

Vilniaus universitetas  
Fizikos fakultetas  
Lazerinių tyrimų centras

Vitalij Glazkov

Lyginamasis ultravioletinio šviesos superkontinuumo tyrimas  $\text{LiYF}_4$  ir safyro  
kristaluose

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerinių technologijų  
studijų programa

Studentas

Vitalij Glazkov

Leista ginti

2021-05-21

Darbo vadovas

doc. Gintaras Tamošauskas

Recenzentas

dr. Rytis Butkus

Lazerinių tyrimų centro direktorius

prof. Aidas Matijošius

Vilnius 2021

# Turinys

1. Įvadas.....	3
2. Teorinis įvadas.....	4
2.1 Netiesinis lūžio rodiklis.....	4
2.2 Fokusavimasis.....	4
2.3 Fazės moduliavimasis.....	6
2.4 Lūžio rodiklio priklausomybė nuo laisvųjų elektronų tankio.....	8
2.5 Superkontinuumo generavimas.....	9
2.6 Optinis pramušimas ir daugiafotonė sugertis.....	10
2.6.1 Griūtinis medžiagos suardymas.....	10
2.6.2 Daugiafotonė jonizacija.....	12
2.7 Pasirinktų bandinių parametru lyginimas.....	13
3. Rezultatai ir jų aptarimas.....	15
3.1 Eksperimentinė įranga.....	15
3.2 Spektrų matavimai.....	16
Išvados.....	27
Literatūros sąrašas.....	28
Santrauka.....	30
Summary.....	31

## 1. Įvadas

Baltos šviesos superkontinuumo generavimas yra kompleksiškas procesas, kurio priežasčių aiškinimas užtruko kelis dešimtmečius. Pirminė priežastis yra optinis Kero efektas, kuris veda prie savaiminio fokusavimosi, dėl pluošto intensyvumo pasiskirstymo erdvėje [1]. Baltos šviesos superkontinuumas generuojamas skaidriose terpėse, femtosekundiniais impulsais tapo labai plačiai naudojamu įrankiu, atliekant ultrasparčiąją spektroskopiją [2], taip pat generuojant plačiajuosčius, žadinančiuosius superkontinuumo impulsus parametriniams stiprintuvams [3]. Dėl šių ir begalės kitų taikymų, yra pastoviai ieškoma naujų medžiagų, kurios galėtų generuoti platų ir stabilų superkontinuumo spektrą. Ypatingas dėmesys skiriamas UV sričiai, kadangi tinkamų medžiagų, spinduliuojančių šiame diapazone, nėra daug.

Gan populiariu generavimui UV diapazone naudoti  $\text{CaF}_2$ , kuris gali būti naudojamas kaip UV šaltinis (siekiant 250 nm), kai žadinama 387 nm impulsais [4]. Tam, kad būtų galima išvengti medžiagos pažeidimo ir panaikinti intensyvumų fluktuacijas generavimo metu,  $\text{CaF}_2$  turi būti sukamas ar transliuojamas. Tokiu būdu kontinuumo generavimas išliks pakankamai stabilus, kad jį galima būtų naudoti įvairiems taikymams [4]. Priešingai nei  $\text{CaF}_2$ , safyras turi aukštesnį pažeidimo slenkstį ir nereikalauja bandinio judinimo. Jame gali būti generuojamas superkontinuumas naudojant pikosekundinius bei femtosekundinius impulsus [5, 6]. Tačiau safyro generuojamas spektras siekia artimąjį UVA diapazoną, priešingai nei  $\text{CaF}_2$ , kurio mėlynasis spektro kraštas siekia UVC sritį [5, 4].

Ieškant kitų medžiagų, kurios potencialiai galėtų generuoti superkontinuumą UV srityje,  $\text{LiYF}_4$  (YLF) kristalas galėtų pasiteisinti, kadangi turi panašų lūžio rodiklį (1,45) ir draustinės juostos tarpą (10,55 eV), lyginant su  $\text{CaF}_2$  [7, 8]. YLF kristalai yra plačiai naudojami kaip lazerinės terpės juos praturtinant neodimiu (Nd), holmiu (Ho), tulu (Tm), kas leidžia pasiekti spinduliuotę nuo UV iki vidurinio IR diapazono [9, 10]. YLF kristalas turi geras optines savybes, plačią skaidrumo sritį ir sunkiai yra pažeidžiamas UV srityje [11]. Taip pat ši medžiaga pasižymi dvejojpalaužiškumu ir turi nežymų terminio lęšio efektą ir mažą dvifotonės sugerties koeficientą [11] lyginant su kitomis lazerinėmis terpėmis. Nepaisant to, kad legiruoti YLF kristalai plačiai naudojami kaip lazeriniai šaltiniai, jų superkontinuumo generavimas nėra ištirtas, tad dėl aukščiau išvardintų priežasčių, ši medžiaga gali būti geru kandidatu baltai šviesai generuoti. Šio darbo tikslas yra ištirti ar YLF kristale generuojamas superkontinuumas, ypač UV srityje, gali pakeisti superkontinuumo generavimą safyro kristale bei  $\text{CaF}_2$ , jei lyginame spektro plitimą bei optinio pažeidimo išsivystymo trukmę.

Darbo metu buvo generuojamas ir palygintas superkontinuumas YLF,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  (safyro) ir  $\text{CaF}_2$  kristaluose vienos šviesos gijos sąlygomis.

## 2. Teorinis įvadas

### 2.1 Netiesinis lūžio rodiklis

Šiame skyriuje bus pateikiama teorinės dalies apžvalga, remiantis A. Dubiečio „Netiesinės optikos reiškiniai“ vadovėliu [12].

Labai svarbus reiškinys, kuris sąlygoja medžiagos netiesiškumą yra netiesinis lūžio rodiklio komponentas, kuris priklauso nuo šviesos pluošto intensyvumo.

Netiesinio lūžio rodiklio dydis priklausomas nuo krentančios spinduliuotės intensyvumo, kurį galima išreikšti taip [12]:

$$n = n_0 + n_2 I, \quad (1)$$

$n_0$  – tiesinis lūžio rodiklis,  $n_2$  – netiesinis lūžio rodiklis.

Poliarizuotumas izotropinėse terpėse yra kuriamas šviesos lauko ir gali būti skleidžiamas laipsnių eilute. Čia apsiribosime skleidiniu izotropinėje terpėje ir tik pirmaisiais dviem nariais:

$$P(\omega) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E(\omega) + 3\varepsilon_0 \chi^{(3)} |E(\omega)|^2 E(\omega) \equiv \varepsilon_0 \chi_{eff} E(\omega), \quad (2)$$

Tada medžiagos lūžio rodiklis gali būti užrašomas:

$$n^2 = 1 + \chi_{eff}. \quad (3)$$

Toliau galime išreikšti tiesinę ir netiesinę lūžio rodiklio dedamąsias,

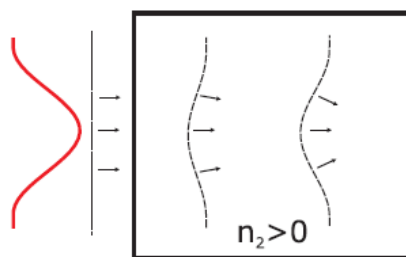
$$n_0 = \sqrt{1 + \chi^{(1)}}, \quad (4)$$

$$n_2 = \frac{3}{4n_0^2 c \varepsilon_0} \chi^{(3)}. \quad (5)$$

Šie lūžio rodikliai siejami su tiesiniu ir netiesiniu medžiagų optiniu jautriu. Lūžio rodiklio priklausomybė nuo šviesos spinduliuotės vadinasi optinis Kero (Kerr) efektas.

### 2.2 Fokusavimas

Reiškinys, kai medžiaga dėl didelio šviesos pluošto intensyvumo keičia lūžio rodiklį ir ta pati šviesa sklinda lyg būtų veikiamą lęšio, vadinamas šviesos pluošto fokusavimu [12, 13]. Dėl tokio proceso atsiranda lūžio rodiklio moduliacija, kurios stipris priklauso nuo intensyvumo skirstinio pluošte. Atitinkamai formuojasi fazinis poslinkis – lęšiškasis poveikis – proporcingas intensyvumo skirstiniui.



1 pav.: Bangos fronto pokytis sklindant šviesos pluoštui terpėje su netiesiniu lūžio rodikliu [14]

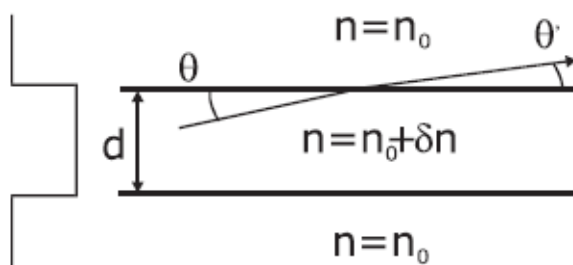
Terpėje, kurioje šviesos pluošto savaiminis fokusavimas atsveria difrakcijos efektą nusako tam tikra lūžio rodiklio pokyčio  $\delta n$  vertė. Tokiu būdu susiformuoja naujas lūžio rodiklis  $n_o + \delta n$  ( $n_o$  – pradinis lūžio rodiklis), kuris formuojasi išilgai šviesos pluošto sklidimo krypties. Supaprastintai nagrinėkime stačiakampio profilio pluoštą, kuris aprašomas tik dviem parametrais – diameteru  $d$  ir skėstimi  $\theta$ . Tuomet šviesos pluošto diametro didėjimą galima susieti su skėsties kampų  $\theta$ . Galima įgyvendinti sąlygą kuomet pluoštas visiškai „atsispindės“ dėl savo paties sukurto lūžio rodiklio gradiento kai  $\theta < \theta_o$ , kur  $\cos\theta_o = n_o / (n_o + \delta n)$ .

Kadangi kampo ir lūžio rodiklio pokyčiai yra labai maži,

$$1 - \frac{1}{2}\theta_o^2 = 1 - \frac{\delta n}{n_o}. \quad (6)$$

Iš čia,

$$\theta_o = \sqrt{\frac{2\delta n}{n_o}}. \quad (7)$$



2 pav.: Šviesos pluošto fokusavimosi atvaizdavimas [14]

Lygiai taip pat lazerio pluoštą galima aprašyti difrakcinės skėsties kampų bei diameteru sąsmaukoje. Pažymime diameterą  $d$  raide, o intensyvumo skirstinį aprašysime Gauso funkcija. Tokio pluošto difrakcinė skėstis  $\theta_{dif} = 0,61\lambda/n_o d$ . Fokusavimasis galimas tik tada, kai  $\theta_{dif} = \theta_o$ . Išreiškiamas lūžio rodiklio pokytis:

$$\delta n = \frac{1}{2}n_o \left(\frac{0,61}{n_o d}\right)^2. \quad (8)$$

Taip pat galima išreikšti pluošto skersmenį:

$$d = 0,61\lambda \frac{1}{\sqrt{2n_0\delta n}}. \quad (9)$$

Kadangi netiesinis lūžio rodiklio pokytis –  $\delta n = n_2 I$ , tada:

$$d = 0,61\lambda \frac{1}{\sqrt{2n_0 n_2 I}}, \quad (10)$$

tuomet kritinė galia:

$$P_{cr} = \frac{\pi d^2}{4} I = \frac{(0,61)^2 \pi \lambda^2}{8n_0 n_2} \approx \frac{\lambda^2}{8n_0 n_2}. \quad (11)$$

Iš formulės matosi, kad fokusavimasis nepriklauso nuo intensyvumo, jį lemia pluošto galia. Viršijant kritinę galią  $P_{cr}$ , fokusavimosi reiškinys „nugali“ difrakcinę skėstį. Tuo tarpu pluošto galiai nežymiai viršijant kritinę galią, diametras mažėja ir galima rasti židinio nuotolį, arba atstumą kai pluošto diametras artėja į nulį:

$$z_{sf} = \frac{2n_0\omega_0^2}{\lambda} \frac{1}{\sqrt{P/P_{cr}-1}}. \quad (12)$$

Šios išraiškos dėka galime paaiškinti nanosekundžių trukmės šviesos impulsų fokusavimąsi. Jei šviesos impulsai yra itin trumpi ir jų trukmė dėl dispersijos kinta sklindant terpe (kinta trukmė ir atitinkamai galia), tiesiogiai šios išraiškos taikyti negalima.

