Vilniaus universitetas Fizikos fakultetas Lazerinių tyrimų centras

# Erikas Atkočaitis LBO KRISTALŲ, PADENGTŲ SKAIDRINANČIOMIS DANGOMIS, OPTINIO ATSPARUMO TYRIMAS

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerinės technologijos programa

Studentas Leista ginti Darbo vadovas Lazerinių tyrimų centro direktorius Erikas Atkočaitis 2021-05-21 doc. dr. Andrius Melninkaitis doc. Aidas Matijošius

# Turinys

Įvad	las	•••••		3		
1.	Literat	tūros aj	pžvalga	5		
	1.1. Stiklų mechaninis apdirbimas					
	1.1.	Interf	ferencinės dangos auginimas: jonapluoštis dulkinimas	6		
	1.2.	Skaid	lrinančios dangos ir jų rūšys	7		
	1.	2.1.	Vienasluoksnės skaidrinančios dangos	7		
	1.	2.2.	Dvisluoksnės skaidrinančios dangos	8		
	1.	2.3.	Daugiasluoksnės skaidrinančios dangos	9		
	1.3.	Lazer	rine spinduliuote inicijuojama optinė pažaida	10		
	1.4.	Pažai	dos lazerio spinduliuotei slenksčio priklausomybė nuo impulso trukmės	13		
	1.	4.1.	Nedengtų pagrindukų PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės	13		
	1.	4.2.	Dangų PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės	14		
	1.	4.3.	Netiesinių kristalų PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės	16		
	1.	4.4.	Nuovargio efektas	23		
	1.	4.5.	Skaidrinančių dangų pažaidos mechanizmai	26		
2.	Darbo	metod	lika	28		
	2.1.	Ekspe	erimentinė darbo schema	28		
	2.2.	Pažai	dos lazerio spinduliuotei slenksčio testavimo protokolai: "1 į 1" ir "S į	1"		
	atvejai	i		29		
3.	Rezult	tatai ir	jų aptarimas	31		
Išva	dos			40		
Apr	obacija .			41		
Darl	be naudo	otos lite	eratūros sąrašas	42		
Sum	nmary			44		
Sant	trauka			45		

### Įvadas

Plėtojant didelės galios lazerines technologijas, gana greitai buvo pastebėta, jog optinių sistemų generuojama maksimali galia yra ribojama dėl lazerinės spinduliuotės inicijuojamos optinės pažaidos. Optiniai elementai, naudojami lazerinėse sistemose, turi tam tikrą atsparumo ribą – maksimalų slenkstinį energijos įtėkį, kurį viršijus elementas yra negrįžtamai suardomas. Toks suardytas elementas toliau nebegali būti pritaikomas optinėje sistemoje, kadangi, įvykus pažaidai, elemento optinės savybės nebeatitinka pradinių reikalavimų. Tai reiškia, jog nustojus veikti vienam elementui, sustoja veikti visa optinė sistema. Siekiant pagerinti optinių elementų atsparumą lazerinei spinduliuotei, tam buvo pritaikytos dielektrinės medžiagos, pasižyminčios mažais sugerties koeficientais: stiklas ir kristalai, kurie yra dengiami daugiasluoksnėmis interferencinėmis dangomis. Tokių optinių elementų optinis atsparumas yra apibūdinamas eksperimentiškai išmatuojamu dydžiu – pažaidos lazerio spinduliuotei slenksčiu – PLSS (angl. LIDT – laser induced damage threshold [1]). Šis parametras priklauso nuo elemento gamybai naudojamų medžiagų, optinių savybių, technologinių gamybos procesų (poliravimo, dengimo), eksponavimo parametrų (apšvitos dozės, spinduliuotės bangos ilgio, pluošto diametro ir t.t.).

Vienas pagrindinių lazerinės spinduliuotės parametrų, lemiančių optinę pažaidą yra impulso trukmė. Yra žinoma [2–13], jog skirtinga impulso trukmė nulemia skirtingo pobūdžio optinę pažaidą, o tai yra labai svarbu, kadangi įvairiems gamybiniams ir technologiniams procesams yra naudojami įvairios impulso trukmės lazeriai. Pavyzdžiui, naudojant lazerius, kurių impulso trukmė yra nuo kelių nanosekundžių iki keliasdešimties pikosekundžių, dažniausiai optinę pažaidą nulemia griūtinė jonizacija ir dielektriko irimas, o naudojant trumpesnių impulsų lazerius – daugiafotonė sugertis [14]. Mokslinėje literatūroje yra gana daug publikacijų apie optinę pažaidą ant lydyto kvarco, kalcio fluorido ir kitų populiariai naudojamų skaidrių medžiagų paviršių prie įvairių impulso trukmių, tačiau labai mažai dėmesio skirta netiesinių dvejopalaužių kristalų optinės pažaidos mechanizmams, o ypač PLSS priklausomybei nuo lazerio impulso trukmės, kuri perdengtų pikosekundinių impulsų sritį.

Taigi, šio darbo tikslas yra ištirti netiesinių optinių kristalų paviršių su skaidrinančiomis dangomis PLSS priklausomybę nuo lazerinių impulsų trukmės.

Tikslui pasiekti buvo iškelti tokie uždaviniai:

• atlikti PLSS matavimus skaidrinančia danga dengtiems LBO kristalams su derinamos trukmės pirmos ir trečios harmonikos spinduliuote;

- atskirti skirtingus pažaidos mechanizmus ir juos apibendrinti;
- atlikti vaizdinę išmatuotų paviršių analizę ir nustatyti pažaidos slenkstį;

• išanalizuoti ir apibendrinti gautus rezultatus, nustatyti dominuojančius pažaidos mechanizmus.

### 1. Literatūros apžvalga

#### 1.1. Stiklų mechaninis apdirbimas

Siekiant išgauti kuo geresnės kokybės stiklo ar kristalo optinį paviršių, optinių elementų gamyboje naudojami įvairūs abrazyviniai šlifavimo ir poliravimo žingsniai. Dėl tokio mechaninio gamybos metodo paviršiuje arba po paviršiumi (angl. sub–surface damage – SSD) lieka nemažai mikroskopinių defektų: įskilimų, duobučių ir rėžių. Taip yra todėl, kad optinės medžiagos yra trapios ir jos šalinamos mikroskaldymo būdu. Taigi, poliruojant paviršių, abrazyvas yra viena pagrindinių paviršinių ir popaviršinių defektų inicijavimo priežasčių (žr. 1 pav.). Ypač pavojingos yra tos dalelės, kurios aglomeruoja į klasterius, tokiu būdu lokaliai sudarydamos didesnę apkrovą poliruojamam paviršiui ir palikdamos gilesnius rėžius. Priklausomai nuo to, kokios formos ir kokio dydžio abrazyvas yra naudojamas, gali susidaryti įvairių tipų defektai – plastiniai, dantyti ir mišrūs (žr. 1 pav. (a), (b), (c) [15]). Šie defektai paprastai pasižymi mažesniu mechaniniu atsparumu bei didesne šviesos sugertimi, tad apšvietus juos didelės galios lazerine spinduliuote būtent tose vietose yra sukeliama optinė pažaida.



1 pav. Įbrėžimų ir įskilimų morfologija. (a) – plastinis įbrėžimas, (b) – dantytas įbrėžimas, (c) – mišrūs įbrėžimai [15].

Atliekant paviršiaus analizę, dalį defektų galima pamatyti įprastomis vaizdinimo priemonėmis (mikroskopais), tačiau po paviršiumi paslėpti defektai dažnai yra sunkiai aptinkami, kadangi jie yra paslėpti poliravimo metu susidariusio skaidraus – Beilby – sluoksnio (žr. 2 pav.). Jis susiformuoja dėl šlytinės deformacijos ir cheminių reakcijų tarp apdorojamo paviršiaus ir poliravimo suspensijos [16].



2 pav. Stiklo pagrinduko struktūra po paskutinio poliravimo [34].

#### **1.1.** Interferencinės dangos auginimas: jonapluoštis dulkinimas

Turint poliruotą optinį paviršių, jį paprastai siekiama padengti funkcine optine danga. Šiam tikslui naudojami įvairūs fizikiniai metodai. Šiais laikais yra naudojamos kelios pagrindinės dangų nusodinimo technologijos – elektronų pluošto išgarinimas (EPI), jonų pluošto dulkinimas (angl. ion beam sputtering), magnetroninis dulkinimas (angl. magnetron sputtering), atominio sluoksnio nusodinimas (angl. atom layer deposition) ar sol-gel technologija [18, 19, 20].

Vienas populiariausių būdų dangai nusodinti yra panaudojant elektronų pluošto išgarinimą (angl. electron beam evaporation) [18, 19]. Naudojant šią technologiją, dažnai yra pasitelkiamas pagalbinis jonų pluošto nusodinimas (angl. assisted ion beam deposition) tam, kad būtų sumažinamos dangos įtempio jėgos. Atominio sluoksnio nusodinimas (ASN) yra gana nauja technologija, kuri leidžia sudaryti homogenišką ir mažų nuostolių dangą [17]. Šiuo būdu nusodinant dangą, ji yra auginama pasluoksniui, t.y. nusodinama medžiaga prisijungia prie pagrinduko ir sudaro ploną vienatomį sluoksnį, o medžiagos perviršis yra pašalinamas. ASN leidžia sudaryti gerą dangos homogeniškumą, mažus nuostolius, aukštą PLSS ir tikslią dangos storio kontrolę.

Šiuo metu sparčiai populiarėja jonapluoščio dulkinimo metodika [20], nes ji leidžia gaminti itin tankias dangas, į kurias neprasiskverbia vanduo iš aplinkos. Gaminant tokias dangas naudojamas atskiras jonų šaltinis, kurio pluoštas yra nukreipiamas link taikinio, iš kurio įgreitintais elektronais yra išmušami jonai, kurie yra nukreipiami link dengiamo bandinio paviršiaus (žr. 3 pav.). Jonapluoščio dulkinimo (JPD) technologija pasižymi itin mažiais optiniais nuostoliais [17, 20]. Kadangi jonų pluoštas dažniausiai yra neutralizuojamas jonų sraute įterpiant elektronus, yra išvengiama krūvio problemų su nelaidžiais taikiniais. Tokiu būdu sudarytos dangos demonstruoja tokias savybes, kaip tikslią storio kontrolę, mažą sugertį, aukštą PLSS. Viename paskutinių pažaidos konkursų buvo nustatyta, jog JPD būdu sudarytos dangos parodo žymiai geresnius PLSS rezultatus nei EPI [21].

Jonapluoščiam dulkinimui tinka ne visos medžiagos – ypatingai metalų fluoridai sukelia nemažai sunkumų dėl fluoro atomų dulkinmo – kai dangoje trūksta fluoro, ji tampa optiškai sugerianti. Fluoro

vakansijos iš dalies gali būti užpildytos deguonimi, kuris pašalina sugertį bent jau prie ilgesnių bangos ilgių, tačiau tokiu atveju danga tampa pakeistu lūžio rodikliu ir ji turi mažesnį atsparumą aplinkai.



3 pav. Jonų pluošto dulkinimo principinė schema [20].

#### 1.2. Skaidrinančios dangos ir jų rūšys

Skaidrinančios dangos turėjo milžinišką įtaką optinių sistemų vystymuisi. Kai kuriems taikymams šių dangų užtenka vien atspindžių sumažinimui, kituose pritaikymuose yra itin svarbu net ir padidinti optinio elemento pralaidumą [20]. Naudojant aukšto ir žemo lūžio rodiklio sluoksnius, paviršiuose skaidrinimo sąlyga gali būti pasiekta įvairiais būdais: dangos gali būti daromos tiek vienasluoksnės (vienam bangos ilgiui), tiek daugiasluoksnės (tam tikram bangos ilgių ruožui). Koks dangos tipas bus naudojamas praktikoje, dažniausiai priklauso nuo to, kokiam taikymui yra dengiamas paviršius. Dažniausiai pasirinkimams turi įtakos tokie veiksniai: bangos ilgių ruožas, pagrinduko medžiaga, norimas našumas ir, žinoma, kaina.

#### 1.2.1. Vienasluoksnės skaidrinančios dangos

Pluoštui krentant į bandinį, kuris padengtas mažesnio lūžio rodiklio medžiaga nei pagrindukas, atspindys patirs neigiamą 180° fazės poslinkį, lyginant su kritusios šviesos faze (žr. 4 pav.). Vadinasi, galime turėti neigiamą interferenciją, jei kritusi banga atsispindėtų du kartus (nuo pirmojo ir antrojo dangos paviršiaus), o taip gali įvykti tuomet, kai dangos sluoksnio storis yra lygus KBOS – ketvirčio bangos optiniam storiui  $\lambda/4$  (angl. QWOT – quarter wave optical thickness). Kitaip tariant, destruktyvi

dviejų atspindžių interferencija vyks tuomet, kai šie du pluoštai bus priešingų fazių ir palyginamų amplitudžių, o tai galima pasiekti, kai dangos lūžio rodiklis bus lygus kritimo terpės ir pagrinduko sandaugos šakniai [20]:

$$n_{\rm danga} = \sqrt{n_{\rm pagrindukas} \cdot n_{\rm terpė}} \,. \tag{9}$$

Kuomet yra dengiamas žemo lūžio rodiklio pagrindukas, pavyzdžiui, krono stiklas (n = 1,52), kyla problema, ieškant tinkamo lūžio rodiklio medžiagos. Remdamiesi (9) formule, gauname, jog dangos lūžio rodiklis turėtų būti 1,23. Deja, šiuo metu žemiausią lūžio rodiklį turi magnio fluoridas, kuris yra apie 1,38 ties 500 nm. Visgi, net ir tokiu atveju, turime ~1,3% atspindį kiekvienam pagrinduko paviršiui: pilno skaidrinimo sąlyga nėra tenkinama [20].



4 pav. Vienasluoksnės dangos pjūvis. Čia  $n_0$ ,  $n_1$ ,  $n_2$  –oro, dangos ir stiklo lūžio rodikliai,  $\lambda$  – bangos ilgis,  $R_1$  ir  $R_2$  – atspindžiai nuo pirmo ir antro paviršiaus, T – praėjęs pluoštas [31].

