

**VILNIAUS UNIVERSITETO  
FIZIKOS FAKULTETO  
LAZERINIŲ TYRIMŲ CENTRAS**

Aivaras Pečiulis

**KAUPIAMŲJŲ IR KATASTROFINIŲ PAŽEIDIMŲ OPTINĖSE TERPĖSE IR DANGOSE  
TYRIMAS ULTRASPARČIOSIOS SPEKTROSKOPIJOS METODAIS**

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerinės fizikos ir optinių technologijų studijų programa

Studentas

Aivaras Pečiulis

Leista ginti

Darbo vadovas

prof. dr. Mikas Vengris

Konsultantas

Centro vadovas

Balys Momgaudis

prof. Aidas Matijošius

Vilnius 2021

# Turinys

1.	LAZERINĖ PAŽAIDA .....	3
1.1	Lazerinės spinduliuotės parametrai .....	3
1.2	Kaupiamieji reiškiniai.....	6
1.3	Medžiagos parametrai.....	7
1.4	Aplinkos sąlygos.....	8
1.5	Optinių dangų parametrai .....	11
2.	LAZERINĖS PAŽAIDOS SLENKSČIO MATAVIMAS .....	14
2.1	LIPS matavimų protokolai.....	14
2.2	Pažaidos slenksčio nustatymo metodai.....	17
3.	ULTRASPARČIOSIOS SPEKTROSKOPIJOS TYRIMO METODAI.....	21
3.1	Klasikinis žadinimo-zondavimo eksperimentas .....	21
3.2	Modifikuotas žadinimo-zondavimo eksperimentas .....	23
4.	EKSPERIMENTO METODIKA .....	27
4.1	Tiriamieji objektai.....	27
4.2	Eksperimento schema .....	27
4.3	Matavimų parametrai.....	34
5.	REZULTATAI IR JŲ APTARIMAS.....	36
5.1	0,2mm storio lydyto kvarco dengiamųjų stikliukų matavimai .....	36
5.2	1mm storio lydyto kvarco dengiamųjų stikliukų matavimai .....	41
5.3	Nanostruktūrizuotų dielektrinių dangų matavimai .....	50
6.	IŠVADOS.....	53
7.	LITERATŪROS SĄRAŠAS.....	54
8.	SANTRAUKA .....	66
9.	SUMMARY .....	67

## ĮVADAS

Lazerinė pažaida – optinio elemento dangos, paviršiaus ar tūrio negrįžtamas pokytis po medžiagos sąveikos su lazerine spinduliuote. Pirmą kartą lazerinė pažaida buvo aprašyta dar 1964m. kai į skaidrų dielektriką buvo sufokusuotas impulsinio rubino lazerio pluoštas [1]. Taip atsivėrė nauja mokslinių tyrimų sritis, tirianti lazerinės spinduliuotės indukuotos pažaidos mechanizmus, jos priežastis ir ieškanti būdų kaip padidinti optinių elementų pažaidos slenksčius.

Optiniams komponentams nurodomas lazerinės pažaidos slenkstis apibrėžia energijos įtekio lygį, aukščiau kurio pažeidimo tikimybė nebėra nykstamai maža duotam parametrų rinkiniui. Tokia riba, be abejo, yra svarbi, tačiau praktikoje optiniai elementai lazerinėse sistemose gali būti eksponuojami spinduliuote visą parą, nepertraukiamai kelias dienas, savaites ar mėnesius, todėl daug svarbesnis tampa pažaidos slenkstis itin dideliui skaičiui impulsų su palyginti maža ar vidutine smailine galia. Šis pažaidos slenkstis bus gerokai žemesnis nei nustatytas pavieniam impulsui, tačiau būtent jis apibrėžia kaip kokybiškai ir ilgai optinis elementas gali funkcionuoti lazerinėje sistemoje.

Akumuliacinių (kaupiamųjų) reiškinių, kai viena bandinio vieta yra eksponuojama daugiau negu vienu impulsu, tyrimas yra pagrindinė šio darbo kryptis. Eksperimentai bus atliekami suformuojant žinomo skaičiaus impulsų vorą, žadinant bandinį tų vorų serijomis ir registruojant bandinio pralaidumo pokytį po kiekvieno iš žadinimo impulsų sąveikos su medžiaga. Nustačius, kaip lazerinę pažaidą sukeliantis impulsų skaičius priklauso nuo impulso energijos įtekio, būtų galima apskaičiuoti pažaidos tikimybę ties bet koku energijos įtekiu ir pagal priklausomybę įvertinti pagrindinius faktorius, turinčius daugiausiai įtakos lazerinei pažaidai kiekviename energijos įtekio diapazone.

**Darbo tikslas:** pritaikyti ir optimizuoti ultrasparčiosios spektroskopijos tyrimų metodus lazerio indukuotos pažaidos slenksčio nustatymui optinėse terpėse ir dielektrinėse dangose bei iširti akumuliacinių reiškinių įtaką pažaidos slenksčiui.

# 1. LAZERINĖ PAŽAIDA

Optinio elemento pažeidimas – bet koks išorinis poveikis elementui, po kurio pakinta numatytos jo optinės savybės. Poveikio prigimtis gali būti, pavyzdžiui, cheminė arba terminė, tačiau dažniausiai pasitaikanti – mechaninė. Įprastai tai yra įvairūs paviršiaus ar dangos įbrėžimai, įskilimai arba tiesiog purvas, tačiau gali pasitaikyti ir pačio elemento tūrio įtrūkimai arba vidiniai įtempiai atsiradę gamybos metu. Šiame darbe bus nagrinėjami optinės prigimties, o dar tiksliau – lazerinės spinduliuotės sukelti optinių elementų pažeidimai, nes būtent jie, eliminavus anksčiau išvardintus išorinius faktorius, apibrėžia optinių komponentų veikimo ribas.

## Lazerio indukuotos pažaidos slenkstis

Tarptautinis ISO standartas (ISO 21254-1:2011) optinio elemento paviršiaus pažaidą apibrėžia kaip negrįžtamą, lazerinės spinduliuotės sąveikos su bandinio paviršiumi indukuotą paviršiaus charakteristikų pakitimą, kuris gali būti stebimas taikant pasirinktą pokyčių registravimo metodiką [2]. Pažeidimas gali įvykti ant bet kurio bandinio optinio paviršiaus, o taip pat ir optinio elemento tūryje, pavyzdžiui lazeriniuose strypuose, dichroiniuose veidrodžiuose, prizmėse ar kituose pralaidume veikiančiuose optiniuose elementuose, ypač jeigu yra sudaromos sąlygos lazerinės spinduliuotės fokusavimuisi. Atspindyje veikiančių optinių elementų, kaip metaliniai ar dielektriniai veidrodžiai, pažeidimo tikimybė tūryje bendru atveju yra kelis kartus mažesnė nei paviršiuje [3,4].

Pagrindinis lazerinę pažaidą charakterizuojantis parametras yra lazerio indukuotos pažaidos slenkstis (LIPS), kuris parodo, koks maksimalus kiekis lazerinės spinduliuotės gali kristi į bandinio paviršių su nuline tikimybe, kad įvyks pažeidimas. Spinduliuotės kiekis įprastai išreiškiamas energijos įtėkiu:

$$F = \frac{E_1}{S}, \quad (1)$$

kur  $E_1$  – vieno impulso energija,  $S$  – pluošto plotas.

Bendru atveju faktorius, nuo kurių priklauso LIPS, galima išskirstyti į lazerinės spinduliuotės parametrus, medžiagos parametrus ir aplinkos sąlygas. Taip pat galima įvertinti optinės dangos parametrus, jeigu optinis komponentas yra ja padengtas. Toliau bus plačiau apžvelgti visi šie aspektai.

### 1.1 Lazerinės spinduliuotės parametrai

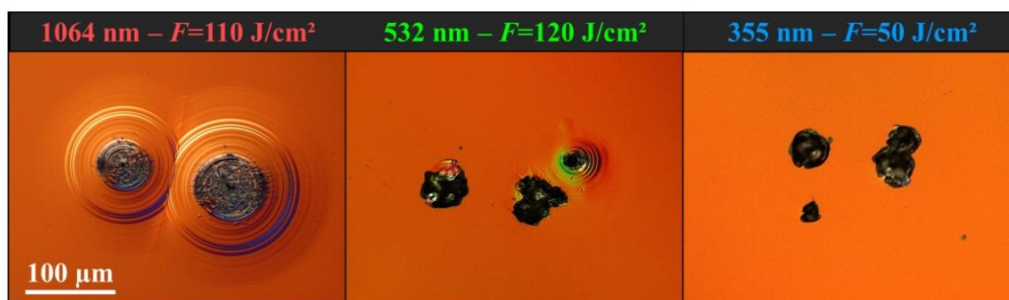
Daugelyje eksperimentinių tyrimų yra pademonstruota, kad medžiagos pažaidos slenkstis auga didėjant į ją krentančio impulso trukmei [5–7], ką patvirtina ir teoriniai skaičiavimai. Ši tendencija pačioje lazerių eros pradžioje taip pat buvo pastebėta moduluotos kokybės lazerinių osciliatorių ir

stiprintuvų lazeriniuose strypuose [8], stebint juose besiformuojančius įtrūkimus. Teorijoje LIPS priklausomybė nuo impulso trukmės apytiksliai aprašoma kaip šaknis iš impulso trukmės  $\tau$  [9], kai pažeidimas nagrinėjamas griūtinės jonizacijos režime. Tai galima išvesti iš to, kad medžiagos dvifotonė sugertis priklauso nuo spinduliuotės intensyvumo kvadrato [10], kas taip pat yra patvirtinta praktiniais eksperimentais [11]. Pasikeitus dominuojančiam pažaidos mechanizmui, ši priklausomybė nebegalioja, nors LIPS ir toliau krenta mažėjant impulso trukmei  $\tau$ .

Atskirai LIPS gali būti nurodoma ir nuolatinės veikos lazerinei spinduliuotei. Tokiu atveju tipinė pažeidimo priežastis – medžiagos perkaitimas [12,13]. Esant nuolatiniam lazerio spinduliuotės srautui medžiaga paprasčiausiai nespėja išsklaidyti šilumos optinio elemento paviršiuje ar tūryje, kam turi bent trumpus laiko intervalus impulsinės spinduliuotės atveju, todėl gali tiesiog pradėti lydėtis ar net užsidegti. Ilgėjant impulsų trukmei lazerinės pažaidos slenkstis tampa vis mažiau deterministinis (kaip būtų pavyzdžiui su femtosekundiniais impulsais) ir pats pažaidos mechanizmas pradeda panašėti į nuolatinės veikos sukeltą medžiagos perkaitimą. Augant impulsų pasikartojimo dažniui taip pat stebimas lazerinės pažaidos mechanizmo panašėjimas į indukuojamą nuolatine spinduliuote [14,15].

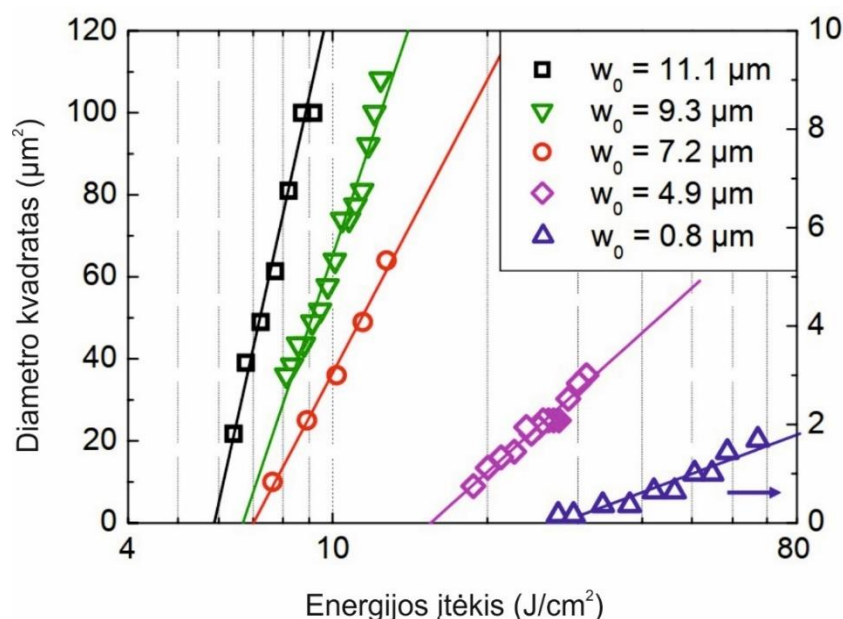
LIPS priklausomybė nuo bangos ilgio  $\lambda$  yra sudėtingesnė nei nuo impulso trukmės  $\tau$ , tačiau bendru atveju taip pat krenta mažėjant bangos ilgiui [16–18]. Kristalinėse medžiagose, tokiose kaip puslaidininkiai ar dielektrikai, turinčiose draustinių juostų tarpą tarp valentinės ir laidumo juostos, pavienio fotono energija, t.y. jo bangos ilgis, bus faktorius, nusakantis, ar fotonas gali perkelti elektroną į sužadintą būseną. Taigi nuo bangos ilgio  $\lambda$  priklauso ar sugertis bus tiesinė, ar netiesinė, tačiau abiem atvejais medžiagoje bus sugeneruota laisvųjų elektronų, kurių tolimesnė dinamika medžiagoje gali nulemti optinį jos pažeidimą [19]. Laisvieji elektronai, pavyzdžiui, gali toliau sugerti fotonų energiją ir ją išnaudoti kitų elektronų sužadinimui, po to indukuoti ir griūtinį pažeidimo efektą. Visi šie procesai, nagrinėjant juos atskirai, savaip priklauso nuo bangos ilgio, todėl galutinėje LIPS priklausomybėje nuo bangos ilgio turime tarsi jų superpoziciją, kuri nėra aproksimuojama paprasta ir universalia funkcija. Be to, priklausomai nuo bangos ilgio gali skirtis ir pati pažeidimų morfologija (1 pav.) kaip pademonstravo Chambonneau et al. [20]. Todėl tiriant optinių elementų pažaidos slenksčius yra prasminga žinoti, su kokio bangos ilgio spinduliuote jie bus naudojami ir pagal tai pritaikyti LIPS nustatymo sąlygas.

Pluošto diametro  $d$  įtaka pažaidos slenkščiui iš pirmo žvilgsnio yra labai aiški ir vienareikšmiška, nes energijos įtėkis (1) formulėje atvirkščiai priklauso nuo pluošto ploto, taigi pluošto diametro kvadrato. Todėl energijos įtėkis, ties kuriuo indukuojama optinio elemento lazerinė pažaida, turėtų būti proporcingas vienetui iš diametro kvadrato. Tačiau praktiškai negalima griežtai vadovautis vien tokia išraiška, nes augant pluošto diametru auga ir tikimybė, kad jis pataikys į optinio



1 pav. Nomarskio skirtuminės interferencijos mikroskopijos metodu užfiksuotos lazerinės spinduliuotės pažeidimų morfologijos lydyto kvarco paviršiuje ties skirtingais bangos ilgiais ir energijos įtėkiais [20].

elemento paviršiuje arba ant jo dangos esantį nešvarumą, įbrėžimą ar bet kokią kitą defektą, kuris taps pažeidimo prekursoriumi. Tai buvo pademonstruota įvairiuose LIPS priklausomybės nuo pluošto diametro tyrimuose [21–24], kuriuose sutariama, kad esant mažesniai pluošto diametrai optiniai bandiniai yra pažeidžiami prie didesnių energijos įtėkių, nei esant dideliui pluošto diametrai. 2 pav. pavaizduota pažeidimo diametro kvadrato priklausomybė nuo energijos įtėkio žadinant bandinį skirtingo diametro pluoštais – jų aproksimacijų tiesių susikirtimas su abscisių ašimi apibrėžia pažaidos slenkstį, kuris auga mažėjant pluošto diametrai. Dėl šios priežasties ir ISO standarte (ISO 21254-2:2011) yra rekomenduojama LIPS tyrimo eksperimentus atlikti su kuo mažesniu pluošto diametrai, kad gaunami rezultatai kuo geriau atsikartotų tarp skirtingų bandinių ir išoriniai faktoriai turėtų kuo mažiau įtakos pažaidos slenkščio vertei [25]. Iš grynai matematinės pusės svarbu nepamiršti, jog standartiškai lazeriniai eksperimentai yra atliekami su Gauso profilio pluoštais, todėl reikia nurodyti, kokiame aukštyje maksimalios galios atžvilgiu yra vertinamas pluošto diameteras.



2 pav. Lazerinio pažeidimo kraterio lydyto kvarco paviršiuje diametro kvadrato priklausomybė nuo energijos įtėkio žadinant bandinį skirtingo diametro  $w_0$  pluoštais. Pažaidos slenkstį kiekvienam pluošto diametrai apibrėžia taškas, kuriame rezultatų tiesinė aproksimacija kerta abscisių ašį. Adaptuota iš [22].

Taigi lazerinės pažaidos slenkstis priklauso nuo lazerio generuojamos spinduliuotės parametru: bangos ilgio, impulso trukmės ir smailinės galios [19]. Eksperimentiniai rezultatai rodo, kad pažaidos slenkstis krenta mažėjant bangos ilgiui ir kartu priklauso nuo medžiagos draustinių juostų tarpo. Lazerinės pažaidos slenkstis auga proporcingai kvadratinei šakniai iš impulso trukmės [26]. Taip pat, kadangi energijos įtėkio vienetai yra  $[J/cm^2]$  svarbus ir sufokusuoto į tiriamą bandinio vietą pluošto diametras, kuris apsprendžia šviesos ir medžiagos sąveikos plotą optinio elemento paviršiuje arba tūri bandinio viduje. Spinduliuotės parametrus galime valdyti ir apytiksliai numatyti, koks bus LIPS dydis nedaug juos pakeitus pasinaudojant vadinamąja mastelio keitimo formule [27]:

$$LIPS(\lambda_2, \tau_2, d_2) \approx LIPS(\lambda_1, \tau_1, d_1) \cdot \left(\frac{\lambda_2}{\lambda_1}\right) \cdot \sqrt{\frac{\tau_2}{\tau_1}} \cdot \left(\frac{d_1}{d_2}\right)^2. \quad (2)$$

Čia  $\lambda_1, \tau_1, d_1$  – žinomo LIPS bangos ilgis, impulso trukmė ir pluošto diametras, o  $\lambda_2, \tau_2, d_2$  – ieškomo LIPS bangos ilgis, impulso trukmė ir pluošto diametras. Tačiau mastelio keitimo formulė nėra absoliuti ir tinka tik perskaičiavimams kai ieškoma impulso trukmė  $\tau$  ne daugiau nei 3 kartus, o diametras  $d$  ne daugiau kaip 2 kartus skiriasi nuo žinomų parametru. Bangos ilgis neturėtų nuo žinomo skirtis daugiau nei per 5%. Visi šie apribojimai atspindi lazerinio pažeidimo tikimybinę prigimtį bei tai, kad esant skirtingiems parametrms pažaidą indukuoti gali skirtingi fizikiniai mechanizmai, todėl jų tiesioginis ir viena paprasta išraiška apribotas lyginimas nėra galimas.

## 1.2 Kaupiamieji reiškiniai

Kaip atskirą lazerinės spinduliuotės parametru atvejį reikėtų panagrinėti krentančių impulsu skaičių. Šis faktorius lazerinės spinduliuotės indukuoto optinio pažeidimo slenksčiui yra svarbus grynai iš praktinės pusės – realybėje optinėse sistemose elementai eksponuojami spinduliuote turi atlaikyti daugybę pavienių impulsu ir su kiekvienu iš jų sąveikauti visiškai identiškai. Būtent į LIPS priklausomybę nuo optinio komponento ekspozicijos daugeliu impulsu ir dėl atsirandančius reiškinius yra sukonzentruoti šio darbo rezultatų dalyje pristatomi eksperimentai. Daugelyje tyrimu, nagrinėjančių šią priklausomybę buvo nustatyta, kad eksponavus bandinį dideliu impulsu kiekiu jį galima pažeisti ir jeigu pavienio impulso energijos įtėkis yra mažesnis nei nustatytas LIPS [28–30].