## 2.3 Fazės moduliavimasis

Impulsų fazės moduliavimasis yra vienas svarbiausių procesų sąlygojančių superkontinuumo generaciją. Šį reiškinį galima laikyti pluoštų savaiminio fokusavimosi laikiniu analogu. Fazės moduliavimosi metu įvyksta impulso spektro plitimas, kuris gali didėti aibe kartų. Šio reiškinio vyksmą galima aprašyti naudojant supaprastintą modelį: nepaisydami savaiminio fokusavimosi reiškinio, laikant, kad plokščioji banga sklinda, lėtai kintančios amplitudės artinyje ir laikinė amplitudės gaubtinė sklidimo metu išlieka pastovi [12, 13, 15]:

$$i \frac{\partial A}{\partial z} - \beta |A|^2 A = 0. \quad (13)$$

Čia  $\beta$  – netiesiškumo koeficientas

$$\beta = n_2 \frac{c\varepsilon_0 k_0}{2}. \quad (14)$$

Tada (13) lygties sprendinys yra

$$A(t, z) = A_0(t) \exp(-i\beta |A_0|^2 z), \quad (15)$$

čia  $A_0(t) = a_0(t)e^{i\phi_0(t)}$  – pradinė impulso amplitudė,  $\phi_0(t)$  – fazė. Tuomet šį sprendinį galima užrašyti naudojant pavidalą  $A = ae^{i\phi}$ :

$$a(t, z) = a_0(t), \quad (16)$$

$$A(t, z) = \phi_0(t) - \beta |A_0(t)|^2 z. \quad (17)$$

Remiantis pirmąja lygtimi matyti, kad impulso gaubtinė nesikeičia (nagrinėjamos supaprastintos sąlygos). Iš antrosios lygties matyti, kad atsiranda netiesinis fazės pokytis, kuris priklauso nuo sklidimo nuotolio  $z$  ir impulso amplitudės kvadrato  $|A_0(t)|^2$ :

$$\delta\phi(t, z) = -\beta |A_0(t)|^2 z. \quad (18)$$

Atsižvelgiant į tai, kad  $\beta = n_2 \frac{c\varepsilon_0 k_0}{2}$ ,  $n_2^{(I)} = \frac{n_2}{c\varepsilon_0 n_0}$ , bei  $k_0 = \frac{\omega_0 n_0}{c}$  ir  $\frac{1}{2} n_2 |A_0(t)|^2 = n_2^{(I)} I_0(t)$ , galima pastebėti, kad fazės pokytis yra:

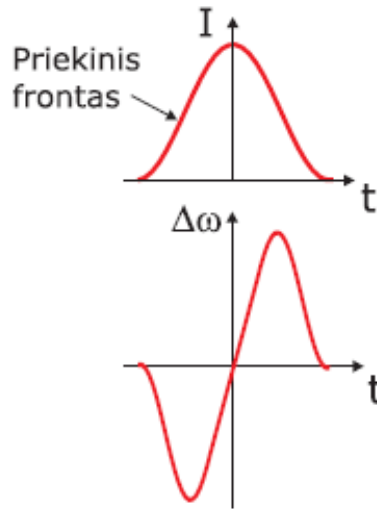
$$\delta\phi(z, t) = -\frac{\omega_0}{c} n_2 I_0(t) z. \quad (19)$$

Tuomet impulso dažnio moduliacijos pokytis lygus:

$$\delta\omega(z, t) = \frac{\partial(\delta\phi)}{\partial t} = -\frac{\omega_0}{c} n_2 \frac{\partial I_2}{\partial t} z, \quad (20)$$

kadangi momentinis dažnis išreiškiamas kaip laikinė fazės išvestinė.

Šį rezultatą atvaizdavus grafiškai gauname 3 pav. Impulso priekinio fronto bangos ilgis pasislenka į raudonąją pusę, nes jis turi neigiamą dažnio poslinkį ( $-t$ ), tuo tarpu galinis į mėlynąją pusę, nes jo dažnio poslinkis – teigiamas ( $+t$ ). Toks impulsas yra faziškai moduluotas (anlg. *chirped*).



3 pav.: Šviesos pluošto dažnio moduliacija [14]

Šviesos impulso laikinė gaubtinė turės dvi identiškas dažnio moduliacijos vertes, todėl susiformuoja kelios bangos, turinčios tą patį dažnį. Galiausiai stebėsime spektrą, turintį kvaziperiodines osciliacijas, nes bangų interferencija priklausys nuo fazių skirtumo. Tokiu pačiu būdu nagrinėjamas erdvinės fazės moduliavimas, kur stebimas tolimojo lauko erdvinis spektras sudarytas iš kvaziperiodinių šviesių ir tamsių žiedų.

## 2.4 Lūžio rodiklio priklausomybė nuo laisvųjų elektronų tankio

Plazma yra pilnai arba dalinai jonizuotos dujos. Plazma yra labai svarbus reiškinys, vykstant netiesinės optikos procesams. Plazmą sukuria netiesiniai optiniai reiškiniai, tokie kaip daugiafotonė jonizacija. Optinės medžiagos savybės gali būti modifikuotos vykstant tiesinei plazmos sąveikai. Nesvarbu, kaip plazma yra generuojama, ji laike netiesiškai veikia optinį lauką.

Pirmiausia, reikėtų išanalizuoti plazmos formavimą. Tarkim, kad  $N_e$  yra laisvųjų elektronų skaičius tūrio vienetė, o  $N_i$  teigiamų jonų skaičius.  $N_T$  yra jonizuotų ir nejonizuotų atomų skaičius. Šie dydžiai tarpusavyje yra susiję lygybe [12, 13, 15]:

$$\frac{dN_e}{dt} = \frac{dN_i}{dt} = (N_T - N_i)\sigma^{(N)}I^N - rN_eN_i. \quad (21)$$

Čia  $\sigma^{(N)}$  yra  $N$  – fotonų absorbcijos skerspjūvio plotas,  $r$  – elektronų ir jonų rekombinacijos laipsnis. Analizuojant plazmos netiesiškumą, dažnai naudojamas artinys itin trumpųjų impulsų lazeriams, kur rekombinacija mažai tikėtina, todėl paskutinė lygybės dalis gali būti nepaisoma. Šiuo atveju elektronų tankis didėja monotoniškai sklindant itin trumpam lazerio impulsui.

Poliarizuojamumas  $\alpha(\omega)$ , kuris yra nusakomas  $p = \epsilon_0\alpha(\omega)E$ , lygus:

$$\alpha(\omega) = -\frac{e^2}{\epsilon_0 m \omega^2}. \quad (22)$$

Dielektrinė konstanta yra išreiškiama:

$$\epsilon = 1 + N\alpha(\omega) = 1 - \frac{Ne^2}{\epsilon_0 m \omega^2}, \quad (23)$$

kas dažnai išreiškiama kaip:

$$\epsilon = 1 - \frac{\omega_p^2}{\omega^2}, \text{ kur } \omega_p^2 = \frac{Ne^2}{\epsilon_2 m}, \quad (24)$$

ir  $\omega_p$  yra žinomas kaip plazmos dažnis. Jeigu  $N$  yra pakankamai mažas, tai  $\omega_p^2 < \omega^2$ , dielektrinė konstanta yra teigiama, o  $n = \sqrt{\epsilon}$  yra realus, tada šviesos bangos gali skliti. Jeigu  $N$  yra pakankamai didelis, tai  $\omega_p^2 > \omega^2$ , dielektrinė konstanta yra neigiama, o  $n = \sqrt{\epsilon}$  yra įsivaizduojamas, tada šviesos bangos negali skliti.

Palygindami surištojo elektrono poliarizuojamumą su laisvojo elektrono poliarizuojamumu, kai rezonanso riba  $\omega \ll \omega_0$ , gauname:

$$\alpha_{\text{surištas}} = \frac{e^2}{\epsilon_0 m \omega_0^2}. \quad (25)$$

Galima pastebėti, kad laisvojo elektrono poliarizuojamumas yra priešingo ženklo ir (bendruoju atveju  $\omega \ll \omega_0$ ) daug didesnio dydžio nei surištojo elektrono poliarizuojamumas. Plazmos formavimo procesas „negatyviai“ veikia lūžio rodiklį. Kitaip tariant, lūžio rodiklis mažėja. Verta pažymėti, kad



jonų branduolių poveikis poliarizuojamumui nebuvo įvertintas, nes jis žymiai mažesnis, nei elektronų poveikis dėl to, jog elektrono masė žymiai mažesnė už jono masę [12, 13, 15].

## 2.5 Superkontinuumo generavimas

Kai pakankamai galingas, trumpas ir intensyvus impulsas sklinda netiesinėje, skaidrioje, optinėje terpėje galima stebėti ryškų spektro plėtimąsi. Šis reiškinys (superkontinuumas arba baltos šviesos generacija) pirmą kartą buvo užfiksuotas dviejų mokslininkų Alfano ir Shapiro 1970 m. [13] ir nuo to laiko buvo panaudotas daugybėje eksperimentų. Vienas plačiausių panaudojimų yra laiko skyros spektroskopija [2, 14], kurioje kontinuumo impulsas yra panaudojamas kaip ultra greitas spektrinis zondas. Superkontinuumo išėjimo spindulys matomas baltos šviesos pavidalu, net jeigu žadinamasis spindulys yra UV arba IR spektro srityse. Taip pat dažnai stebimi spalvoti žiedai. Tai yra vienas sunkiausiai suprantamų ir analizuojamų procesų, kadangi jis apjungia daugybę netiesinės optikos reiškinių, kurie sąveikauja tarpusavyje ir sukelia superkontinuumo generaciją.

Tam, kad vyktų superkontinuumo generacija reikalingi didelio intensyvumo šviesos pluoštai, kurių intensyvumas erdvėje pasiskirstęs nevienodai [13]. Pagrindiniai netiesinės optikos procesai kontinuumo generacijai yra bendri skysčiams, dujoms, kieto kūno medžiagoms (pageidautina skaidriomis terpėmis), tačiau buvo nustatyta, kad dujose kontinuumo generacija vyksta santykinai geriausiai arti UV femtosekundinių impulsų spinduliuotės, o kietose kūnuose IR femtosekundinių impulsų spinduliuotės [15]. Platus femtosekundinių lazerių bangos ilgio pasirinkimas yra geidžiamiausias, norint išgauti maksimalų energijos tankį, esant specifiniam bangos ilgių diapozonui.

Pagrindinis procesas, femtosekundiniams impulsams, lemiantis spektro plitimąsi, yra savaiminis fazės moduliavimasis, sąlygotas kintančio lūžio rodiklio, kuris priklauso nuo intensyvumo. Tačiau kiti netiesiniai procesai taip pat lemia kontinuumo generaciją. Kai kuriuos eksperimentus tik savaiminis fazės moduliavimasis negalėjo paaiškinti. Kiti procesai, kurie nulemia kontinuumo generaciją yra keturbangė parametrinė sąveika-moduliacija ir priverstinė Ramano sklaida. Taip pat, tam tikru laiko momentu, vyksta daugiafotonė sugertis, kuri lydima griūtinio jonizavimu (jei šviesos impulsas yra ps trukmės ar ilgesnis), sukelia elektronų plazmos atsiradimą, kuris laidumo juostoje sukuria neigiamą lūžio rodiklį. Tai paaiškina ryškų spektro plėtimąsi esant trumpesniems bangos ilgiams, todėl spektras plinta labiau į mėlynąją pusę, nei į raudonąją. Superkontinuumo generacija vyksta geriausiai medžiagose su mažesniu netiesiniu lūžio rodikliu  $n_2$  ir didesniu draustiniu tarpu  $E_g$ . Esminis procesas stabdantis kontinuumo generaciją yra daugiafotonė sugertis, nuo kurios priklauso ribinis intensyvumas ir pluošto diametras.