Verta paminėt ir tai, jog vienasluoksnės dangos dažniausiai yra tinkamos tik vienam bangos ilgiui, kur atspindys virtualiai yra lygus nuliui, ir mažam bangos ilgio ruožui, kur atspindys yra itin mažas.

#### 1.2.2. Dvisluoksnės skaidrinančios dangos

Vienasluoksnių dangų privalumas yra paprastume, bet trūkumas yra tas, jog kuriant dangos dizainą yra ribotas valdomų faktorių (medžiagų) pasirinkimas, o lūžio rodikliu be papildomų gudrybių neįmanoma varijuoti. Žymiai daugiau galimybių atveria daugelio dangos sluoksnių struktūros, kur galima varijuoti tų sluoksnių storiais ir pasiekti itin mažą atspindį esant keliems bangos ilgiams (pvz., harmonikoms).

Dviejų sluoksnių dangos atveju yra dengiamas vienas žemo lūžio rodiklio sluoksnis ir kitas aukšto lūžio rodiklio sluoksnis (bet ne aukštesnis nei pagrinduko) [20]. Tokiu būdu, pvz. naudojant magnio fluorido sluoksnį kartu su aukšto lūžio rodiklio sluoksniu (žr. 5 pav.), gaunama dvisluoksnė danga, kuri yra žymiai efektyvesnė (atspindys šiuo atveju gali būt vos 0,02% ar mažesnis) Visgi dvisluoksnės skaidrinančios dangos turi ir trūkumų: jos pasižymi skaidrinančiomis savybėmis siauresniame bangos ilgių ruože nei vienasluoksnės dangos. Norint didesnio bangos ilgių ruožo, reikia pasirinkti aukštesnio lūžio rodiklio pagrinduką ir mažinti aukšto lūžio rodiklio sluoksnio storį [20].

Siekiant įvertinti, kokie turėtų būti sluoksnių lūžio rodikliai, reikia remtis šia formule [20]:

$$\frac{n_1}{n_0} = \frac{n_2}{n_1} = \frac{n_p}{n_2} \tag{10}$$

ir išspręsti *n*<sub>1</sub> bei *n*<sub>2</sub>:

$$n_1^3 = n_{\rm p} n_0^2 \tag{11}$$

$$n_2^3 = n_0 n_{\rm p}^2 \,, \tag{12}$$

kur  $n_0$ ,  $n_1$ ,  $n_2$ ,  $n_p$  atitinkamai yra terpės, pirmo sluoksnio, antro sluoksnio ir pagrinduko lūžio rodikliai.



5 pav. Dvisluoksnės skaidrinančios dangos principinė schema [32].

#### 1.2.3. Daugiasluoksnės skaidrinančios dangos

Daugiasluoksnių skaidrinančių dangų dizainas yra analogiškas dviejų sluoksnių dangoms (žr. 6 pav.), tačiau matematiniai veiksmai reikalauja daugiau darbo. Tarkime, norime trijų sluoksnių dangos. Tokiu atveju turime šią lygybę [20]:

$$\frac{n_1}{n_0} = \frac{n_2}{n_1} = \frac{n_3}{n_2} = \frac{n_p}{n_3},\tag{13}$$

iš kurios gauname:

$$n_1^4 = n_p n_0^3 \tag{14}$$

$$n_2^4 = n_p^2 n_0^2 \tag{15}$$

$$n_3^4 = n_0 n_p^3 . (16)$$

Šioms dangoms iš esmės nėra jokių sluoksnių skaičiaus ar storio ribojimų, išskyrus tai, kad daugiasluoksnės dangos yra kuriamos tokiu būdu, kad kiekvienas sluoksnis būtų lygus KBOS, o aukšto ir žemo lūžio rodiklio sluoksnių skaičius būtų vienodas. Taip pat paminėtina ir tai, kad daugiasluoksnės skaidrinančios dangos gali būti pritaikomos ne tik vienam bangos ilgiui, bet ir tam tikram bangos ilgių ruožui arba atskiroms spektrinėms sritims.



6 pav. Daugiasluoksnės skaidrinančios dangos principinė schema, n - lūžio rodiklis [33]. Žalia spalva nurodytas aukšto lūžio rodiklio sluoksnis, gelsva – žemo.

#### 1.3. Lazerine spinduliuote inicijuojama optinė pažaida

Visais atvejais pažaidos slenkstis yra susijęs su šviesos sugertimi. Kai impulsai ilgi – dominuoja tiesioginė sugertis (ji proporcinga impulso energijai), kai impulsai trumpi – šviesos santykinai sugeriama daugiau, nes pradeda reikštis ir daugiafotonė sugertis, kurios efektyvumas priklauso nuo smailinių šviesos parametrų ir medžiagos draustinės juostos tarpo (fotonoų energijos). Pavyzdžiui, lazerio impulso trukmės intervalams siekiant 10<sup>-8</sup> s – nuolatinės veikos (NV) trukmes (angl. CW – continuous wave) – dominuoja įprasta (tiesinė) sugertis. Tokiu atveju pažaidos pradžia (lydymasis, katastrofinis įtempis) yra siejama su lydymusi ir/arba medžiagos išgarinimu [14] arba lokaliu termoelastiniu plėtimusi bei aižėjimu (angl. radial cracking). Šie procesai priklauso tiek nuo erdvinių, tiek nuo laikinių lazerio parametrų, taigi gali skirtis pažaidos priežastys:

 pirmojo režimo (tiesinės sugerties) atveju smailinė temperatūra yra siejama su pastovios būsenos procesu ir būdinga nuo 10<sup>-6</sup> s iki NV trukmių impulsams, tokiu atveju slenkstis tiesiogiai priklauso nuo sudaromos temperatūros bandinio paviršiuje.

• antrasis režimas (termoelastinis plėtimasis) vyksta tuomet, kai smailinė temperatūra yra valdoma reliatyviu sufokusuotos dėmės dydžiu, elemento diametro ir šiluminės difuzijos bandinio testavimo metu. Šis režimas labiau būdingas spinduliuotei, kai impulso trukmė mažesnė nei 10<sup>-6</sup> s [14]. Tokiu atveju maksimali temperatūra bus pluošto centre ant eksponuojamo bandinio paviršiaus.

Kai medžiagą veikiame pasikartojančiais impulsais, pažaidos reiškiniai tampa sudėtingesni. Kuomet pavienis lazerio impulsas paveikia bandinį, sugertoji šviesos energijos dalis paverčiama į šiluminę energiją ir medžiaga lokaliai įkaista. Jei medžiagai būdingas vėsimo laikas yra daug ilgesnis nei impulso pasikartojimo dažnis, eksponuojama bandinio dalis nespės atvėsti iki tol, kol ji bus apšviesta sekančiu impulsu, ir šiluma toje srityje bus toliau kaupiama (žr. 7 pav.). Visgi didelio pralaidumo medžiagoms (safyras, lydytas kvarcas, deimantas) šiluminės pažaidos slenkstis yra toks aukštas, jog pirmiau (prie žemesnio įtėkio verčių) pradeda veikti kiti pažaidos mechanizmai nei ryškūs šiluminiai efektai. Į šiuos mechanizmus galima įtraukti [6, 14]:

- 10<sup>-8</sup> s 10<sup>-10</sup> s impulso trukmėms dielektrinį "pramušimą";
- 10<sup>-10</sup> s 10<sup>-13</sup> s impulso trukmėms griūtinę jonizaciją;
- trumpesnėms nei 10<sup>-13</sup> s impulso trukmėms daugiafotonę sugertį.

Dielektrikuose netiesiškai žadinant laisvųjų elektronų plazmą, yra sukuriama ir tokia pati vakansijų koncentracija. Elektronai gali būti pagaunami skylių kuriamo elektrinio lauko, tokiu būdu sukuriant eksitonus. Šios būsenos sudaro sąlygas papildomiems leistiniems elektroniniams lygmenims draustinėje juostoje, kurie taip pat pasižymi papildomomis sugerties juostomis buvusioje skaidrumo srityje. Medžiagą eksponuojant pasikartojančiais lazerio impulsais, eksitoninės būsenos ir iš jų atsirandantys atominiai gardelės defektai gali kauptis medžiagoje. Eksitonais prisotintos vietos yra mechaniškai silpnesnės nei gryna (lazeriu nepaveikta) medžiagos dalis, taigi tokios vietos po pakankamai ilgo eksponavimo gali virsti katastrofiškai pažeistomis [14].

Nanosekundinių impulsų atveju yra pastebėta, kad poliruotiems paviršiams ir dangoms stebimas pažaidos slenkstis gerokai žemesnis nei medžiagos tūryje, tad būtent paviršiniai ir popaviršiniai defektai yra lazerinės pažaidos pirmtakai [22]. Šie įskilimai ir įbrėžimai dėl daugybės lokalių atspindžių, difrakcijos ir interferencijos gali koncentruoti elektrinį lauką, padidinant jo amplitudę iki 100 kartų, priklausomai nuo defektams būdingų geometrinių parametrų bei dielektrinės konstantos vertės [23]. Taip pat žinoma, kad tuose defektuose lokali šviesos sugertis reiškiasi gerokai labiau nei švarioje medžiagoje.



7 pav. Lazerio pluošto intensyvumas ir apšviestos medžiagos paviršiaus temperatūra, laikui bėgant. (a) – vienas impulsas, (b) – aukšto pasikartojimo dažnio impulsas [14].

Kadangi lazerio spinduliuotės kuriamas šviesos laukas yra lokaliai pastiprinamas defekto aplinkoje, ten prasideda netiesiniai šviesos ir medžiagos saveikos reiškiniai – laisvųjų elektronų generacija lokalios interferencijos vietose. Dėl daugiafotonės ir griūtinės jonizacijos sparčiai keičiasi medžiagos optinės savybės – impulso poveikio metu aplink defektą esanti medžiaga taip pat yra jonizuojama. Sužadinus medžiagą, pasikeičia jos temperatūra, o tai lemia didelio slėgio zonos susidarymą. Viršijus šį slenkstinį intensyvumą, medžiaga yra negrįžtamai suardoma, suformuojant kraterį. 8a pav. pavaizduotas atvejis, kai defektas dėl sugerties ikaista ir pradeda skleisti antrinę spinduliuotę: pagal juodo kūno spinduliavimo dėsnius kuria naujus UV fotonus, tokiu būdu jonizuodamas aplinkui esančią skaidrią medžiagą. Ši jonizuota zona plečiasi impulso metu, sąlygodama vis didesnę energijos pernašą iš optinio impulso į medžiagą: fotonus aplinkinė medžiaga labai gerai sugeria ir palaipsniui virsta į plazmos kamuolį. 8b pav. pavaizduotas atvejis, kai termiškai jonizuotas defektas tampa elektronų donoru aplinkai – jis įkaitęs taip pat generuoja laisvuosius krūvininkus, versdamas aplinkinę medžiagą į plazma, t.y. ją paverčia laidžia bei efektyviai sugeriančia šviesą. 8c pav. pavaizduotas atvejis, kuomet dėl šiluminės difuzijos įkaitęs defektas pakelia aplinkui esančios medžiagos temperatūrą. Dėl didelės temperatūros aplinkui esančios medžiagos draustinės juostos tarpas siaurėja ir galiausiai kolapsuoja, ši įkaitusi aplinka žymiai geriau sugeria lazerinę spinduliuotę ir viršijus energijos įtėkio slenkstį, yra sukeliamas lazerinės spinduliuotės pažeidimas. Visi trys aptarti mechanizmai gali veikti vienu metu.



8 pav. Schematiniai sugeriančio defekto pažaidos mechanizmai [14, 19]

## 1.4. Pažaidos lazerio spinduliuotei slenksčio priklausomybė nuo impulso trukmės

#### 1.4.1. Nedengtų pagrindukų PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės

Visuotinai priimta manyti [2, 3, 5, 6], kad jei impulso trukmė yra ilgesnė nei kelios dešimtys pikosekundžių, dielektrikų paviršiaus (tariant, kad paviršiuje nėra jokių defektų) pažaidą nulemia kritusios spinduliuotės energijos panaudojimas laidumo juostos elektronų generavimui ir kaitinimui, bei optinės energijos pernaša į gardelę. Pažaida šiuo atveju vyksta dėl šilumos kaupimo: pradeda vykti tokie procesai kaip lydymasis, virimas ir dielektrinės medžiagos trūkinėjimas. Kai kurių studijų metu [2, 3, 5, 6, 20] stebimas PLSS yra proporcingas impulso trukmei  $\tau^x$ , kur  $x \approx 0,5$ , kai impulso trukmė  $\tau$  yra maždaug tarp 10 ps ir 100 ns. Lazerio impulso trukmei nesiekiant ~20 ps, lazerinė pažaida įvyksta dėl šiluminės difuzijos ir paviršuje esančių defektų, kurie yra likę dėl netobulo paviršiaus apdorojimo ir paruošimo proceso [3, 5, 6, 8]. Kai kurios studijos teigia, kad " $x \approx 0,5$ " dėsnis nėra tikslus ir gali priklausyti nuo defekto matmenų.

Trumpesniems impulsams ( $\tau < 10$  ps) šis dėsnis nukrypsta, o laipsnio rodiklis priklauso  $x \in [0,1; 0,3]$ . Kai kurie eksperimentai rodo, kad ši vertė yra arčiau 0,3 [8, 20]. B. C. Stuart teigimu [3, 6], didelį laidumo juostos tarpą turinčiose medžiagose (lydytas kvarcas, CaF<sub>2</sub>, daugiasluoksniai dielektrikai) yra stebimas pažaidos mechanizmo ir pažeidimų morfologijos pokytis, kuomet impulso trukmė yra trumpesnė nei 20 ps. Trumpų impulsų atveju yra stebimas mažėjantis slenkstis, siejamas su tolydžiu perėjimu nuo prie ilgų impulsų dominuojančio šiluminio pažaidos režimo į abliacinį režimą, kurį daugiausiai lemia daugiafotonė sugertis ir plazmos formavimasis [3, 5, 6, 8].