Eksperimento metu eksponuojant bandinį impulsu vora kiekvienas iš jų lokaliai keičia medžiagos optinės savybes – šio poveikio stiprumas ir tikimybė priklauso nuo kiekvieno iš impulsu energijos. Dėl pakitimu gali mažėti medžiagos pažaidos slenkstis, augti sugertis ar didėti netiesinis lūžio rodiklis. Visa tai ir yra vadinama medžiagos nuovargio efektu, akumuliacija arba kaupiamaisiais reiškinais [31], ko pasekoje impulso energijos pradeda užtekti, kad medžiaga būtų pažeista. Šių reiškiniu stebėjimas yra itin sudėtingas, nes registruojant pasirinktu medžiagos parametru pokytį,

kuris klasifikuojamas kaip pažeidimas, reikia tuo pačiu metu stebėti dar bent vieną papildomą parametą, kuris kažkaip kistų augant impulsų skaičiui, tačiau reikšmingas pokytis sutaptų su pagrindinio stebimo parametro pažeidimo indikacijos momentu. Atliekant tyrimą sistema turi būti maksimaliai stabili ir visos sąlygos atsikartojančios tarp skirtingų matavimo iteracijų, kad gaunamų rezultatų išsibarstymas būtų nulemtas tik tikimybinės optinio pažeidimo prigimties. Dėl šios prigimties, pats išsibarstymas gali augti mažinant vieno impulso energiją. Taigi, artėjant prie realistinių lazerinės spinduliuotės intensyvumo verčių daugelio impulsų indukuoto pažeidimo slenkstis gali turėti daug didesnę neapibrėžtumą nei tiriant pavienio impulso pažaidos slenkščio priklausomybę nuo energijos įtėkio.

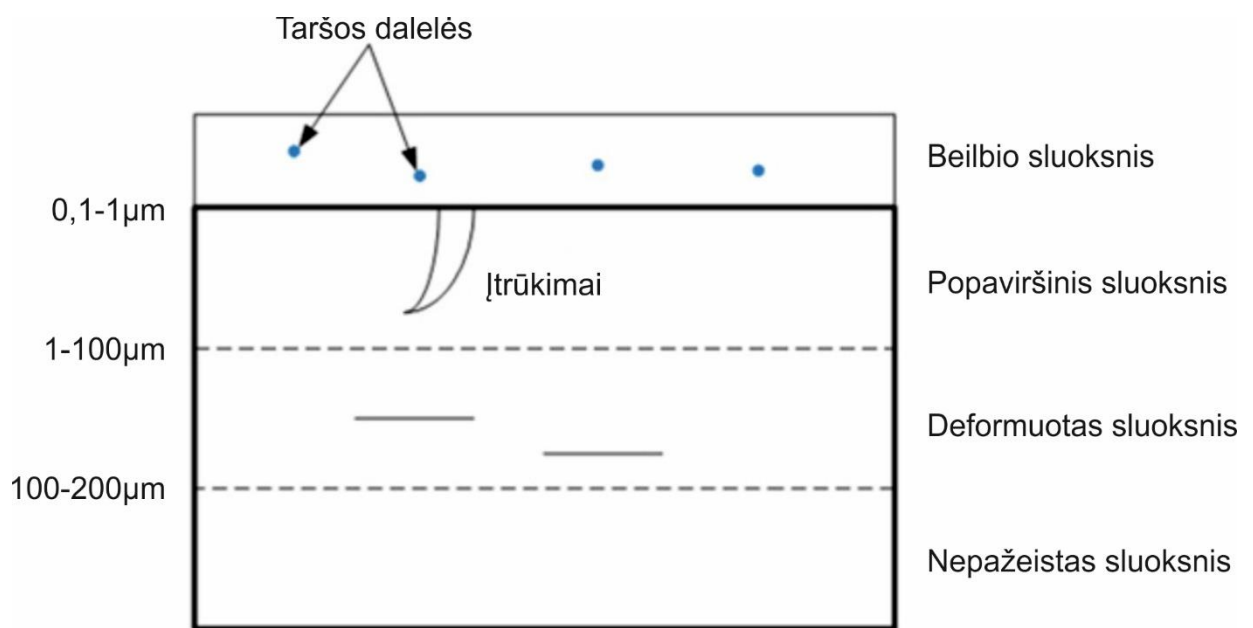
### 1.3 Medžiagos parametrai

Lazeriniam pažeidimui įvykti į tiriamą bandinį krentanti spinduliuotė pirmiausia privalo būti sugerama. Dielektrinėse terpėse fotonus sugeria elektronai, kurie gavę reikiamą kiekį energijos yra perkeltami iš valentinės į laidumo juostą ir, kaip jau minėta anksčiau, tolimesnė jų dinamika medžiagoje gali nulemti jos optinį pažeidimą. Taigi pažaidos slenkstis turėtų priklausyti nuo medžiagos draustinių juostų tarpo. Tačiau lazerinę spinduliuotę gali sugerti ir medžiagos tūryje esantys netobulumai, kurie tampa pažeidimo pirmtakais. Tai gali būti įvairios dislokacijos, spalviniai centrai, kitų medžiagų priemaišos bei kiti defektai [32–35]. Tai yra itin opi ir dėl to plačiai tyrinėjama problema kristaluose, kurių struktūros menkiausias defektas gali tapti pažaidos prekursoriumi [36–40]. Šiuo metu medžiagų paruošimo ir apdirbimo technologijos yra pažengusios pakankamai, kad dažniausiai optinių elementų gamybai naudojamos medžiagos būtų paruošiamos beveik absoliučiai be priemaišų ir vidinių defektų. Jei medžiagos kokybė yra aukšta, galutinių gaminių tūrio pažaidos slenkstis priklauso tik nuo pačios medžiagos ir jos apdorojimo gaminant optinius elementus.

Analogiška situacija sutinkama optinių elementų paviršiuje. Kaip jau minėta anksčiau, paviršiaus pažaidos tikimybė yra didesnė nei elemento tūrio, ką nulemia paviršiaus mikro įtrūkimai, poros ar subraižymai [41]. Šie netobulumai iškraipo krentančios spinduliuotės elektrinio lauko skirstinį ir taip gali jį lokaliai sustiprinti. Dėl to ir atsiranda optinis pažeidimas, arba kaip ir elemento tūryje gali būti spinduliuotės sugerties centrais. Ši problema yra itin svarbi ir dengiant optines dangas – net turint mažai sugeriančią interferencinę dangą su aukštu LIPS, paviršiaus ant kurio ji bus dengiama šiurkštumas ir visi ten esantys defektai gali sumažinti dangos pažaidos slenkstį. Kai dengimas vyksta ne pačios dengimo metodikos paklaidų ribose, o ant pagrindo su paviršiaus defektais – sumodeliuota dangos struktūra yra iškraipoma ir ji gali nebeatlikti kokybiškai savo spinduliuotės valdymo funkcijų. Kaip ir grynios medžiagos paviršius, ji būti pažeidžiama prie mažesnių energijos



įtėkių. Realiu atveju neįmanoma gaminant optinius elementus išgauti tobulą paviršiaus struktūrą ir visiškai jos nepažeisti, gaminant optinį komponentą, tačiau optinius paviršius galima valyti ir perpoliruoti specialiomis metodikomis, kurios padeda sumažinti paviršiaus defektų tankį taip gerinant LIPS [42–44]. Deja, tai nėra absoliučiai visos paviršiaus defektų problemas išsprendžiantis sprendimas. Poliravimas, savo ruožtu, suformuoja elemento paviršiuje amorfinį sluoksnį, ką 1902–1921 metais atlikdamas eksperimentus ir stebėdamas jų rezultatus optiniu mikroskopu nustatė seras George Beilby [45]. Jo eksperimentai parodė, kad nors poliruojant paviršių su švelniausia prieinama medžiaga jis gali atrodyti idealiai lygus ir be defektų stebėjimo paklaidų ribose, chemiškai nuėsdinus paviršių, t.y. nebenaudojant mechaninio poveikio kaip poliravimo metu, atsiveria poliravimo metu susidarę popaviršiniai mikroįtrūkimai bei kiti defektai (3 pav.). Šis paviršinis sluoksnis buvo pavadintas Beilby sluoksniu jį aprašiusio mokslininko garbei. Deja, net jei paviršių apdirbimo technologijos būtų pažengusios tiek, kad paviršiai būtų paruošti iki elemento tūrio LIPS lygio, negalėtume išvengti aplinkos sąlygų įtakos, kuri stipriau ar silpniau paveikia paviršius. Todėl optinių elementų paviršių pažaidos slenkstis visuomet bus žemesnis nei tūrio.



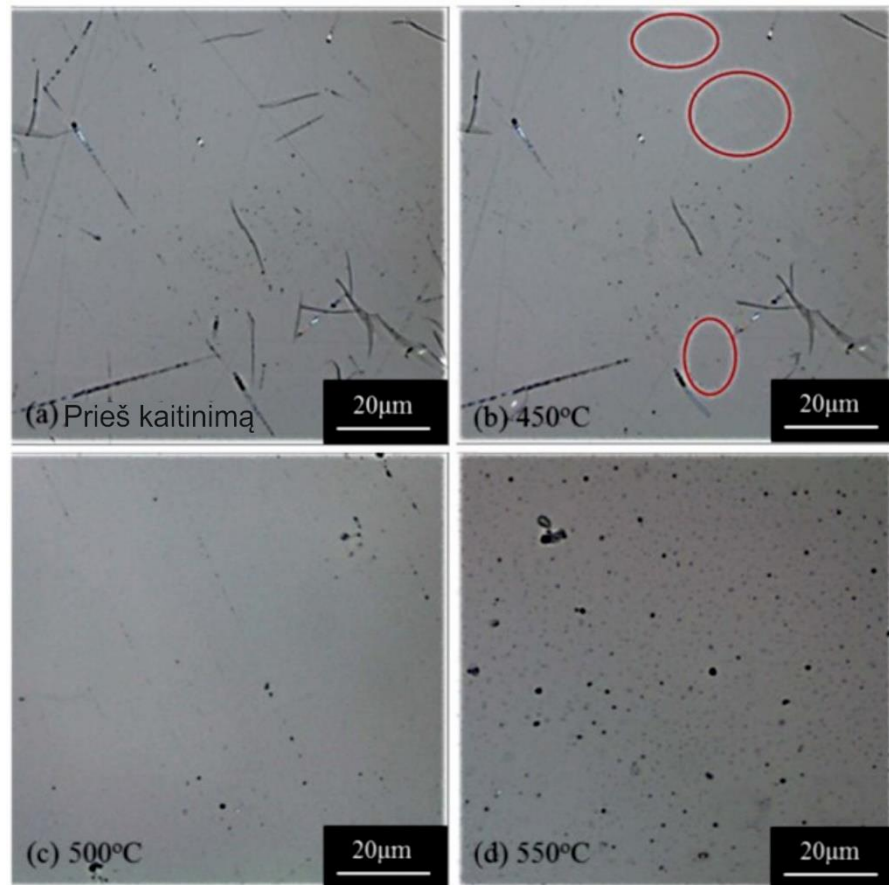
3 pav. Medžiagos paviršiaus sluoksnių po mechaninio poliravimo scheminis atvaizdavimas. Adaptuota iš [46].

#### 1.4 Aplinkos sąlygos

Optinio elemento pažaidos slenkstis priklauso ir nuo to, kokioje aplinkoje jis yra naudojamas. Atliekant testus su optiniais elementais, skirtais veikti kosmose vakuomo sąlygomis, buvo nustatyta, kad elemento pažaidos slenkstis krenta mažėjant aplinkos slėgiui [47]. Taip pat buvo stebima kitokia elementų nuovargio dinamika augant impulsų skaičiui: energijos įtėkis pradėjo mažėti vis labiau tiesiškai ir pasiekti žemesnes vertes krentant slėgiui, palyginus su atmosferos slėgiu, kuriam esant

dirbame Žemėje. Šie rezultatai yra aiškinami oro ir vakuomo šiluminio laidumo skirtumais – kadangi medžiagai perduodamas šilumos kiekis, elementui kaistant dėl krentančios spinduliuotės, išlieka vienodas, skirtumą įneša ta šiluminės energijos dalis, kurią galima išsklaidyti į aplinką ir ji ženkliai mažėja krentant slėgiui. Savo ruožtu, oro jonizacijos, dar vadinamos „oro pramušimu“, slenkstis yra bent kelis kartus didesnis nei tipinės optinių elementų gamybai naudojamos medžiagos, kaip lydytas kvarcas, todėl jis neturi įtakos pačios medžiagos LIPS [48]. Ši iš pirmo žvilgsnio intuityvi išvada leidžia galutinai patvirtinti, kad elemento buvimas kontakte su oru tik padidina jo pažaidos slenkstį, išskyrus tą atvejį kai oras būtų jo paviršiaus taršos šaltinis. Iš principo visa tai turėtų galioti ir kitų dujų aplinkose, kol jų jonizacijos slenkstis nėra žemiau elemento lazerinės pažaidos slenksčio. Lyginant medžiagų pažaidos nanosekundine spinduliuote slenksčius ore ir vandenyje, buvo nustatyta, kad vandenyje LIPS yra apie pusantro karto didesnis nei ore [49]. Tačiau, šio santykio dydžio negalima paaiškinti taikant įprastą šilumos sklaidos dėl terpės šiluminio laidumo modelio, kaip būtų dujinės aplinkos atveju, todėl modelio skaičiavimuose reikėtų įskaityti įvairius papildomus faktorius, kaip spinduliuotės sklaida nuo terpių sandūros bei išgarinto vandens įtaka lokalaus slėgio pokyčiui.

Labiausiai Žemės paviršiuje kintantis aplinkos faktorius veikiausiai yra temperatūra. Jau žinome, kad optinių elementų LIPS priklauso nuo oro šiluminio laidumo, kuris auga kylant temperatūrai [50,51]. Taigi, pažaidos slenkstis turėtų būti didesnis prie aukštesnių aplinkos temperatūrų, nes karštam orui yra lengviau perduoti šiluminę energiją. Kita vertus, augant temperatūrai krenta oro tankis, todėl turėtų mažėti ir jo slėgis, taigi LIPS padidėjimas dėl šiluminio laidumo gali būti kompensuotas. Lazerinių pažeidimų tyrimai stebint būtent slenksčio priklausomybę nuo temperatūros, oro šiluminio laidumo ir jo tankio nėra atliekami, nes praktiniuose taikymuose temperatūros svyravimai nėra tokie dideli, kad turėtų reikšmingos įtakos optinių elementų LIPS. Tačiau temperatūra gali ir kitaip prisidėti prie LIPS. Wang et al. darbe buvo pademonstruota, kad BK-7 optinį stiklą keturias valandas pakaitinus 450°C temperatūroje jo pažeidimo slenkstis, kai spinduliuotės bangos ilgis  $\lambda_0 = 355nm$ , impulso trukmė  $\tau = 9,2ns$  padidėja vidutiniškai  $87J/cm^2$  [52]. Šis rezultatas paaiškinamas Beilby sluoksnyje esančių defektų, atsiradusių poliravimo proceso metu, „užgydymu“ – medžiaga aplink įtrūkimus ar poras yra lokaliai perlydoma ir nors tai nėra pilnai kontroliuojamas procesas, tinkamai parinkus temperatūrą ir kaitinimo laiką galima smarkiai pagerinti optinio elemento paviršiaus lazerinės pažaidos slenkstį, priartinant jį prie tūrinio slenksčio lygio. Kaitinimo rezultatai pavaizduoti 4 pav. (a)-(d) dalyse. BK-7 optinio stiklo paviršiaus morfologijos pokytis prieš kaitinimą ir po jo skirtingose temperatūrose, užfiksuotas atominės jėgos mikroskopu, akivaizdžiai parodo, kad egzistuoja optimali temperatūra, kuriai esant optinio elemento paviršiuje esantys įtrūkimai ar įbrėžimai gali būti perlydyti ir taip „užgydyti“.



4 pav. BK-7 optinio stiklo paviršiaus morfologija, užfiksuota atominės jėgos mikroskopu, prieš kaitinimą ir pakaitinus bandinį skirtingose temperatūrose. Adaptuota iš [52].

Prie medžiagos parametrų išnagrinėtą paviršiaus defektų įtaką optinių elementų LIPS galima papildyti nuo pačios medžiagos nepriklausančiu faktoriumi – aplinkos tarša. Tai iš principo būna arba kietosios dalelės nusėdančios iš oro ar tiesiog dulkės, arba lakios medžiagos, kurios kondensuojasi ant optinio elemento paviršiaus [53,54]. Dulkės yra dažnai pasitaikantis taršos šaltinis lazerinėse sistemose, kurios yra atviros, pavyzdžiui mokslinėje laboratorijoje ant eksperimentinio stalo sukonstruotas laikinas matavimų stendas. Tačiau ir uždaroje sistemoje, kaip lazeriai ar lazeriniai stiprintuvai dulkės gali atsirasti jeigu prietaisas buvo surenkamas ne specialiai tam pritaikytoje švarioje patalpoje su oro valymu. Be to, pats didelio intensyvumo lazerio pluoštas gali veikti kaip optinis pincetas, pritraukiantis dulkes prie elemento paviršiaus. Taip pat, lazeriniuose prietaisuose optika gali būti užteršta lakiomis medžiagomis, jei judančios detalės suteptos per dideliu kiekiu tepalų ar reikiamose vietose panaudotas per didelis klijų kiekis – korpuso viduje kylant temperatūrai, medžiagų perteklius gali pradėti garuoti ir nusėsti ant kitų komponentų paviršių. Tam tikrais atvejais, turint optinį elementą lygiagrečiais paviršiais, antrojo (spinduliuotės sklaidimo atžvilgiu) paviršiaus pažeidimai gali įvykti dėl ant pirmojo paviršiaus esančios taršos dalelių [55]. Jos gali ne sugerti spinduliuotę kaip pažeidimo prekursoriai, o ją išsklaidyti taip, kad fokusuotųsi į galinį paviršių ir jį pažeistų. Paviršiaus tarša kietosiomis dalelėmis yra aktuali net atliekant pačius LIPS matavimo

eksperimentus. Jeigu pažeidimo momentu medžiaga yra išabliuojama – jos skeveldros gali užteršti aplink esantį paviršių ir jeigu kitas tyrimų taškas nebus pasirinktas pakankamu atstumu, yra tikimybė, kad LIPS jau bus mažesnis dėl pačio matavimo metu atsiradusios taršos. Tai taip pat galioja molekuliniam lygmenyje, atliekant matavimus iki pažeidimo slenksčio, kol dar nėra realios medžiagos abliacijos [56]. Apibendrinant aplinkos taršos įtaką optinių komponentų LIPS galima teigti, kad bet kokia paviršiaus tarša tik didina pažeidimo tikimybę, taigi mažina atsparumo lazerinei spinduliotei slenkstį. Todėl optinių komponentų valymas prieš statant juos į sistemą, taip pat uždary sistemų surinkimas tam tinkamomis sąlygomis, yra kritiškai svarbūs veiksniai padedantys apsaugoti optinius elementus nuo jų pažeidimo lazerine spinduliuote [57,58].

### 1.5 Optinių dangų parametrai

Optiniai elementai dažniausiai būna dengiami įvairiomis optinėmis (dielektrinėmis arba metalinėmis) dangomis, siekiant valdyti optinio elemento savybes. Pavyzdžiui, skaidrinančios dielektrinės dangos su itin mažu atspindžio koeficientu padeda sistemoje patirti mažesnius spinduliuotės nuostolius, atsirandančius dėl Fresnelio atspindžių nuo grynos medžiagos paviršiaus. Iš kitos pusės, interferencinės dangos gali būti su itin aukštu atspindžio koeficientu, kas taip pat padeda mažinti spinduliuotės nuostolius sistemoje, nes pluoštą nukreipiantys optiniai komponentai įneša minimalius nuostolius dėl krypties pokyčio. Metalinės dangos negali pasigirti tokiais dideliais atspindžio koeficientais kaip dielektrinės, tačiau įprastai jos apima daug didesnę bangos ilgių diapazoną, jų atspindžio koeficientas beveik nepriklauso nei nuo šviesos kritimo kampo, nei nuo poliarizacijos, todėl yra patogesnės naudoti sistemose, kur nereikia itin aukšto atspindžio koeficiento ar dažnai keičiamas bangos ilgis. Taigi optinė danga tampa elemento dalimi, ji gali taip pat būti pažeista kaip ir pats pagrindas ir nebeatlikti savo funkcijos. Akivaizdu, kad optinės dangos atsparumo lazerinei pažeidimai slenkstis tampa dar vienu ribojančiu faktoriumi siekiant valdyti aukštos smailinės galios lazerinę spinduliuotę [59]. Todėl toliau trumpai aptarsime pačios optinės dangos parametrus bei dengimo proceso faktorius, kurie turi įtaką jos LIPS, koncentruojantis į dielektrines dangas, nes būtent jų pažeidimo slenkščiai bus tiriami šiame darbe.