Medžiagos išėjime kontinuumo impulsas yra čirpuotas (tiesiškai moduluotos fazės), daugiausiai dėl medžiagos dispersijos bei dėl to, kad netiesiniai procesai priklauso nuo laiko, kas

sukuria įvairius spektrinius komponentus skirtingose impulso dalyse. Čirpavimas yra lydimas ir pradinio impulso dispersiniais procesais iki netiesinio židinio, esant kontinuumo generavimo impulsams trumpesniems nei 50 fs [15].

## 2.6 Optinis pramušimas ir daugiafotonė sugertis

Optinis medžiagų pramušimas turi didelę reikšmę optiniams komponentams. Optiniai pažeidimai yra svarbūs, nes jie riboja maksimalią pluošto galią, kuri gali skliti tam tikroje medžiagoje. Optiniai pažeidimai turi tiesioginę įtaką netiesinių procesų efektyvumui apribojant maksimalų lauko stiprį, kuris sukelia netiesinius optinius procesus be fiksuojamų optinių pažeidimų.

Egzistuoja keletas skirtingų fizikinių procesų, kurie sukelia optinius pažeidimus:

- 1) Tiesinė sugertis, vedanti prie optinės medžiagos lokalizuoto šilumos padidėjimo bei įskylimų. Tai yra nuolatinės veikos bei ilgųjų impulsų ( $\geq 1 \mu s$ ) lazerinių pluoštų dominuojantis pažeidimų mechanizmas [12, 13, 15].
- 2) Griūtinis medžiagos suardymas, kuris yra pagrindinis pažeidimo procesas impulsiniams lazeriams ( $\leq 1 \mu s$ ), kurių intensyvumas yra  $10^9 - 10^{12} \text{ W/cm}^2$  ribose.
- 3) Optinių elementų daugiafotonė jonizacija bei daugiafotonė disociacija, kurios yra dominuojančios esant lazerinių pluoštų intensyvumams  $10^{12} - 10^{16} \text{ W/cm}^2$  ribose.
- 4) Tiesioginė jonizacija – dominuojantis mechanizmas esant  $> 10^{20} \text{ W/cm}^2$  lazerinių pluoštų intensyvumų vertėms.

Kai kolimuotas pluoštas sąveikauja su medžiaga, optiniai pažeidimai pasireiškia esant mažesnėms slenkstinėms vertėms medžiagos paviršiuje lyginant su tūriniais pažeidimais. Atsižvelgiant į šį pastebėjimą, galima daryti išvadą, kad medžiagos paviršiniai pažeidimai bei kiti netobulumai gali tarnauti kaip proceso iniciatoriai, didinant lokalizuoto lauko stiprį pažeidimų regione arba suteikiant laisvųjų elektronų šaltinį, kad inicijuotų griūtinio pramušimo procesą. Taip pat pastebėta, kad pažeidimai atsiranda išėjimo paviršiuje, esant mažesnėms slenkstinėms intensyvumo vertėms, nei lyginant su įėjimo paviršiaus vertėmis [16]. Vienas iš mechanizmų, kuris aiškina šį fenomeną yra paviršių ribojimo sąlygos (dielektriko ir oro sąlytis), kurios sumažina lauko stiprį ties įėjimo paviršiumi ir sustiprina jį ties išėjimo paviršiumi. Kitas fizikinis procesas, kuris sukelia tokią pačią lauko vektorių asimetriją ties įėjimo ir išėjimo paviršiumi yra difrakcija nuo įėjimo paviršiaus defektų, kuris gali sukelti ryškius intensyvumo pokyčius stebimus išėjimo paviršiuje. [13]

### 2.6.1 Griūtinis medžiagos suardymas

Griūtinis medžiagos suardymo mechanizmas yra dominuojantis mechanizmas impulsiniams lazeriams. Šio mechanizmo prigimtis yra aiškinama pradiniu, nedideliu laisvųjų elektronų  $N_0$

skaičiumi optinėje medžiagoje, kuris vėliau yra sustiprinamas iki didelių energijos verčių per sąveiką su lazerinės spinduliuotės lauku. Šie elektronai gali jonizuoti kitus atomus medžiagoje, tokiu būdu generuojami papildomi elektronai, kurie savo ruožtu greitunami ta pačia lazerine spinduliuote ir vėliau generuoja papildomus elektronus. Kai kurie elektronų klasteriai sąlygos medžiagos kaitinimą, kas sukels jos įskylimą arba lydymąsi. [13]

Norint aprašyti griūtinį medžiagos suardymą reikia pažymėti, kad  $Q$  yra suteiktas energijos kiekis elektronui, kuris yra elektriniame lauke  $\tilde{E}$  duotam laikui  $t$ , tada:

$$Q = e\tilde{E}d, \text{ kur } d = \frac{1}{2}at^2 = \frac{1}{2}\left(\frac{e\tilde{E}}{m}\right)t^2, \quad (26)$$

arba

$$Q = e^2\tilde{E}^2t^2/2m, \text{ kai } t \leq \tau. \quad (27)$$

$\tau$  yra laikas tarp susidūrimų. Ilgesniems laiko tarpams, elektronų energija bus apytiksliai lygi elektronų energijai per laiko intervalą  $\tau$  (t.y.  $e^2\tilde{E}^2t^2/2m$ ) padauginta iš laiko intervalų skaičiaus (t.y.  $t/\tau$ ), tada

$$Q = \frac{e^2\tilde{E}^2t\tau}{2m}, \text{ kai } t > \tau. \quad (28)$$

Dažnis, kurio metu elektronui yra suteikiama energija lygus:

$$P = \frac{dQ}{dt} = e^2\tilde{E}^2/2m. \quad (29)$$

Toliau darome prielaidą, kad laisvųjų elektronų tankis  $N(t)$  keičiasi laike pagal:

$$\frac{dN}{dt} = \frac{fNP}{W}, \quad (30)$$

kur  $W$  yra medžiagos slenkstinė jonizacijos vertė,  $P$  yra sugerta energija aprašyta (29) formulėje,  $f$  yra sugertos energijos dalis, kuri sukelia tolimesnę jonizaciją, tada  $1 - f$  yra energijos dalis, kuri sukelia medžiagos kaitinimą.

Lygties (30) sprendinys:

$$N(t) = N_0 e^{gt}, \text{ kur } g = \frac{f e^2 \tilde{E}^2 \tau}{2Wm}. \quad (31)$$

Toliau yra daroma prielaida, kad optinis pažeidimas atsiras tuomet, kai elektronų tankis  $N(T_p)$  sklindančio impulso gale, kurio trukmė  $T_p$ , viršys medžiagos pažeidimo vertę  $N_{th}$ . Ši sąlyga gali būti išreikšta:

$$\frac{f e^2 \tilde{E}^2 \tau T_p}{2mW} > \ln \left( \frac{N_{th}}{N_0} \right). \quad (32)$$

Šis rezultatas gali būti panaudotas randant slenkstinės vertės intensyvumą, kad įvyktų pažeidimas [12, 13]:

$$I_{th} = n \epsilon_0 c \langle \tilde{E}^2 \rangle = 2n \epsilon_0 c \frac{Wm}{f e^2 \tau T_p} \ln \left( \frac{N_{th}}{N_0} \right). \quad (33)$$

## 2.6.2 Daugiafotonė jonizacija

Kai lazerinio pluošto intensyvumas skaidrijoje terpėje didėja, tai didėja kelių fotonų sugerties tikimybė vienu metu. Daugiafotonę sugertį galima laikyti kaip optinės medžiagos pralaidumo kitimą, kuris priklauso nuo lazerinio pluošto intensyvumo. Iš esmės daugiafotonė sugertis lemia sklindančio medžiagoje impulso nuostolius.

Tam, kad geriau suprasti daugiafotonę sugertį, paprasčiausia yra nagrinėti dvifotonę sugertį (žemiausio lygmens daugiafotonės sugerties atitikmuo). Dvifotonės sugerties metu yra sugeriami keli to paties arba skirtingų dažnių fotonai, kur šuolis į sužadintąją būseną vyksta per virtualų lygmenį. Virtualaus lygmens gyvavimo trukmė nykstamai maža, todėl fotonai turi būti sugeriami tuo pačiu metu, todėl šis fenomenas yra priklausomas nuo spinduliuotės intensyvumo. Dvifotonė sugertis sukelia intensyvumo nuostolius, kurie yra aprašomi [12, 13]:

$$\frac{dI}{dz} = -\alpha I - \beta I^2, \quad (34)$$

čia  $\alpha$  – tiesinės (dėl priemaišinių lygmenų), o  $\beta$  – dvifotonės sugerties koeficientai.  $\beta$  koeficientas susietas su menamąja netiesinio kubinio jautrio dalimi [13]:

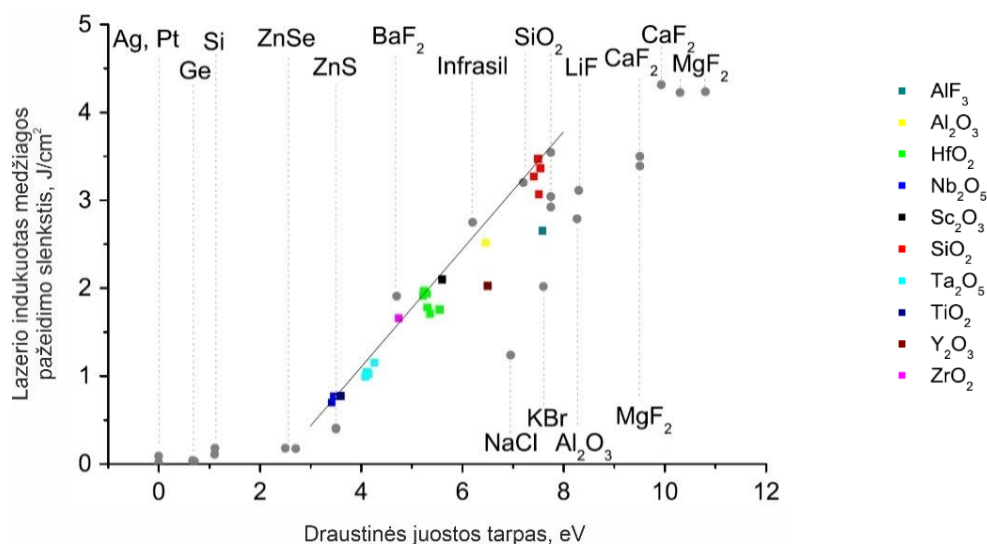
$$\beta = \frac{3\pi}{\epsilon_0 n^2 c \lambda} \text{Im}(\chi^{(3)}). \quad (35)$$

Kadangi mažėjant bangos ilgiui didėja fotono energija, tad tikimybė dvifotonei sugerčiai pasireikšti taip pat didėja. Esant intensyvumo pikinei vertei daugiafotonė sugertis yra labiausiai pastebima, todėl gali būti iškraipomas pluoštas – laikinės ir erdvinės charakteristikos [12, 13].

## 2.7 Pasirinktų bandinių parametrų lyginimas

Kaip jau buvo minėta, YLF kristalas yra naudojamas lazerinėms terpėms, jį praturtinus retaisiais žemės elementais. Taip pat ši medžiaga pasižymi geromis netiesinėmis savybėmis, kurios yra svarbios baltosios šviesos generavimui. Lyginant YLF su safyru bei  $\text{CaF}_2$ , jie turi ganėtinai panašias savybes. Draustinis juostos tarpas skiriasi per 0,5 eV lyginant YLF su safyru bei  $\text{CaF}_2$ . Lūžio rodikliai (tiesinis ir netiesinis) YLF kristale yra didesni, nei  $\text{CaF}_2$ , šie parametrai dažniausiai lemia superkontinuumo generavimą, tad, potencialiai, ši medžiaga turi gerus šansus generuoti stabilesnį superkontinuumą, lyginant su  $\text{CaF}_2$ , kadangi pasižymi didesniu netiesiškumu (lentelė 1). Galima būtų sakyti, kad YLF užima tarpinę vietą tarp safyro bei  $\text{CaF}_2$ .  $\text{CaF}_2$  yra skaidresnis ilgabangėje IR srityje nei YLF. Safyras arba  $\text{Al}_2\text{O}_3$  yra pasirinkta kaip lyginamoji medžiaga, nes jos generuojamas superkontinuumas yra labai stabilus ir šios medžiagos duomenys pateikti lentelėje (lentelė 1). Verta pabrėžti, kad safyro netiesiškumas yra dvigubai didesnis nei YLF arba  $\text{CaF}_2$ , tačiau skaidrumo srities plotis yra dvigubai mažesnis, draustinės juostos tarpas yra beveik toks pat.

