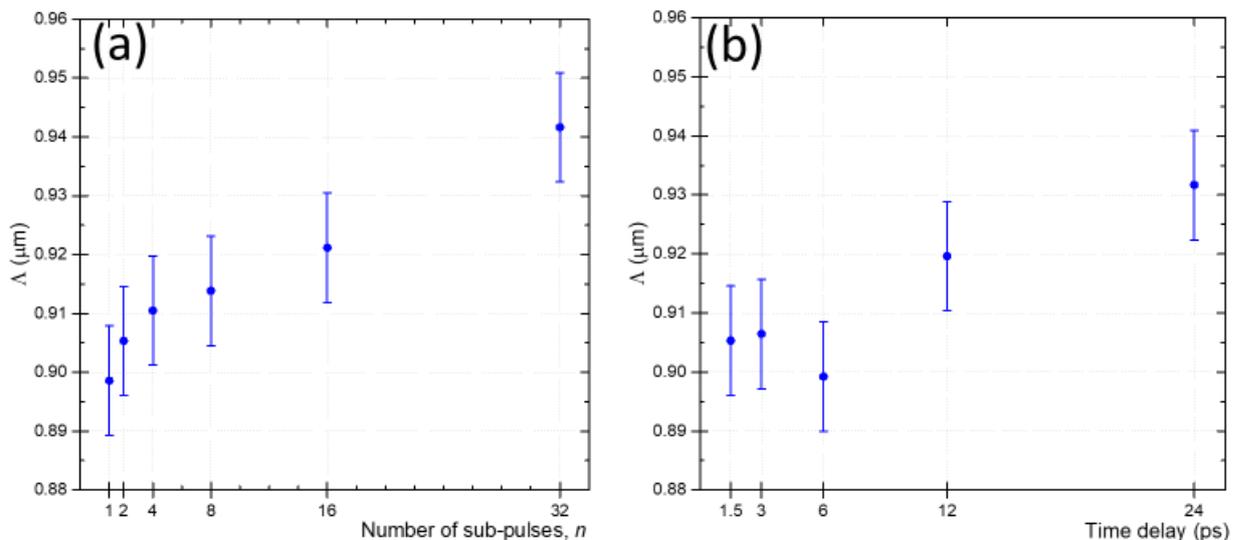


Fig. 5 Andamento sperimentale del periodo delle LSFL in funzione (a) del numero di sotto-impulsi nel burst a fissata separazione temporale tra essi (1.5ps) ed in funzione (b) della separazione temporale tra 2 soli sotto-impulsi costituenti il burst.

La profondità delle LIPSS è determinata a partire dall'analisi delle immagini AFM (Atomic Force Microscope).

Per ogni regione testurizzata è stata acquisita una sola immagine AFM delle dimensioni di $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ (Fig. 6).

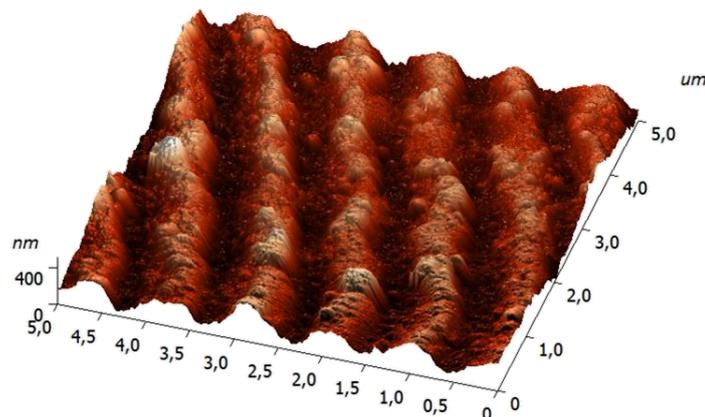


Fig. 6 Immagine AFM relativa ad un'area $5 \times 5 \mu\text{m}^2$ testurizzata su acciaio con un burst di 2 sotto-impulsi ritardati di 1.5 ps.

La profondità è stata stimata dall'altezza media picco-valle delle LIPSS e sua deviazione standard sull'intera immagine AFM. I risultati sperimentali relativi alla profondità in funzione del numero di sotto-impulsi e della separazione temporale, sono riassunti nei grafici di Fig. 7.