Analogiškai optinio elemento pagrindui, dielektrinėms dangoms naudojamos medžiagos pirmiausia turi nesugerti lazerinės spinduliuotės. Dėl to, skirtingiems bangos ilgių diapazonams skirtoms dangoms naudojamos atitinkamos medžiagos – jų pasirinkimas yra tikrai platus ir priklauso nuo pačios dengimo technikos, kurios bus apžvelgtos kiek vėliau. Pavyzdžiui, regimajam bei infraraudonajam spektro diapazonui kelios iš dažniausiai naudojamų medžiagų yra silicio dioksidas  $SiO_2$ , titano dioksidas  $TiO_2$ , aliuminio trioksidas  $Al_2O_3$  bei tantalio pentoksidas  $Ta_2O_5$  [60–63] arba

iš fluoridų: magnio fluoridas  $MgF_2$ , lantano fluoridas  $LaF_3$  ir aliuminio fluoridas  $AlF_3$  [64–66]. Viena dažniausiai sutinkamų medžiagų ultravioletiniame spinduliuotės diapazone yra hafnio dioksidas  $HfO_2$  [67–69], naudojamas dėl didelio draustinių juostų tarpo ir mažos, palyginti su regimajame spektro diapazone naudojamomis medžiagomis, sugerties artimajame bei viduriniame UV diapazone. Be abejo, nesvarbu kokiam spektriniam diapazonui dielektrinė danga yra suprojektuota, priemaišos dengiamose medžiagose gali tapti sugerties centrais, taigi ir lazerinių pažeidimų prekursoriais. Dėl šios priežasties medžiagų, iš kurių bus dengiamos optinės dangos, ruošiniai turi būti itin aukšto grynumo ir gali siekti iki 99,999% [70–72].

Dielektrinės dangos dengimo metodika taip pat gali turėti įtakos dangos pažaidos slenksčiui [73]. Tai apima tokius faktorius kaip dengimo kameros švarumas, dėl elemento paviršiaus ir pačios dangos taršos, kameros temperatūra, kurioje dengiama struktūra gali gautis tvirčiausia bei tiksliausio reikiamo storio, ir įvairius kitus dangų dengimo mokslo disciplinoje nagrinėjamus aspektus. Nesigilinant į dangų garinimo metodikų principus ir jų techninius niuansus galime apžvelgti dažniausiai naudojamų metodų tinkamumą dengti aukšto pažaidos slenksčio dangas. Vienas populiariausių metodų, šiluminis garinimas elektronų pluoštu, yra dažnai taikomas būtent siekiant padengti didesnio LIPS dangas, ypač infraraudonajame spektro diapazone [74–76]. Tai pasiekti leidžia maži, palyginti su kitomis garinimo metodikomis, pačios dangos įtempiai, dėl ko auga tikimybė, kad apšvietus optinį elementą aukšto smailinio intensyvumo spinduliuote dangoje neatsiras mikroįtrūkimų ir dėl to pažeidimų. Taip pat dėl santykinai mažo tankio šiluma interferencinėje dangoje greičiau išsklaidoma, kas taip pat mažina pažaidos tikimybę jau dėl lokalaus perkaitimo. Garinimą elektronų pluoštu asistuojant jonų srove arba ja apdirbant elementą po garinimo, pasiekiami dar geresni LIPS rezultatai cirkonio dioksido  $ZrO_2$ , silicio dioksido  $SiO_2$  ir hafnio dioksido  $HfO_2$  dangoms [77–80]. Jonapluoščio dulkinimo procesas, kai medžiagos šiluminio garinimo principas pakeičiamas paviršiaus suardymu vakuume jį bombarduojant įgreitintų jonų pluoštu, yra lėtesnis nei garinimas elektronų pluoštu, tačiau leidžia padengti daug sudėtingesnes dangas. Dažniausiai tai būna itin aukšto atspindžio koeficiento veidrodžiai, čirpuoti veidrodžiai ar filtrai su precizišku spektriniu atskyrimu, tačiau literatūroje galima rasti aprašytų eksperimentų, kuriuose bandoma išgauti kuo didesnio LIPS dangas naudojant jonapluoščių dulkinimą [81–84]. Magnetroninio dulkinimo metodu padengtų dangų savybės yra labai panašios į jonapluoščio dulkinimo, tačiau dėl didelės pavienio proceso kainos nėra atlikta daug mokslinių tyrimų siekiant aukštesnio pažeidimo slenksčio dengiant dangas šia technologija [85–87]. Taigi dengiant aukšto atsparumo lazerinei spinduliuotei optines dangas optimaliausia būtų rinktis šiluminio garinimo elektronų pluoštu su jonų srovės asistavimu metodiką. Tačiau, esant parametru, kuriuos gali užtikrinti tik kiti dangų dengimo metodai, poreikiui galima juos taikyti kontroliuojant pačio proceso kokybę ir apribojant dengimo įrenginio keliamą taršą.

Itin jautri lazerinei pažaidai gali būti ir sandūra tarp optinio elemento pagrindo ir dielektrinės dangos. Kadangi dangos dengimo procesai įprastai yra išdirbti iki maksimalaus įmanomo dengimo tolygumo, yra maža tikimybė, kad pačios dangos pirmųjų padengtų sluoksnių netolygumas sudarytų sąlygas lazeriniam pažeidimui įvykti. Todėl tikėtina, kad dangos ir pagrindo sandūros pažeidimo prekursoriais bus jau anksčiau aptarti pagrinduko paviršiaus defektai ir tarša [88,89]. Dėl paviršiaus taršos prieš pat dangos dengimą elementai turi būti nuvalyti specialiomis priemonėmis. Valymas dažniausiai yra atliekamas pasitelkiant ultragarsą – specialiuose įrenginiuose optika yra plaunama vonelėse, kuriose jas veikia ultragarso bangos, kurių dažnis tipiškai yra ne mažesnis nei  $f = 40kHz$ , vandenyje sudarančios oro burbuliukus, kuriems sprogstant prie elemento paviršiaus yra suskaldomi ir taip pašalinami ant jo esantys nešvarumai. Shen et al. pademonstravo, kad tinkamai parinkus plovimo parametrus dažniausiai praktikoje taikomų lydyto kvarco ir BK-7 stiklo pagrindų paviršių LIPS gali padidėti daugiau nei du kartus [90]. Taigi optinio pagrindo paruošimas dengimo procesui vienareikšmiškai yra labai svarbus galutinio elemento atsparumui lazerinei spinduliutei.

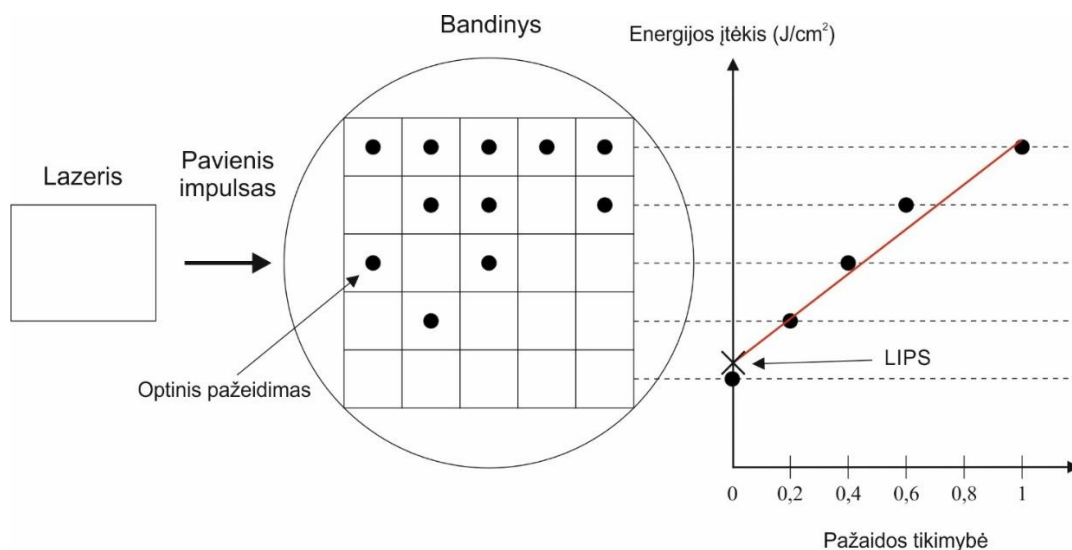
## 2. LAZERINĖS PAŽAIDOS SLENKSČIO MATAVIMAS

LIPS vertės nustatymas susideda iš dviejų dalių: lazerinės pažaidos indukavimo ir jos registravimo. Pagal ISO standarto lazerio indukuotos pažaidos apibrėžimą jos registravimui galima pasirinkti bet kokį metodą, kuris tenkina užsibrėžtus matavimo tikslumo reikalavimus. Įprastai tai yra daroma su mikroskopu, bene populiariausias iš jų – Nomarskio, ieškant vizualaus paviršiaus struktūros pokyčio po to kai ta zona buvo eksponuojama lazerine spinduliuote. Taigi iš principo yra stebima, ar po lazerio impulso sąveikos su medžiaga joje atsiranda pakitimų, kurie šviesą sklaidytų kitaip nei medžiaga iki sąveikos. Tokiam šviesos sklaidos pokyčio stebėjimui šiame darbe yra pasitelkiami ultrasparčiosios spektroskopijos matavimo metodai.

Lazerinės pažaidos indukavimo metodas priklauso nuo to, kur praktiškai bus naudojamas optinis elementas, kad pažaidos slenkstis būtų įvertintas kuo tiksliau atkartojant realaus taikymo sąlygas. Toliau yra pateikiami trys pagrindiniai LIPS matavimų protokolai.

### 2.1 LIPS matavimų protokolai

#### 2.1.1 1-į-1 skenavimas



5pav. 1-į-1 skenavimo principinė schema. Raudona linija – pažaidos tikimybės rezultatų aproksimacija, pagal kurią nustatomas LIPS.

Vienas į vieną yra paprasčiausias LIPS testavimo metodas. Bandinio paviršius yra padalinamas į tarpusavyje atskirtų (standartiškai atstumas tarp matavimo taškų turi būti bent tris kartus didesnis nei naudojamo lazerio pluošto diametras) plotelių, kuriuose bus atliekami matavimai, tinklelį. Tuomet pasirinktas skaičius plotelių yra apšviečiamas tik vienu impulsu į vieną plotelį ir procesas kartojamas padidinus impulso smailinę galią su kitu plotelių rinkiniu. Kiekviename plotelyje iš rinkinio yra registruojama įvykusi ar neįvykusi pažaida ir pagal tai apskaičiuojama pažaidos tikimybė rinkiniui parinktam energijos įtėkiui. Pažeidimo slenkščiu laikomas tas energijos įtėkis, kuriam aproksimavus

energijos įtėkio priklausomybės nuo pažaidos tikimybės rezultatus pažeidimo tikimybė yra lygi nuliui (5pav.).

1-į-1 skenavimas naudojamas gamybinių procesų (optinių padėklų arba dielektrinių dangų) optimizavimui, fundamentinių medžiagos savybių tyrimams ar tiesiog fundamentinės informacijos apie bandinio pažaidos slenkstį surinkimui. Nepaisant šios metodikos paprastumo, tai gali būti labai pravartus įrankis optinių elementų charakterizavimui.

### 2.1.2 N-į-1 skenavimas

Ši metodika pritaiko tokį patį matavimų principą kaip 1-į-1 skenavimo protokolas, tačiau vietoj pavienio impulso vienas plotelis yra apšviečiamas  $N$  impulsų su vienodu energijos įtėkiu vora. Tipiškai  $N = 1000$  impulsų, tačiau ši skaičių, kaip ir impulsų pasikartojimo dažnį voroje galima reguliuoti pagal numatomą taikymą. N-į-1 matavimų metu apšviečiamas plotelis turi būti stebimas gyvai – jeigu pažeidimas įvyksta vidury impulsų voros, reikia ją nutraukti, kad pažeidimas neplistų ir neturėtų įtakos gretimiems tiriamiems ploteliams (nepaisant to, kad jie iš pat pradžių yra išdėstyti pakankamai atstumais, kad nejaustų vienas kito įtakos). Tuomet suskaičiuojama, kiek impulsų reikėjo pažaidai sukelti ir pateikiama pažaidos priklausomybė nuo impulsų skaičiaus ties konkrečiu energijos įtėkiu. Tipiškai, užfiksavus pavienio impulso energijos įtėkį, optinio elemento LIPS mažėja augant impulsų skaičiui, nes pradeda reikštis kaupiamieji reiškiniai, taigi galime stebėti elemento pažaidą ties mažesniu impulso energijos įtėkiu jeigu impulsų  $N > 1$ .

N-į-1 protokolas taikomas kai reikia gauti maksimaliai tikslią LIPS vertę. Pasikartojimo dažnio įtaka pažaidos slenkščiu leidžia įvertinti lokaliai vykstančių akumuliacinių reiškinių įtaką optiniams elementams, o taip pat prognozuoti jų senėjimo procesus. Tam tikrais atvejais galima ekstrapoliuoti gautus duomenis ir numatyti, kaip bandiniai reaguos į itin aukštą spinduliuotės dozę.

N-į-1 skenavimo protokolas bus taikomas ir šiame darbe atliekamuose eksperimentuose.

### 2.1.3 Rastrinis skenavimas

Kaip jau minėta anksčiau, lazerinės pažaidos, ypač elemento paviršiuje, pagrindiniai prekursoriai yra įvairūs defektai. Siekiant sumažinti defektų koncentraciją optinio gaminio paviršiuje po pagrindinių gamybos žingsnių galima jį perpoliruoti įvairiomis technikomis [91–93]. Tačiau pats poliravimo procesas gali savo ruožtu užteršti paviršių [94] ir netgi jį kartojant daug kartų paviršiaus defektai nebus absoliučiai pilnai pašalinti. Dėl sumažėjusio jų tankio atliekant pažaidos slenkščio matavimus N-į-1 protokolu spinduliuotė gali tiesiog nepataikyti į defektus ir bus nustatytas didesnis nei realus LIPS – to išvengti padeda rastrinis skenavimas.

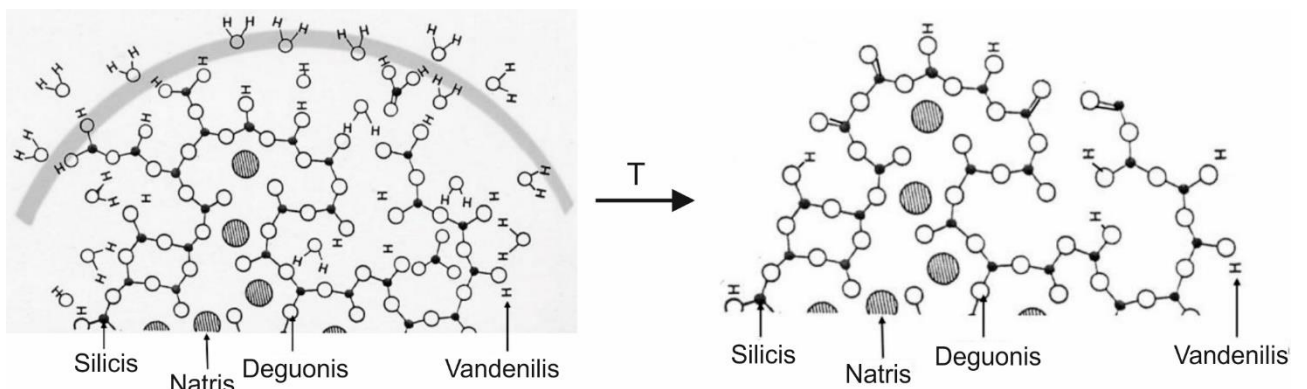


Rastrinio skenavimo metu bandinys padalinamas ne į platų tinklėlį, kad gretimi matavimai nesąveikautų, o į pluošto diametro dydžio taškus, kurie gali būti greta arba persikloti. Taigi gauname, kad į kiekvieną tašką leidžiant impulsų vorą skenuojamas yra visas pasirinktas plotas ir praktiškai nėra galimybių nepataikyti į paviršiaus defektus, jeigu tokių ant bandinio yra likę. Šis metodas dėl didelio matavimo taškų skaičiaus užtrunka ilgiau nei kiti protokolai, tačiau savo ruožtu yra tiksliausias ir realiausiai atkartoja praktinį optinio elemento taikymą.

#### 2.1.4 R-į-1 skenavimas

Lazerinė pažaida yra faktorius, ribojantis optinių elementų numatytų funkcijų atlikimą nepriklausomai nuo jų dydžio. Todėl LIPS tyrimai yra aktualūs ir pačiai mažiausiai optikai, dažniausiai tai būna kristalai, kurių optinio paviršiaus plotas gali būti tik kelių kvadratinų milimetrų eilės. Tokiais atvejais reikia ieškoti būdų, kaip išmatuoti paviršiaus lazerinės pažaidos slenkstį iš vieno taško, nes akivaizdu, kad standartiniams 1-į-1 ar N-į-1 matavimams paprasčiausiai neužtenka paviršiaus ploto. Tuomet yra taikomas R-į-1 skenavimas arba kiekvienam individualiam atvejui pritaikomos jo variacijos [95].

Paviršius padalinamas į kiek įmanoma daugiau testavimo vietų, nors jų skaičius bus ženkliai mažesnis nei S-į-1 atveju. Ypatingais atvejais tai gali apskritai būti tik vienas taškas. Kiekviena testavimo sritis yra apšviečiama vienodo energijos įtekio impulsų vora. Tuomet energijos įtekis padidinamas ir procesas kartojamas, kol bus užfiksuotas pažeidimas. R-į-1 metodu gauti duomenys dažnai nesutampa ir iš principo negali būti lyginami su S-į-1 protokolu gautais rezultatais, nes dėl pačio matavimo principo gali pasireikšti medžiagos nuovargio efektai. Taip pat, impulsų skaičius voroje gali nulemti, ties koku energijos įtekium bus užfiksuota lazerinė pažaida.



6 pav. Dvimatis silikatinio stiklo paviršiaus molekulinės struktūros standartinėmis sąlygomis atvaizdavimas ir jos pokytis po pakaitinimo. Adaptuota iš [96].

Iš kitos pusės, paviršius matavimo metu gali būti „užgrūdinamas“ ir rezultate gautos aukštesnės LIPS vertės. Pavyzdžiui, silikatinų stiklų paviršiuje normaliomis temperatūros ir slėgio sąlygomis silicio atomas gali būti prisijungęs vieną arba dvi (-OH) grupes. Apšvietus paviršių lazerine

spinduliuote jis yra įkaitinamas ir dėl pakilusios temperatūros cheminė struktūra persitvarko taip, kad lieka tik dvigubi silicio ryšiai (6 pav.). Tokia paviršiaus struktūra yra mažiau linkusi prisijungti vandenį ir, kaip rodo tyrimai, pasižymi iki dviejų kartų išaugusiu LIPS [97]. Taigi tam tikrais atvejais atliekant paviršiaus pažaidos slenksčio matavimus R-į-1 protokolu galima gauti ženkliai geresnius rezultatus nei S-į-1 protokolu, nors tai nebūtinai atspindės realiomis sąlygomis naudojamo optinio elemento atsparumo lazerinei spinduliuotei lygį.