Kadangi  $\text{CaF}_2$  ir  $\text{Al}_2\text{O}_3$  yra plačiai išanalizuotos ir ištirtos medžiagos, kurios yra dažnai naudojamos superkontinuumo generavimui [17], jų pažeidimo slenksčiai yra gerai žinomi [19, 20]. YLF priešingai nei  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ir  $\text{CaF}_2$  yra mažai ištirta medžiaga, kurios pažeidimo slenkstis nėra žinomas. Remiantis [21] straipsnio medžiaga, kuriame yra nustatyta koreliacija tarp draustinės juostos tarpo ir pažaidos slenksčio, (4 pav.) galima, apytiksliai, nuspėti YLF indukuotos pažaidos slenkstį, kuris tikėtina gali būti lygus  $4 \text{ J/cm}^2$ . Nepaisant to, kad pateiktame grafike (4 pav.) koreliacija tarp draustinės juostos tarpo ir pažaidos slenksčio yra aproksimuota tiriant plonas dangas, šis pritaikymas taip pat tinka dideliems kristalams, nes straipsnyje yra stebimi ir aprašomi tūriniai pažeidimai [21]. Taip pat nustatyta, kad kietų terpių bei plonasluoksnių dangų pažeidimų išsivystymas yra sulyginami [21].



4 pav.: Lazerio indukuoti pažeidimai dangose (spalvoti kvadratai) ir kietose terpėse (pilki apskritimai), testuojant 500 fs ir 1030 nm bangos ilgiu, vieno šūvio sąlygomis. Aproximacija atlikta dangoms (paimta iš [21])

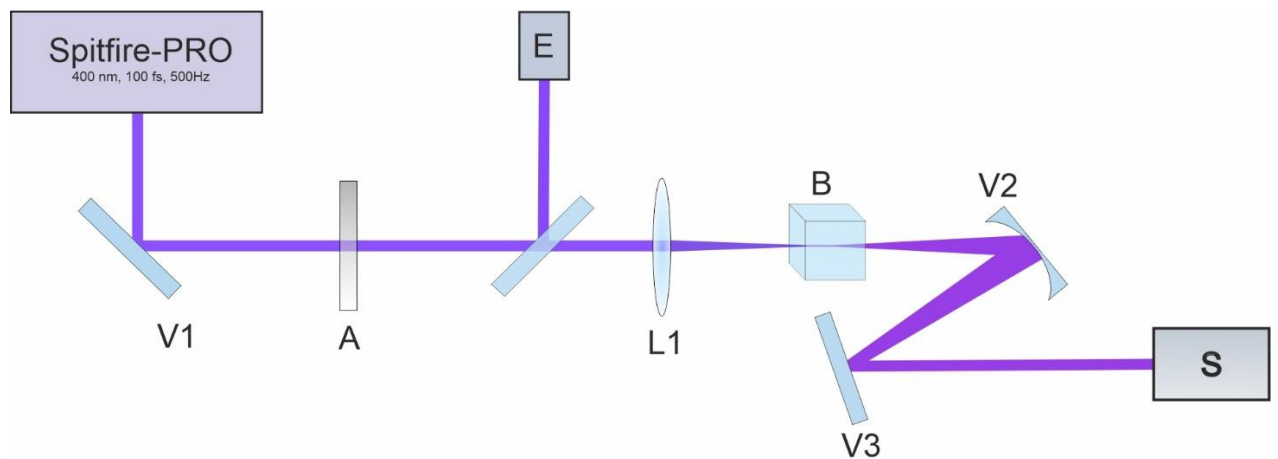
Medžiaga	Draustinės juostos tarpas	Netiesiškumas, $n_2$	Lūžio rodiklis 400/ 800 nm	Skaidrumo sritis	Pažeidimo slenkstis
YLF	10,55 eV [8]	$1,72 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ [18]	1,46/ 1,45 [7, 23]	0,12-8 $\mu\text{m}$ [18]	4 $\text{J}/\text{cm}^2$ [21]
CaF <sub>2</sub>	10 eV [17]	$1,3 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ [17]	1,44/1,43 [17, 23]	0,12-10 $\mu\text{m}$ [17]	3,5 $\text{J}/\text{cm}^2$ [20, 21]
Safyras (Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub> )	9,9 eV [17]	$3,1 \cdot 10^{-16} \text{ cm}^2/\text{W}$ [17]	1,75 [18, 23]	0,19 – 5,2 $\mu\text{m}$ [17]	11 $\text{J}/\text{cm}^2$ [19]

Lentelė 1: CaF<sub>2</sub>, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ir YLF lyginamoji lentelė

### 3. Rezultatai ir jų aptarimas

#### 3.1 Eksperimentinė įranga

Principinė superkontinuumo generavimo ir spektrų matavimų schema pavaizduota 5 pav. Tyrimo metu buvo naudojamas Ti:safyro lazeris (Spitfire PRO, Newport-Spectra Physics) bei BBO kristalo antros harmonikos generatorius, kuris generavo 100 fs tukmės, 400 nm bangos ilgį, o energija siekė 600 nJ ir pasikartojimo dažnis 500 Hz.



5 pav.: Eksperimentinė matavimo schema

Šviesos pluoštas sklinda iš lazerio jį nukreipiant veidrodžiu (schemoje V1) per banginės plokštelės ir poliarizatoriaus atenuatorių (schemoje A), kuris sumažina pluošto energiją iki reikiamų verčių ir reguliuojamas rankiniu būdu. Vėliau pluoštas yra fokusuojamas lydyto kvarco lęšiu, kurio žininio nuotolis yra 150 mm (schemoje pažymėtas L1) į bandinį. Taip pat bandyta fokusuoti pluoštą lęšiu, turinčiu 350 mm židinio nuotolį, tačiau plitimui ir jo gyvavimo trukmei tai esminės įtakos nepadarė. Esant švelnesniam fokusavimui buvo reikalingos aukštesnės energijos kontinuumui generuoti, todėl buvo nuspręsta dirbti su aštresniu fokusavimu. Bandinyje generuojamas spektras yra nukreipiamas veidrodžiu ( $R = -100$  mm, schemoje V2) į kitą veidrodį (schemoje V3), o vėliau į spektrometrą (BROADCOM mini „Miniature Spectrometer“) (schemoje pažymėtas S), kuris registruoja 300 nm – 1100 nm bangos ilgius. Nors šio spektrometro UV jautris yra ribotas, jis buvo naudotas daugumai matavimų. Šio spektrometro programinė įranga leidžia registruoti spektrus didele sparta, nes naudoja USB3 sąsają. Taip pat jis nejautrus lazerio impulsų bei spektrometro ekspozicijos dažnių mušimams. Didelio atspindžio dielektrinių dangų veidrodžiu ( $\text{SiO}_2$  HR400) (schemoje nepavaizduotas) buvo mažinamas kaupinimo bangos intensyvumas prieš šviesą nukreipiant į spektrometrą. Pradinis spektrinių komponentių santykis atstatytas išmatuotą spektrą normuojant į veidrodžio pralaidumo funkciją. Atskiru matavimu buvo nustatyti bandinių spektrų plitimo kraštai

gilesniame UV diapazone, naudojus spektrometrą OceanOptics OE6500 (schemoje nepavaizduotas). Peilio metodu buvo išmatuotas pradinio pluošto diametras pusės intensyvumo aukštyje, kuris sudarė 1,8 mm (bangos ilgiui lygus 400 nm) ir 2,54 mm (bangos ilgiui lygus 800 nm). Energomačiu „OPHIR“ - Laser Measurement Group (schemoje pažymėtas E raide), buvo registruojamos impulso energijos vertės.

Duomenų apdorojimas buvo atliktas MATLAB programa.

### 3.2 Spektrų matavimai

Kartu su tiriamą medžiaga YLF buvo atlikti lyginamieji matavimai pasinaudojant dar keliomis medžiagomis. Viena šių medžiagų -  $\text{CaF}_2$ , nes tai yra plačiai taikoma fluoridinė medžiaga, kuri plečia spektrą iki UVC (15 pav.). Superkontinuumas buvo generuojamas safyre, kadangi jo generuojamas spektras siekia UVA sritį ir yra stabilus (8 pav.). Superkontinuumo generavimas safyre yra labai gerai ištirtas. Yra žinoma, kad jis neprasimuša žadinant 400 nm bei 800 nm femtosekundiniais impulsais. Todėl superkontinuumas generuotas safyre gali būti idealaus veikimo pavyzdys, išryškinantis pašalinius poveikius, tokius kaip lazerio stabilumas, pluošto krypties nestabilumas bei impulso trukmės nestabilumas. Jei būtų gauti superkontinuumo generavimo parametrai panašūs į superkontinuumą safyre, tada šiuos matavimus galima laikyti idealiu rezultatu.

Žadinant 400 nm pluoštu, visų trijų bandinių (kristalų YLF,  $\text{CaF}_2$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ilgiai yra 5mm, 4mm ir 6mm, atitinkamai) spektrai buvo matuojami 300 nm – 650 nm diapazone, stebint kaip kinta jų generuojamų spektrų intensyvumai laike (6 pav., 7 pav., 8 pav.), kurie pavaizduoti logaritminėje skalėje. Vėliau buvo atvaizduoti generuojamų spektrų stabilumai, įvertinant ribotos imties standartinį nuokrypį (9 pav. - 11 pav.). Taip pat atvaizduoti bandinių spektrų plitimai skirtingais matavimo momentais: pradžioje, matavimo viduryje, bei pabaigoje ir įvertinti generuojamų spektrų kraštų stabilumai (pasirenkant skirtingus bangos ilgius kiekvienam bandiniui) „bėgant“ laikui (12 pav. - 14 pav., 23 pav., 25 pav.).

Matuojant YLF generuojamą spektrą pastebima, kad matavimo pradžioje spektras išplinta 300 nm – 650 nm bangų ilgių ruože (UV riba nulemta spektrometro jautrio), tačiau per 2-3 s pradinis plitimas susitraukia ir laikui „bėgant“ vis labiau gęsta (6 pav., 12 pav.). Kartu didėja intensyvumo triukšmas, kuris siekia virš 50% (9 pav.), nors matavimo pradžioje triukšmo lygis yra 15% ribose. Šis nestabilus generavimas ir padidėjusi intensyvumo fluktuacija stipriai išryškėja nuo 20 matavimo sekundės, vertinant 320 nm bangos ilgio stabilumą (12 pav. ). Maždaug nuo tos pačios sekundės stebimas 500 nm bangos ilgio ryškus intensyvumo sumažėjimas, kuris sąlygotas viso ilgabangio superkontinuumo generuojamo krašto susitraukimu (12 pav.). Superkontinuumo generavimo energetinis slenkstis YLF medžiagoje beveik sutampa su jos pažaidos slenkščiu (medžiaga prasimuša



ne momentiška, bet po trumpo laiko), kas neleidžia šiam kristalui generuoti stabilaus spektro ilgesnį laiko tarpą. Įvertinta optimali energija buvo 500 nJ. Esant mažesnėms energijoms superkontinuumo generavimas prie pat slenksčio buvo itin nestabilus. Didinant energiją pažeidimas formuodavosi itin sparčiai ir būtų sunku atlikti spektro matavimus. Pažeidimai kristalo tūryje buvo užfiksuoti naudojant optinį mikroskopą didinant 10 ir 20 kartų (16 pav.).

Vien užregistravus eilę spektrų lieka klausimas kaip lyginti gautą rezultatą: kiek skiriasi generuotas superkontinuumas vienoje medžiagoje, nuo generuoto kitoje. Dažnai yra rodomos spektrų evoliucijos laike arba keli spektrai generacijos pradžioje bei po tam tikro laiko. Taip, dažniausiai, parodoma kada medžiaga yra katastrofiškai pažeidžiama ir spektro plitimas nutrūksta. Tačiau gali būti dalinis - ne katastrofiškas medžiagos pažeidimas, kuris keičia superkontinuumo stabilumą, bet ne jo spektrinį plotį. Šiame darbe pritaikytas originalus duomenų vaizdinimas, kai skaičiuojama nedidelės spektrų imties (20 spektrų) standartinė deviacija laiko eigoje. Tai parodo, kokios spektrinės sritys yra stabilios ar nestabilios, bei koks būtų taikomųjų matavimų stabilumas taikant superkontinuumą kituose tyrimuose.