9 pav. yra pavaizduota lydyto kvarco PLSS priklausomybė nuo lazerio impulso trukmės. Čia matome, kad ilgų impulsų režime ( $\tau > 20$  ps) PLSS galima tiksliai aproksimuoti  $\tau^{0.5}$  dėsniu, kuris, kaip jau buvo minėta, būdingas elektronų kinetinės energijos perdavimui į gardelę ir jos difuzijai. Šiuo atveju pažeidimų kilmė yra paviršiaus lydymasis. Trumpesniems nei 20 ps impulsams, energijos įtėkis jau nukrypsta nuo minėtojo dėsnio ir pažaidos morfologija taip pat pakinta – pažeidimai yra apriboti mažame plote ties pluošto gausinio pasiskirstymo viršūne [5, 6]. Ši pažaida vyksta tik tuomet, kai apšviestame plote yra pakankamas intensyvumas jonizacijai prasidėti. Nesant pakankamai trukmei, jog energija sužadintų gardelę, nebus matoma jokia aplinkinė pažaida. Būtent dėl to pažeistas plotas gali būti keliomis eilėmis mažesnis trumpiems impulsams nei ilgiems. Lydyto kvarco atveju [6], pažeistas plotas, apšviestas su 0,5 mm skersmens 500 fs trukmės impulsu, buvo 2 kartus mažesnis nei su 0,3 mm skersmens 900 ps trukmės impulsu.

Kalcio fluorido atveju [6], PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės seka panašiu dėsniu kaip ir lydyto kvarco ilgų impulsų atveju, o pažaidos morfologija taip pat yra nulemta šiluminių reiškinių. PLSS priklausomybė trumpiems impulsams šiuo atveju taip pat nukrypsta nuo  $\tau^{0,5}$ , tačiau pažaida aiškiai formuojasi ant įbrėžimų, paliktų po paviršiaus poliravimo.



9 pav. PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės [6].

### 1.4.2. Dangų PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės Dielektrikai

Kadangi lazeriai turi platų pritaikymą įvairiose srityse ir dangos dažniausiai yra silpniausia optinės sistemos dalis, dangų pažaidos mechanizmai yra patraukli mokslinių tyrimų sritis. Viena populiariausių medžiagų, naudojamų optinių elementų dengimui, yra hafnio oksidas (HfO<sub>2</sub>). Ši medžiaga yra viena svarbiausių aukšto lūžio rodiklio medžiagų, naudojamų optinių daugiasluoksnių dangų

gamybai UV bei IR taikymams. Be to, ši medžiaga yra žinoma savo gana dideliu atsparumu lazerinei spinduliuotei [21 - 23]. Kuomet hafnio oksidas yra kombinuojamas su žemo lūžio rodiklio medžiaga, būtent jis yra ribojantis faktorius daugiasluoksnėje dangoje, kur būtent atsparumas lazerio spinduliuotei yra ypač svarbus [5, 8].

Šiuo metu vyrauja gana nemažas susidomėjimas, siekiant suprasti šios medžiagos PLSS priklausomybę nuo dangos auginimo proceso. Pavyzdžiui, nanosekundiniame režime, kur pažaida smarkiai priklauso nuo paviršinių defektų, PLSS priklauso būtent nuo dangos auginimo proceso. Femtosekundiniame režime ši priklausomybė taip pat vyrauja, tačiau labai silpnai, kadangi čia labiau būdinga pažaida dėl medžiagos savybių [5, 8].

Mechanizmai, lemiantys pažaidą ties femto-, piko- ir nanosekundinėmis trukmėmis dielektrinėse dangose yra ypač sudėtingi ir vis dar tyrinėjami. Sub-pikosekundiniame režime pažaidą daugiausiai lemia medžiagos savybės, priešingai nei nanosekundiniame režime, kur lazerinę pažaidą lemia lokalūs netobulumai bei defektai. Ilgų impulsų atveju (> 24 ps) vėlgi vyrauja  $\tau^{0.5}$  PLSS priklausomybė, tačiau trumpesniems impulsams (< 24 ps) šis dėsnis nukrypsta [5, 8].

M. Mero ir bendraautoriai ištyrė dielektrinių dangų PLSS priklausomybę nuo impulso trukmės femtosekundiniame režime [8]. Jie patvirtino, kad femtosekundiame režime aukščiausios kokybės dangų lazerinė pažaida įvyksta dėl būdingų medžiagos savybių, o ne dėl defektų ir netobulumų paviršiuje. 10 pav. yra pavaizduotos kiekvienos tirtos dangos slenksčio priklausomybė nuo impulso trukmės. Pritaikius logaritminę skalę, buvo nustatyta, kad kiekvienai dangai galima taikyti pažaidos slenksčio priklausomybę nuo impulso trukmės femtosekundiame režime kaip *PLSS* ~  $\tau^x$ , kur  $x \approx 0.3$ , nepriklausomai nuo draustinės juostos tarpo.

Taigi kaip matome, yra atlikta nemažai tyrimų, siekiant išsiaiškinti, kaip priklauso pagrindukų (dengtų ir nedengtų) pažaidos lazerio spinduliuotei slenkstis nuo impulso trukmės, tačiau šiuos rezultatus tarpusavyje yra sudėtinga lyginti, ypač kai kalbama apie ultratrumpų impulsų režimą. 1 lentelėje yra sudarytas autorių, kurie pateikė PLSS priklausomybės nuo impulso trukmės (angl. LIDT scaling law) vertes, apibendrinimas. Kaip matome, atlikti tyrimai yra gana skirtingi – naudoti skirtingi bangos ilgiai, matavimo protokolai, pluošto diametrai [2, 3, 5–8, 20]. Visgi galima pastebėti, jog net ir atliekant eksperimentus su skirtingais parametrais, didesnėms nei ~10 ps trukmėms galioja gana vienoda  $x \approx 0,5$  dėsnio vertė.



10 pav. Pažaidos slenksčio priklausomybė nuo impulso trukmės skirtingoms dielektrinėms dangoms [8].

Verta paminėti, kad dauguma autorių nepateikė tikslios PLSS priklausomybės nuo impulso trukmės vertės ultratrumpų impulsų režime, tačiau gana pasikartojančiai yra stebimas šio dėsnio nukrypimas nuo standartinės  $\tau^{0,5}$  vertės. [8]. Verta paminėti tai, jog D. Du su bendraautoriais pateikė kontraversišką rezultatą – jie atlikę eksperimentus gavo, jog ilgoms impulsų trukmėms galioja standartinė vertė, bet pereinant prie ultratrumpų impulsų, PLSS pradeda didėti [2]. Visgi šio rezultato niekas nesugebėjo pakartoti.

Autorius	Bangos ilgis, nm	Pagrindukas	Danga	Pluošto diametras, μm	Protokolas	x, kur <i>PLSS~τ</i> <sup>x</sup> (τ>~10 ps)	x, kur $PLSS \sim \tau^{x}$ $(\tau < \sim 10 \text{ ps})$
D. Du (1994)	780	FS	Nėra	26	1 į 1	0,5	-1
M.H. Niemz (1995)	Skaitinis modelis	-	-	-	-	~0,5	<0,5
B.C. Stuart (1995)	1053 526	FS, CaF <sub>2</sub>	Nėra	300 - 1000	S į 1	0,5	Nepateikė
B.C. Stuart (1996)	1053 526	FS, CaF <sub>2</sub>	Au HfO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub> Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub> /SiO <sub>2</sub>	300 - 1000	S(=600) į 1	0,5	Nepateikė
J. Krüger (2003)	800	Schott BG18, BG36 filtrai	Nėra	30	Nuo 1 į 1 iki S(=10000) į 1	0,5	Nepateikė
M. Mero (2005)	800	FS	$\begin{array}{c} TiO_2, SiO_2,\\ Ta_2O_5,\\ HfO_2,\\ Al_2O_3 \end{array}$	20	1 į 1	0,5	~0,3
L. Gallais (2011)	1030 1053	FS	HfO <sub>2</sub> /SiO <sub>2</sub>	30 - 60	1 į 1	0,5	Nepateikė

1 Lentelė. Mokslinėse publikacijose skelbiamos PLSS priklausomybės nuo impulso trukmės.

#### 1.4.3. Netiesinių kristalų PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės

Netiesiniai kristalai, tokie kaip LBO, BBO, BiBO, KDP, KTP, KTA, RTP ir daugelis kitų, yra plačiai naudojami lazerinėse optinėse sistemose, pavyzdžiui, norint keisti lazerio spinduliuotės dažnį,

parametriniuose šviesos generatoriuose, harmonikų generatoriuose ir t.t. Vienas pagrindinių bruožų, pagal kurį yra pasirenkamas tam tikras kristalas į optinę sistemą, yra jo efektyvumas, ilgaamžiškumas ir optinė kokybė. Į šią sąvoką įtraukti galima kuo mažesnius netiesinius nuostolius, aukštą optinį slenkstinį atsparumą lazerio spinduliuotei ir panašius parametrus [23]. Tačiau neretai nutinka taip, jog tenka rinktis ne patį idealiausią kristalą optinei sistemai dėl jo žemo optinio slenkstinio atsparumo. Vieni populiariausių ir plačiausiai naudojamų netiesinių kristalų yra kalio divandenilio fosfato (KDP) ir jo deuteruotos formos (DKDP) kristalai [9, 10, 12]. Šie kristalai yra patogūs dėl to, jog jie gali būti auginami iki didelių matmenų (~0,5 m), išlaikydami savo optines savybes. Tai ypač naudinga ypatingai didelės galios lazerinėse sistemose, kur spinduliuotės pluoštai gali siekti dešimtis centimetrų [26]. Tačiau šie kristalai turi vieną trūkumą – jie pasižymi gana žemu PLSS. Šių netiesinių kristalų pažaida yra sukeliama dėl lokalaus aukšto temeperatūros pakilimo gamybos defektų aplinkoje: temperatūra gali siekti net 10000 K [9, 10, 12]. Šis staigus temperatūros kilimas vyksta dėl to, jog plazmos laisvieji elektronai pradeda sugerti fotonus, dėl kurių susidaro šoko banga, kuri galutinai priveda kristalą prie stebimos pažaidos.

#### Šiluminis modelis ir sugerties efektyvumas

Kadangi pažaida lazerio spinduliuotei susideda iš atsitiktinai išsidėsčiusių taškų (defektų), yra svarstomas plazmos sferų rinkinio kaitinimas, kurių spindulys kinta nuo kelių iki kelių šimtų nanometrų. Pagrindinės šio modelio prielaidos yra [9, 12]:

• egzistuoja bent viena kiekvieno atskiro dydžio sfera;

• tariama, jog ši sfera turi gerą šiluminį laidumą sugeriamame sferos paviršiuje; temperatūra sferoje pasiskirsto vienalytiškai;

• sugerties efektyvumas nepriklauso nuo laiko, t.y. plazma pasiekia savo statinę būseną per žymiai greitesnį laiką nei lazerio impulso trukmė;

• kuomet po kiekvieno impulso yra pasiekiama kritinė temperatūra  $T_{c_i}$  įvyksta negrįžtama pažaida;

• fiziniai parametrai nepriklauso nuo temperatūros.

Šiluminis kiekvienos sferos modelis yra pagrįstas įprasta difuzijos lygtimi, kuri gali būti užrašoma per sferinę simetriją [9, 12]:

$$\frac{1}{D}\frac{\partial T}{\partial t} = \frac{1}{r^2}\frac{\partial}{\partial r}\left(r^2\frac{\partial T}{\partial r}\right),\tag{17}$$

17

kur *T* yra temperatūra, *r* yra radialinė koordinatė, *D* yra tūrinė difuzija, apibrėžta kaip  $D = \frac{\lambda_t}{\rho c}$ , kur  $\lambda_t$ ,  $\rho$  ir *C* atitinkamai yra šiluminis laidumas, tankis ir specifinė KDP tūrio šiluminė talpa. Norint išspręsti (17) lygtį, reikia įsivesti ribines sąlygas:

• kai t = 0,  $T = T_0 = \text{konst.} \forall r$ , kur  $T_0$  yra pradinė aplinkos temeperatūra, lygi 300 K;

- *T* artėja link *T*<sub>0</sub>, kai *r* artėja link begalybės;
- entalpijos tvermės dėsnis sugėriklio ir tūrio sąsajoje yra:

$$\frac{4\pi}{3}a^{3}\rho_{p}C_{p}\frac{\partial T}{\partial t}\bigg]_{r=a} = I_{0}Q_{abs}(m,y)\pi a^{2} + 4\pi a^{2}\lambda_{t}\frac{\partial T}{\partial r}\bigg]_{r=a}$$
(18)

kur *a*,  $\rho_p$  ir  $C_p$  atitinkamai yra sugėriklio spindulys, tankis ir specifinė šiluminė talpa.  $Q_{abs}(m, y)$  yra apibrėžiamas kaip sugerties efektyvumas, įvertinamas pagal Mie teoriją [9, 12]; *m* yra sugėriklio kompleksinis lūžio rodiklis, proporcingas tūriui, o y yra dydžio parametras. Galiausiai,  $I_0$  yra pastovus lazerio intensyvumas.