## 2.2 Pažaidos slenksčio nustatymo metodai

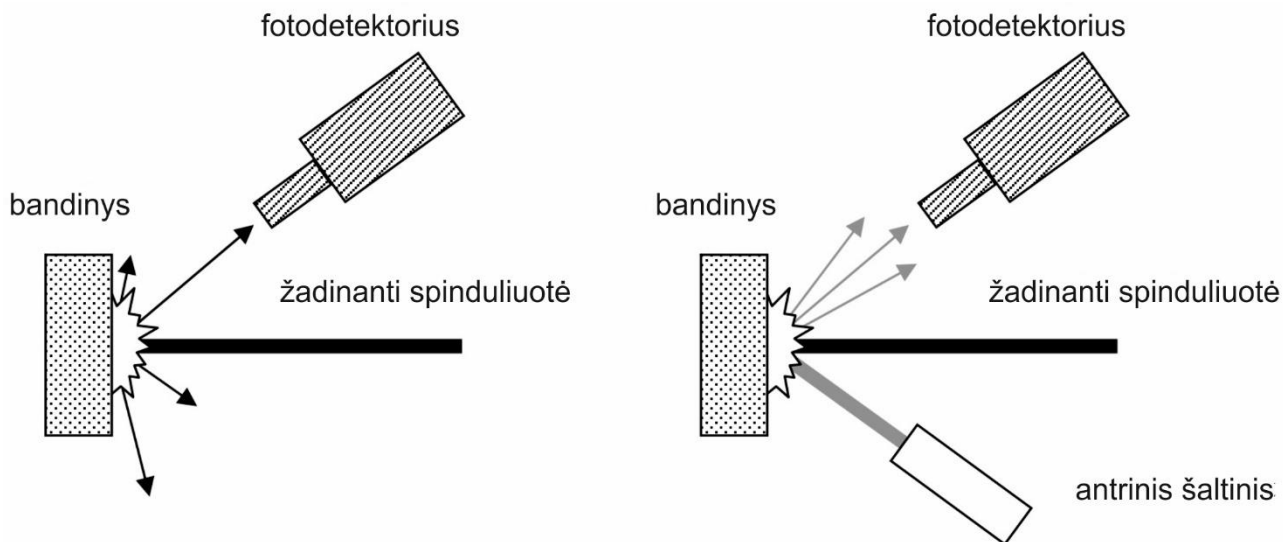
Norint išmatuoti lazerinio pažeidimo slenksčio priklausomybę nuo krentančios spinduliuotės energijos įtėkio, nepriklausomai nuo matavimų protokolo reikia turėti galimybę gyvai eksperimento metu stebėti arba po jo analizuoti tiriamojo bandinio parametą, kurio pokytis indikuoja lazerinę pažaidą. Nepaisant pavienės matavimo metodikos tikslumo, skirtingais metodais išmatuoti pažaidos slenksčiai gali skirtis identiškiems bandiniams. Taip pat, LIPS gali būti skirtingas vienodiems bandiniams atliekant eksperimentus skirtingose matavimų laboratorijose, netgi maksimaliai suvienodinus tyrimų sąlygas [98], todėl norint korektiškai stebėti, pavyzdžiui, tobulinamo produkto atsparumą lazerinei spinduliuotei – matavimai turėtų būti atliekami kiek įmanoma identiškomis sąlygomis. Toliau bus aptariami įvairūs lazerinės pažaidos slenksčio identifikavimo metodai.

### 2.2.1 Sklaidos registravimas

Vienas dažniausiai taikomų lazerinės pažaidos nustatymo metodų – išsklaidytos spinduliuotės registravimas [99]. Šis metodas yra gana intuityvus ir paprastas: fotodetektoriumi yra surenkama nuo tiriamojo elemento paviršiaus taško išsklaidyta šviesa. Detektorius gali registruoti pačios pažeidimą indukuojančio lazerio spinduliuotės arba antrinio šaltinio į tiriamąjį paviršiaus plotą išsklaidomą šviesą (7 pav.). Abiem atvejais reikšmingas, t.y. didesnis nei triukšmų lygio, detektoriaus fiksuojamo signalo pokytis indikuoja lazerinės pažaidos atsiradimą. Fotodetektorius taip pat gali būti įrengiamas už bandinio ir taip matuojamas praėjusios spinduliuotės intensyvumo arba sklaidos pokytis. Tokiu atveju dažniausiai yra stengiamasi uždengti centrinę žadinančio pluošto dalį už bandinio, kad detektorius nebūtų pažeidžiamas, paliekant pakankamai spinduliuotės pažeidimo faktui nustatyti. Be abejo, toks metodas nėra tinkamas neskaidriems spinduliuotei bandiniams arba jei bandinio galinis paviršius yra matinis.

Akivaizdus išsklaidytos spinduliuotės registravimo metodo trūkumas nustatinėjant LIPS yra foninė spinduliuotė, kuri didina signalo/triukšmo santykį ir dėl to prastėja matavimo tikslumas. Taip pat reikia atsižvelgti ir į turimo detektoriaus jautrį. Nepaisant to, metodas yra paprastas ir

nereikalaujantis sudėtingos įrangos, todėl su įvairiais patobulinimais tikslumui pagerinti dažnai taikomas lazerinės pažaidos slenksčio nustatymui [101–104].



7 pav. Išsklaidytos spinduliuotės registravimas lazeriniam pažeidimui nustatyti. Kairėje – žadinančios lazerio spinduliuotės registravimas, dešinėje – antrinio šaltinio šviesos registravimas. Adaptuota iš [104].

### 2.2.2 Atvaizdo registravimas

Vaizdo registravimas LIPS nustatymui yra savo principu panašus į sklaidos registravimą. Šiuo atveju vietoj fotodetektoriaus į žadinančios spinduliuotės apšviečiamą plotą yra nukreipiama CCD arba CMOS kamera, kuri registruoja paviršiaus atvaizdą prieš žadinimą ir po kiekvieno impulso [105]. Tuomet kiekvienas paveikslėlis skaitmeniškai atimamas iš pirmojo, kol dar bandinys nebuvo apšviestas, ir pagal pokyčius, kurie yra ryškesni nei registruojamo triukšmo lygis nustatomas optinis pažeidimas. Toks metodas leidžia registruoti optinio elemento paviršiaus struktūros pokytį jam dar tik beužsimezgant, ko tikrai negalėtume pamatyti akimi ir veikiausiai dar neregistruotume anksčiau aprašytu sklaidos detektavimo metodu. Tačiau, jeigu pokytis yra negrįžtamas – jį jau galime pagal apibrėžimą vadinti lazerine pažaida. Šis metodas dėl jautrumo bet kokiam elemento paviršiaus struktūros pokyčiui yra tinkamas stebėti nuovargio efektus, pavyzdžiui dielektrinių dangų savybių (kaip fazės vėlinimas) pokytį dar iki kritinio dangos struktūros suardymo (dangos atsilupimas ar išdeginimas) [106].

Metodo patikimumas ir tikslumas turi savo kainą: vaizdų registravimas ir apdorojimas po kiekvieno lazerio impulso reikalauja daug skaičiuojamosios galios, todėl ne kiekvienas kompiuteris gali susitvarkyti su tokia užduotimi. Net turint galingą įrenginį, veikiausiai nepavyktų atlikti eksperimentų su didesnio nei dešimčių kilohercų dažnio spinduliuote, nes matavimą pradėtų riboti ir patys paviršiaus atvaizdą fiksuojantys įrenginiai. Pačios vaizdą registruojančios kameros yra daug

jautresnės lazerinei spinduliuotei, nei fotodiodai, todėl kamerą reikia apsaugoti nuo foninės lazerio spinduliuotės ir jos atspindžių nuo bandinio. Tam naudojami filtrai ir didelio židinio nuotolio objektyvai, atvaizduojantys bandinio paviršių į kamerą, bet šie sprendimai mažina atvaizdo skyrą ir apriboja galimybę dar tiksliau nustatyti pažeidimo formavimosi pradžią.

### 2.2.3 Fotoakustinis registravimas

Šis metodas remiasi fotoakustinio signalo iškraipymu susidarius plazmai po apšvietos žadinančia lazerio spinduliuote [107]. Bandinys yra laisvai pastatomas ant pjezoelektrinio kristalo, padengto ultragarsinėms akustinėms bangoms laidžiu geliu, dažnai naudojamu medicinoje echoskopijoje. Aplinkos triukšmui sumažinti bandinys su detektoriumi uždengiami feromagnetiniu gaubtu, taip pat naudojamas stiprintuvas detektoriaus signalui sustiprinti. Skaitmeninis oscilografas registruoja signalą, atlieka jam Furje transformaciją ir gauti duomenys yra analizuojami pažaidos slenksčio nustatymui.

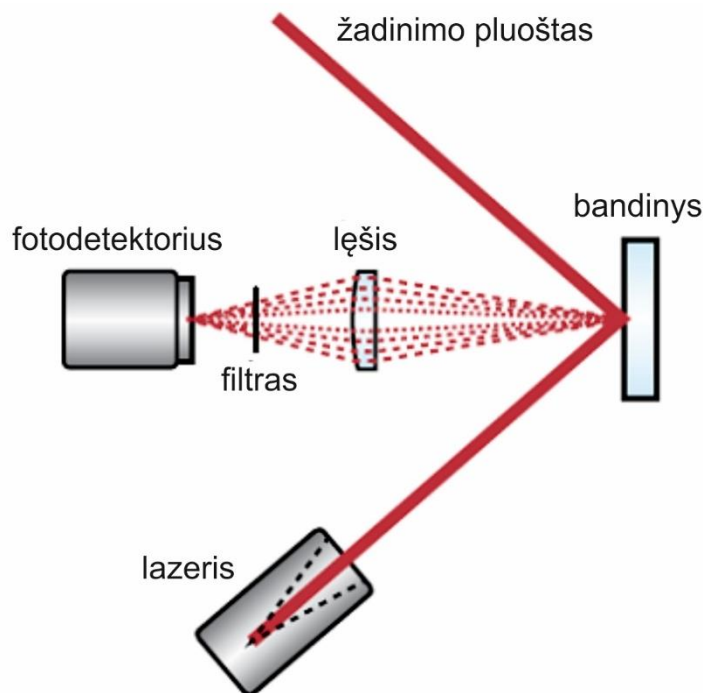
Fotoakustinis metodas yra naudojamas lydyto kvarco [108,109], kompozitinių medžiagų [110] LIPS tyrimams. Tačiau, kadangi metodas yra pagrįstas plazmos generavimu po lazerinio sužadinimo, jis yra tinkamas ne visoms medžiagoms, priklausomai nuo jų akustinių savybių. Pavyzdžiui, gryno molibdeno veidrodžio plazmos susidarymas yra susijęs su lazeriniu pažeidimu, o tiriant gryno vario veidrodžius plazma generuojama žemiau pažaidos slenksčio, todėl šis metodas nebėra tinkamas jų tyrimui. Net ir parinkus eksperimento sąlygoms tinkančias medžiagas, susiduriama su mažu signalo/triukšmo santykiu bei silpnais signalais nepaisant naudojamų stiprintuvų. Todėl praktiškai tai nėra labai patogus ir masiniam bandinių testavimui tinkantis LIPS nustatymo metodas.

### 2.2.4 Plazmos kibirkščių registravimas

Kaip jau buvo paminėta fotoakustinio metodo veikimo principu – lazerinės pažaidos įvykimo momentu optinio elemento paviršiuje gali būti sugeneruojamas plazmos debesis, dar vadinamas plazmos kibirkštimi. Jų užregistravimas iš lazerio spinduliuote žadinamo taško gali būti traktuojamas kaip lazerinio pažeidimo indikacija [111]. Plazmos kibirkštys yra surenkamos fokusuojant šią spinduliuotę į fotodetektorių, prieš kurį dar turi būti išfiltruojama išsklaidyta lazerio pluošto šviesa (8 pav.). Pats fotodetektorius turi turėti greitesnį atsaką nei kibirkščių gyvavimo trukmė, kuri tipiškai siekia iki  $\tau \approx 100ns$ .

Šį metodą galima kombinuoti su sklaidos registravimu, pavyzdžiui panaudojant HeNe lazerį kaip antrinės spinduliuotės šaltinį [39]. Pagrindinė šios LIPS matavimų metodikos problema, kaip ir fotoakustinio registravimo metode, išlieka ribotas galimų tirti medžiagų skaičius. Pavyzdžiui, Nakatani et al. savo tyrime nustatė, kad plazmos kibirkščių ir sklaidos registravimo metodu

kombinacija puikiai tinka BBO kristalams, tačiau KDP kristalams plazmos kibirkščių signalas yra labai silpnas ir ne toks ryškus, todėl sklaidos stebėjimas už bandinio šiai medžiagai tinka daug geriau [112].



8 pav. Principinė plazmos kibirkščių registravimo schema. Adaptuota iš [113].

### 2.2.5 Kiti pažaidos slenksčio nustatymo metodai

Be anksčiau aprašytų, egzistuoja ir daugiau LIPS nustatymo metodų, kurie yra rečiau sutinkami dėl savo sudėtingumo, brangumo, nišinio pritaikymo ar palyginus nepakankamo tikslumo. Fluorescencijos spektro matavimas naudojant CCD kamerą leidžia ne tik nustatyti lazerinės pažaidos slenkstį, bet taip pat įvertinti paviršiaus užterštumą pašalinėmis medžiagomis [114]. Murray et al. siūlo lazeriniu interferometru registruoti žadinančio lazerio spinduliuotės sukeltų fotoakustinių bangų elemento paviršiuje interferencijos pokytį – šis metodas leidžia bekontakčiu būdu tirti ne tik plokščių paviršių LIPS, tačiau pasižymi gerokai mažesniu jautrumu nei, pavyzdžiui, standartinis fotoakustinis registravimas [115].

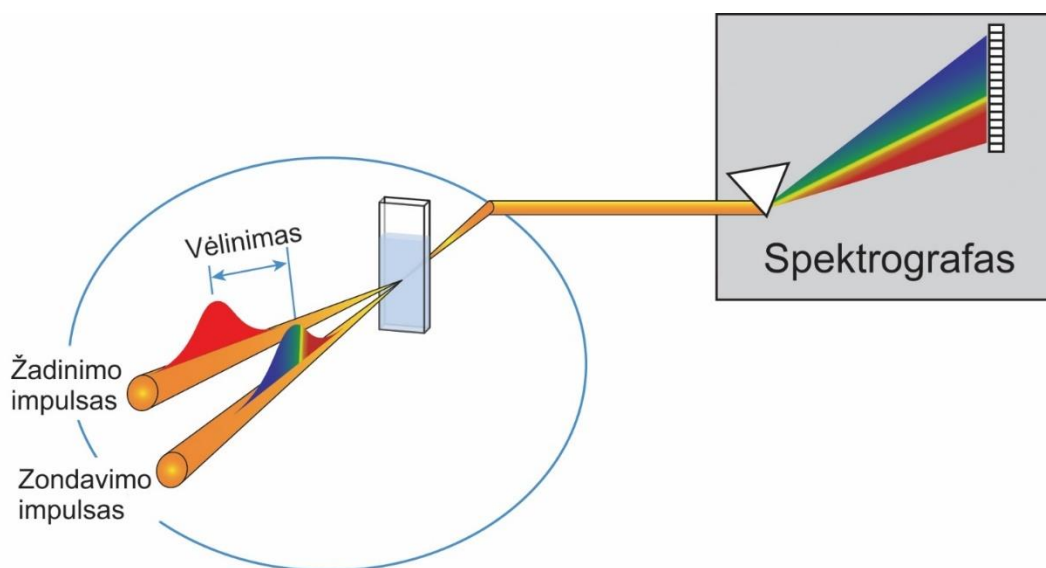
Nepaisant nusistovėjusių ir patikimų lazerinės pažaidos slenksčio matavimo metodų gausos, nuolatos yra ieškoma ir naujų variantų, įgalinančių pasiekti didesnę matavimų tikslumą, atsikartojamumą ar suteikti daugiau informacijos apie patį pažeidimo susidarymo procesą. Būtent tai bandoma pasiekti šiame darbe pristatomame tyrime. Sklaidos registravimo pralaidume metodas yra patobulinamas fotodetektorių pakeičiant spektrografu ir registruojant indukuotos sugerties signalo spektrinį pokytį. Plačiau ši nauja matavimų metodika bus aprašoma sekančiuose skyriuose.

### 3. ULTRASPARČIOSIOS SPEKTROSKOPIJOS TYRIMO METODAI

Ultrasparčioji spektroskopija tiria molekulių ir atomų kinetiką – kas vyksta per pirmąsias femto-, piko- ir nano-sekundes sužadinus sistemą. Tokiems greitiems vyksmams stebėti ir registruoti nebeužtenka šviesos šaltinių ir elektroninės įrangos, kuria yra naudojama įprastuose spektroskopijos eksperimentuose, todėl yra pasitelkiami ultratrumpieji (*ps* eilės ir trumpesni) lazerio šviesos impulsai. Su tokia laikine skyra galime tirti pavienių dalelių (elektronų, atomų) dinamiką ir kas vyksta su molekulėmis jas sužadinus iš jų pagrindinės būsenos.

#### 3.1 Klasikinis žadinimo-zondavimo eksperimentas

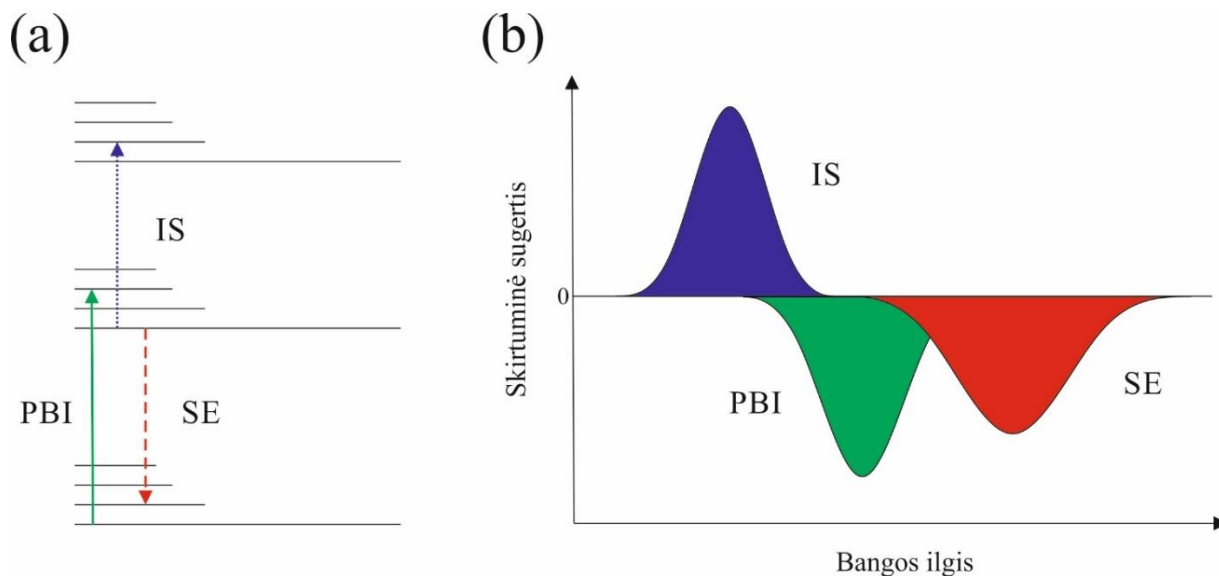
Bandiniams tirti atliekamas žadinimo-zondavimo eksperimentas [116], kurio atlikimo principas yra gana paprastas ir intuityvus, tačiau realizavimas reikalauja didelio preciziškumo. Bendroji eksperimento schema pateikiama 9 pav.:



9 pav. Klasikinio žadinimo-zondavimo eksperimento schema.

Į bandinį šviečiant dviem femtosekundiniams lazerio impulsams pirmasis sužadina bandinį, o antrasis, pavėlintas laike pirmojo atžvilgiu, stebi sistemos pokyčius – spektrografas fiksuoja tiriamojo objekto pralaidumo kitimą. Sužadinus sistemą iš jos pagrindinės (pusiausvyros) būsenos į sužadintą, stebimas pagrindinės būsenos sugerties spektro sumažėjimas – pagrindinės būsenos išblyškimas (PBI), nes joje jau yra mažiau molekulių. Atėjus zondavimo impulsui, molekulės gali būti persikėlusios iš pirmojo sužadinto į antrąjį sužadintą lygmenį, jei iš zonduojančio impulso sugėrė dar vieną fotoną – stebime indukuotos sugerties reiškinį (IS). Šis procesas gali vykti tik sužadintose molekulėse, dėl to, kai bandinys apšviečiamas žadinančiu impulsu, atsiranda papildoma sugertis, tuomet stebimas teigiamas skirtuminės sugerties įnašas į bendrą signalą. Taip pat gali vykti

priverstinis spinduliavimas arba stimuliuota emisija (SE) – zondavimo impulsas gali priversti molekules, esančias sužadintoje būsenoje, išspinduliuoti fotonus, tai duos neigiamą įnašą į skirtuminės sugerties signalą. Visi šie procesai pavaizduoti 10 pav. (a) ir (b) dalyse.