Lyginant  $\text{CaF}_2$  ir YLF matavimų pradžioje generuojamus spektrus jie yra panašių plokčių:  $\text{CaF}_2$  spektras labiau plinta į ilgabangę spektro pusę lyginant su YLF (12 pav. ir 13 pav.), o YLF spektras į trumpabangę (15 pav.). Vertinant spektrų triukšmingumą ir gyvavimo trukmes, YLF stipriai nusileidžia  $\text{CaF}_2$  (9 pav., 12 pav. ir 10 pav., 13 pav. atitinkamai).  $\text{CaF}_2$  triukšmo lygis yra 2-6% ribose iki 2 min nuo spektro plitimo pradžios, vėliau triukšmo lygis didėja ir siekia 10 % (10 pav.), bet medžiaga katastrofiškai neprasimuša ir spektras lieka išplitęs. Ryškesnis spektro susitraukimas ir intensyvumų fluktuacijos stebimos po 10 min nuo superkontinuumo generavimo pradžios: raudonoji spektro pusė palaipsniui traukiasi pradėdant nuo 200s (ties 500 nm), taip pat didėja triukšmingumas, o mėlynosios dalies triukšmas padidėja nuo 13 min (320 nm bangos ilgis) (13 pav.). Tuo tarpu YLF bandinyje spektro intensyvumų fluktuacijos yra didesnės: raudonosios spektro dalies susitraukimas (ties 500 nm) ir triukšmingumas ryškiai padidėja po 2 – os matavimų sekundės, o trumpabangėje spektro dalyje (ties 320 nm) ryškios fluktuacijos atsiranda per keliasdešimt pirmų žadinimo impulsų – įvyksta medžiagos pažeidimas (12 pav.). Iš esmės, spektrų dinamika ir intensyvumo fluktuacijos, lyginant tuos pačius YLF ir  $\text{CaF}_2$  generuojamų superkontinuumų bangos ilgus, yra panašios (mėlynosios dalies ryškus triukšmų atsiradimas lydimas IR dalies tolydžiu susitraukimu) (12 pav., 13 pav.), skiriasi tik pažeidimo atsiradimo greičiai, bei triukšmų didėjimas, jų lygiai.

Palyginimui, bei tikintis rasti tendencijas buvo atlikti, iš esmės, identiški matavimai žadinant 800 nm bangos ilgio impulsais. Rezultatai yra pateikti 17 - 25 pav. logaritminėje skalėje.

Nepaisant to, kad UV srityje YLF medžiaga greitai prasimuša ir generuojamas superkontinuumas yra nestabilus, lyginant su  $\text{CaF}_2$ , kristalą žadinant 800 nm bangos ilgiu išgaunamas

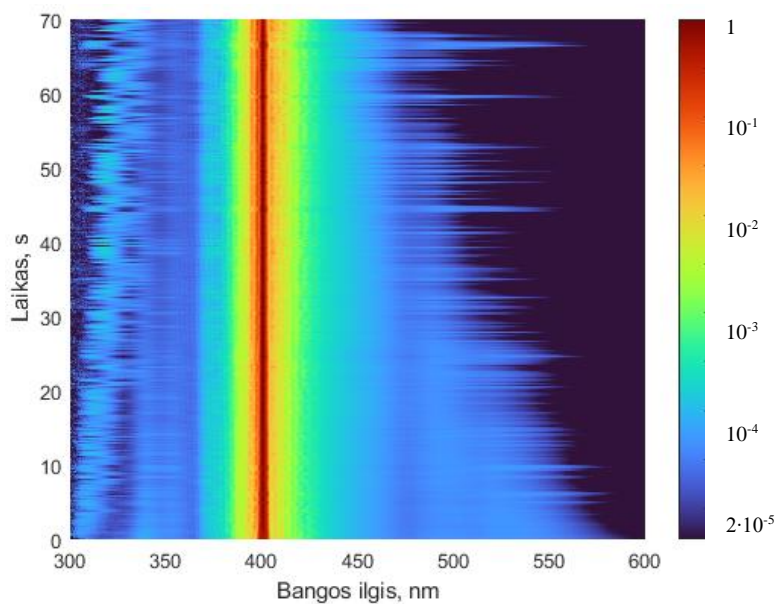
žymiai stabilėnis superkontinuumo generavimas (17 pav.). Stebimas spektro plitimas IR srityje nuo 400 nm iki 850 nm. Taip pat pastebima, kad triukšmingumo lygis laikui bėgant yra 30% ribose, kas žymiai mažiau, jeigu lyginsime su UV srities triukšmingumo lygiu (20 pav.). Įdomu tai, kad YLF generuojamas superkontinuumas nežymiai susitraukia laikui bėgant (23 pav.), kas potencialiai leidžia šią medžiagą naudoti taikymuose, kur yra reikalinga artimoji IR ir regimoji spinduliuotė, nors šiai medžiagai galima surasti geresnių alternatyvų. Vertinant intensyvumų fluktuacijas ties 400 nm ir 850 nm, jos siekia 30%, kadangi šie bangos ilgiai yra generuojamo superkontinuumo kraštai (16 pav.). Įdomu tai, kad žadinant YLF kristalą 800 nm, pakito pažeidimo dinamika: vertinant spektro kraštus stebimi pastovūs triukšmai, nėra tolygaus raudonojo krašto mažėjimo ir staigių fluktuacijų atsiradimų (23 pav.). Pastebima, kad spektras yra nestabilus nuo pat generacijos pradžios ties 400 nm. 850 nm - patikimo ir stabilaus plitimo į UV sritį negalima išgauti (20 pav., 23 pav.).

Tuo tarpu  $\text{CaF}_2$  demonstruoja stabilų superkontinuumo plitimą nuo 320 nm iki 850 nm, nors raudonasis superkontinuumo kraštas siekia 900 nm, tačiau jo stabilumas yra palyginti prastas (15 % ribose) (18 pav., 21 pav.). Triukšmingumo lygis generuojamo IR spektro regione siekia vertes virš 15%, tačiau UV kraštas yra stabilėnis, spektro triukšmingumas yra 10% ribose (20 pav.). Ryškiausias superkontinuumo intensyvumo fluktuacija yra stebima ties 420 - 430 nm (21 pav., 24 pav.). Nepaisant to, kad superkontinuumas nežymiai susitraukia po 2 min nuo generavimo pradžios, labai ryškių intensyvumų fluktuacijų, lyginant su YLF, negalime įžvelgti (24 pav.). Stebimos pastovios 400 nm ir 850 nm bangos ilgių intensyvumų fluktuacijos ir tolydus IR krašto susitraukimas (24 pav.) Vėlgi, lyginant šį kontinuumo generavimą su YLF kristalu,  $\text{CaF}_2$  yra pranašesnė medžiaga, kuri generuoja stabilėsnį superkontinuumą siekiantį 320 nm, žadinant su 800 nm, 100 fs impulsais (18 pav., 24 pav.)

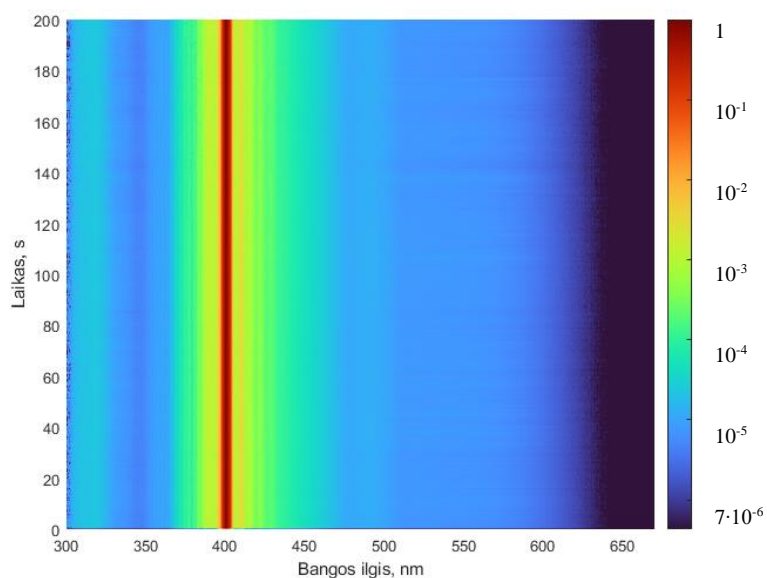
Lyginant  $\text{CaF}_2$  superkontinuumo generaciją su safyro, juos žadinant 400 nm bangos ilgiu, (7 pav. ir 8 pav. atitinkamai) jis išplinta labiau, tačiau pastarojo stabilumas yra 3% ribose (11 pav.), kas padaro medžiagą patrauklesne vykdant taikymus UVA spektro dalyje. Safyrą galima vadinti „pavyzdine“ medžiaga superkontinuumo generavimui, įvertinant jos generuojamą spektrą laikui bėgant jis išlieka pastovus - nesitraukia (14 pav.) ir bangos ilgių (350 nm ir 500 nm) intensyvumų fluktuacijos yra labai mažos (3 - 5 % ribose) (11 pav.). Žadinant bandinius 800 nm pluoštu, safyro generuojamas spektras yra siauresnis nei  $\text{CaF}_2$ , kalbant apie mėlynąjį kraštą, kuris tęsiasi iki 450 nm (19 pav., 25 pav.). Spektro stabilumas, kitaip tariant, jo triukšmingumas yra 5% ribose (22 pav.), o intensyvumo fluktuacijos taip pat yra labai mažos (25 pav.). Akivaizdu, kad norint išgauti UV srities spektrą iki 330 nm, safyras yra geriausias kandidatas iš darbe nagrinėtų 3-jų medžiagų.

Apibendrinant, galima sakyti, kad YLF kristale superkontinuumas yra generuojamas, tačiau spektras susitraukia – įvyksta medžiagos pažeidimas, po 2-3 s nuo generavimo pradžios, tad, potencialiai, ji gali būti naudojama tyrimams nukreiptiems į UVA-UVC sritį, kurie nereikalautų

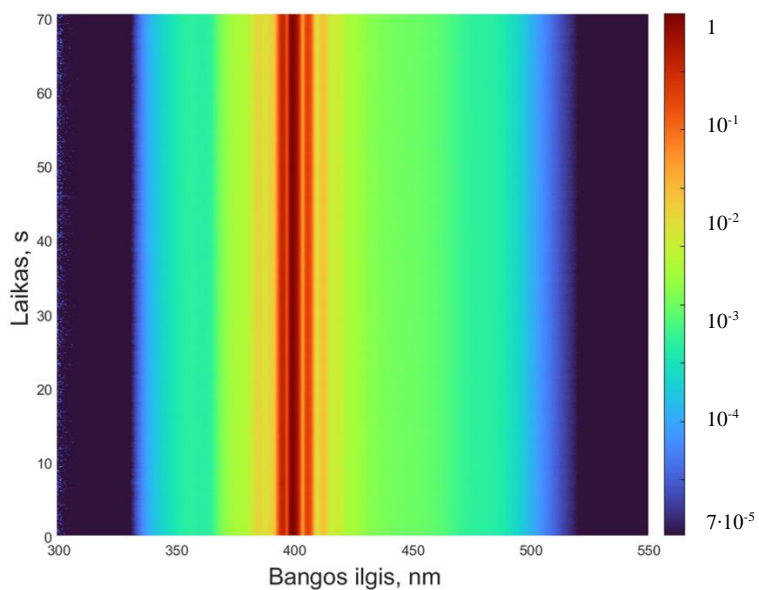
ilgesnio spinduliavimo laiko iki kol įvyksta medžiagos pažeidimas. Tačiau,  $\text{CaF}_2$  yra žymiai stabilesnė medžiaga superkontinuumo generavimui toje pačioje srityje ir labiau prieinama, bei pigesnė nei YLF. Todėl baltos šviesos generavimui, šviesos gijų formavimui nėra didelės prasmės rinktis YLF. Nepaisant daug žadančių pradinių lūkesčių, YLF kristalas yra nepakankamai atsparus didelio intensyvumo šviesai ir medžiagos pažeidimas įvyksta, praktiškai, kartu su šviesos gijos formavimusi. Numatytas YLF pažaidos slenkstis yra apibrėžtas vieno impulso atvejui. Akivaizdžiai matomi susiformavę spalviniai centai (16 pav.) mažina draustinės juostos tarpą ir didina daugiafotonę bei tiesioginę sugertį. Todėl daugelio impulsų atveju pažaidos slenkstis yra žemas ir žymiai mažesnis už vieno impulso pažaidos slenkstį. Tikriausiai, galima teigti, kad spalviniai centrai YLF kristale turi plačią sugertį. Pažaidos zonos akivaizdžiai matomos optiniu mikroskopu kaip juosvos zonos (16 pav.). Tikriausiai, jų sugertis riboja žadinančios šviesos intensyvumą bei skatina medžiagos suirimą. Nors šiame darbe parodyta, kad dar viena potencialiai patraukli medžiaga neatlaiko didelių šviesos gijos intensyvumų, galima nukreipti pastangas tirti kitas, panašių optinių savybių turinčias, medžiagas naudojant mūsų pritaikytą metodologiją.