Išsprendus (17) lygtį, remiantis kraštinėmis sąlygomis, gauname sprendinį, ties r = a:

$$T(a,\tau) = T_0 + \frac{Q_{\rm abs} I_0 \sqrt{4D\tau}}{4\lambda_t} \xi(U,A), \qquad (19)$$

su

$$\xi(U,A) = \frac{UA}{1 - X^2} \left( \phi\left(\frac{X}{A}\right) - X^2 \phi\left(\frac{1}{XA}\right) \right), \tag{20}$$

kur  $U = \sqrt{\kappa/D}$ ,  $X = U + \sqrt{U^2 - 1}$  ir  $A = a/\sqrt{4\kappa\tau}$  yra bedimensiniai dydžiai. Čia  $\kappa = \frac{3\lambda_t}{4c_p\rho_p}$ . Funkcija  $\phi$  yra apibrėžta kaip  $\phi = 1 - \exp(z^2) \operatorname{erfc}(z)$ , kur erfc yra papildoma paklaidos funkcija. Dabar galima įvesti energijos įtėkį kaip  $F = I_0 \tau$ . Atvaizdavus F nuo a funkciją, būtų stebimas minimumas, ir kadangi buvo teigta, jog turime turėti bent vieną dydžio a sugėriklį, reikalingas kritinis energijos įtėkis, norint pasiekti temperatūrą  $T_c$ , gali būti užrašytas kaip:

$$F_c = \frac{2\lambda_t (T_c - T_0)}{Q_{abs}(a_c)\sqrt{D}} \frac{\sqrt{\tau}}{\xi(U, A_c)}$$
(21)

kur  $a_c$  yra spindulys, atitinkantis energijos įtėkio minimumą. Be to, tokiu atveju, kuomet  $Q_{abs}$  nepriklauso nuo a, iš (21) lygties galima matyti, jog kritinis energijos įtėkis pasiekia minimumą ties kritiniu spinduliu  $a_c$ :

$$a_c(\tau) = 2\sqrt{\kappa\tau}B(U),\tag{22}$$

18

kur *B* priklauso nuo *U*. Iš čia galima parodyti, jog  $B(\infty) = 1$  ir  $B(0) \simeq 0,89$ . Kitur ši funkcija turi būti skaitiškai įvertinta. Jeigu  $Q_{abs}$  nepriklauso nuo *a*, tuomet PLSS priklausomybės nuo impulso trukmės eksponentė x = 0,5 (turint omenyje, jog  $a \sim \tau^x$  [24]).

#### Plazmai būdingų optinių konstantų nustatymas pagal Drudės modelį

Kadangi lazerio pluošto sugertis vyksta dėl plazmos būsenos, kurioje laisvieji elektronai osciliuoja lazerio elektriniame lauke ir jame vyksta tų elektronų susidūrimai su jonais, pagal Drudės modelį gali būti išvestos lūžio rodiklių vertės. Šio modelio ribose elektronų debesėlio atsakas išoriniam lazerio elektriniam laukui yra apibrėžiamas pagal kompleksinę dielektrinę funkciją [12]:

$$\epsilon = 1 - \frac{\omega^p}{\omega \left(\omega - \frac{i}{\tau_{coll}}\right)} = \epsilon_1 - i\epsilon_2.$$
<sup>(23)</sup>

Šioje lygtyje  $\omega_p$  yra elektronų plazmos dažnis, apibrėžiamas kaip  $\omega_p = (n_e e^2 / \epsilon_0 m_*)^{0.5}$ , kur  $n_e$  yra laisvųjų elektronų tankis ir  $m_*$  yra elektrono efektyvioji masė,  $\tau_{coll}$  yra susidūrimo laikas, t.y. laikas, praėjęs tarp dviejų susidūrimų su jonais. Dielektrinė funkcija yra susijusi su kompleksiniu optiniu lūžio rodikliu m = n - ik pagal sąryšį  $m^2 = \epsilon$ . Iš to seka, kad  $\epsilon_1 = n^2 - k^2$  ir  $\epsilon_2 = 2nk$ . Tokiu atveju, kai m ir  $\epsilon$  yra žinomi, plazmos parametrai  $n_e$  ir  $\tau_{coll}$  gali būti sužinomi invertuojant (23) lygtį. Lazerio spinduliuotės sudarytas elektronų tankis negali viršyti kritinės  $n_e$  vertės, virš kurios plazma tampa nepermatoma. Šis kritinis tankis yra apibrėžiamas, sakant, kad  $\omega_p$  yra  $\omega$ , o iš to seka, kad  $n_c = m_* \epsilon_0 \omega^2 / e^2$ . Tariant, kad  $n_e$  yra  $n_c$ ,  $(\epsilon_1, \epsilon_2)$  poros privalo tenkinti  $(\epsilon_1 - \frac{1}{2})^2 + \epsilon_2^2 = (\frac{1}{2})^2$  lygtį, o tai yra ne kas kita kaip apskritimo lygtis, kurios centras yra (0.5; 0) su 0.5 spinduliu. Kiekvienas taškas šio apskritimo viduje tenkina sąlygą  $n_e \le n_c$ .

11a pav. yra pavaizduota k(n) funkcija. Sąlyga  $n_e \le n_c$  yra tenkinama tik tuomet, kai k vertės yra žemiau kreivės. Analitiniai skaičiavimai rodo, kad k negali viršyti  $k_c = \sqrt{2/4} \approx 0.35$ . Atitinkama n vertė yra  $\sqrt{\frac{3}{8}} \approx 0.61$ . Su sąlyga, kad  $\omega_p = \omega$ , buvo paskaičiuota n priklausomybė nuo susidūrimo laiko  $\tau_{coll}$  (žr. 11b pav.). Tipinėms n vertėms tarp 0,2 ir 0,5, ties kuriomis medžiaga rodo metališkas savybes,  $\tau_{coll}$  eilė yra artima femtosekundiniam režimui. Didesnėms n vertėms nei 0,8  $\tau_{coll}$  artėja iki kelių atosekundžių ir nebeatitinka modelio ribų elgesio.

A. Dyan ir kt. [12] eksperimentiškai nustatė, jog, KDP ir DKDP kristalų atveju, PLSS priklausomybės nuo impulso trukmės yra laipsninė, kur laipsnis x daugiausiai priklauso nuo k:  $x = 0.35 \pm 0.05$ , kai impulso trukmė buvo tarp 1 ir 10 ns. Šią vertę eksperimentiškai taip pat gavo G. Duchateau ir kt. [9, 10]. Anot A. Dyan, kuo ilgesnis lazerio impulsas, tuo didesnė x vertė bus, pasiekiant ribą ties x = 0,5. Jie taip pat nustatė, jog kritinis plazmos tankis turi būt pasiekiamas per žymiai trumpesnį laiką nei impulso trukmė tam, kad būtų stebima optinė pažaida lazerinei spinduliuotei.



11 pav. a – (*n*, *k*) porų vertės, prie kurių  $\omega_p = \omega$  pagal Drudės modelį. Tik plotas po kreive turi fizikinę prasmę. b – susidūrimo laikas  $\tau_{coll}$  kaip funkcija nuo *n*, kai  $\omega_p = \omega$  [12].

#### Pažaidos morfologija

Vienas iš tiksliausių būdų nustatyti lazerinės pažaidos slenkstį yra vaizdinė paviršaus analizė. Šiuo būdu tarpusavyje yra lyginamos eksponuotos bandinio paviršiaus nuotraukos prieš ir po matavimo, kurios yra užfiksuotos (dažniausiai) mikroskopu ir pagal sudarytą eksponavimo matricą yra surenkamos pažeistų vietų nuotraukos. Atrinkus pažeistų vietų nuotraukas, galima pasižiūrėti, kaip atrodo optiniai pažeidimai – kokios formos, kokio dydžio, kaip atrodo paveikta zona aplink pažeidimą ir t.t. Tokiu būdu galima sudaryti pažaidos morfologiją – tipinius tam tikrai impulso trukmei būdingus pažeidimus. Šie pažeidimai gali būti suskirstyti į skirtingas kategorijas (spalvinis, iniciacija, katastrofinis ir pan.) ir šis išskirstymas turės įtakos, ties kuria riba bus nusakomas optinio elemento PLSS. Dažniausiai optinio elemento PLSS yra nusakomas pagal žemiausio energijos įtėkio katastrofinį pažeidimą, apibrėžtą pagal tarptautinį ISO standartą [1], kadangi įvykus katastrofinei pažaidai, elementas tampa nebenaudojamas. Turint skirtingų impulso trukmių pažaidos morfologijas, galima susidaryti nuomonę, kokie procesai vyko pažaidos metu – pavyzdžiui, ar pažaida įvyko dėl paviršiaus lydymosi, ar dėl sugeriančių defektų, kas lėmė šiuos procesus, kaip atrodo pažaida po vieno impulso ar po kelių tūkstančių impulsų ir t.t.

Ištyrus HfO<sub>2</sub> dangos PLSS priklausomybę nuo skirtingų impulso trukmių (45 fs  $< \tau < 12$  ns), L. Gallais ir kt. teigimu [5], pažaida buvo deterministinė, kuomet bandiniai buvo eksponuojami 45 fs – 24 ps trukmių impulsais. Tai leidžia manyti, jog pažaida vyko arba dėl medžiagos savybių, arba dėl itin didelio defektų tankio. Ties 45 fs ir 670 fs trukmėmis buvo pastebėta, jog ties mažais energijos įtėkiais danga tarsi pakildavo nuo paviršiaus (vyko abliacija), o eksponuojant dideliais energijos įtėkiais

ji visiškai atsiskirdavo (žr. 12 pav.). Tokie patys procesai buvo stebimi ir ties 1,2 ps trukme. Eksponuojant bandinius su 24 ps trukme, pažaidos morfologija visgi pakito: vyravo sub–mikrometriniai krateriai ir dangos atsiskyrimas nebuvo stebimas. Tai indikuoja kitokį pažaidos mechanizmą ties šia impulso trukme. Nanosekundiame režime pažaidos morfologija atskleidžia mikrometrų eilės dydžio kraterius.

H. Liu ir kt. ištyrė vienasluoksnių JPD SiO<sub>2</sub> (135 nm) ir ASN Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> (178 nm) bei šių medžiagų kombinacijos skaidrinančių dangų PLSS [17]. Savo tyrime jie teigia ( $\lambda = 532$  nm,  $\tau = 10$  ns, f = 100 Hz), kad vienasluoksnė JPD sudaryta danga turi žymiai geresnį (~35 J/cm<sup>2</sup>) PLSS nei su ASN (~15 J/cm<sup>2</sup>). Taip pat mokslininkai pastebėjo, kad skaidrinančios dangos turi dar žemesnį PLSS – apie 10 J/cm<sup>2</sup>. Palyginę šiuos rezultatus, jie teigė, kad toks slenksčio nukritimas yra sąlygojamas dangoje esančių defektų, kurie buvo sudaryti nusodinant dangą. 13 pav. pavaizduota skaidrinančios dangos pažaidos morfologija. Kaip matome, pažeidimai yra pasiskirstę paviršiuje padrikai, taip pat stebime dangos atsiskyrimą. Tačiau būtent tai indikuoja, jog pažaida įvyksta aplink defektus, esančius dangoje [25, 26].



12 pav. Pažaidos morfologija (HfO<sub>2</sub> dangai) prie skirtingos impulso trukmės su didėjančiu energijos įtėkiu (iš kairės į dešinę) [5].

H. Liu ir kt. taip pat pastebėjo, kad eksponuojant vienasluoksnę SiO<sub>2</sub> dangą su didėjančiu impulsų skaičiumi, yra stebimas ryškus nuovargio efektas (žr. 1.4.4 skyrelį), kuris nėra toks išraiškingas ant Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> ir skaidrinančių dangų (žr. 14 pav.).



13  $J/cm^2$ , 2 impulsai 22  $J/cm^2$ , 2 impulsai 27  $J/cm^2$ , 1 impulsas

13 pav. Skaidrinančia danga padengto elemento pažaidos morfologija [17].

Mokslininkai pastebėjo, jog eksponuojant skaidrų paviršių su daugiau nei 1000 impulsų femtosekundiniame režime, pradeda skirtis pažaidos morfologija: išsiskiria du tipai – katastrofinis pažeidimas ir spalvinis pokytis (moda) [23, 27 - 29]. Katastrofinė pažaida buvo apibrėžta kaip paviršiuje nuabliuotas taškas, kurio diametras yra panašus į pluošto arba didesnis, priklausomai nuo impulsų skaičiaus ir smailinio įtėkio. Spalvinis pažeidimas yra nekatastrofinis, paviršiuje stebimas tik spalvos pokytis. Šis pažaidos tipas nėra plačiai ištyrinėtas ir jo priežasstys nėra iki galo žinomos, tačiau yra manoma, kad jis pradeda formuotis dėl dangoje esančių, vadinamųjų, spalvinių centrų, kurie sukelia medžiagos lūžio rodiklio pokytį [23, 27 - 29]. Bet koks optinio kelio pokytis sukelia ne tik spalvos pokytį, stebimą interferenciniu Nomarski mikroskopu, bet kartu tai gali įvykti ir dėl skirtingų interferencijos sąlygų. Šio mechanizmo tikimybę palaiko ir tas faktas, jog pažaida yra deterministinė ir forma yra artima pluošto profiliui. Stebimos spalvos sotis taip pat smarkiai priklauso nuo taškui gauto energijos įtėkio ir impulsų skaičiaus.

#### 1.4.4. Nuovargio efektas



14 pav. Nuovargio efektas ant skirtingų dangų [17], SD - skaidrinanti danga.

Mokslininkams ir lazerių gamintojams ypatingai įdomus nuovargio (dar vadinamas akumuliaciniu arba inkubaciniu) efektas kai medžiaga dėl pasikartojančių impulsų pažeidžiama su subslenkstinėmis energijomis skaidriose terpėse [7, 11, 18]. Visų pirma, tai kelia didelį susidomėjimą praktiniu aspektu, kadangi daugumos optinių elementų veikimas yra apibūdinamas daugybės subslenkstinių energijų impulsų praėjimu pro medžiagą. Visų antra, pažaidos lazerio spinduliuotei teorijos sunkiai apibūdina visus itin grynų optinių stiklų ir kristalų lazerinės pažaidos eksperimentinius duomenis. Trečia: vyrauja didelis nuomonių išsiskyrimas tarp skirtingų mokslinių publikacijų, apibūdinančių pagrindinius optinės pažaidos mechanizmus; nesutariama dėl vieno bendro senėjimo mechanizmo.