10 pav. (a) hipotetinės molekulės energijos lygmenys ir kai kurie kvantiniai šuoliai, lemiantys skirtuminės sugerties spektrą; (b) atitinkamas skirtuminės sugerties spektras ir nurodytų kvantinių šuolių įnašai į jį.

Jei eksperimentas atliekamas su kietaisiais kūnais, sužadinus bandinį jame pirmiausia atsiranda laisvieji krūvininkai, kurie pereina iš valentinės į laidumo juostą, gali „prilipti“ prie priemaišinių lygmenų, suformuoti laisvuosius ar surištuosius eksitonus. Laisvieji krūvininkai elgiasi pagal Drudės modelį ir turi savo plazmos dažnį. Eksitonai turės savo elektrinius laukus, dėl jų lauko poveikio gali pasikeisti draustinės juostos plotis. Taigi, sužadinus medžiagą gali pakisti jos lūžio rodiklis ir dėl to pakis bandinio pralaidumas.

Klasikinis žadinimo-zondavimo eksperimentas yra skirtuminės sugerties priklausomybės nuo laiko matavimas. Šis eksperimentinis metodas yra plačiai taikomas stebint sužadinimo energijos perdavimo [117–120], fotoreakcijų [121–123], vidinės konversijos (sužadintos molekulės relaksacijos per vibracinius ir elektroninius lygmenis iki pirmos sužadintos būsenos žemiausio vibracinio lygmens atiduodant energiją šilumos pavidalu aplinkai arba kitiems virpesiniams lygmenims) [124–127], interkombinacinės konversijos (elektrono sukinio apsisvertimo vykstant šuoliui iš singletinės į tripletinę būseną) [128–130], protono arba elektrono perdavimo procesus [131–133].

Žadinimo-zondavimo eksperimentas yra labai universalus, nes juo galima tirti ne vien tirti prieš tai aprašytus procesus, tačiau ir tą daryti įvairioms medžiagoms [134]. Pavyzdžiui vienasluoksniams anglies nanovamzdeliams yra stebima krūvio pernaša tarp jų ir sužadinto kadmio sulfido *CdS* nanodalelių [135], taip pat jų vaizdinimui su submikrometrine raiška [136] ir metalinio laidumo vamzdelių savybių tyrimams [137]. Femtosekundiniai ir pikosekundiniai žadinimo-zondavimo

eksperimentai atliekami ir tiriant puslaidininkinių medžiagų savybes, pavyzdžiui kadmio telurido [138] ir cinko oksido [139] nanostrypelių, kvantinių šulinių [140], puslaidininkiniuose nanokristaluose [141] bei organiniuose puslaidininkiuose [142]. Hemoglobino vaizdinimas gyvuose audiniuose [143,144] yra svarbus ankstyvosios auglio vystymosi stadijos stebėjimui, ką yra daug sunkiau stebėti su įprastu fluorescenciniu mikroskopu. Analogiškas problemas žadinimo-zondavimo eksperimentas padeda išspręsti tiriant melaniną [145,146].

### 3.2 Modifikuotas žadinimo-zondavimo eksperimentas [147]

Ultrasparčioji spektroskopija jau savo pavadinime talpina labai greitų procesų stebėjimą su aukšta laikine skyra ir tų procesų spektrų registravimą – pagal bandinio pralaidumo (arba atspindžio) spektrinius pokyčius ir yra sprendžiama apie (ne)įvykusį procesą. Šį principą buvo nuspręsta pritaikyti stebint lazerinės spinduliuotės indukuojamą pažaidą optiniams elementams. Kaip jau minėta ankstesniame skyriuje – lazerinė pažaida yra negrįžtamas optinio elemento paviršiaus (arba/ir tūrio) parametrų pokytis, kurį galima stebėti ir užfiksuoti pasirinkta metodika. Taigi jeigu registruojamas elemento pralaidumas skiriasi prieš įvykstant lazerinei pažaidai ir po jos, mes tą galima pamatyti tinkamai atsirinkę ir interpretavę duomenis iš klasikinio žadinimo-zondavimo eksperimento.

Eksperimentas atliekamas išmatuojant atraminį zondavimo spinduliuotės intensyvumą  $I_0$  ir zondavimo spinduliuotės intensyvumą  $I$  po bandinio sužadavimo. Santykinio pralaidumo signalas:

$$\Delta T = \frac{I}{I_0} \quad (3)$$

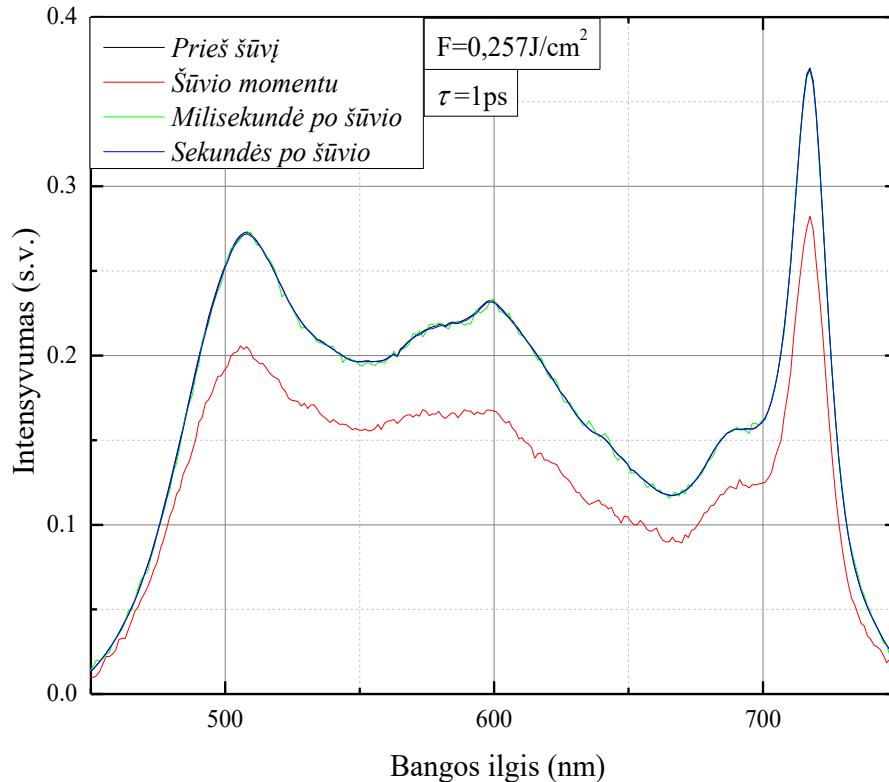
apskaičiuojamas trimis laiko momentais:

- Sužadavimo momentu  $\Delta T_{ps}$  (*Šūvio momentu*);
- $1ms$  po šūvio  $\Delta T_{ms}$  (*Milisekundė po šūvio*);
- Nuo  $1ms$  po šūvio iki sklendės užsidarymo  $\Delta T_s$  (*Sekundės po šūvio*) – visas gaunamas šiuo matavimo laiku signalas yra suvidurkinamas.

Tokie duomenų fiksavimo momentai pasirinkti, kad būtų galima pirmiausia gyvai ( $\Delta T_{ps}$ ) stebėti lazerinės spinduliuotės sukeltą pralaidumo pokytį, kuris gali būti tik momentinis dėl aukšto elektrinio lauko intensyvumo, tačiau dar nereikšti optinio pažeidimo.  $1ms$  po šūvio ( $\Delta T_{ms}$ ) pasirinkta kaip laiko tarpas, po kurio turėtų būti aišku, ar sistema grįžo į pradinę būseną po sužadavimo, t.y.  $\Delta T_{ms} = \Delta T_{ps}$  ir pažeidimas dar nėra įvykęs, ar jau stebime negrįžtamą santykinio pralaidumo pokytį. Jeigu lazerinės spinduliuotės indukuotas pokytis terpėje išsilaikytų ilgiau nei  $1ms$ , bet nebūtų permanentinis, užsitikrinimui registruojamas sekundžių po sužadavimo santykinio pralaidumo signalas ( $\Delta T_s$ ), kuris

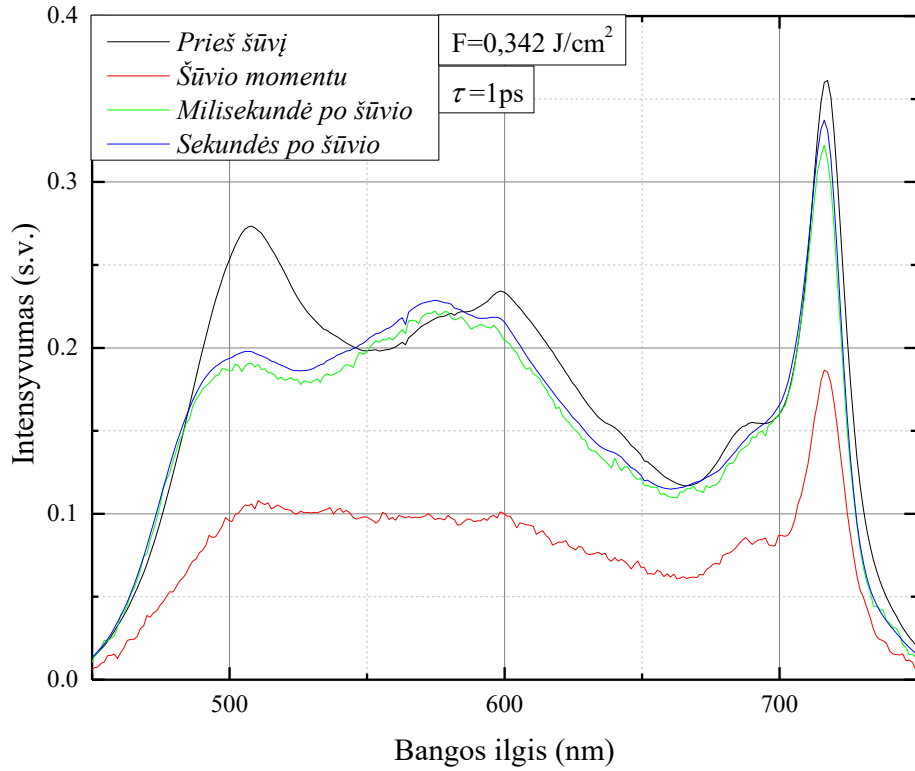


vienareikšmiškai leistų atskirti, ar pažeidimas yra įvykęs. Praktiškai gauti rezultatai parodė, kad  $\Delta T_{ms}$  ir  $\Delta T_s$  signalai yra beveik identiški visais matavimų atvejais, taigi jei lazerinė spinduliuotė neindukuoja pažeidimo, sužadinta sistema grįžta į pradinę būseną per greičiau nei  $1ms$ .

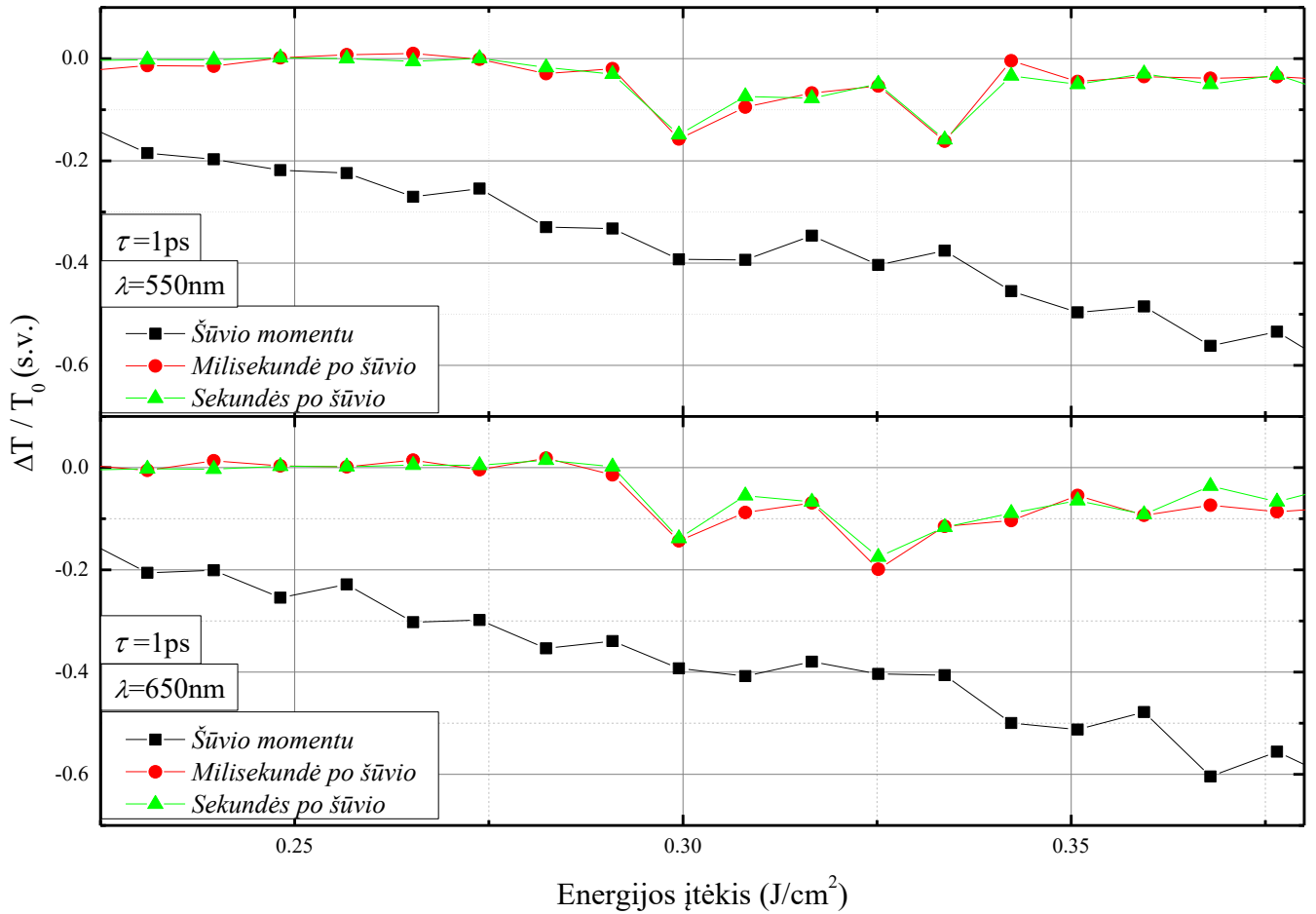


11 pav. Santykinio pralaidumo signalo spektrai ties  $F = 0,257J/cm^2$  energijos įtėkiu.

Modifikuotas žadinimo-zondavimo eksperimentas tiriant optinių elementų lazerinės pažaidos slenkstį pirmiausia buvo atliktas su titano dioksido dielektrine danga ant BK-7 optinio stiklo pagrindo. 11 pav. pateikiami skirtuminio pralaidumo signalai žadinant bandinį priešslenkstiniame režime. Žadinimas vyksta su vienu impulsu – kai jo energijos įtėkis  $F = 0,257J/cm^2$  yra mažesnis nei pažeidimo riba, matome, kad  $1ms$  po šūvio spektras visiškai atitinka registruotą prieš žadinimą. Kai žadinimo impulso energijos įtėkis  $F = 0,342J/cm^2$  yra didesnis nei pažaidos slenkstis – stebime ne tik didesnę skirtuminio pralaidumo spektro amplitudės pakitimą šūvio momentu, bet ir visiškai skirtingą nei pradinis spektrą po  $1ms$  ir praėjus sekundėms po žadinimo (12 pav.). Šis skirtumas leidžia daryti išvadą, kad optinis elementas buvo pažeistas.



12 pav. Santykinio pralaidumo signalo spektrai ties  $F = 0,342 \text{ J/cm}^2$  energijos įtėkiu.



13 pav. Skirtuminės sugerties priklausomybės nuo energijos įtėkiu ties  $\lambda = 550\text{nm}$  (viršuje) ir  $\lambda = 650\text{nm}$  (apačioje) grafikai ties vėlinimu  $\tau = 1\text{ps}$ .

Tiksliai nustatyti elemento pažaidos slenkstį galima atliekant tokių matavimų seriją ir atsidedant skirtuminio pralaidumo priklausomybę nuo energijos įtekio (13 pav.). Atsidėjus šią priklausomybę ties dviem bangos ilgiais stebime kaip tiesiškai augant skirtuminiam pralaidumui sužadavimo momentu, signalas praėjus 1ms ir sekundėms po šūvio išauga (t.y. rodo, kad santykinio pralaidumo spektras pasikeitė) ties  $F \approx 0,3J/cm^2$ . Augant žadinimo pluošto galiai  $\Delta T_{ms}$  ir  $\Delta T_s$  signalų amplitudės pradeda svyruoti ir netgi mažėti, kas prieštarauja nuolatos augančiai  $\Delta T_{ps}$  signalo amplitudei – veikiausiai tai tiesiog atspindi faktą, kad rezultatai yra gauti iš vienos matavimų vertės, o ne vidurkinant, tačiau principo pademonstravimui tai netrukdo.

Taigi 12 pav. ir 13 pav. pateikiami eksperimentiniai rezultatai demonstruoja modifikuoto žadinimo-zondavimo eksperimento galimybes, tačiau tikrai ne ribas. Svarbiausi klasikinio eksperimento papildymai – žadinimo impulsų skaičiaus valdymas, bandinio vietos keitimas ir žadinimo pluošto galios parinkimas tarp spektrų registravimo išplečia principinių lazerinės pažaidos tyrimų galimybes. Optinio elemento lazerinės pažaidos tikimybės priklausomybę nuo energijos įtekio papildoma spektrinė ir laikinė priklausomybės, kurios gali padėti geriau suprasti pačius pažeidimų susidarymo mechanizmus. Rašant šį darbą nėra mums žinomų straipsnių ar mokslinių pranešimų, kuriuose ultrasparčioji spektroskopija būtų analogiškai pasitelkiama lazerinės pažaidos tyrimams.

Šiame darbe bus atliekami kaupiamųjų (akumuliacinių) reiškinių, nulemiančių lazerinę pažaidą, tyrimai. Bandinys bus žadinamas ne pavieniu impulsu skirtingose vietose, o vora iš 100 impulsų vienoje vietoje. Kadangi pavienio impulso energijos įtekis yra mažesnis nei pažaidos riba, bus skaičiuojamas impulsų kiekis ties kiekvienu energijos įtekiu, po kurio įvyks pažeidimas. Tai reiškia, kad kiekvienam iš voroje esančių impulsų bus apskaičiuojami santykinio pralaidumo signalai  $\Delta T_{ps}$ ,  $\Delta T_{ms}$  ir  $\Delta T_s$ , tačiau gyvai stebėsime ir lyginsime tik  $\Delta T_{ps}$  signalo pokyčius. Būtent ta vieta kai signalo pokytis  $\Delta T_{ps}(N) - \Delta T_{ps}(N + 1) > 0$  bus laikoma pažeidimo pradžia, o tikslus impulsų skaičius apskaičiuojamas aproksimuojant tiesę augantį skirtumą pagal vietą, kurioje aproksimacija kirs 0. Toks vertinimas yra būtinas norint išvengti triukšmų įtakos.

Tokie eksperimentai leistų įvertinti, kokiomis realiomis sąlygomis optiniai komponentai galėtų veikti lazerinėse sistemose. Keičiant pavienio impulso smailinę galią ir impulsų pasikartojimo dažnį voroje galima būtų įvertinti, kaip nuo spinduliuotės dažnio priklauso pažaidos slenkstis. Tai leistų tiksliau specifiuoti optiniam elementui deklaruojamą pažaidos slenkstį, kadangi įprastai jis nurodomas tik kaip pavienio impulso maksimalus energijos įtekis, kuriam pažeidimo tikimybė nėra nykstamai maža ties konkrečiu bangos ilgiu.