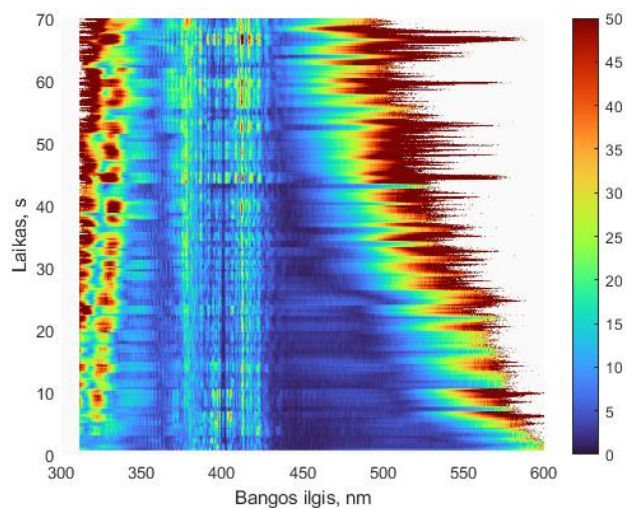
6 pav.: Generuojamas LiYF<sub>4</sub> superkontinuumo spektras žadinant 400 nm bangosi lgiu, pluošto energija 500 nJ



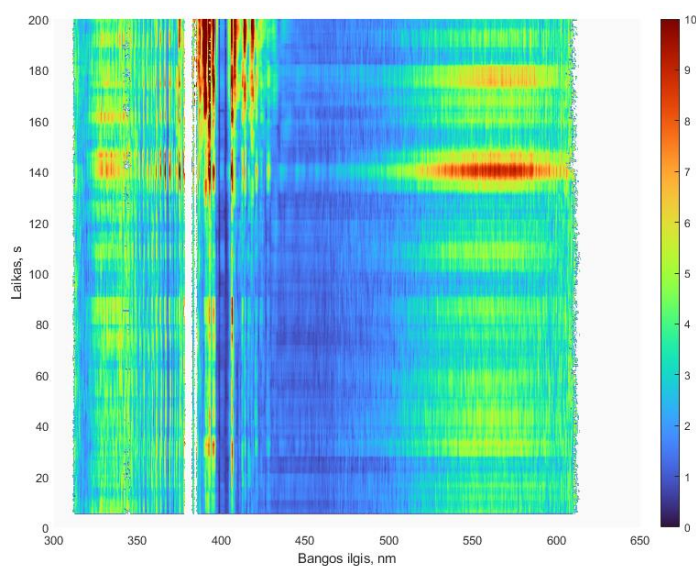
7 pav.: Generuojamas CaF<sub>2</sub> superkontinuumo spektras žadinant 400 nm, pluošto energija 600 nJ



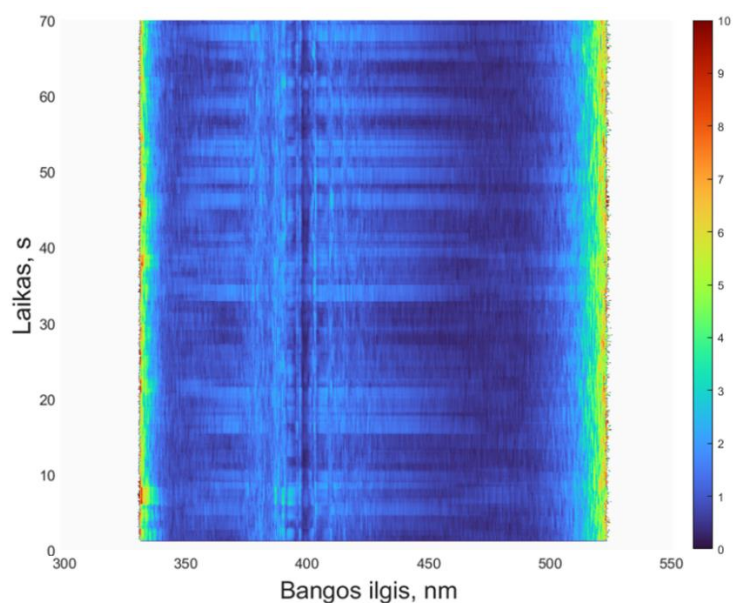
8 pav.: Generuojamas safyro superkontinuumo spektras žadinant 400 nm, pluošto energija 170 nJ



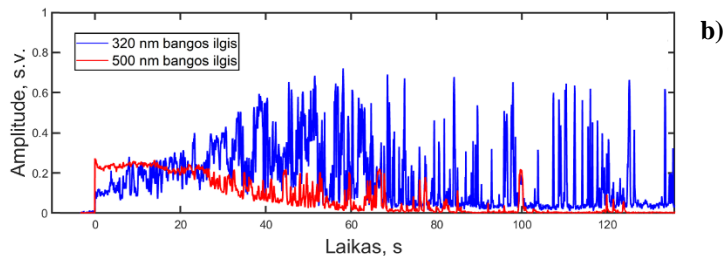
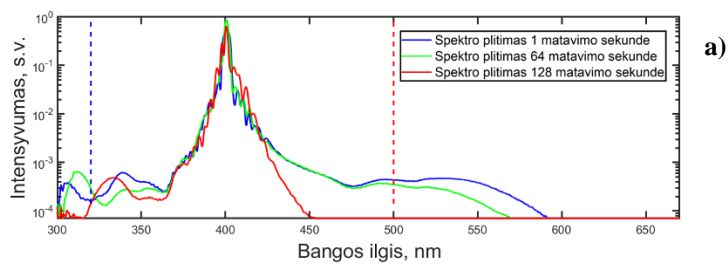
**9 pav.: LiYF<sub>4</sub> generuojamo superkontinuumo bangos ilgių intensyvumų stabilumas (standartinio nuokrypio santykis %)**



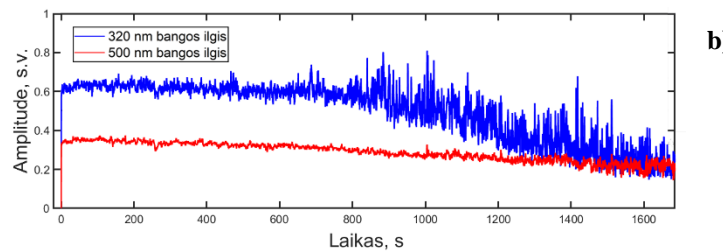
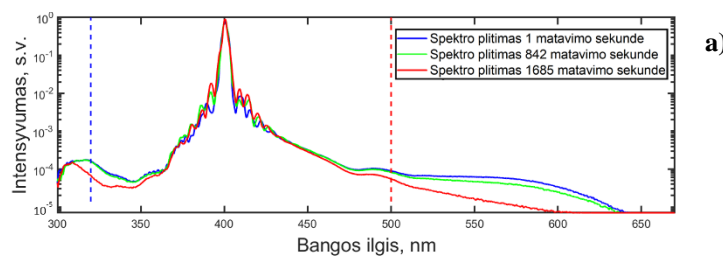
**10 pav.: CaF<sub>2</sub> generuojamo superkontinuumo bangos ilgių intensyvumų stabilumas (standartinio nuokrypio santykis %)**



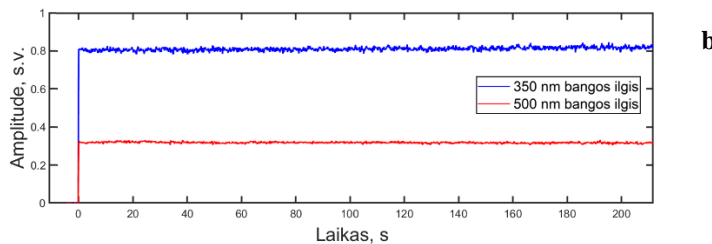
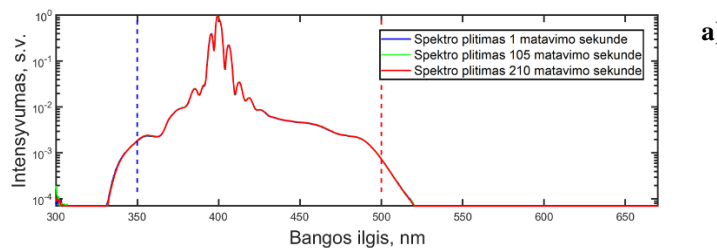
**11 pav.: Safyro generuojamo superkontinuumo bangos ilgių intensyvumų stabilumas (standartinio nuokrypio santykis %)**



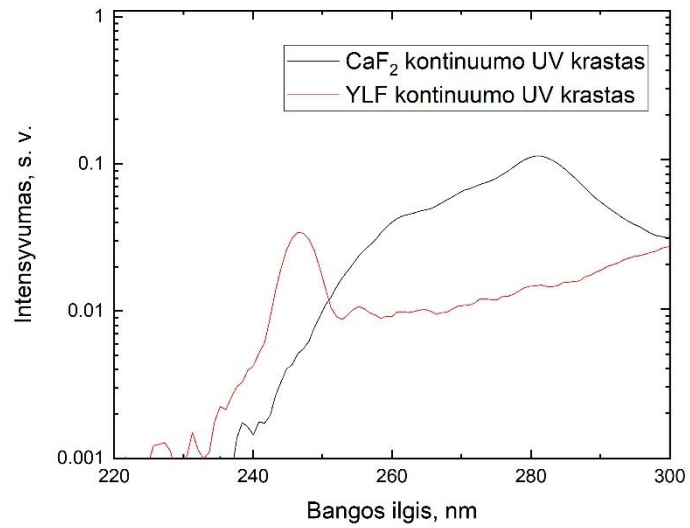
12 pav.: a) - LiYF<sub>4</sub> spektro plitimai skirtingais laiko momentais; b) – pasirinktų bangų ilgių stabilumai, atitinkančias brūkšnines linijas grafike a), laikui bėgant