Yra neabejojama, jog nuovargio efektas yra viena iš svarbiausių pažaidos lazerio spinduliuotei priežasčių. Jis pasireiškia po tam tikro impulsų skaičiaus, su mažesniu nei PLSS energijos įtėkiu, kurio neužtenka pažeisti optinio elemento vienu impulsu [23]. Tai reiškia, kad eksponuojant paviršių su energija, mažesne nei slenkstinė, laikui bėgant eksponuojamsas paviršius "pavargsta" [7, 11, 18]. Dažnu atveju, kuo didesnis impulsų skaičius naudojamas, tuo žemesnį slenkstį lazerio spinduliuotei turėsime [7, 11, 18]. Visgi, panašu, kad egzistuoja ir toks energijos įtėkis, su kuriuo paviršius nebus pažeidžiamas, nepriklausomai nuo impulsų skaičiaus [23]. Verta paminėti ir tai, jog optinį slenkstį šiuo atveju nulemia ne tik impulso energija ir impulsų skaičius, bet ir impulso pasikartojimo dažnis. Šis parametras ypatingai svarbus optiniuose kristaluose. Didėjant pasikartojimo dažniui, reikalingas vis didesnis impulsų skaičius, norint sukelti optinę pažaidą ties tuo pačiu energijos įtėkiu. Šiuo atveju nuovargio efekto greičio

priklausomybė nuo pasikartojimo dažnio pasako tai, kad egzistuoja lazerio pluošto sukurtų elementarių defektų relaksacijos laikas.

L. Smalakys savo tyrime atskyrė skirtingų pažaidos mechanizmų slenksčius lazerinei spinduliuotei ant ZrO<sub>2</sub> dangos [27]. Spalvinei modai, kaip matoma 15 – ame pav., nėra stebimas joks įsisotinimas, paviršių eksponuojant iki 10<sup>6</sup> impulsų, o katastrofinė moda tarsi įsisotina ties 10<sup>5</sup> impulsų. Šie eksperimentiniai duomenys buvo aproksimuoti pagal  $F_N = F_1 N^{S-1}$  formulę (kur N – impulsų skaičius,  $F_1$  – energijos įtėkis po pirmo impulso,  $F_N$  – PLSS po N impulsų, S – inkubacijos parametras), kad galima būtų tiksliau nusakyti nuovargio efektą. Kaip matoma, spalvinė moda išreiškia žymiai smarkesnį nuovargio efektą nei katastrofinė. Taip pat spalviniai pažeidimai yra ekranuojami katastrofinių, kai impulsų skaičius nesiekia 100.



15 pav. Pažaidos kreivės katastrofiniam ir spalviniam pažaidos tipui [27]. Spalvinė moda parodo smarkesnį nuvoargio efektą nei katastrofinė (jei S = 1 - nuovargio nėra). Spalvinė moda yra ekranuojama katastrofinės iki maždaug 100 impulsų.

#### Nuovargio efekto priežastys: sugeriantys defektai

Šviesą sugeriančių defektų atveju, pažaidos kriterijus yra apibūdinamas kaip medžiagos įtempio jėgų viršijimas dėl paviršiuje esančių defektų sugeriamos šiluminės energijos [23].

Eksponuojant paviršių su daugeliu impulsų, kiekvieno atskiro impulso energija yra nepakankama viršyti paviršiaus įtempio jėgas. Tačiau dėl cheminių reakcijų medžiaga po truputį degraduoja, didėjant temperatūrai lokaliai šviesą sugeriančiuose defektuose. Šviesą sugeriančiuose defektuose medžiagos degradacija greitėja dėl tolygaus mechano–cheminės reakcijos konstantos augimo greičio, kuri apibūdinama kaip [23]:

$$K \sim \exp[-(U_0 - \gamma \sigma)/kT], \qquad (24)$$

kur  $U_0$  yra aktyvacijos energija,  $\gamma$  yra nuo struktūros priklausantis parametras,  $\sigma$  yra liekamasis (angl. residual) įtempis ir *k* yra Bolcmano konstanta.

Visgi šis modelis iki galo nepaaiškina nuovargio efekto dėl kelių priežasčių [23]:

 akumuliacinis efektas yra stebimas ir itin grynose medžiagose, kuriose beveik nėra jokių defektų;

 aplink defektą įvykusios pažaidos morfologija turėtų atspindėti būtent tą faktą, kad eksponuotame paviršiuje vyravo defektas – tai nėra stebima;

3) termomechaninis modelis nenurodo jokios PLSS priklausomybės nuo temperatūros. Pradinei pagrinduko temperatūrai esant toli nuo tos, kuriai esant būtų įveikiamos įtempio jėgos, ši temperatūra negali pakankamai efektyviai paveikti atsirandančių įskilimų plitimo, nors yra žinoma, kad stikluose ir kristaluose temperatūra priklauso nuo daugelio impulsų pažaidos slenksčio;

 yra stebimas staigus impulso nutraukimas, įvykus pažaidai. Tačiau savaime suprantama, kad kaistant lokaliems defektams, būtų stebimas tolygus sugerties didėjimas.

Taigi šiluminis lokalių defektų modelis galioja tik tam tikrais atvejais.

#### Nuovargio efekto priežastys: cheminių ryšių nutraukimas

Stikluose impulsų skaičius  $N_d$ , prieš įvykstant pažaidai prie tam tikros temperatūros T, didėja eksponentiškai, mažėjant elektrinio lauko stipriui E pagal  $N_d \sim \exp(-AE/T)$  priklausomybę, kur A – medžiagos parametras. Ši priklausomybė taip pat galioja ir kristalams [23]. Tiksliau kalbant, visas laikas, reikalingas pažaidai įvykti, priklauso nuo eksperimento sąlygų ir medžiagos parametrų:

$$N_{\rm d}\tau_{\rm p} = \tau_0 \exp(U_0 - \gamma_{\rm E} E)/kT, \qquad (25)$$

kur  $\tau_0$  ir  $\gamma_E$  yra medžiagos parametrai,  $U_0$  yra pradinė pažeidimo aktyvacijos energija, k yra Bolcmano konstanta. Aktyvacijos energija įvairioms medžiagoms yra apie 1 – 3 eV. Tai yra cheminių ryšių stiprumo eilė, tačiau pastarasis yra maždaug 1,5 – 2 karto didesnis [23]. Iš tiesų, makroskopinio pažeidimo potencinis barjeras yra nulemiamas cheminio ryšio stiprumo. Tai įvyksta, kai pažaida medžiagoje įvyksta molekuliniame lygmenyje. Dėl ryšių ardymo proceso medžiaga pereina į tokią būseną, kuri atitinka vieno impulso pažeidimo sąlygas, bet prie žemesnės energijos, nei vieno impulso pažaidos neeksponuoto paviršiaus slenkstis. Parametras  $\tau$  yra mažiausias reikalingas laikas elementaraus defekto būsenos pakitimui (angl. nucleation). Jis kinta nuo  $10^{-13}$  s –  $10^{-11}$  s daugumai medžiagų, o šis laikas atitinka būtent tipinę šiluminės spontaninės relaksacijos laiką. Taigi galima sakyti, jog defekto būsenos pakitimas, pereinant potencinį barjerą  $U = U_0 - \gamma_E E$ , yra susijęs su terminių fliuktuacijų statistika [23]. Visgi ir šis modelis yra netobulas, kadangi jis pilnai nepaaiškina aktyvacijos barjero sumažėjimo krentančios šviesos lauke. Analitiškai buvo parodyta, kad atominės skalės defekto būsenos pakitimas gali būti susijęs su priverstine Brijueno sklaida (PBS, angl. stimulated Brillouin scattering) [23]. Yra žinoma, kad PBS slenkstis (kritinis elektrinis laukas) yra arti optinio slenksčio skaidriose medžiagose. Tačiau neapibrėžtumas yra toks, kad PBS yra medžiagos tūrio efektas, o optinė pažaida įvyksta ir medžiagos paviršiuje.

#### 1.4.5. Skaidrinančių dangų pažaidos mechanizmai

Ištyrus nedengtų pagrindukų ir padengtų su skaidrinančia danga PLSS priklausomybę nuo įvairių dangos nusodinimo procesų, sluoksnių skaičiaus ir kitų parametrų, eksponuotų su 355 nm bangos ilgio spinduliuote pagal rastrinio skenavimo protokolą, buvo pastebėta, jog pažaidos slenkstis smarkiai skiriasi, priklausomai nuo naudojamos dengimo technologijos [21, 22]. Šiam tyrime nustebino tai, kad sol-gel technologija padengtos dangos rodė geriausius PLSS rezultatus, nors šiuo metodu gaminamos dangos yra mechaniškai silpnos ir yra linkusios į spektrinę degradaciją. Visgi ši technologija turi savo privalumų dėl ypatingai žemo lūžio rodiklio porėto SiO<sub>2</sub> sluoksnio, pašalinant prasto optinio atsparumo aukšto lūžio rodiklio medžiagos poreikį. Taigi nenuostabu, kad SiO<sub>2</sub> vieno sluoksnio dangos parodė aukščiausius PLSS rezultatus. Palyginus daugiasluoksnes skaidrinančias dangas, hafnio oksidas turėjo geriausią atsparumą [21, 22]. Pastebėta ir tokia tendencija, jog vienasluoksnės dangos pasižymėjo geresniais pažaidos slenksčiais nei sudėtingesnės dangos, tačiau tai nėra vienareikšmis rezultatas.

Taip pat šiame konkurse buvo pastebėtas labai mažas skirtumas tarp magnetroninio dulkinimo ir elektronų pluošto išgarinimo technologijų, o tai indikuoja, kad dangos dengimo procese svarbesnę reikšmę turi proceso detalės nei pats procesas [21, 22].

16 pav. pavaizduotas pažaidos slenksčio skirtumas tarp dengtų ir nedengtų pagrindukų [18]. Beveik visi dengti paviršiai demonstruoja sumažėjusį PLSS. Neigiama reikšmė nusako, kad skaidrinančios dangos PLSS sumažėjo, lyginant su nedengtu paviršiumi. Savaime suprantama, kad kuo didesnė ši vertė, tuo didesnis PLSS skirtumas yra stebimas. Iš čia galima pasakyti, kad kai kurie paviršiai yra itin gerai apdoroti ir paruošti optinei sistemai, tačiau dengimo procesai yra gana netobuli. Mažas (ypač neigiamas) PLSS pokytis pasako, jog dangos lūžio rodikliai yra puikiai suderinti su pagrinduku arba kad dangos atsparumas spinduliuotei gali būti patobulintas su geresnės paviršiaus kokybės pagrindukais. Teigiamas pokytis parodo nevienodą kokybę tarp pagrindukų arba labiau netikėtinu atveju tai, kad danga kažkokiais būdais pagerina atsparumą lazerinei spinduliuotei.



16 pav. Slenkstinio energijos įtėkio skirtumas tarp nedengto ir dengto pagrinduko. Neigiama skalė indikuoja PLSS sumažėjimą, lyginant su nedengtu pagrinduku [18].

### 2. Darbo metodika

Šiame darbe buvo tiriami keturi netiesiniai LBO kristalai, pagaminti vienos gamybinės partijos metu. Kristalų matmenys – 12 mm x 12 mm x 10 mm. Kristalai tyrimo tikslais iš abiejų pusių buvo padengti skirtingomis skaidrinančiomis dangomis, naudojant jonapluoščio dulkinimo dengimo technologiją. Pirma pusė (S<sub>1</sub>) buvo padengta dviems bangos ilgiams skirta danga, kuri įpratai naudojama antros harmonikos generatoriuose, o antroji pusė (S<sub>2</sub>) – danga, kuri skirta trečios harmonikos generatoriuose:

- S<sub>1</sub>: AR 1064 nm + 532 nm ( $n_L$  SiO<sub>2</sub>,  $n_H$  ZrO<sub>2</sub>, (draustinės juostos tarpas 5,8 eV));
- S<sub>2</sub>: AR 355 nm ( $n_L$  SiO<sub>2</sub>,  $n_H$  Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, (draustinės juostos tarpas 7 eV)).

Čia  $n_L$  ir  $n_H$  – žymi, atitinkamai, dangos sluoksnių medžiagas, panaudotas žemo ir aukšto lūžio rodiklio sluoksniams. Kristalo orientacija yra tokia, kad būtų sudaromos sinchronizmo sąlygos antros harmonikos generacijai pasiekti.

Eksperimento metu bandinių matavimai vyko pagal "1 į 1" ir "S į 1" testavimo protokolus (plačiau žr. 2.2 skyrelį).

Kristalai prieš matavimą ir po matavimo buvo inspektuojami su Nomarski mikroskopu vėlesnei PLSS analizei. Bandinių paviršiai buvo eksponuojami 20 vietų po vieną impulsą apytiksliam PLSS nustatymui ir po to papildomai 50 taškų tikslesniam slenksčio įvertinimui (keičiant įtėkį nuo mažiausio iki slenkstinio). Tuomet 50 taškų analogiškai buvo eksponuojami su 10 impulsų vietai, 100 impulsų vietai ir t.t. iki 10<sup>5</sup> impulsų vienai vietai. Po šių matavimų bandinio paviršius dar kartą buvo apžiūrimas mikroskopu, siekiant įvertinti pažaidos slenkstį kiekvienai impulsų klasei.

Matavimai buvo atliekami su 5 – iomis skirtingomis impulsų trukmėmis: 200 fs – 10ps intervale pirmajai (1030 nm) ir trečiajai (343 nm) lazerio harmonikomis išlaikant pastovų ~35 µm skersmens pluošto diametrą  $\frac{1}{\rho^2}$  lygmenyje, ir pasikartojimo dažnį – 1 kHz.

Atlikus matavimus, buvo vykdoma paviršių morfologijos analizė. Čia buvo įvesti du pažaidos kriterijai: katastrofinis pažeidimas ir spalvinis pažeidimas (moda). Katastrofinis pažeidimas – tai pažeidimas, kurio morfologija primena kraterį. Spalvinė moda tai stebimas "švelnus" spalvinis paviršiaus pokytis.

#### 2.1. Eksperimentinė darbo schema

17 pav. yra pateikta principinė eksperimentinė schema. Iš lazerio išėjusi spinduliuotė veidrodžiais yra nukreipiama (V2 veidrodis yra ant nulenkiamo laikiklio) į autokoreliatorių, kur išmatuojama impulso trukmė. Išmatavus impulso trukmę, V2 veidrodis yra nulenkiamas nuo pluošto kelio. 343 nm

spinduluotės atveju, 1030 nm pluoštas praeidavo antros ir trečios harmonikos generatorius ir buvo nukreipiamas V13 ir V15 veidrodžiais link atenuatoriaus. Pluošto galia yra reguliuojama atenuatoriumi, o pluošto energija yra stebima pluošto daliai atsispindėjus nuo pleišto į fotodetektorių. Praėjusi pluošto dalis yra nukreipiama ant matuojamo bandinio, kuris yra įtaisytas laikiklyje ant motorizuoto transliacinio stalo.