## 4. EKSPERIMENTO METODIKA

Eksperimentai atlikti naudojant femtosekundinį titano safyro lazerį „Libra“ (Coherent, Inc.), kurio centrinis bangos ilgis  $\lambda_0 = 800\text{nm}$ , impulsų pasikartojimo dažnis  $f = 1\text{kHz}$ . Spinduliuotės galiai išmatuoti ir sukalibruoti jos valdymui eksperimento metu buvo naudojamas galios matuoklis Juno P/N 7Z01250 (MKS Instruments, Inc.) ir CCD kameros CMLN-13S2M-CS (Point Grey Research Inc.). Matavimų sistemos valdymas atliekamas LabVIEW (National Instruments Corp.). Gauti rezultatai apdoroti programomis MATLAB (MathWorks, Inc.), CarpetView3D (Light Conversion) ir ImageJ (Wayne Rasband). Pažeidimų vizualiam stebėjimui buvo naudotas mikroskopas Olympus BX51 (OLYMPUS Corp.).

### 4.1 Tiriamieji objektai

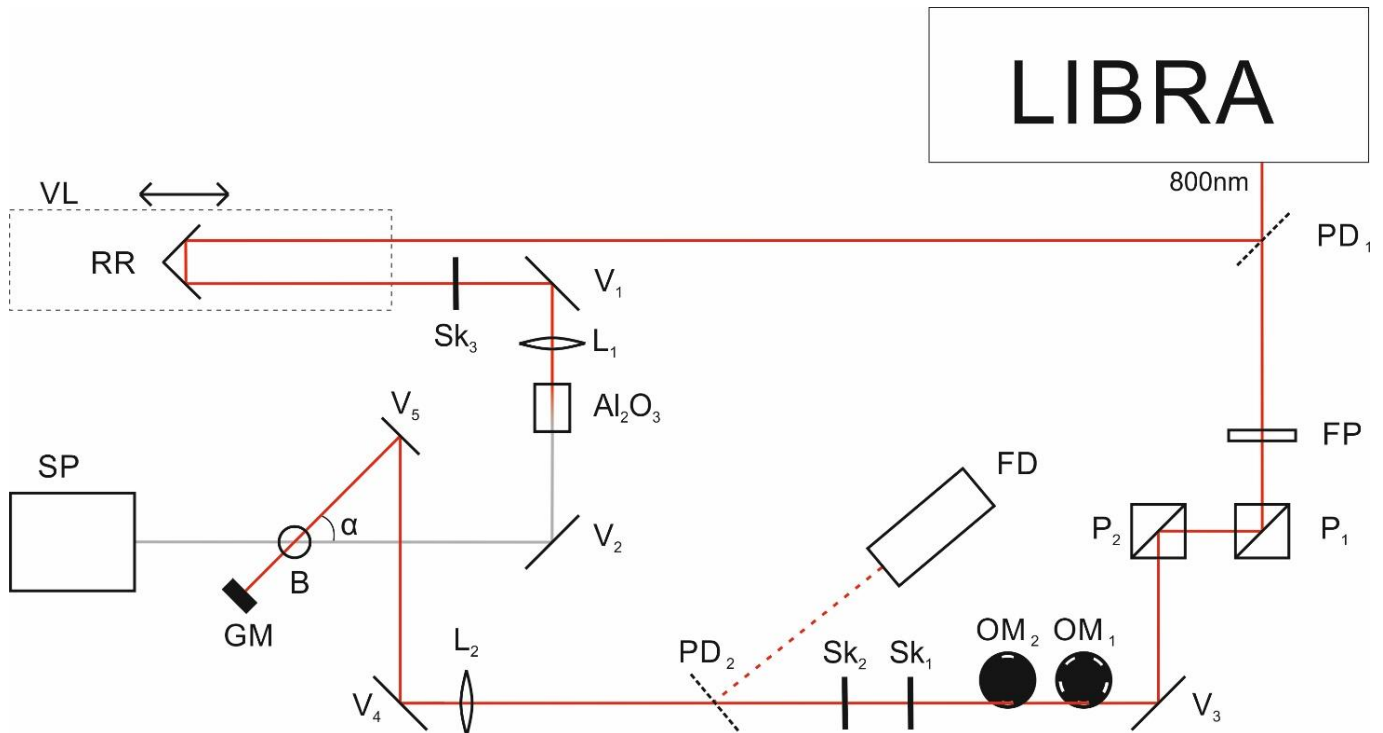
Pirminiai ir matavimų schemos derinimo eksperimentai buvo atliekami su  $0,2\text{mm}$  ir  $1\text{mm}$  storio lydyto kvarco dengiamaisiais stikliukais.

Lazerio indukuoto pažaidos slenksčio matavimai buvo atlikti su nanostruktūrizuotomis  $\text{SiO}_2$  dangomis ant  $1\text{mm}$  storio lydyto kvarco pagrindukų. Iširtos dvi dielektrinės dangos, uždengtos skirtingais  $\beta_1 = 0^\circ$  ir  $\beta_2 = 50^\circ$  kampais, abiejų dangų optinis storis yra  $5\text{ }QWOT$  (ketvirčio bangos ilgio optinis storis). Nanostruktūrizuotos dangos buvo padengtos tik iš silicio dioksido, varijuojant medžiagos lūžio rodiklį ir dangos porėtumą [148].

### 4.2 Eksperimento schema

Eksperimentinė optinio pažeidimo dinamikos tyrimo schema yra pateikta 14 pav. Iš femtosekundinio titano–safyro lazerio **LIBRA** ( $\lambda_0 = 800\text{nm}$ ;  $f = 1\text{kHz}$ ) išeinantis pluoštas dalikliu **PD**<sub>1</sub> padalinamas į žadinančios ir zonduojančios spinduliuotės pluoštų atšakas. Žadinimo pluoštas pereina per fazinę plokštelę **FP** ir poliarizatorius **P**<sub>1</sub> ir **P**<sub>2</sub>, sudarančius valdomą atenuatorių. **FP** yra įtvirtinta laikiklyje, kurio posūkio kampas yra valdomas žingsniniu varikliu – taip išmatavus pluošto, ateinančio į bandinį, galios priklausomybę su galios matuokliu **GM** (kalibravimo metu jis pastatomas prieš pat bandinį) nuo **FP** posūkio kampo galima itin tiksliai parinkti pluošto galią, su kuria atliekame eksperimentus ir keisti ją automatiškai tarp eksperimentų. Tuomet pluoštas sklinda per optinius modulatorius **OM**<sub>1</sub>, **OM**<sub>2</sub> ir sklendes **Sk**<sub>1</sub> (lėtoji) ir **Sk**<sub>2</sub> (greitoji). Šie keturi elementai yra skirti išrinkti norimą impulsų skaičių iš lazerio generuojamos  $1\text{kHz}$  voros. Pagal eksperimento pobūdį parinkus sklendžių atidarymo/uždarymo momentą galima išrinkti netgi pavienį impulsą iš visos voros arba suformuoti vorą taip, kad joje būtų norimas skaičius impulsų. Toliau dalis pluošto

nuo **PD<sub>2</sub>** daliklio atspindima į fotodiodą **FD**, kuris yra skirtas sistemos sinchronizavimui, t.y. signalizuoja spektrometrai **SP** kada registruoti ateinantį signalą. Tuomet žadinimo pluoštas fokusuojamas lęšiu **L** ir veidrodžiais **V<sub>4</sub>** ir **V<sub>5</sub>** nukreipiamas į bandinį **B**.

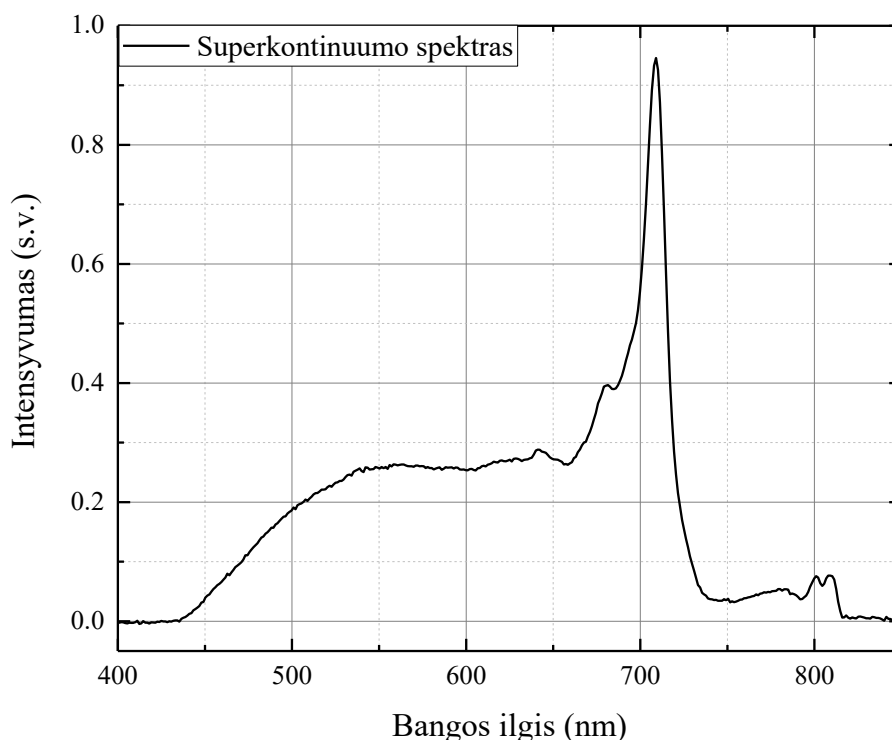


14 pav. Optinio pažeidimo dinamikos tyrimo schema. LIBRA – femtosekundinis titano safyro lazeris; RR – retroreflektorius; VL – vėlinimo linija;  $V_{1-5}$  – veidrodžiai; FP -  $\lambda/2$  fazinė plokštelė;  $P_1, P_2$  – poliarizatoriai;  $OM_1, OM_2$  – optiniai modulatoriai;  $Sk_{1-3}$  – mechaninės sklendės;  $PD_1, PD_2$  – pluošto dalikliai;  $Al_2O_3$  – safyro kristalas;  $L_1, L_2$  – glaudžiantieji lęšiai; B – bandinys;  $\alpha$  – kampas tarp žadinančio ir zonduojančio spindulių kryptių,  $\alpha = 45^\circ$ ; GM – galios matuoklis; SP – spektrometras.

Zondavimo spinduliuotės pluoštas yra nukreipiamas į vėlinimo liniją **VL**, kurioje atspindimas retroreflektoriumi **RR** – tai leidžia gauti vienodai tikslų atvaizdą esant bet kokiai vėlinimo linijos padėčiai (vėlinimui). Sklendė **Sk<sub>3</sub>** valdo, kada zondavimo pluoštas yra praleidžiamas į bandinį. Tuomet veidrodis **V<sub>1</sub>** pro glaudžiantį lęšį **L<sub>1</sub>** pluoštą nukreipia į safyro kristalą **Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>**, kuriame yra sugeneruojamas baltos šviesos kontinuumas, kuris turi būti kuo didesnio intensyvumo. Toliau zondavimo pluoštas veidrodžiu **V<sub>2</sub>** nukreipiamas į bandinį **B** ir praėjęs jį patenka tiesiai į spektrometrą **SP**. Žadinimo ir zondavimo pluoštai bandinyje arba jo paviršiuje susikerta kampu  $\alpha$ , kuris yra lygus  $45^\circ$ . Klasikiniame žadinimo-zondavimo eksperimente, kur dažniausiai yra tiriami medžiagų tirpalai, norint, kad būtų sužadinama kuo daugiau medžiagos ir zonduojamas kuo didesnis jos tūris – žadinimo ir zondavimo pluoštai yra leidžiami beveik lygiagrečiai, nes tai užtikrina maksimalų jų persiklojimą bandinyje. Optinio pažeidimo tyrimo atveju leidžiant pluoštus kampu yra užtikrinama, kad tiriamas tūris yra apribotas žadinimo ir zondavimo pluoštų susikirtimo tūrio, o tai leidžia tirti net tokius plonus sluoksnius kaip dielektrinės dangos. Atliekant eksperimentus su skirtingų medžiagų ir storių

dengiamaisiais optiniais stikliukais toks kontroliuojamas pluoštų persiklojimas savo ruožtu leidžia lyginti kaip akumuliacinių reiškinių intensyvumas priklauso nuo bandinio storio, ko negalėtumėme objektyviai įvertinti, jei erdvinis tūris, iš kurio surenkamas signalas būtų iš principo visas elemento storis.

Kaip jau minėta, baltos šviesos kontinuumas generuojamas zondavimo pluoštui turi būti kuo intensyvesnis, kad gautumėm didelį signalo-triukšmo santykį, tačiau ne per daug intensyvus, kad zonduojant žadinančių impulsų poveikį bandinyje nebūtų indukuojami pašaliniai reiškiniai, pavyzdžiui indukuota sugertis. Taip pat, signalas turi būti kuo stabilesnis – tipinis stabilumo lygis per 250 registravimo taškų siekia  $0,5 \div 0,6\%$ . Safyro kristalo naudojimas kontinuumo generavimui leidžia užtikrinti, kad registruojami pralaidumo spektrų pokyčiai po bandinio sužadavimo atsiranda dėl spinduliuotės ir medžiagos sąveikos, o ne dėl zonduojančios spinduliuotės spektro svyravimo. Tačiau dėl stabilumo naudojant safyro kristalą tenka paaukoti dalį spektrinės informacijos, kurią galėtų užfiksuoti detektorius nuo  $350\text{nm}$  – 15 pav. pavaizduotame superkontinuumo spektre matome, kad signalą patikimai (kai spektrinis intensyvumas yra virš triukšmo lygio) galime detektuoti tik nuo  $440\text{nm}$ .



15 pav. Safyro kristale generuojamo superkontinuumo spektras.

Norint apskaičiuoti žadinimo impulso intensyvumą reikia žinoti jo diametą, kuris yra išmatuojamas peilio ašmenų (angl.: knife-edge) metodu. Žadinimo spindulys glaudžiančiuoju lęšiu **L** sufokusuojamas į bandinį **B** slenkant lęšį išilgai pluošto. Ašmenys įstatomi į bandinio laikiklį, o galios matuoklis **GM** už jo ir toliau nei pluošto židiny. Tuomet matuojama pluošto galia slenkant

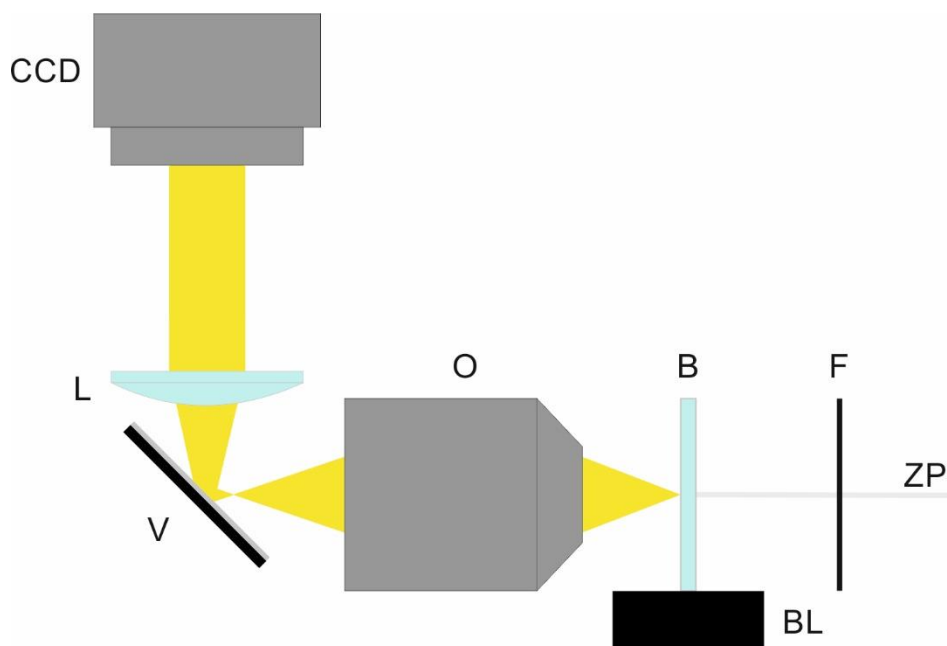
transliacinį staliuką ašmenis  $Z$  kryptimi, iš gautos kreivės apskaičiuojamas pluošto diametras. Žinant krentančią į bandinį spinduliuotės vidutinę galią, impulsų pasikartojimo dažnį ir pluošto diametrą, galima apskaičiuoti į bandinį krentančio impulso energijos įtekį [ $J/cm^2$ ]. Taip pat vėliau tęsiant eksperimentą galima būtų ieškoti koreliacijų tarp pluošto diametro ir optinės pažaidos ribos.

Tiksliam skirtuminio pralaidumo matavimui reikia, kad zondavimo pluoštas į sužadintą bandinį ateitų po žadinimo impulso, tačiau ne per vėlai, kai stebimi pokyčiai jau būtų nebe informatyvūs. Vėlinimo linijos kalibravimui pirmiausia ieškoma retroreflektoriaus **RR** padėtis ant vėlinimo linijos, kuriai esant žadinimo ir zondavimo spinduliai į tiriamą bandinį **B** ateitų tuo pat momentu. Tai atliekama įsistačius kalibravimo bandinį į laikiklį ir atidengiant abu pluoštus. Gyvai stebint matuojamą skirtuminės sugerties spektrą skirtingose vėlinimo linijos padėtyse slenkant ją ieškoma, kuriame taške signalas staiga pradeda augti. Prieš šį tašką, kai zondavimo spindulys atkeliauja iki bandinio anksčiau už zondavimo spindulį, neturi būti stebimas joks signalas. Nustačius vėlinimo linijos nulinę padėtį retroreflektorių **RR** paslenkamas į vėlinimo padėtį, kurioje bus atliekami matavimai.

Atliekant akumuliacinių reiškinių tyrimą (pagal N-į-1 protokolą) yra itin svarbu žinoti, kiek impulsų  $N$  ir kokiais laiko intervalais pasiekia bandinį. Reguluojant sklendžių **Sk<sub>1</sub>** ir **Sk<sub>2</sub>** atsidarymo laiką galima nustatyti pavienio impulso tikslumu, kiek impulsų pasieks bandinį vienos serijos metu iš lazerio generuojamos  $1kHz$  dažnio voros. Tarpai serijoje tarp impulsų yra apspręsti optinių moduliatorių **OM<sub>1</sub>** ir **OM<sub>2</sub>** pralaidumo, o norint impulsus dar labiau išretinti užtektų įstatyti dar vieną papildomą moduliatorių. Fotodiodas **FD** nuolatos registruoja praeinančius impulsus (to reikia spektrografo sinchronizacijai) ir jų atvaizdavime galime matyti, ar sklendės ir optiniai modulatoriai yra tinkamose pozicijose pluošto atžvilgiu. Pavyzdžiui, jeigu bent viena iš sklendžių pasislenka iš savo vietos dėl nuolatos kartojamo atidarymo-uždarymo judesio ir nepilnai uždengia pluoštą – fotodiodas rodys žemo lygio impulsus serijoje, kurie gali iškreipti galutinius matavimų rezultatus. Todėl mechaninių sklendžių padėtis yra nuolatos stebima fotodiodo pagalba ir koreguojama esant poreikiui.

Suderinus žadinimo ir zondavimo pluoštus bei išsimatavus jų parametrus ne mažiau svarbu yra ir teisingai paruošti bandinį bei jį įstatyti į sistemą. Pirmiausia, norint sumažinti pirmame skyriuje aprašytą aplinkos įtaką pažaidos slenksčiui, bandinys turi būti imamas tik su specialiomis laboratorinėmis pirštinėmis ir nuvalomas prieš eksperimentą, nebent atkeliautų jau nuplautas ir nuvalytas švarioje pakuotėje. Tai leidžia užtikrinti, kad rezultatai nebus iškreipomi aplinkos taršos ant bandinio paviršiaus. Tam pritaikyta ir tyrimų laboratorija – specialiai įrengta kondicionavimo sistema neleidžia nusėsti dulkėms ant matavimų stalo ir ten esančių optinių elementų paviršių. Antra,

bandinys turi būti teisingai išstatytas, kad būtų galima korektiškai lyginti rezultatus, gautus iš skirtingų jo vietų.



16 pav. Principinė bandinio išstatymo laikiklyje schema, įterpiama į matavimų sistemą jos derinimo pabaigoje. ZP – zondavimo pluoštas; F – filtras; BL – bandinio laikiklis; B – bandinys; O – objektyvas; V – veidrodis; L – lęšis; CCD – CCD kamera.