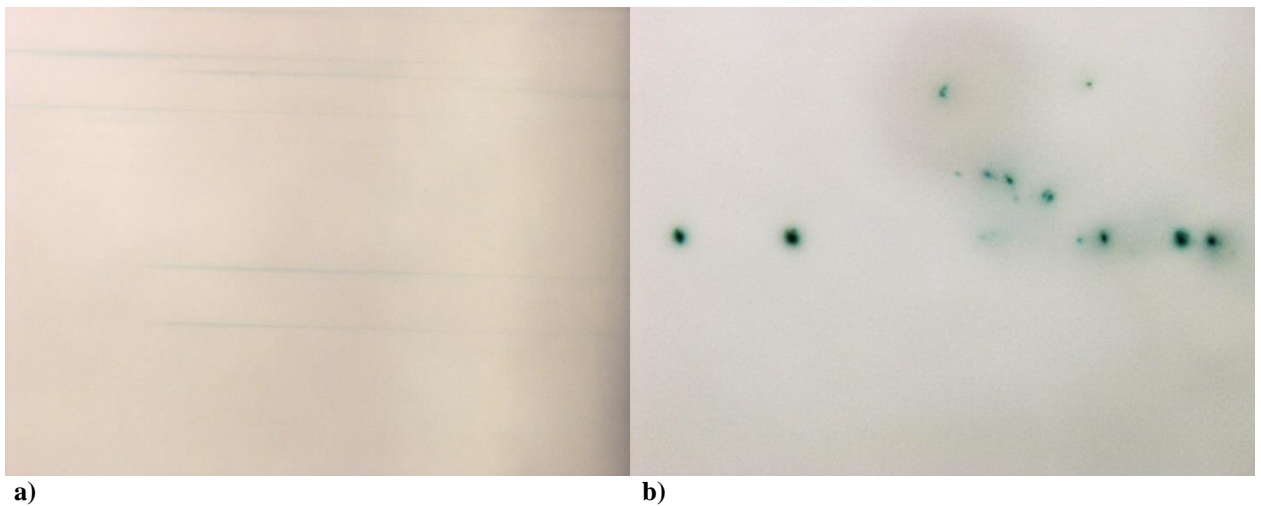
13 pav.: a) – CaF<sub>2</sub> spektro plitimai skirtingais laiko momentais; b) – pasirinktų bangų ilgių stabilumai, atitinkančias brūkšnines linijas grafike a), laikui bėgant



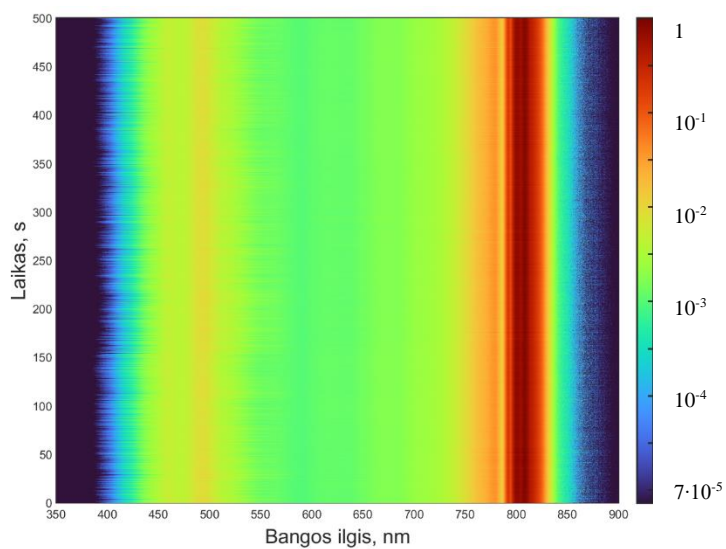
14 pav.: a) - safyro spektro plitimai skirtingais laiko momentais; b) – pasirinktų bangų ilgių stabilumai, atitinkančias brūkšnines linijas grafike a), laikui bėgant



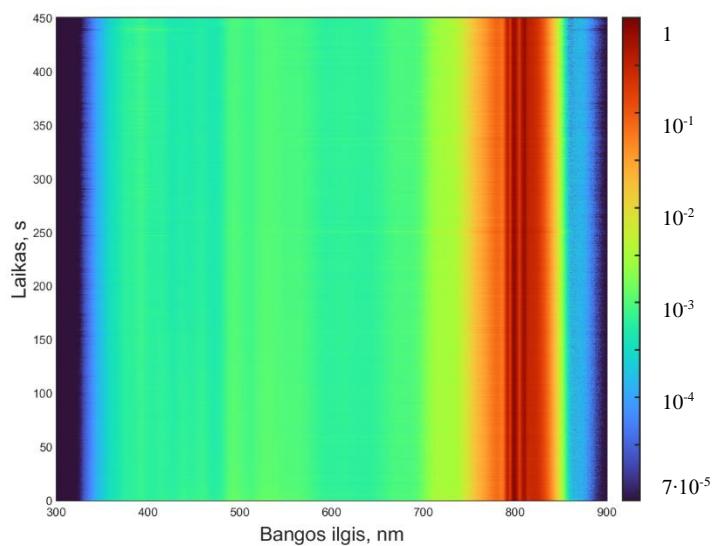
15 pav.: CaF<sub>2</sub> ir LiYF<sub>4</sub> superkontinuomo plitimosi kraštai UV srityje



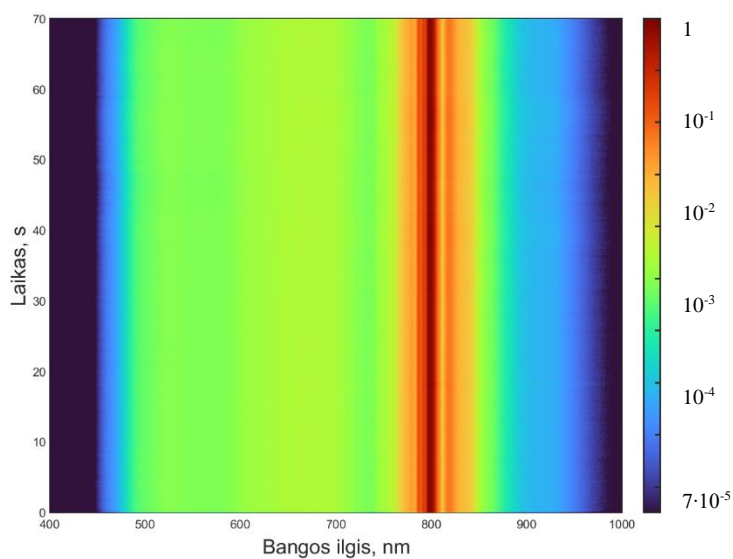
16 pav.: LiYF<sub>4</sub> pažeidimų nuotraukos, padarytos optiniu mikroskopu. a) – užfiksuotas pažeidimas kristale, statmenai pluošto sklaidimo kryptimi, didinimas 10 kartų; b) – užfiksuotas pažeidimas kristale, pluošto sklaidimo kryptimi, didinimas 20 kartų



17 pav.: Generuojamas LiYF<sub>4</sub> superkontinuumo spektras žadinant 800 nm, pluošto energija 550 nJ

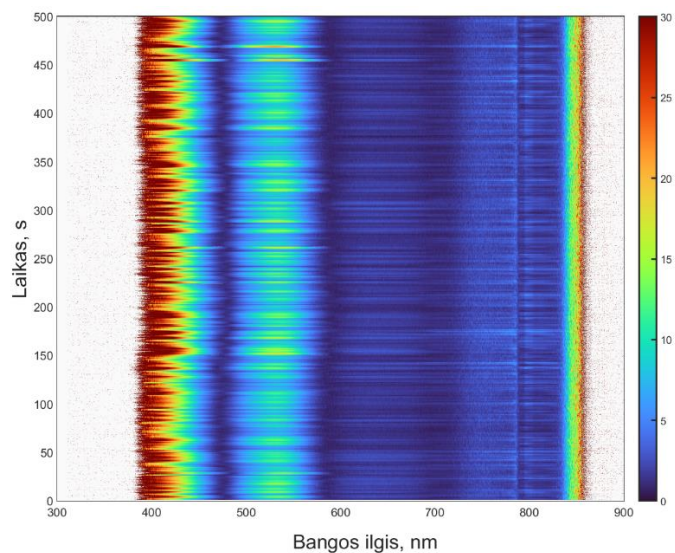


18 pav.: Generuojamas CaF<sub>2</sub> superkontinuumo spektras žadinant 800 nm, pluošto energija 800 nJ

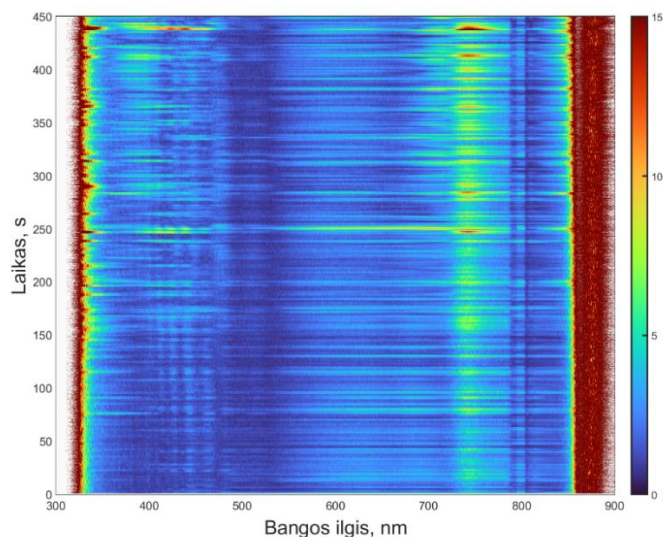


19 pav.: Generuojamas safyro superkontinuumo spektras žadinant 800 nm, pluošto energija 750 nJ

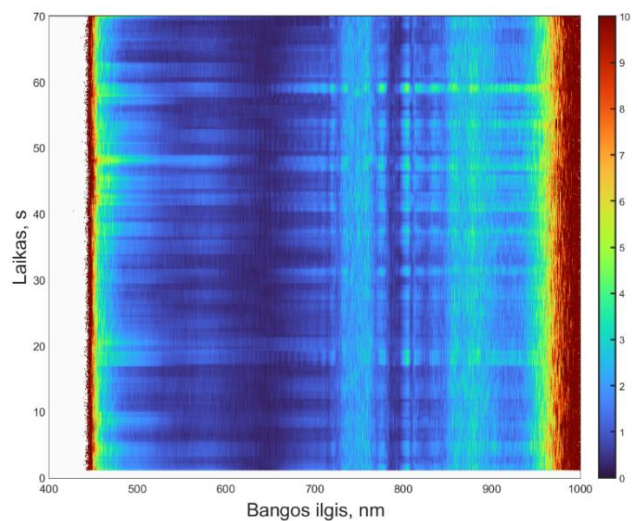




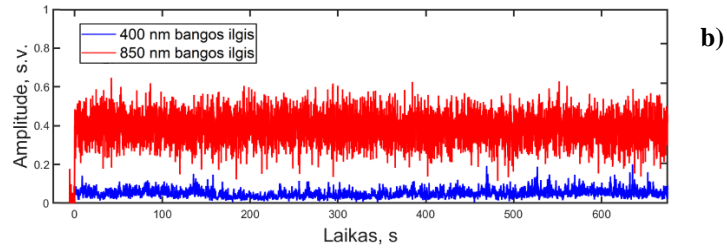
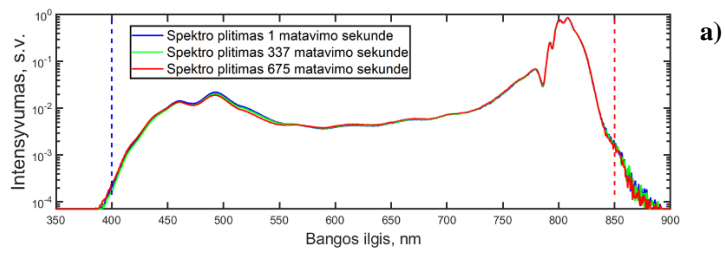
**20 pav.: LiYF<sub>4</sub> generuojamo superkontinuumo bangos ilgių intensyvumų stabilumas (standartinio nuokrypio santykis %)**



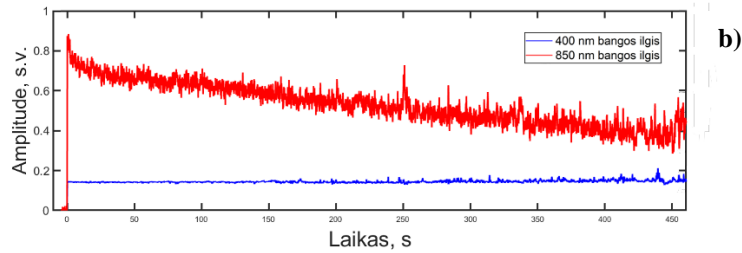
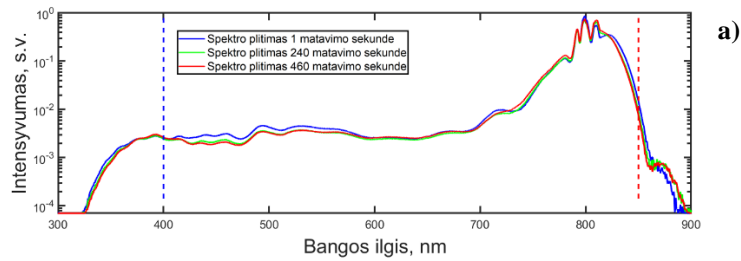
**21 pav.: CaF<sub>2</sub> generuojamo superkontinuumo bangos ilgių intensyvumų stabilumas (standartinio nuokrypio santykis %)**