17 pav. Principinė eksperimentinė schema. V – aukšto atspindžio rodiklio veidrodžiai,
 A – apertūros, PD – pluošto daliklis, FD – fotodiodas, NK – netiesinis kristalas, P – pleištas
 F – filtrai, SHG – antros harmonikos generatorius, THG – trečios harmonikos generatorius, λ/2 – banginė plokštelė, AR – autoreflektorius.

# 2.2. Pažaidos lazerio spinduliuotei slenksčio testavimo protokolai: "1 i 1" ir "S i 1" atvejai

Tarkime, kad turime bandinį ir norime nustatyti jo pažaidos lazerinei spinduliuotei slenkstį – šiam bandiniui sudarome 100 nepriklausomų vietų matricą (10 × 10 vietų kvadratas, žr. 18 pav.). Atstumas tarp taškų turi būti ne mažesnis kaip 3*d*, kur *d* – gausinio lazerio pluošto diametras  $\frac{1}{e^2}$  lygmenyje. Kiekvienas matricos taškas testavimo metu bus eksponuojamas lazerine spinduliuote, o kiekvienas 10 – ies taškų intervalas yra eksponuojamas vis kitu vidutiniu smailiniu intensyvumu (energijos įtėkiu). Apšvietus kiekvieną tašką lazerio impulsu vieną kartą, vykdomas "1 į 1" testas (jei kiekvienai vietai skiriami 1000 pasikartojančių impulsų, sakoma, kad vykdomas "S (=1000) į 1" testas). Baigus eksponuoti pirmus 10 vietų, keliame intensyvumą ir eksponuojame kitus 10 vietų ir tai vykdome tol, kol baigiame eksponuoti visą matricą. Tokiu būdu nuskenavus bandinį, galima apskaičiuoti pažaidos tikimybę kiekvienam 10 – ies vietų intervalui nuo (šiuo atveju) smailinio įtėkio. Tikimybės vertė i – tajam intervalui apskaičiuojama pagal šią formulę:

$$P_i(I_i) = \frac{n_{p_i}}{n_{n_i} + n_{p_i}},$$
(26)

kur  $n_p$  ir  $n_n$  atitinkamai yra pažeistų ir nepažeistų vietų skaičius. Taigi visų pažeistų vietų suma yra dalijama iš bendro taškų skaičiaus viename intervale (t.y. prie to vienos intensyvumo vertės), o smailinis intensyvumas, kurio atžvilgiu matuojama pažaidos tikimybė, yra vidurkinamas. Turint pažaidos tikimybės vertes, sudaroma pažaidos tikimybės kreivė (žr. 18 pav.) – pažaidos tikimybės priklausomybė nuo smailinio įtėkio. Pažaidos tikimybės verčių, kurios nelygios 1 arba 0, tiesinė aproksimacija ir ekstrapoliacija padeda nustatyti pažaidos slenkstį [1]. Tuomet ieškoma tiesės susikirtimo su X ašimi taško – ši vertė ir bus ieškomas pažaidos slenkstį.



18 pav. "1 į 1" ir "S į 1" protokolų matavimo principas ir optinio slenksčio nustatymas iš pažaidos tikimybės kreivės [1].

### 3. Rezultatai ir jų aptarimas

#### LBO skaidrinančių dangų PLSS ties 1030 nm ir 343 nm bangos ilgiais

Atlikus LBO kristalų pirmos ir trečios harmonikos spinduliuotei skirtų skaidrinančiųjų dangų matavimus, buvo gautos PLSS priklausomybės nuo impulso trukmės kiekvienai impulsų klasei. 19 – ame paveiksle yra pavaizduoti ribiniai atvejai: ",1 į 1" ir ",10<sup>5</sup> į 1" protokolų matavimų rezultatai.



19 pav. PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės "1 į 1" ir "10<sup>5</sup> į 1" atvejais 1030 nm (a, b) ir 343 nm (c, d) bangos ilgiams. Atitinkamų spalvų tiesės yra duomenų aproksimacijos.

Išanalizavus duomenis, buvo išskirti du pažaidos mechanizmai – katastrofinis ir spalvinis pažeidimai. Vieno impulso ZrO<sub>2</sub> dangos atveju (19 a pav.) buvo pastebėta, jog spalvinė moda yra matoma tik prie femtosekundžių eilės trukmių impulsų, o pikosekundžių eilės impulsų atveju spalviniai pažeidimai yra ekranuojami katastrofinių. Taip yra todėl, kad prie tos pačios energijos trumpos trukmės impulsai turi mažiau optinių ciklų ir didesnę intensyvumo amplitudę nei ilgos trukmės impulsai. Tai lemia, jog su trumpais impulsais yra didesnė tikimybė daugiafotonei jonizacijai prasidėti. Taigi, toks impulsas turi pakankamai energijos "pakeisti" medžiagos būseną į metališkesnę, bet nesukelti katastrofinės pažaidos. Tokiu atveju medžiagos paviršius tampa geriau sugeriantis šviesą dėl daugiafotonės sugerties ir paviršiuje pradedame stebėti spalvinius pakitimus. Su ilgesnėmis impulso trukmėmis spalvinę moda pradeda ekranuoti katastrofinė, kadangi impulso energija iškart yra perduodama į medžiagos gardelę kaip šiluminė energija ir yra sukeliamas katastrofinis pažeidimas.

" $10^5$  į 1" protokolo atveju (19 b pav.) turime gana aiškų šių modų išsiskyrimą visame impulso trukmių diapazone, išskyrus ties 10 ps, kur vėlgi spalvinė moda yra ekranuojama katastrofinės. Šis modų išsiskyrimas tampa akivaizdus prie aukštesnių impulsų klasių todėl, kad šiuo atveju įtakos turi ne tik daugiafotonė jonizacija, bet ir pasikartojimo dažnis. Tarkime, pirmas impulsas sužadina medžiagos elektronus ir sukelia daugiafotonę jonizaciją – medžiaga tampa metališkesnė, o kiekvienas sekantis impulsas po truputį toliau veikia medžiagą, tačiau nepakankamai, kad sukeltų katastrofinę pažaidą. Taigi pažaida "akumuliuojasi" paviršiuje ir pradedame stebėti spalvinius pokyčius. Tokiu būdu galime pastebėti, kad spalviniai pažeidimai yra stebimi ir su 5 ps trukmės impulsais. Šie gauti rezultatai gana gerai koreliuoja su L. Smalakio gautais rezultatais [27], kur autorius pastebėjo, jog ant ZrO<sub>2</sub> dangos spalvinė moda išryškėja tik po 10<sup>3</sup> impulsų.

Svarbu paminėti tai, jog analizuojant pirmos harmonikos matavimų duomenis, buvo pastebėta, jog kristalai buvo pažeidžiami tūryje. Tūriniai pažeidimai buvo pastebėti prie visų impulso trukmių, išskyrus 200 fs. Kaip matoma grafikuose (19 a ir b pav.), tūriniai pažeidimai pradėjo formuotis anksčiau arba ties tuo pačiu energijos įtėkiu kaip ir spalviniai, o tai reiškia, kad dalis spalvinių pažeidimų galėjo būti ekranuojami tūrinių. Šio tipo pažeidimai kristaluose vyko dėl Kero efekto, kuomet lazerio spinduliuotei sklindant terpėje yra sudaromas lokalus lūžio rodiklio pokytis, proporcingas šviesos intensyvumui, o tai priverčia spinduliuotę fokusuotis. Kuo trumpesnė impulso trukmė, tuo didesnį intensyvumą turime vieno impulso atveju. Taigi, dėl to turime smarkesnį lūžio rodiklio pokytį medžiagoje ir pluoštas fokusuojasi arčiau paviršiaus: tai gali paaiškinti, kodėl su 200 fs impulsais tūriniai pažeidimai nebuvo aptikti, t.y. jie galėjo būti per arti bandinio paviršiaus, o ant paviršiaus esantys defektai bei pažeidimai galėjo juos ekranuoti.

Išanalizavus 343 nm spinduliuotės matavimų duomenis (žr. 19 c ir d pav.) ir palyginus rezultatus su pirmos harmonikos, galime pastebėti, jog dangos slenkstis su trumpesniu bangos ilgiu yra žymiai žemesnis. Šis palyginimas nėra visiškai teisingas, kadangi dangos buvo dengtos su skirtingomis medžiagomis. Tačiau galima daryti prielaidą, jog net dangas ir padengus vienoda medžiaga, turėtume žemesnį PLSS. Tai galima paaiškinti tuo, jog prie tos pačios energijos UV fotonai turi žymiai didesnę tikimybę sužadinti medžiagos elektronus nei IR fotonai ir tokiu būdu yra didesnė tikimybė sukelti daugiafotonę jonizaciją. Taip yra dėl to, jog UV fotonai turi daugiau energijos nei IR, vadinasi, norint sužadinti elektroną prie tos pačios energijos, reikia mažiau UV fotonų – tikimybė, kad vienu metu atsklis, tarkime, du UV fotonai yra žymiai didesnė, nei kad vienu metu atsklistų penki IR fotonai.

Be to, buvo pastebėta, kad eksponuojant paviršių su UV spinduliuote, kristalai tūryje nebepasižeidė, kadangi impulsų energija buvo mažesnė ir Kero efektas nustojo dominuoti. Šiuo atveju taip pat matoma, jog pažeidimų modos atsiskiria viena nuo kitos, eksponuojant dangą net ir su vienu impulsu, o su 10<sup>5</sup> impulsų klase atskirtis yra žymiai ryškesnė nei su 1030 nm bangos ilgio atveju. Šiuo atveju priežastys yra tokios pačios, kaip ir anksčiau minėtosios. Kaip galima pastebėti, spalvinė moda išryškėjo net ir prie ilgų impulso trukmių – 5 ps ir 10 ps.

Iš gautų rezultatų galima pasakyti, jog didinant impulso trukmę, skaidrinančių dangų PLSS didėja, kadangi ilgesnės trukmės impulsas turi daugiau optinių ciklų, o tai reiškia, kad tos pačios energijos impulsas prie 200 fs ir prie 10 ps turės skirtingos amplitudės intensyvumą, taigi su ilgesniais impulsais reikia didesnės energijos sukelti pažaidą. Šie rezultatai artimai koreliuoja su B. C. Stuart ir kitų autorių tyrimų rezultatais [2, 3, 5–8, 20].

PLSS priklausomybės nuo impulso trukmės buvo aproksimuotos laipsniniu dėsniu (žr. 2 lent.). Rezultatai buvo aproksimuoti pagal  $F \sim a t$  dėsnį, kur F – slenkstinis energijos įtėkis, a ir c – konstanta,  $\tau$  – impulso trukmė. 19 – ame pav. yra pavaizduotos aproksimacinės kreivės. Kaip matome, aproksimacijos buvo darytos tik iki 500 fs, kadangi trumpesnėms trukmėms (tiek su 1030 nm, tiek su 343 nm bangos ilgiais) yra stebimas tarsi kreivės užlinkimas (punktyrinė linija), kuris galimai indikuoja apie PLSS sotį ir kitokį dėsningumą, tačiau jokių išvadų apie tai negalime daryti, kadangi yra duomenų trūkumas ir reikalingi papildomi tyrimai su trumpesnėmis nei 200 fs impulso trukmėmis.

"1 į 1" protokolo 1030 nm atveju, pagrindinių pažaidos modų PLSS nuo impulso trukmės apytiksliai priklauso kaip  $t^{0,6}$ . Ši vertė nukrypsta nuo G. Duchateau [9, 10] gautos vertės netiesiniams kristalams. G. Duchateau tyrime buvo tiriami nedengti kristalai, todėl tiesioginio palyginimo daryti negalima. Tačiau bet kokiu atveju yra aiškus dėsningumų skirtumas. Kitame tyrime M. Mero gavo, kad vienasluoksnės dangos PLSS trmpųjų impulsų ruože nuo impulso trukmės priklauso pagal  $t^{0,3}$  dėsnį [8].

Nors čia negalima daryti tiesioginio palyginimo, kadangi šiame darbe tiriamos dangos yra daugiasluoksnės, tačiau yra gana aiškus dėsnių skirtumas. Atkreipus dėmesį į 1030 nm "10<sup>5</sup> į 1" rezultatus, galime pastebėti, kad pažaidos modų dėsningumai nuo impulso trukmės pradeda skirtis – spalvinei ir tūrinėms modoms *PLSS* ~  $t^{0.73}$ , o katastrofinei *PLSS* ~  $t^{0.43}$ . Tai indikuoja, kad čia turime skirtingus pažaidos mechanizmus skirtingoms pažaidos modos: nuovargiu apribota spalvinė moda grečiausiai įvyksta dėl daugiafotonės jonizacijos ir galimai yra ekranuojama tūrinių pažeidimų, o katastrofinė moda galimai įvyksta dėl griūtinės jonizacijos. Vėliau pamatysime, kad tai dalinai patvirtina ir pažaidos morfologijos.

1030 n	m					
Pažaidos moda	a	с				
Spalvinis "1 į 1"	2,85	0,6				
Katastrofinis "1 į 1"	3,01	0,57				
Tūrinis "1 į 1"	2,15	0,63				
Spalvinis "10 <sup>5</sup> į 1"	1,33	0,71				
Katastrofinis "10 <sup>5</sup> į 1"	2,49	0,43				
Tūrinis "10 <sup>5</sup> į 1"	1,20	0,75				
343 nm						
Spalvinis "1 į 1"	0,98	0,44				
Katastrofinis "1 į 1"	1,30	0,32				
Spalvinis "10 <sup>5</sup> į 1"	0,16	0,59				
Katastrofinis "10 <sup>5</sup> į 1"	1,04	0,33				

2 lentelė: aproksimuotų PLSS kreivių konstantos ribinėms impulsų klasėms pagal F ~ at dėsnį, kur F
slenkstinis energijos įtėkis, a ir c $-$ konstanta, $ au$ - impulso trukmė.