Bandinio **B** pozicija pluošto atžvilgiu gali būti valdoma dviem žingsniniais varikliais, kurie transliuoja bandinį plokštumoje statmenoje zondavimo pluošto sklidimo kryptimi. Šioje vietoje itin svarbus tampa bandinio orientavimas laikiklyje, nes jeigu transliuojant bandinį žadinimo ir zondavimo pluoštų susikirtimo taškas bus skirtingose bandinio paviršiaus ar tūrio vietose – LIPS rezultatai skirtingose bandinio vietose neatsikartos. Šiam netikslumui pašalinti pasitelkiama CCD kameros ir 20 kartų didinančio tolimojo lauko mikroskopo objektyvo (16 pav.). Sistema išstatoma taip, kad galėtų judėti išilgai zondavimo pluošto, kurio intensyvumas yra sumažinamas papildomu filtru **F**, kad nesotintų kameros ir būtų galima aiškiai išskirti pluoštą. Tuomet stebint kameros vaizdą kompiuterio ekrane ir judant išilgai pluošto nustatoma vieta, kurioje tiksliai yra zondavimo pluošto židinys – bandinys turi būti būtent šioje vietoje, kad registruojant baltos šviesos spektrą jo intensyvumo sumažėjimas dėl indukuoto lazerinio pažeidimo būtų kuo greičiau užfiksuotas. Jeigu bandinys būtų ne židinio plokštumoje ir pluošto diametras būtų daug didesnis – signalai būtų daug triukšmingesni ir sunkiau būtų pastebėti tikslų momentą, kada zondavimo pluošto spinduliuotė pradeda veikti atsiradęs pažeidimas. Suradus zondavimo pluošto židinio plokštumą į laikiklį statomas bandinys ir, apšvietus jį iš galo papildomu šviestuku, su laikikliu transliuojamas išilgai žadinimo pluošto, kol jo vaizdas yra ryškiai sufokusuojamas į kamerą ir kompiuterio ekrane matome bandinio paviršių.

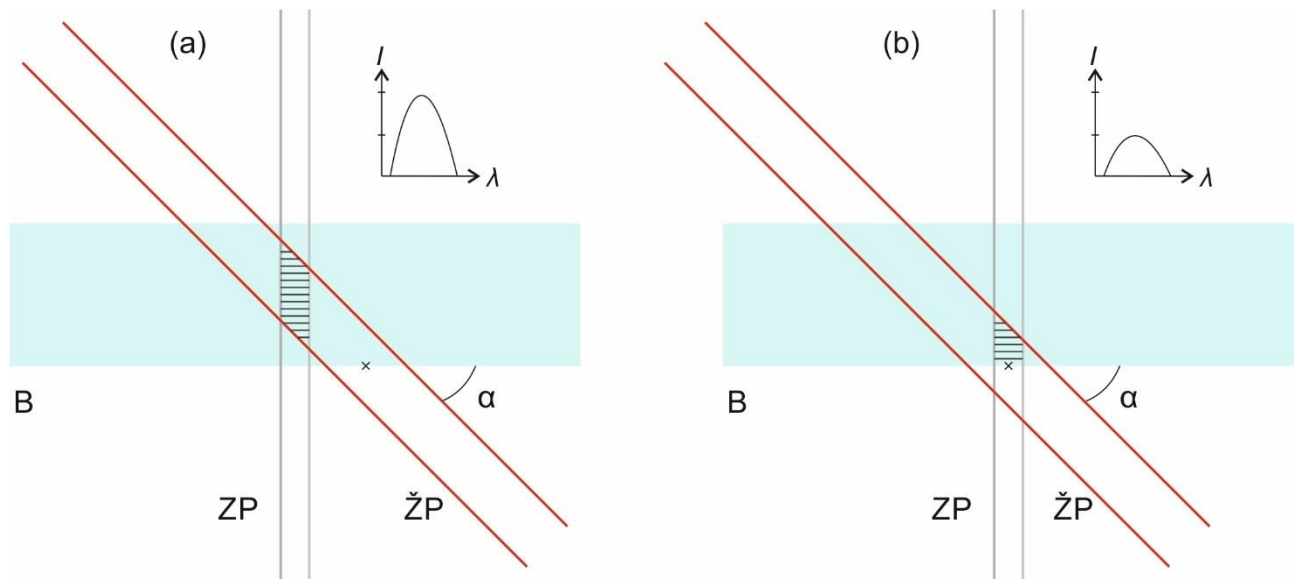


Tuomet reikia užtikrinti, kad transliuojant bandinį horizontaliai ir vertikalčiai jo paviršius neišsifokusuotų – tai užtikrina vienodas eksperimento sąlygas bet kuriame bandinio taške. Šis derinimas atliekamas transliuojant bandinį ir keičiant jo vertikalaus bei horizontalaus pokrypio kampą laikiklio rankenėlėmis – po to bandinys turi būti sugražintas į CCD kameros sistemos židinio plokštumą keičiant transliacinio staliuko padėtį išilgai zondavimo pluošto.

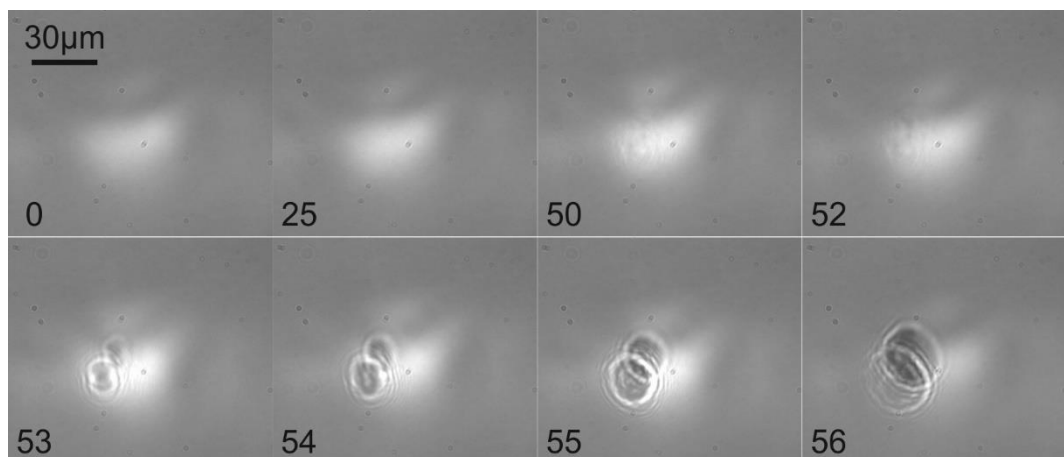
Sekantis žingsnis – žadinimo ir zondavimo pluoštų laikinis ir erdvinis suvedimas bandinio paviršiuje. Erdvinis suvedimas yra būtinas tam, kad stebėtume indukuotos sugerties signalą, t.y. zondavimo pluoštas keliautų per tą bandinio tūrio dalį, kurioje žadinimo pluoštas indukuoja signalą ir galėtume jį detektuoti. Kadangi zondavimo pluoštas yra suderintas taip, kad kristų statmenai į bandinį, o už jo keliautų į spektrometrą **SP**, erdviniam suvedimui yra keičiama tik žadinimo pluošto padėtis veidrodžiais **V<sub>4</sub>** ir **V<sub>5</sub>**. Laikinis suvedimas leidžia pasirinkti, koku laiko momentu po sužadavimo stebimas skirtuminės sugerties signalas, kurį laike galima išskirti į dvi pagrindines dalis: Kero efekto indukuotą ( $\tau_K = 0 \div 0,3ps$ ) ir pagrindinį, indukuotos sugerties, kuris gyvuoja kol užgęsta bandinyje sužadintos būsenos. Lazerio indukuotos pažeidos slenksčio nustatymui, kaip bus pademonstruota 0,2mm storio lydyto kvarco tyrimų rezultatuose, tinkamesnis laikinis vėlinimas yra Kero efekto indukuoto skirtuminės sugerties signalo diapazone, nes šis signalas yra pakankamai stabilus ir dėl savo intensyvumo pasižymi geru signalo/triukšmo santykiu. Tačiau akumuliacinių reiškinių tyrimui daugiau informacijos turėtų suteikti pagrindinio, indukuotos sugerties, signalo laikinis diapazonas, pasibaigus Kero efekto įtakai, kas bus patikrinta tiriant 1mm storio lydyto kvarco bandinius. Laikinis persiklojimas yra derinamas keičiant vėlinimo linijos **VL** poziciją.

Atliekant erdvinį pluoštų suvedimą yra ieškoma didžiausio skirtuminės sugerties spektrinio signalo. Reikia pastebėti, kad storesniuose bandiniuose (šiam darbe pristatomų eksperimentų atveju: 1mm storio lydyto kvarco stikliuko, lyginant su 0,2mm storio stikliuku) intensyviausias signalas nereiškia tikslaus lazerinės pažeidos vietos stebėjimo. 17 pav. (a) dalyje pademonstruota, jog tariant, kad žadinimo pluoštas **ŽP** keliaudamas per storą bandinį nesifokusuoja, indukuotos sugerties signalo intensyvumas *I* bus daug didesnis paprasčiausiai dėl didesnio pluoštų persiklojimo ploto (realiai tūrio bandinyje) nei (b) atveju kai pluoštai pradeda persikloti tiksliai bandinio paviršiuje. Kryžiuku pažymėta vieta žadinimo pluošto centre, kurioje dėl pluošto erdvinio skirstinio intensyvumo pradeda formotis pažeidimas. Aiškiai galime suprasti, jog jeigu pažeidimas pradėtų formotis (a) atveju greta zondavimo pluošto **ZP** stebimo zonos, kuri yra užbrūkšniuota horizontaliai – pokyčio pralaidumo signale nematytume tol, kol pažeidimas neišplistų bandinio **B** paviršiuje iki zondavimo pluošto. Skirtuminės sugerties signale galbūt galėtumėme pamatyti tam tikrą spektrinį pokytį dėl nuo pažeidimo vietos išsklaidytų sugeneruotų elektronų ar eksitonų, tačiau veikiausiai tas pokytis bus itin mažas ir bendru atveju priklausys nuo to, kiek zondavimo pluoštas bus nutolęs nuo pažeidimo vietos.

Todėl pirmiausia erdvinis suvedimas atliekamas stebint spektrinio signalo intensyvumą kaip 17 pav. (a) dalyje, o tuomet realus persiklojimas kaip (b) dalyje suderinamas pasitelkus 16 pav. pavaizduotą schemą – vaizdas sufokusuojamas į pirmą paviršių, ant kurio įvyksta pažeidimas ir jis yra sugeneruojamas su kuo mažesne žadinimo pluošto galia bei impulsų skaičiumi ir stebima, kada pažeidimas bus sugeneruotas tiksliai toje vietoje, kurią apšviečia zondavimo pluoštas. 18 pav. pavaizduota teisingai suvestų žadinimo ir zondavimo pluoštų pažeidimo susiformavimo seka kai zondavimo pluoštas sklinda tiesiai per pažaidos vietą. Dvigubas pažeidimo atvaizdas yra matomas dėl to, kad kamera stebi bandinį mažu kampu, ne idealiai statmenai.



17 pav. Principinė erdvinio pluoštų suvedimo schema: (a) pagal signalo intensyvumą; (b) pagal pažaidos tašką. B – bandinys; ZP – zondavimo pluoštas; ŽP – žadinimo pluoštas;  $\alpha = 45^\circ$  – kampas tarp žadinimo ir zondavimo pluoštų. Užbrūkšniuotas plotelis atspindi bandinio tūrį, iš kurio pluoštams persiklojant registruojamas skirtuminės sugerties signalas, kurio santykiniai intensyvumai pavaizduoti grafikuose virš bandinio. Bandinio storis bei pluoštų diametrai vizualaus aiškumo vardan pateikiami ne pagal mastelį.



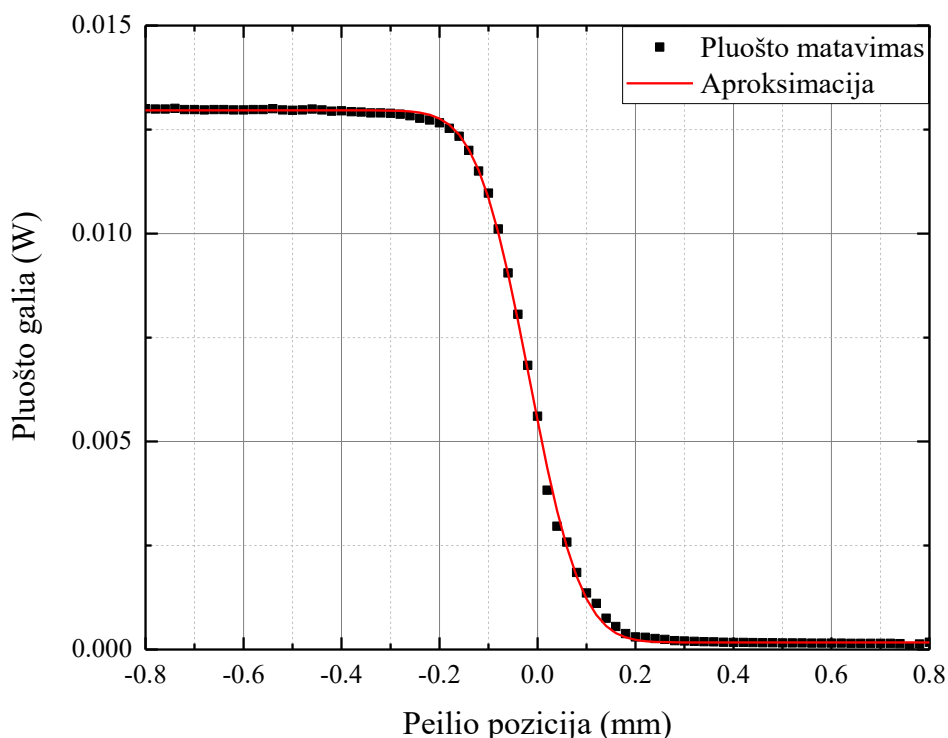
18 pav. Zondavimo pluošto suvedimo su indukuojamu lazeriniu pažeidimu nuotraukos CCD kamera. Nuotraukos užfiksuotos po nurodyto impulsų skaičiaus, pavienio impulso energijos įtėkis  $F = 0,318\text{J}/\text{cm}^2$ .

18 pav. nuotraukose galima pamatyti, kad prieš akivaizdų pažeidimą po 53 impulsų, ties 50 impulsu jau yra susiformavęs tam tikras darinys, nežymiai, tačiau pradedantis iškraipyti zondavimo pluoštą. Ši struktūra yra negrįžtama ir keičia pro ją praeinančios spinduliuotės atvaizdą, todėl jau gali būti klasifikuojama kaip pažeidimas apibrėžtose matavimo sąlygose.

Suderinus sistemą ir įsitikinus, kad pažeidimas pradeda formuotis toje vietoje, kurioje bandinys yra zonduojamas superkontinuumo pluoštu, galima atlikti matavimus.

### 4.3 Matavimų parametrai

Žadinančiojo spindulio diametro matavimas yra atliekami peilio ašmenų metodu, pavyzdinis matavimų skerspjūvis pavaizduotas 19 pav. Kadangi iki matavimų pradžios bandinio pozicija žadinimo ir zondavimo pluoštų atžvilgiu yra kruopščiai derinama maksimaliam eksperimento tikslumui ir korektiškumui užtikrinti, pluošto diametras, su kuriuo atliekami matavimai būtent suderintoje matavimų plokštumoje, yra nustatomas pabaigus pagrindinius matavimus. Tai užtikrina, kad pluoštas bus išmatuotas tiksliai plokštumoje, kurioje buvo atliekami LIPS ir akumuliacinių reiškinių tyrimai. Pluošto parametrai, su kuriais buvo matuojamas kiekvienas atskiras bandinys bus nurodyti prieš pateikiant matavimų rezultatus.



19 pav. Žadinimo pluošto diametro matavimas.

Dėl matavimų atsikartojamumo buvo įvertintas lazerio spinduliuotės galios stabilumas. Galios matuoklio duomenimis per 30 minučių pluošto galia svyruoja iki 0,16% matuojant zondavimo pluoštą už daliklio **PD<sub>1</sub>**, todėl galima teigti, kad žadinimo pluošto galios svyravimas laike bus ne

didesnės amplitudės. Įdomu pastebėti, kad padidinus lazerio pluošto, skirto kontinuumo generacijai, galią, sugeneruoto kontinuumo spektrinio intensyvumo svyravimai registruojant spinduliuotę spektrometre išaugo nuo anksčiau minėtų  $0,5 \div 0,6\%$  iki  $1 \div 2,5\%$ . Šiek tiek sumažinus pradinę galią stabilumas ženkliai pagerėjo, todėl buvo padaryta išvada, kad esant aukštesnei pluošto galiai retroreflektoriaus **RR** auksiniai veidrodžiai pradeda kaisti ir nebeišlaiko savo struktūrinio stabilumo, dėl ko pradeda svyruoti pluošto intensyvumas, taigi ir safyre sugeneruoto superkontinuumo spektro stabilumas. Atsižvelgus į tai, kad matavimų dienos pradžioje ir pabaigoje stebimo zondavimo pluošto spektrinio intensyvumo svyravimai nepakinta, galime teigti, kad sušilęs iki darbinės temperatūros lazeris generuoja pakankamai stabilią spinduliuotę, kurios galios nereikia matuoti ir atlikti pakartotinio kalibravimo viduryje matavimų, nebent būtų pastebėtas koks nors neįprastas spinduliuotės intensyvumo ar stabilumo pokytis.

Kaupiamųjų reiškinių tyrimas buvo atliekamas žadinant bandinį impulsų serijomis po 100 impulsų, kai iš 1kHz voros išrenkamas kas dešimtas impulsas, o prieš seriją ir po jos yra 125ms pertrauka. Detalesnei analizei buvo pasirinktos impulsų voros iš mažesnio skaičiaus impulsų arba atliekant bandinio žadinimą pavieniu impulsu. Spektrografas pirmiausia užregistruoja foninį signalą, kuris bus atimamas iš visų išmatuotų zonduojant bandinį. Tuomet išmatuojamas atraminis zondavimo spinduliuotės signalas  $I_0$  ir registruojami signalai sužadinus bandinį. Kompiuteryje yra apskaičiuojamas skirtuminės sugerties signalas kiekvienam iš žadinimo impulsų [mOD]:

$$\Delta A = \lg \left( \frac{I}{I_0} \right) \times 1000 \quad (4)$$

Stebima  $\Delta A(\lambda)$  priklausomybė ties viena zondavimo impulso vėlinimo  $\tau$  verte išlaiko pradinę amplitudę tol, kol kietakūnis bandinys nėra pažeidžiamas. Pažeidimo faktui įvertinti kiekvienam impulsui apskaičiuojame visuose bangos ilgiuose skirtuminės sugerties signalo pokytį nuo pradinio signalo, užregistruoto pirmojo impulso:

$$\delta A(\lambda, n) = \Delta A_0 - \Delta A_n. \quad (5)$$

Taip stebėdami signalo pokytį  $\delta A$  nuo impulsų skaičiaus, kai jis nėra lygus nuliui (signalo triukšmo ribose) galime teigti, kad įvyko skirtuminės sugerties  $\Delta A$  pokytis ir tai identifikuoja negrįžtamą pažeidimą. Natūralu, kad  $\Delta A$  signalas po sužadavimo mažėja ir išnyksta per kelias nano sekundes, todėl bandinį žadiname impulsų vora, kurioje laiko tarpas tarp impulsų yra daug mažesnis nei trukmė reikalinga savaiminiam skirtuminės sugerties signalo išnykimui, kad to negalėtume painioti su optine pažaida.

Užfiksavus  $I$  signalo vertę po sužadavimo, transliacinis staliukas **TS** pastumia bandinį į kitą matavimo tinklelio tašką, kuris turi būti pakankamu atstumu nuo pirmojo taško dėl pažeidimo metu galima sugeneruotos taršos, kaip aprašyta 1.4 skyriuje.