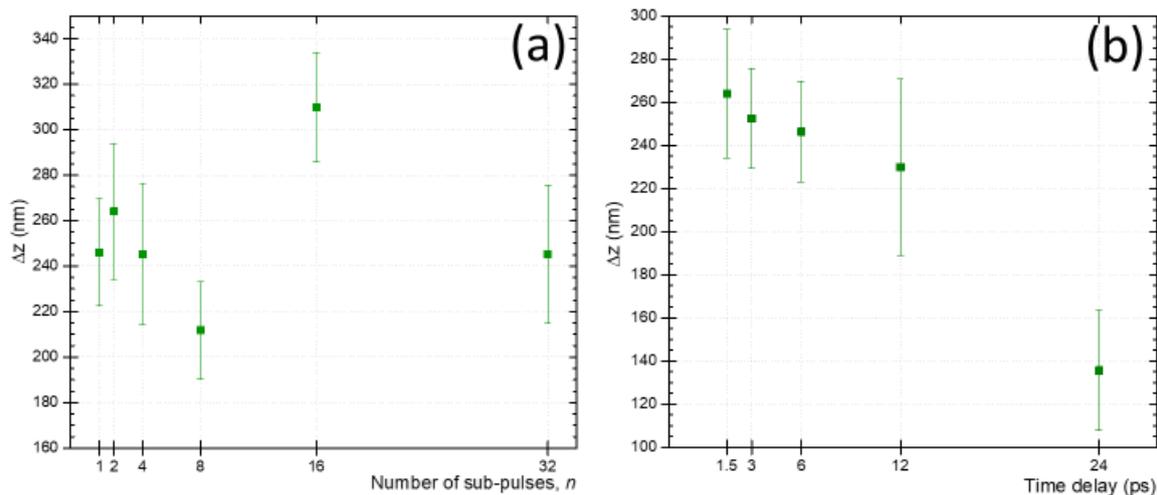


Fig. 7 Profondità delle LSFL ottenute su acciaio in funzione (a) del numero di sotto-impulsi nel burst a fissata separazione temporale tra essi (1.5ps) ed in funzione (b) della separazione temporale tra 2 soli sotto-impulsi costituenti il burst.

La profondità delle LSFL decresce all'aumentare della separazione temporale tra i due sotto-impulsi costituenti il burst, mentre non segue un chiaro andamento al variare numero di sotto-impulsi nel burst per separazione temporale di 1.5 ps. La singola immagine AFM acquisita per ciascuna superficie testurizzata per le diverse configurazioni di burst, non è sufficiente a caratterizzare le LIPSS poiché tale regione, limitata in area per tempi di acquisizione lunghi, potrebbe presentare difetti di regolarità delle LIPSS, quali biforcazioni o difetti/rugosità della superficie di partenza. Una nuova analisi su nuove immagini AFM è in corso.

4. Obiettivi futuri

Sono state investigate le LIPSS prodotte in Burst Mode al variare delle caratteristiche del burst, quali numero di sotto-impulsi n e loro separazione temporale Δt per burst polarizzati linearmente. Mi propongo di investigare gli effetti di polarizzazione dei sotto-impulsi nel burst sulle nanostrutturazioni superficiali. Sono state osservate in letteratura superfici metalliche irraggiate con impulsi ortogonalmente polarizzati che generano spike piuttosto che LIPSS. La caratterizzazione delle proprietà fisiche di tali nuove superfici sono ad oggi oggetto di studio.

Inoltre mi prefiggo di studiare il tasso di ablazione laser in BM, al variare dei parametri del burst (numero di sottoimpulsi, separazione temporale tra questi, polarizzazione dei sottoimpulsi) confrontando con il NPM.

5. Bibliografica

1. J. Bonse, "Laser-induced periodic surface structures - a scientific evergreen", IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron. **23**, 9000615 (2017).
2. D. Breitling, "Fundamental aspects in machining of metals with short and ultrashort laser pulses," Proc. SPIE **5339**, 49 (2004).
3. M. Huang, "Origin of Laser-Induced Near-Subwavelength Ripples: Interference between Surface Plasmons and Incident Laser", ACS Nano **3**, 4062 (2009).
4. J. V. Obona, "On the surface topography of ultrashort laser pulse treated steel surfaces", Appl. Surf. Sci. **258**, 1555 (2011).
5. Gnilitzkyi, "High-speed manufacturing of highly regular femtosecond laser-induced periodic surface structures: physical origin of regularity", Sci. Rep. **7**, 8485 (2017).
6. J. Wang, "Ultrafast dynamics of femtosecond laser-induced periodic surface pattern formation on metals", Appl. Phys. Lett. **87**, 251914 (2005).
7. J. Bonse, "Implications of transient changes of optical and surface properties of solids during femtosecond laser pulse irradiation to the formation of laser-induced periodic surface structures", Appl. Surf. Sci. **257**, 5420 (2011).

6. Esperienze didattiche

Attività di insegnamento A.A.2017/2018 della disciplina Fisica (8 ore) nel corso di “Docenza ai corsi di preparazione al TAI standard, ai test per l’accesso ai corsi di Laurea in Architettura e Disegno industriale ed ai corsi di preparazione ed approfondimento per lo studio delle materie di base e del CAD” presso il Politecnico di Bari.

7. Pubblicazioni

C. Gaudio et al, “Incubation during laser ablation with bursts of femtosecond pulses with picosecond delays”, Opt. Exp. (sottomesso)

8. Conferenze e seminari

LiM 2017 - Lasers in Manufacturing (26 – 29 giugno, 2017, Monaco di Baviera - Germania)
“Incubation effect during laser irradiation of stainless steel with bursts of fs-pulses”, G. Giannuzzi, C. Gaudio, P. M. Lugarà, A. Antonio.

IFN-DAY 2017, Istituto di Fotonica e Nanotecnologia (10-11 gennaio, 2017, Bari)
Poster: “Incubation effect in burst mode fs-laser ablation of stainless steel”, C. Gaudio, G. Giannuzzi, A. Volpe, P.P. Calabrese, A. Ancona, P.M. Lugarà.