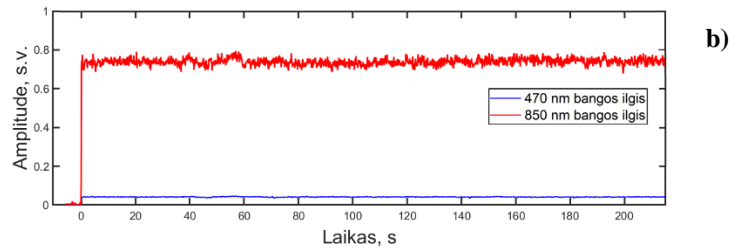
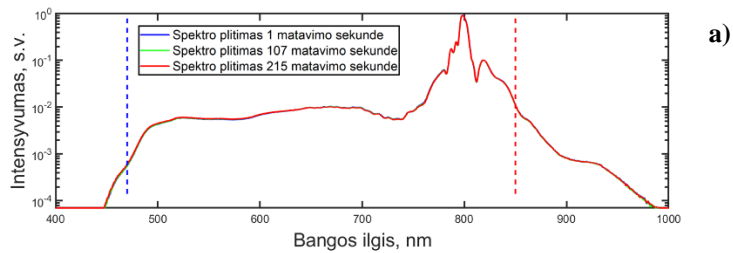
**22 pav.: Safyro generuojamo superkontinuumo bangos ilgių intensyvumų stabilumas (standartinio nuokrypio santykis %)**



23 pav.: a) -  $\text{LiYF}_4$  spektro plitimai skirtingais laiko momentais žadinančiajam impulsui esant ties 800nm; b) – pasirinktų bangų ilgių stabilumai, atitinkančias brūkšines linijas grafike a), laikui bėgant



24 pav.: a) –  $\text{CaF}_2$  spektro plitimai skirtingais laiko momentais žadinančiajam impulsui esant ties 800nm; b) – pasirinktų bangų ilgių stabilumai, atitinkančias brūkšines linijas grafike a), laikui bėgant



25 pav.: a) - safyro spektro plitimai skirtingais laiko momentais žadinant 800nm; b) – pasirinktų bangų ilgių stabilumai, atitinkančias brūkšines linijas grafike a), laikui bėgant

## Išvados

1. YLF generuojamas superkontinuumas apima 235-590 nm sritį matuojant  $10^{-5}$  lygyje žadinant femtosekundinio Ti:safyro lazerio antrąją harmoniką.
2. Safyro kristalas generuoja stabilų UVA bei matomosios spektro dalies superkontinuumą be medžiagos pažaidos, priešingai nei YLF kristalas.
3. YLF gali būti potencialiai naudojama medžiaga kontinuumo generavimui, tačiau tik transliuojant bandinį, nes per 2-3 s nuo generacijos pradžios įvyksta lazerio spinduliuotės indukuotas medžiagos pažeidimas. Tikslingiau būtų naudoti  $\text{CaF}_2$  nes jame superkontinuumas generuojamas žymiai ilgiau ir stabiliau, o spektro plitimas UV srityje yra nežymiai siauresnis.

## Literatūros sąrašas

- [1] M. C. Teich, *Fundamentals of photonics* (Wiley, New Jersey, 1991).
- [2] J. Hult, R. S. Watt, and C. F. Kaminski. "High bandwidth absorption spectroscopy with a dispersed supercontinuum source." *Optics express* **15**.18 (2007): 11385-11395, <https://doi.org/10.1364/OE.15.011385>
- [3] R. Huber, H. Satzger, W. Zinth, and J. Wachtveitl "Noncollinear optical parametric amplifiers with output parameters improved by the application of a white light continuum generated in CaF<sub>2</sub>." *Optics communications* **194**.4-6 (2001): 443-448, 10.1016/S0030-4018(01)01324-4
- [4] P. JM Johnson, V. I. Prokhorenko, and RJ D. Miller. "Stable UV to IR supercontinuum generation in calcium fluoride with conserved circular polarization states." *Optics Express* **17**.24 (2009): 21488-21496, <https://doi.org/10.1364/OE.17.021488>
- [5] I. Gražulevičiūtė, M. Skeivyte, E. Keblyte, J. Galinis, G. Tamošauskas, & A. Dubietis. "Supercontinuum generation in YAG and sapphire with picosecond laser pulses." *Lithuanian Journal of Physics*, **55**(2) (2015), <https://doi.org/10.3952/physics.v55i2.3101>
- [6] D. Majus, V. Jukna, E. Pileckis, G. Valiulis, & A. Dubietis. "Rogue-wave-like statistics in ultrafast white-light continuum generation in sapphire." *Optics express*, **19**(17), 16317-16323, (2011), <https://doi.org/10.1364/OE.19.016317>
- [7] N. P. Barnes and D. J. Gettemy, "Temperature variation of the refractive indices of yttrium lithium fluoride," *J. Opt. Soc. Amer.* **70**(10), 1244–1247 (1980), 10.1109/3.52133
- [8] J. Yin, Q. Zhang, T. Liu, X. Guo, M. Song, X. Wang, & H. Zhang. "Ab initio study of electronic structures of LiYF<sub>4</sub> crystal containing interstitial oxygen atoms." *Nuclear Instruments and Methods in Physics Research Section B: Beam Interactions with Materials and Atoms*, **267**(1), 74–78. (2009). doi:10.1016/j.nimb.2008.07.024
- [9] Gabor Patonay, *Longer wavelength lasers and applications..* (SPIE--The International Society for Optical Engineering, Bellingham, WA, 1994)
- [10] M. Armstrong, X. Zhu, S. Gracewski, and R. J. D. Miller, "Development of a 25 W TEM<sub>00</sub> diode-pumped Nd:YLF laser," *Opt. Commun.* **169**(1-6), 141–148 (1999).
- [11] Y. Kalisky., *THE PHYSICS AND ENGINEERING OF SOLID STATE LASERS* (SPIE—The International Society for Optical Engineering, Bellingham, Washington, 2006).
- [12] A. Dubietis, *Netiesinė optika* (VU leidykla, Vilnius, 2011).
- [13] R. W. Boyd, *Nonlinear optics, third edition* (Elsevier Science, USA, 2003).

- [14] A. Couairon, A. Mysyrowicz, Femtosecond filamentation in transparent media, *Phys. Rep.* **441**(2-4), p. 47–189 (2007), <https://doi.org/10.1016/j.physrep.2006.12.005>
- [15] J. C. Diels, & W. Rudolph, *Ultrashort laser pulse phenomena*. (Elsevier, Burlington, 2006).
- [16] W. Lowdermilk and David Milam. "Laser-induced surface and coating damage." *IEEE Journal of Quantum Electronics* 17, no. **9** (1981), 1888-1903. 10.1109/JQE.1981.1071329.
- [17] A. Dubietis, G. Tamošauskas, R. Šuminas a, V. Jukna, and A. Couairon. „Ultrafast Supercontinuum Generation In Bulk Condensed Media“, *Lith. J. Phys*, **57**(3), p. 113–157 (2017), arXiv:1706.04356v1
- [18] Marvin J. Weber, *Handbook of optical materials*. (The CRC press, Berkeley2003).
- [19] O. Uteza, B. Bussiere, F. Canova, J. P. Chambaret, P. Delaporte, T. Itina, & M. Sentis „Laser-induced damage threshold of sapphire in nanosecond, picosecond and femtosecond regimes.“ *Applied Surface Science*, **254**(4), 799-803. (2007), doi:10.1016/j.apsusc.2007.09.046
- [20] T. Q. Jia, X. X. Li, D. H. Feng, C. F. Cheng, R. X. Li, H. Chen, & Z. Z. Xu., „Theoretical and experimental study on femtosecond laser induced damage in CaF<sub>2</sub> crystals.“ *Applied Physics A*, **81**(3), 645-649. (2005) <https://doi.org/10.1007/s00339-004-2685-z>
- [21] L. Gallais, & M. Commandré, „Laser-induced damage thresholds of bulk and coating optical materials at 1030 nm, 500 fs.“ *Applied optics*, **53**(4), A186-A196. (2014). <https://doi.org/10.1364/AO.53.00A186>
- [22] <https://refractiveindex.info> (žiūrėta 2021.05.16)

## LYGINAMASIS ULTRAVIOLETINIO ŠVIESOS SUPERKONTINUUMO TYRIMAS $\text{LiYF}_4$ IR SAFYRO KRISTALUOSE

### Santrauka

Šiame darbe buvo išmatuoti YLF,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  bei  $\text{CaF}_2$  spektrai, žadinant bandinius 400 nm ir 800 nm bangos ilgio 100 fs impulsais, taip pat išmatuoti spektro intensyvumo triukšmai, tokiu būdu įvertinant superkontinuumo generavimo stabilumą.

Buvo pademonstruota, kad YLF kristale galimas superkontinuumo generavimas ir ši medžiaga gali būti naudojama baltosios šviesos generavimui tiek UV, tiek IR srityje, tačiau norint išgauti stabilesnį spektrą – medžiaga turi būti judinama, kad neįvyktų jos pažeidimas.

Lyginant YLF generuojamą spektrą su  $\text{CaF}_2$  jų pločiai yra panašūs, tačiau pastarosios medžiagos superkontinuumo spektras yra žymiai stabilesnis – triukšmo vertė siekia 10 % (UV) ir 15% (IR), tuo tarpu YLF generuojamo spektro triukšmai siekia 50 % (UV) ir 30 % (IR). Iš visų trijų medžiagų safyras yra stabiliausias, jo generuojamas spektras yra 370 – 530 nm bangų diapazone bei intensyvumų triukšmų vertė yra iki 3 %, kas yra nepalyginamai geriau lyginant su kitais ištirtais bandiniais.

Tyrimas parodė, kad YLF gali būti naudojamas kontinuumo generavimui, tačiau naudingiau ir paprasčiau taikyti  $\text{CaF}_2$ , atliekant tyrimus UV srityje arba rinktis safyrą ( $\text{Al}_2\text{O}_3$ ), kai nereikia gilesnės UV spinduliuotės.

COMPARATIVE STUDY OF ULTRAVIOLET SUPERCONTINUUM GENERATED IN LiYF<sub>4</sub>  
AND SAPPHIRE CRYSTALS

**Summary**

In this paper supercontinuum generation in LiYF<sub>4</sub> (YLF), CaF<sub>2</sub> and Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> crystals were investigated pumping by wavelengths at 400 nm and 800 nm with pulse duration of 100 fs. Moreover, standard deviations of spectrum intensities were calculated giving more information about stability and its evaluation what is important for practical applications.

It was demonstrated that supercontinuum generation in YLF crystal can be used for applications in UV and IR spectral regions. However, for stable continuum generation YLF crystal has to be translated in order to avoid laser induced damage.

Comparing YLF and CaF<sub>2</sub> spectrums broadenings – they are quite similar, but supercontinuum generated in CaF<sub>2</sub> is more stable with intensity noise (standard deviation) at 10% in UV region and 15 % in IR region. Short time stability in the YLF crystal is 50 % of standard deviation value in UV region and 30 % in IR region. Among all crystals investigated in this work Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> produces the most stable supercontinuum which spans from 370 nm to 530 nm pumping with 400 nm and 450 nm – 980 nm pumping with 800 nm. The standard deviation of Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> produced spectrum is not exceeding 3 % which makes this crystal ideal for applications in near UV region and near IR.

It was showed that YLF crystal can be used for supercontinuum generation, but it is more appealing to use CaF<sub>2</sub> crystal for generation in UV region or Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> when deep UV radiation is not required.