Trečios harmonikos matavimų atveju, pažaidos slenkstis vienam impulsui nuo jo trukmės spalvinei modai priklauso pagal  $t^{0,44}$ , o katastrofinei –  $t^{0,32}$ . 10<sup>5</sup> impulsų klasei matome, kad spalvinio pažeidimo PLSS nuo impulso trukmės priklauso pagal  $t^{0,59}$ , o katastrofinio  $t^{0,33}$ . Taigi čia matome, kad UV diapazone spalvinės modos pažaida kinta pagal kitokį dėsnį, o tai indikuoja, kad ji įvyksta dėl kitokio pažaidos mechanizmo: kaip jau buvo minėta anksčiau – dėl daugiafotonės jonizacijos, kuri yra žymiai efektyvesnė su UV bangos ilgiais. Mokslinėje literatūroje apie UV diapazono PLSS priklausomybę nuo impulso trukmės nėra kalbama, todėl jokių palyginimų atlikti negalime.

Taigi kaip matome iš rezultatų, tai pačiai dangai gali galioti skirtingi PLSS priklausomybės nuo impulso trukmės dėsniai, priklausomai nuo impulso klasės. Tai nusako, kad galioja skirtingi pažaidos mechanizmai vieno impulso atveju ir nuovargio paveiktos medžiagos.

#### Nuovargio efektas

Siekiant aiškiau pamatyti senėjimo efekto tendencijas, visų matavimų kiekvienos klasės PLSS buvo normalizuoti pagal "1 į 1" protokolo PLSS [30]. Kaip matome 20 a pav., spalvinei modai nuovargio efektas ryškiai pasireiškia 200 fs – 1 ps trukmių diapazone. 5 ps ir 10 ps trukmėms spalviniai pažeidimai nebuvo stebimi, t.y. jie buvo ekranuojami katastrofinių pažeidimų, ir tik su 5 ps impulsais ties  $10^4$ impulsų klase matome pirmuosius spalvinius pažeidimus. 20 b pav. galime pamatyti, jog katastrofinė moda įsistotina nuo maždaug 1000 impulsų. Tačiau kartu galima įžvelgti ir tai, jog trumpoms impulsų trukmėms (200 fs – 1 ps) katastrofinė pažaida vėl senėja nuo  $10^4$  impulsų. Šie rezultatai panašiai koreliuoja su L. A. Emmert tyrimo rezultatais, kur buvo pastebėta, jog katastrofinės pažaidos slenkstis ties 1 ps impulsais pradeda sotintis ties 10 impulsų klase, tačiau tolygiai mažeja su vis didesne impulsų klase [30]. Panašias tendencijas savo tyrimuose pastebėjo ir L. Smalakys [27].

Analogiškas tendencijas galima pastebėti ir su 343 nm bangos ilgio matavimais (žr. 20 c ir d pav.). Šiuo atveju, spalvinė moda demonstruoja ryškesnį senėjimo efektą. Kaip buvo minėta anksčiau, nuovargio efektas yra stipresnis dėl didesnės daugiafotonės jonizacijos tikimybės UV spinduliuotės atveju. 200 fs – 1 ps trukmėms nuovargio efektas pasireiškia ne iš karto, o tik po maždaug 100 impulsų, priešingai nei 5 – 10 ps impulsams, ir pažaidos slenkstis krenta beveik 10 kartų ties  $10^5$  impulsų. Be to, galima pastebėti, jog ties  $10^4$  impulsų įvyksta tarsi lūžis ir kreivės tampa tarsi gulstesnės, t.y. lyg pradeda sotintis. Tai patvirtinti šiame tyrime duomenys nebuvo surinkti, todėl reikėtų atlikti eksperimentus su aukštesnėmis nei  $10^5$  impulsų klasėmis. Pasižiūrėjus į katastrofinės modos tendencijas, galima pasakyti, jog, kaip ir pirmos harmonikos atveju – visoms impulso trukmėms. Verta paminėti ir tai, jog čia gali pasirodyti, jog su 5 ps buvo gauti žemesni slenksčiai nei su 10 ps, tačiau šiame grafike matome normalizuotą PLSS, vadinasi, matuojant gyvavimo trukmę su 5 ps impulsų trukme katastrofinis slenkstis paprasčiausiai kito smarkiau.

Verta paminėti tą faktą, jog tiriant pirmai harmonikai skirtos dangos katastrofinis PLSS mažėja greičiau su ilgesnėmis impulsų trukmėmis (matomas 40% PLSS sumažėjimas), o trečiai harmonikai skirtos dangos PLSS mažėja lėčiau. UV atveju, matome, kad spalvinių pažeidimų PLSS dėl nuovargio efekto sumažėja net 80%. Tai yra sietina su tuo, jog ZrO<sub>2</sub> dangos elektronams sužadinti (draustinės

energijos tarpas yra apie 5,8 eV) su 1030 nm spinduliuote yra reikalingi 5 fotonai, o su 343 nm (draustinės juostos tarpas ~7 eV) spinduliuote – tik 2 fotonai, taigi, tai yra žymiai efektyvesnis procesas.

Taigi, kaip matome iš pavaizduotų tendencijų, UV srityje nuovargio efektas yra žymiai akivaizdesnis nei IR. Trumpiems impulsams IR atveju galioja panašios tendencijos kaip UV visoms trukmėms – spalvinių pažeidimų atveju, slenkstis mažėja su vis didesne impulsų klase ir galima daryti prielaidą, kad po tam tikro impulsų skaičiaus PLSS nustotų mažėti, tačiau tam reikia tolimesnių eksperimentinių tyrimų. Analogiškai, katastrofinei modai trumpų impulsų atveju IR diapazone PLSS indikuoja panašų elgesį, kaip ir UV – nuo vieno iki 10<sup>3</sup> impulsų matome mažėjantį ir besisotinantį slenkstį, tačiau ties šia impulsų klase matome lūžį ir slenkstis vėl pradeda mažėti.



20 pav. Normalizuotas PLSS kiekvienai pažaidos modai, skirtingai impulsų klasei.

#### Pažaidos morfologija





Kaip jau buvo minėta anksčiau, eksponuojant bandinį su 1030 nm bangos ilgiu, buvo pastebėti tūriniai pažeidimai (žr. 21 pav.). Tai galima pastebėti, pavyzdžiui, žiūrint į "1 į 1" matavimo spalvinę modą. Čia matome mikroskopu užfiksuotą nuotrauką ir šalia kontrastinį tos pačios vietos vaizdą, siekiant aiškiau pamatyti spalvinius pakitimus. Galime pastebėti, jog, pavyzdžiui, 500 fs atveju yra matomas tarsi spalvinis pakitimas, tačiau iš tiesų čia matome tarsi įdubimą, kuris indikuoja, jog tai yra iš tūrio matomas pažeidimas, kuris yra gana arti paviršiaus ir ekranuoja spalvinį pažeidimą (o galbūt jo ten išvis nėra). Pasižiūrėjus į 10<sup>5</sup> impulsų klasės spalvinius pažeidimus, galime pastebėti, jog šiuo atveju matome tikrus spalvinius pakitimus (neoninės mėlynos spalvos), kurie primena pluošto profilį, o aplink matomas tamsesnės spalvos "sijonas" indikuoja, kad čia matomas išsifokusavęs tūrinis pažeidimas. Visgi, galima gana drąsiai teigti, kad keičiant impulso trukmę, spalvinių pažeidimų morfologija išlieka nekintanti.

Atkreipiant dėmesį į katastrofinius pažeidimus, galima pastebėti, kad didėjant impulso trukmei, pažaidos morfologija taip pat nekinta – pažaidos vieta primena pluošto profilį ir yra artima pluošto diametrui. Taip pat galima pastebėti, jog eksponuojant paviršių su 10<sup>5</sup> impulsų, yra matomas tarsi iš tūrio atėjęs pažeidimas kraterio centre (pvz. 500 fs ir 1 ps atvejais), o tai tik patvirtina, jog eksponuojant bandinį su pirmos harmonikos spinduliuote buvo sukeliami tūriniai pažeidimai. Verta paminėti ir tai, jog aplink šiuos pažeidimus matoma ir šilumos paveikta zona (angl. heat affected zone).

Analogiškai, eksponuojant bandinį su 343 nm spinduliuote (žr. 22 pav), kintant impulso trukmei pažaidos morfologija nekinta tiek spalvinei, tiek katastrofinei modai. Kaip jau buvo minėta, šiuo atveju tūrinių pažeidimų nebuvo ir tai galima patvirtinti tuo, jog žiūrint į spalvinius pažeidimus, pažeidimo vieta yra panaši į pluošto profilį bei dydis yra panašus pluošto diametrui. Katastrofinių pažeidimų atveju galima pastebėti, jog pažeidimo dydis yra žymiai mažesnis nei pluošto diametras (tai galima sieti su tuo, jog reikėjo mažėsnų energijų sukelti pažeidimus, taigi pažeista vieta taip pat yra mažesnė), tačiau morfologijos tipas taip pat nekinta, kintant impulso trukmei. Stebint pažaidos morfologijas buvo pastebėtas vienas įdomus faktas – aplink katastrofinius pažeidimus buvo pastebėta kryptinga linija (pavyzdžiui, 22 pav. "10<sup>5</sup> į 1" katastrofinis pažeidimas ties 1 ps). Tai galima susieti su tuo, jog LBO kristalai yra pjezoelektrikai ir juos veikiant šviesa, kristalai plečiasi viena kryptimi dėl šiluminių reiškinių.



22 pav. Pažaidos morfologija ties 343 nm bangos ilgiu 1 ir  $10^5$  impulsų atveju. Tušti langeliai reiškia tai, kad ties atitinkama trukme nebuvo atitinkamos pažeidimo morfologijos. Čia "spalvinis" – spalvinis pažeidimas, "katastrofinis" – katastrofinis pažeidimas.

Abiejų dangų atveju galime pastebėti, jog katastrofinis pažeidimas visomis impulso trukmėmis primena nuo dangos pašalintos medžiagos kraterį – danga buvo tarsi nuabliuota. Kadangi pažeidimo vietoje nematome jokių sub–mikrometrinio dydžio taškų, galima teigti, jog šie pažeidimai įvyko dėl dangos medžiagos savybių, o ne dėl paviršiuje ir po paviršiumi esančių defektų. Taip pat svarbus faktas yra tai, kad tiek katastrofinė, tiek spalvinė pažaida vyko deterministiškai. Visa tai indikuoja, kad tik pasiekus slenkstinę energiją, kurios pakanka sužadinti elektronus, šie pradėdavo daugiafotonę jonizaciją,

dėl kurios medžiaga tampa metališkesnė ir pradeda smarkiau sugerti spinduliuotę, iki kol yra pasiekiamas kritinis energijos įtėkis katastrofinei pažaidai susiformuoti. Be to, svarbu paminėti, jog lyginant morfologijų rezultatus su PLSS kreivėmis, pažaidos morfologijos neindikuoja apie jokį PLSS dėsningumų pokytį ties trumpesnėmis nei 500 fs impulsų trukmėmis.

### Išvados

Empiriškai analizuojant eksperimentinius duomenis pastebėta, kad visais tirtais atvejais (spalvinei ar katastrofinei modoms; veikiant pavieniais ar daugeliu impulsų; 1030 nm ar 343 nm bangos ilgio spinduliuotei) 200 fs – 10 ps trukmių intervale PLSS priklausomybę nuo impulso trukmės universaliai apibūdina laipsninė funkcija, o konkrečiu atveju skiriasi tik laipsnio eilė (ji kinta nuo  $\sim t^{0,32}$  iki  $\sim t^{0,73}$ ). Visais tirtais atvejais laipsnio rodiklis katastrofinei modai buvo arba mažesnis, arba lygus tam, kuris atitinka spalvinę modą, todėl tikėtina, kad katastrofinei ir spalvinei modoms inicijuoti veikianti fizikinių mechanizmų grandinė (pažaidos prigimtis) yra skirtinga.

Tiriant "spalvine" pažaida nulemtą nuovargio efektą (skirtumą tarp "1 į 1" ir "10<sup>5</sup> į 1" PLSS) pastebėta, jog 343 nm žadinimo atveju (kai pakanka 2 fotonų) PLSS sumažėja >80% visoms impulso trukmėms, o 1030 nm atveju (sužadinimui reikia net 5 fotonų) PLSS sumažėja 40 – 60 %, todėl manytina, jog didesnį nuovargio efektą sąlygoja daugiafotonės mažesnė jonizacijos eilė.

Atlikus vaizdinę pažaidos morfologijų analizę nustatyta, kad trumpų impulsų srityje ( $\tau < 1$  ps) abiejų ištirtų AR dangų (ZrO<sub>2</sub>–SiO<sub>2</sub> ir Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>–SiO<sub>2</sub>) atvejais pažaidos slenkstį apriboja "spalvinė" moda, o ilgų impulsų srityje (> 1 ps) dominuoja "katastrofinė" pažaida: remiantis moksline literatūra, manytina, kad tokie rezultatai su susiję su dominuojančiu laisvųjų krūvininkų generavimo mechanizmu medžiagoje – veikiant trumpais impulsais dominuoja daugiafotonė sugertis, o ilgų impulsų atveju dėl smūginės jonizacijos ir ilgesnės sąveikos trukmės dominuoja griūtinės jonizacijos mechanizmas.

### Aprobacija

# Baigiamojo darbo tema pateiktos tezės į "SPIE Laser Damage 2021" konferenciją

E. Atkočaitis, A. Melninkaitis, L. Smalakys, Antireflection coatings on LBO crystals: investigation of LIDT scaling with pulse duration at IR and UV wavelengths.

### Susijusios tezės, pateiktos į "SPIE Laser Damage 2021" konferenciją

E. Drobužaitė, L. Smalakys, E. Atkočaitis, A. Melninkaitis, Analysis of lifetime distributions of dielectric and metallic mirrors.

M. Jupé, E. Atkočaitis, E. Žutautaitė, K. Kiedrowski, M. Steinecke, L. Herrero, L. Jensen, U. Kimbaraitė, M. Ščiuka, A. Melninkaitis, Experimental study of LIDT scaling laws for metallic coatings: effect of pulse duration within fifteen orders of magnitude.

### Darbe naudotos literatūros sąrašas

[1] ISO 21254-1:2011, International Standard International Standard, 2006, 13, (2011).

[2] D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier, and G. Mourou, Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO2 with pulse widths from 7 ns to 150 fs, Appl. Phys. Lett., **64**(23), 3071–3073, (1994), doi: 10.1063/1.111350.

[3] B. C. Stuart, M. D. Feit, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, Laser-induced damage in dielectrics with nanosecond to subpicosecond pulses, Phys. Rev. Lett., **74**(12), 2248–2251, (1995), doi: 10.1103/PhysRevLett.74.2248.

[4] N. Sanner *et al.*, Toward determinism in surface damaging of dielectrics using few-cycle laser pulses, Appl. Phys. Lett., **96**, (7), 2–4, (2010), doi: 10.1063/1.3309700.

[5] L. Gallais *et al.*, Laser induced damage of hafnia coatings as a function of pulse duration in the femto to picosecond regime, Opt. InfoBase Conf. Pap., **50**(9), 178-187, (2010), doi: 10.1364/oic.2010.fa7.

[6] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, Optical ablation by high-power short-pulse lasers, J. Opt. Soc. Am. B, **13**(2), 459-468, (1996), doi: 10.1364/josab.13.000459.

[7] J. Krüger *et al.*, Single- and multi-pulse femtosecond laser ablation of optical filter materials, Appl. Surf. Sci., **208–209**, (1), 233–237, (2003), doi: 10.1016/S0169-4332(02)01389-2.

[8] M. Mero, J. Liu, W. Rudolph, D. Ristau, and K. Starke, Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films, Phys. Rev. B - Condens. Matter Mater. Phys., **71**(11), 1–7, (2005), doi: 10.1103/PhysRevB.71.115109.

[9] G. Duchateau and A. Dyan, Coupling statistics and heat transfer to study laser-induced crystal damage by nanosecond pulses, Opt. Express, **15**(8), 4557-4576, (2007), doi: 10.1364/oe.15.004557.

[10] G. Duchateau, Simple models for laser-induced damage and conditioning of potassium dihydrogen phosphate crystals by nanosecond pulses, Opt. Express, **17**(13), 10434-10456, (2009), doi: 10.1364/oe.17.010434.

[11] A. Melninkaitis, D. Mikšys, R. Grigonis, V. Sirutkaitis, M. Jupé, and D. Ristau, Comparative studies of laser-induced damage threshold measurements in highly reflecting mirrors, Laser-Induced Damage Opt. Mater. 2007, **6720**(672012), 8, (2007), doi: 10.1117/12.753705.

[12] 2008 - Dyan et al. - Scaling laws in laser-induced potassium dihydrogen phosphate crystal damage by nanosecond pulses at 3w.pdf, Opt. Soc. Am., **25**(6), 9, (2008).

[13] R. A. Negres, M. A. Norton, Z. M. Liao, D. A. Cross, J. D. Bude, and C. W. Carr, The effect of pulse duration on the growth rate of laser-induced damage sites at 351 nm on fused silica surfaces, Laser-Induced Damage Opt. Mater. **7504**, 10, (2009), doi: 10.1117/12.836905.

[14] D. Ristau, Laser-induced damage in optical materials, (CRC Press, Germany, 2014) pp. 9-75.

[15] T. Suratwala *et al.*, Effect of rogue particles on the sub-surface damage of fused silica during grinding/polishing, J. Non. Cryst. Solids, **354**(18), 2023–2037, (2008), doi: 10.1016/j.jnoncrysol.2007.11.015.

[16] L. M. Cook, Chemical processes in glass polishing, J. Non. Cryst. Solids, **120**(1–3), 152–171, (1990), doi: 10.1016/0022-3093(90)90200-6.

[17] H. Liu, L. Jensen, P. Ma, and D. Ristau, Applied Surface Science Stress compensated anti-re fl ection coating for high power laser deposited, **476**(2019), 521–527, (2019).

[18] C. J. Stolz, M. Caputo, A. J. Griffin, and M. D. Thomas, BDS thin film UV antireflection laser damage competition, Laser-Induced Damage Opt. Mater. 2010, **7842**(784206), 7, (2010), doi: 10.1117/12.867742.

[19] Y. Zhao, T. Wang, D. Zhang, J. Shao, and Z. Fan, Laser conditioning and multi-shot laser damage accumulation effects of HfO 2 /SiO 2 antireflective coatings, Appl. Surf. Sci., **245**(1–4), 335–339, (2005), doi: 10.1016/j.apsusc.2004.10.028.

[20] H. A. Macleod, Thin-Film Optical Filters, in Thin-Film Optical Filters, 2001st ed.( Institute of Physics Publishing, Bristol and Philadelphia, 2001), pp. 86–156, 393–456.

[21] C. J. Stolz and R. A. Negres, Ten-year summary of the Boulder Damage Symposium annual thin film laser damage competition, Opt. Eng., **57**(12), 14, (2018), doi: 10.1117/1.oe.57.12.121910.

[22] G. Batavičiute, P. Grigas, L. Smalakys, and A. Melninkaitis, Revision of laser-induced damage threshold evaluation from damage probability data, Rev. Sci. Instrum., **8885**(88851M), 10, (2013), doi: 10.1063/1.4801955.

[23] A. E. Chmel, Fatigue laser-induced damage in transparent materials, Mater. Sci. Eng. B, **49**(3), 175–190, (1997), doi: 10.1016/S0921-5107(97)00138-4.

[24] M. H. Niemz, Threshold dependence of laser-induced optical breakdown on pulse duration, 66(10), 1181–1183, (1995).

[25] R. A. Negres, C. J. Stolz, G. Batavičiute, and A. Melninkaitis, 532-Nm, Nanosecond Laser Mirror Thin Film Damage Competition, **11514**(115140L), 10, (2020), doi: 10.1117/12.2566691.

[26] A. Dubietis, *NETIESINĖ OPTIKA*, (Vilniaus univesiteto leidykla, 2011), pp. 81-85.

[27] L. Smalakys, B. Momgaudis, R. Grigutis, S. Kičas, and A. Melninkaitis, Contrasted fatigue behavior of laser-induced damage mechanisms in single layer ZrO 2 optical coating, Opt. Express, **27**(18), 14, (2019), doi: 10.1364/oe.27.026088.

[28] L. Smalakys and A. Melninkaitis, Predicting lifetime of optical components with Bayesian inference, Opt. Express, **29**(2), 13, (2021), doi: 10.1364/oe.410844.

[29] L. Smalakys, E. Drobužaitė, B. Momgaudis, R. Grigutis, and A. Melninkaitis, Quantitative investigation of laser-induced damage fatigue in HfO 2 and ZrO 2 single layer coatings, Opt. Express, **28**(17), 11, (2020), doi: 10.1364/oe.397812.

[30] L. A. Emmert, M. Mero, and W. Rudolph, Modeling the effect of native and laser-induced states on the dielectric breakdown of wide band gap optical materials by multiple subpicosecond laser pulses, J. Appl. Phys., **108**(4), 1–7, (2010), doi: 10.1063/1.3457791.

[31] https://www.2020mag.com/article/anti-reflective-coating-are-we-looking-at-this-wrong [žiūrėta 2021-05-18].

[32] https://www.dynasil.com/optical-coatings/anti-reflective-coatings/ [žiūrėta 2021-05-18].

[33] www.astrosurf.com\luxorion/reports-coating.htm [žiūrėta 2021-05-18].

[34] J. Wang, Y. Li, J. Han, Q. Xu, and Y. Guo, Evaluating subsurface damage in optical glasses, J. Eur. Opt. Soc., **6**(11001), 16, (2011), doi: 10.2971/jeos.2011.11001.

[35] S. Papernov and A. W. Schmid, Laser-induced surface damage of optical materials: absorption sources, initiation, growth, and mitigation, Laser-Induced Damage Opt. Mater. 2008, **7132**(71321J), 29, (2008), doi: 10.1117/12.804499.

### Summary

### Erikas Atkočaitis LIDT INVESTIGATION OF ANTIREFLECTION COATINGS ON LBO CRYSTALS

It is widely known that the damage mechanisms vary with different pulse durations. For example, with laser pulses from few nanoseconds to few tens of picoseconds, laser damage occurs due to the avalanche ionization and the break-down of dielectrics, while with femtosecond pulses the dominating damage mechanism is multiphoton ionization and absorption. There is a lot of scientific research done on the topic of scaling LIDT laws on various glasses and crystalline materials, however, only a few studies are made about antireflection coating LIDTs on non-linear crystals at different pulse durations, especially – picosecond regime.

The main purpose of this work is to determine LIDT scaling laws on antireflection coatings deposited on non-linear crystals. In this work both LBO crystal surfaces were coated with two different coatings for 1030 nm and 343 nm laser radiation respectively. 1-on-1 and S-on-1 (with number of pulses from 10 to  $10^5$ ) measurements were performed to evaluate the lifetime and scaling laws on these coatings. The measurements were performed with laser pulses from 200 fs up to 10 ps, maintaining constant ~35  $\mu$ m beam diameter at  $\frac{1}{a^2}$  level with the repetition rate of 1 kHz. After the experiments it was determined that there are two different damage modes – color change and catastrophic failure. It was found that the shorter the wavelength, pulse duration and the more pulses there are, the more these damage modes stand out from each other. And so, LIDT scaling laws on pulse duration for different wavelength and pulse classes were defined: 1-on-1 1030 nm measurements showed that LIDT ~  $\tau^{0.6}$  for all damage modes, whereas with 10<sup>5</sup> pulses LIDT depends as  $\tau^{0.71}$  for color change and as  $\tau^{0.43}$  for catastrophic damage; 1-on-1 343 nm measurements showed that LIDT ~  $\tau^{0.44}$  for color change and for catastrophic damage ~ $\tau^{0.32}$ , while with 10<sup>5</sup> pulses color change mode depends on pulse duration as ~ $\tau^{0.6}$  and catastrophic as  $\sim \tau^{0.33}$ . It was also found that fatigue effect is more pronounced for UV wavelength than IR due to multiphoton ionization process. Additionally, it was determined that damage morphology on LBO crystals does not change with increasing laser pulse duration, meaning that for all the durations dominating damage mechanism is the same.

### Santrauka

# Erikas Atkočaitis LBO KRISTALŲ, PADENGTŲ SKAIDRINANČIOMIS DANGOMIS, OPTINIO ATSPARUMO TYRIMAS

Visuotinai pripažinta, jog impulso trukmė yra viena iš svarbiausių optinės pažaidos priežasčių. Pavyzdžiui, lazerio impulsams esant tarp kelių dešimčių pikosekundžių ir kelių šimtų nanosekundžių, lazerinė pažaida įvyksta dėl griūtinės jonizacijos bei dielektrikų irimo (dielektrinis pramušimas), o femtosekundiniams impulsams dominuoja daugiafotonės jonizacijos ir sugerties mechanizmas. Moklsinėje literatūroje yra pateikiama ypatingai daug tyrimų apie įvairių stiklų ir kristalinių medžiagų ir jų dangų PLSS priklausomybę nuo impulso trukmės, tačiau labai mažai dėmesio yra skirta apie skaidrinančių dangų ant netiesinių kristalų pažaidos slenksčio priklausomybę nuo impulso turkmės, ypatingai pikosekundžių srityje.

Šio darbo pagrindinis tiklas yra ištirti netiesinių optinių kristalų paviršių su skaidrinančiomis dangomis PLSS priklausomybe nuo lazerinių impulsų trukmės. Šiame darbe LBO kristalų abudu paviršiai buvo padengti dviejomis skirtingomis dangomis atitinkamai 1030 nm ir 343 nm bangos ilgiams. Čia buvo atliekami "1 į 1" ir "S į 1" (impulsų skaičius nuo 10 iki 10<sup>5</sup>) matavimai, siekiant nustatyti dangos gyvavimo trukmę ir PLSS priklausomybę nuo impulso trukmės. Matavimai buvo atliekami su derinamo trukmės lazeriu 200 fs – 10 ps trukmių intervale, išlaikant ~35 µm pluošto diametrą  $\frac{1}{r^2}$ lygmenyje, o pasikartojimo dažnis buvo 1 kHz. Atlikus eksperimentus buvo nustatyta, kad yra dvi pažaidos modos – spalvinis pokytis ir katastrofinė pažaida. Buvo nustatyta, kad kuo trumpesnė impulso trukmė, bangos ilgis ir kuo daugiau impulsų yra, tuo labiau pažaidos modos išsiskiria viena nuo kitos. Įvertinus PLSS priklausomybę nuo impulso trukmės, buvo nustatyta: "1 į 1" 1030 nm matavimų metu PLSS priklauso nuo impulso trukmės pagal  $\tau^{0,6}$  abiejoms pažaidos modoms, o su 10<sup>5</sup> impulsų šis dėsnis priklauso kaip  $\tau^{0,71}$  spalvinei modai ir kaip  $\tau^{0,43}$  katastrofinei modai; "1 j 1" 343 nm atveju buvo nustatyta, kad *PLSS* ~  $\tau^{0,44}$  spalvinei modai, o katastrofinės modos *PLSS* ~  $\tau^{0,32}$ . Su 10<sup>5</sup> impulsų gauta, jog PLSS spalvinei modai priklauso kaip  $\tau^{0,6}$ , o katastrofinei – kaip  $\tau^{0,33}$ . Taip pat buvo nustatyta, kad nuovargio efektas yra žymiai išraiškingesnis UV diapazone nei IR diapazone dėl daugiafotonės jonizacijos. Be to, buvo nustatyta, kad LBO kristalų dangų pažaidos morfologija nesikeičia, keičiant impulso trukmę, o tai leidžia daryti išvadą, kad pažaidos mechanizmai išlieka tie patys.