## 5. REZULTATAI IR JŲ APTARIMAS

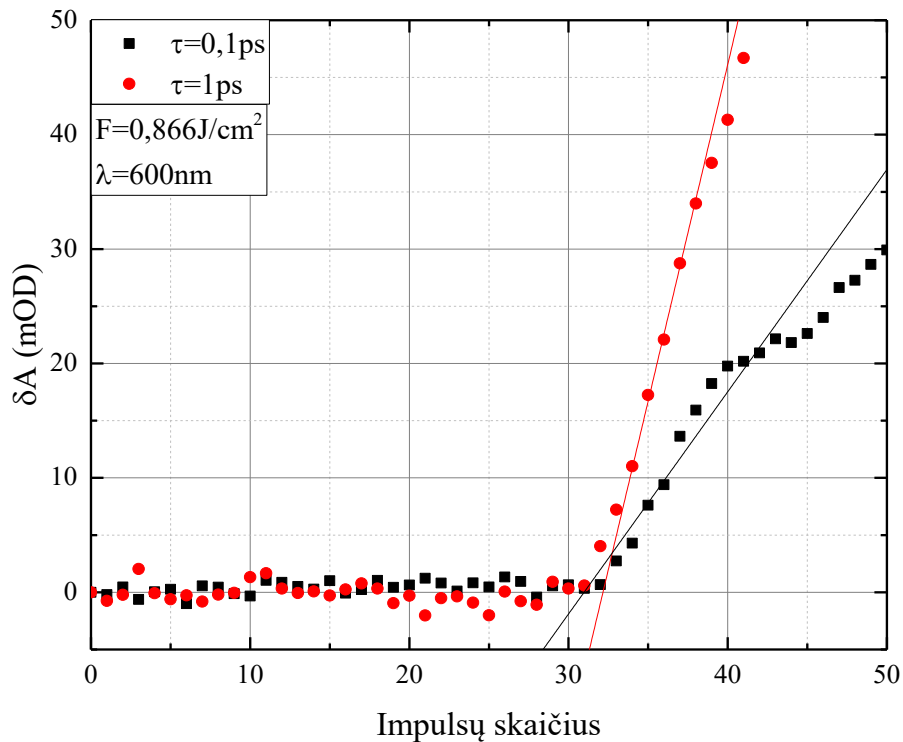
### 5.1 0,2mm storio lydyto kvarco dengiamųjų stikliukų matavimai

LIPS nustatymo eksperimentai su 0,2mm storio lydyto kvarco stikliukais buvo atliekami su  $d_{\text{žad}} = 200\mu\text{m}$  diametro žadinimo pluoštu ir  $d_{\text{zond}} = 50\mu\text{m}$  zondavimo pluoštu. Žadinimo pluoštas buvo fokusuojamas taip, kad pluošto sąsmauka būtų už bandinio, t.y. į dengiamąjį stikliuką kristų besifokusuojantis pluoštas. Dėl to pažeidimai buvo stebimi ant galinio (antrojo, kurį kerta pluoštai) bandinio paviršiaus. Anksčiau pateiktame rašto darbe buvo apžvelgti geriausių pažaidos slenksčio nustatymo eksperimento parametrų nustatymo principai ir jų pagrindimas, todėl dabar bus tik apžvelgiami svarbiausi rezultatai.

Atlikus spektrinių ir laikinių parametrų palyginimus buvo nustatyta, kad lazerio indukuotos pažaidos slenksčio nustatymui yra optimaliausia stebėti spektrinio intensyvumo pokytį ties bangos ilgiu  $\lambda = 600\text{nm}$  ir zondavimo pluošto vėlinimui  $\tau = 0,1\text{ps}$ . Tokiomis sąlygomis yra stebimas skirtuminės sugerties signalo pokytis ties Kero efekto indukuoto signalo maksimumu, kas leidžia išgauti geriausią signalo/triukšmo santykį, taigi tiksliausiai eksperimento ribose nustatyti impulsą, po kurio įvyksta optinis pažeidimas. Dėl patikimo signalo/triukšmo santykio gautas LIPS atsikartojamumas yra virš 40% geresnis nei, pavyzdžiui, nustatant impulsų skaičių reikalingą pažeidimui indukuoti ties  $\tau = 1\text{ps}$  vėlinimu. Iš kitos pusės, toks parametrų rinkinys yra tinkamas tik pačiam slenksčiui nustatyti, o iš spektrinio signalo pokyčio negalime nieko pasakyti apie pažeidimo metu vykstančius procesus, nes stebimas tik Kero efekto indukuoto signalo sumažėjimas. Dėl to tiriant 1mm storio lydyto kvarco bandinius bus stebimi spektrai ties didesniais vėlinimais.

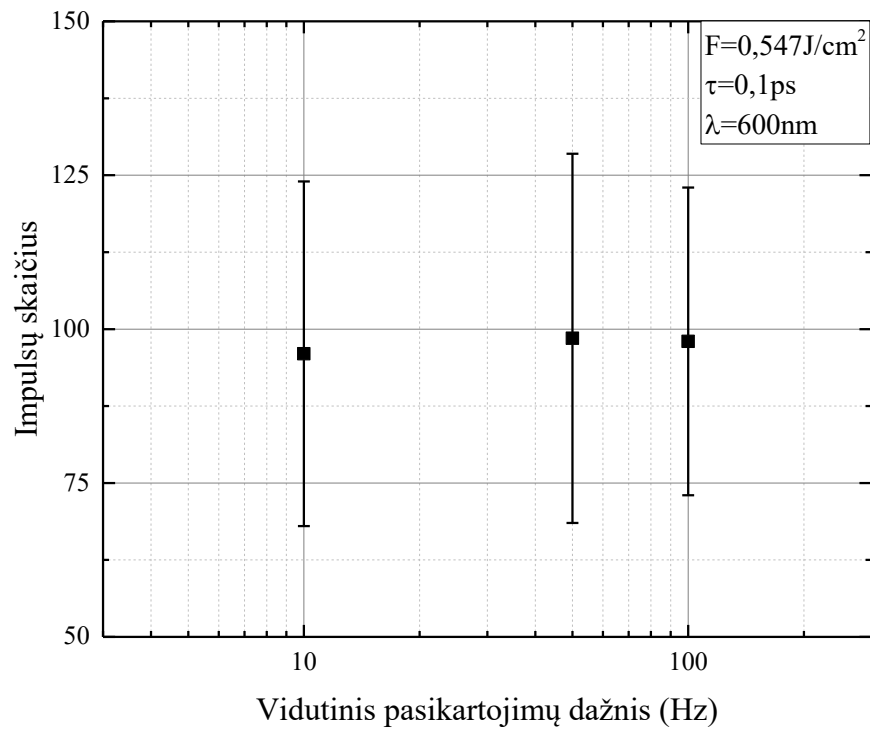
Bendras pažaidos slenksčio nustatymo principas pavaizduotas 20 pav. Skirtuminės sugerties pokyčio  $\delta A$  signalas atidedamas nuo impulsų skaičiaus užfiksavus pavienio impulso energijos įtekį ir vėlinimo trukmę, ties kuria registruojame spektrą. Visi matavimai lyginami ties tuo pačiu bangos ilgiu. Atsitiktinai parinkus palyginti pavienius matavimus ties skirtingais vėlinimais matome, kad triukšmo lygis iki optinės pažaidos detektavimo beveik nesiskiria. Galima triukšmų įtaka eliminuojama impulsų skaičių iki pažaidos slenksčio nustatant universaliu metodu: pradedantis augti signalas yra aproksimuojamas tiese ir impulsų skaičius, ties kuriuo tiesė kerta  $\delta A = 0$  laikomas pažaidos slenksčiu. Taškų kiekis šiai aproksimacijai parenkamas kiekvienam matavimui atskirai, nes signalo augimo dinamika gali būti skirtinga ir įsisotinimą pasiekti ties skirtingu  $\delta A$  lygiu. Tai iš pirmo žvilgsnio įneša netikslumų, kadangi aproksimacija gali nesutapti (tiek į mažesnę, tiek į didesnę pusę) su impulso numeriu, po kurio  $\delta A$  signalas tik auga ir nebesugrįžta į nulinį lygį, tačiau dėl to galima impulsų skaičiaus variacija yra labai maža. Būtent dėl to šis metodas leidžia korektiškai lyginti

skirtingus matavimus ir su skirtingais energijos įtėkiais ar vėlinimais, nepriklausomai nuo signalo-triukšmo santykio.

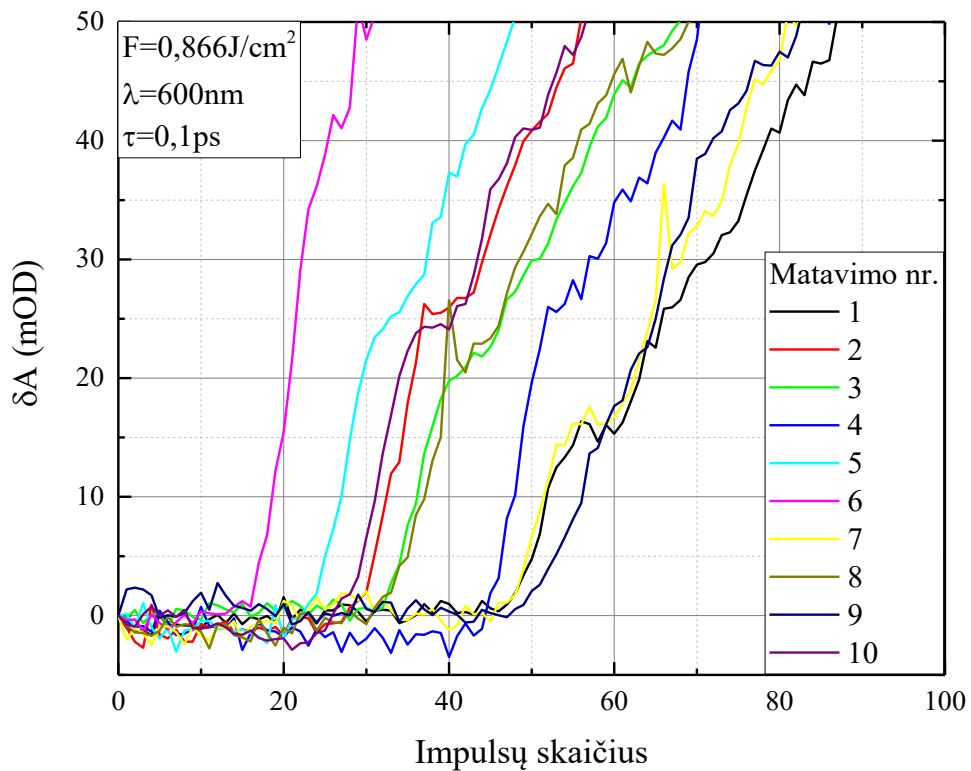


20 pav. Skirtuminės sugerties signalo pokyčio priklausomybė nuo žadinimo impulsų skaičiaus ties skirtingais vėlinimais ir signalų aproksimacijos pažaidos slenksčiui nustatyti.

Kaip minėta 4.3 skyriuje matavimai yra atliekami žadinant bandinius impulsų voromis su vienodais laiko tarpais serijoje prieš vorą ir po jos. Eksperimentus pradėjome atlikti su 100 impulsų voroje, kurių pasikartojimo dažnis lygus  $f = 100\text{Hz}$  ir iškilo natūralus klausimas, ar impulsų pasikartojimo dažnis turi įtakos pažaidos slenksčio priklausomybei nuo impulsų skaičiaus. Lazerio generuojamos spinduliuotės pasikartojimo dažnis  $f_0 = 1\text{kHz}$ , todėl patikrinti priklausomybę su didesniais dažniais galimybių nėra. Tačiau net ir su maksimaliu dažniu bandymų negalėtume atlikti, nes turimos mechaninės sklendės, valdančios, kiek impulsų yra praleidžiama į bandinį, nėra tokios greitos, kad galėtų tiksliai išrinkti norimą impulsų skaičių iš tokio dažnio voros. Todėl bandymai buvo atlikti su dvigubai ir dešimt kartų mažesniu impulsų dažniu voroje. Pastaruoju atveju nebuvo galimybės optinių moduliatorių ir sklendžių pagalba sumažinti dažnio iki realaus  $10\text{Hz}$ , todėl buvo sumažintas impulsų skaičius voroje ir sutrumpinti laiko tarpai serijoje iki ir po voros taip, kad vidutinis dažnis siektų būtent norimą ištestuoti vertę. Rezultatai parodė, kad keičiant dažnį tokiose siaurose ribose, kurias apsprendžia turima įranga, ryškios įtakos pažaidos slenksčiui nėra tiek vidurkio, tiek duomenų išsibarstymo atžvilgiu (21 pav.). Todėl galima korektiškai atlikti tyrimus su bet kokio įrangos galimybių ribose pasiekiamo pasikartojimo dažnio spinduliuote ir lyginti gaunamus rezultatus.



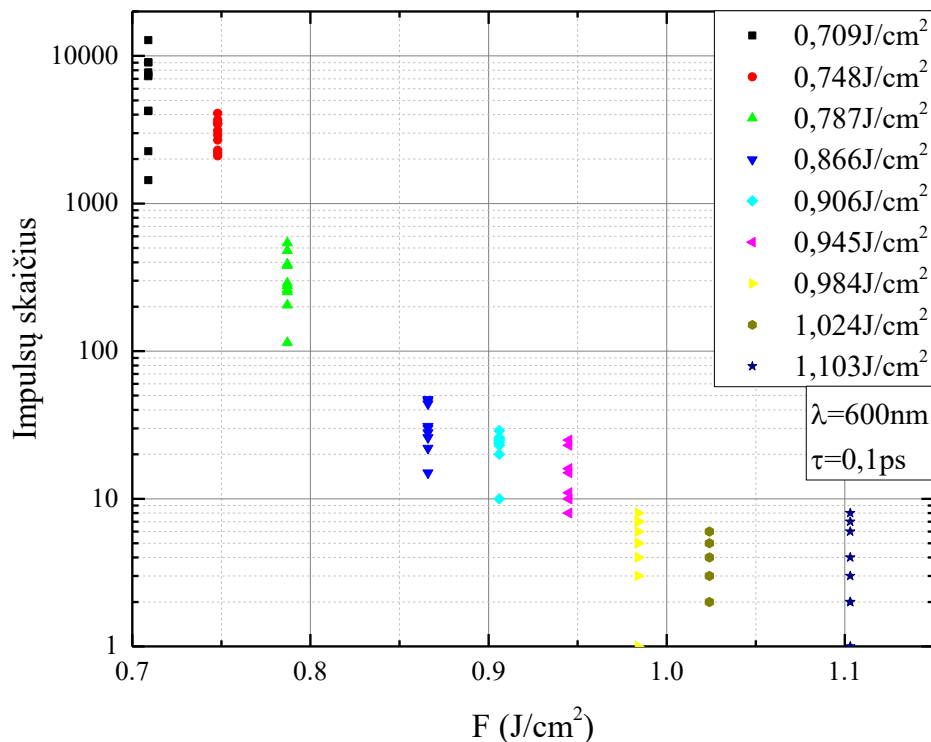
21 pav. Impulsų skaičiaus iki optinio pažeidimo priklausomybė nuo vidutinio krentančių impulsų dažnio voroje.



22 pav. Skirtuminės sugerties signalo pokyčio priklausomybė nuo impulsų skaičiaus.

Tipinis pažaidos slenksčio matavimų rezultatų rinkinys pateikiamas 22 pav. Kaip matome, atlikus dešimt matavimų skirtingose bandinio vietose su  $F = 0,866\text{J}/\text{cm}^2$  energijos įtėkiu, lazerinės pažaidos slenksčio išsibarstymas yra nedidelis, tačiau jis auga mažėjant energijos įtėkiui. Įdomu

pastebėti, kad  $\delta A$  pokytis nuo nulinio signalo visais atvejais yra labai staigus, t.y. nestebime tolygaus ar lėto eksponentinio jo augimo nuo pat pirmojo impulso, o gauname šuolišką pokytį. Tai rodo, kad iki tam tikro lygio kaupiamieji reiškiniai medžiagoje neturi įtakos jos parametrų arba jų įtakai stebėti nepakanka eksperimento jautrumo, o peržengus kažkokią slenkstinę vertę jie staiga pasireiškia ir turime tarsi griūtinę jų efekto dinamiką. Vizualiai stebint pažeidimo susidarymo progresą (18 pav.) galima daryti prielaidą, kad signalo triukšmai iki aiškaus šuolio dėl pažeidimo yra dalinai nulemiami susidarančių darinių, kurie iškraipo per juos sklindantį pluoštą, tačiau registravimo tikslumo ribose jo nesilpnina. Tai reikštų, kad ultrasparčiosios spektroskopijos matavimų metodų pritaikymas nėra tinkamas pažeidimo slenkščio nustatymui, o tik iki jo dėl akumuliacinių reiškinų susidarančių būsenų spektriniam stebėjimui, nes CCD kamera matomi dariniai yra negrįžtami ir daro įtaką su bandiniu sąveikaujančiai spinduliutei, nors to skirtuminės sugerties pokyčio signalo dar negalima užfiksuoti.



23 pav. Impulsų skaičiaus iki optinio pažeidimo slenkščio priklausomybė nuo energijos įtėkio.

Pagrindiniai LIPS nustatymo eksperimentai buvo atliekami didinant pavienio žadinimo impulso energijos įtėkį. 23 pav. pateikiami gauti pažeidimo slenkščiai priklausomai nuo impulsų skaičiaus iki pažeidimo. Pirmiausia pastebime, kad  $F = 0,984 \div 1,103 J/cm^2$  energijos įtėkio diapazone gauti rezultatai yra labai panašūs, nors žadinimo impulsų energijos įtėkio vertės gerokai skiriasi. Tai reiškia, kad optinis pažeidimas šiame regione yra veikiau apibrėžtas bandinio paviršiaus defektu, o ne žadinančio impulso smailinės galios. Kitaip tariant, idealaus paviršiaus optinio elemento pažeidimo slenkstis veikiausiai būtų prie dar didesnių energijos įtėkių, o realiu atveju tipiniai paviršiaus defektai nulemia pažeidimus jau prie mažesnių energijos įtėkių.

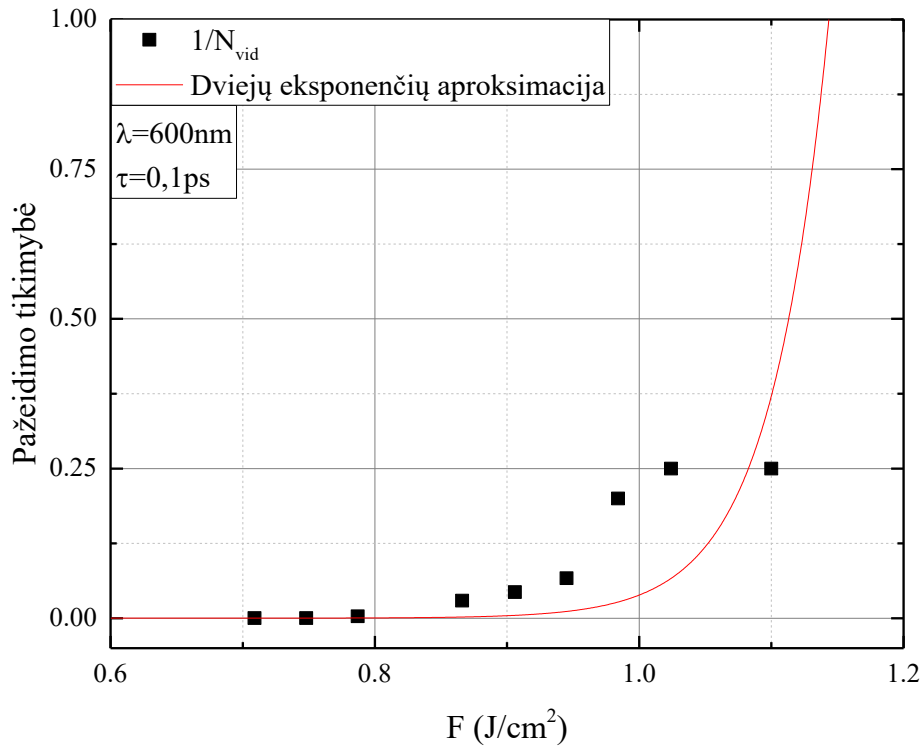


Vidutinio impulsų skaičius reikalingo pažeidai sukelti ir standartinio nuokrypio rezultatai pateikiami 1 lentelėje. Su visais impulso energijos įtėkiais buvo atliktas vienodas kiekis matavimų, tačiau ateityje reikėtų atlikti tuo daugiau matavimų, kuo mažesnis energijos įtėkis. Nors tai gerokai pailgintų matavimų trukmę, tačiau pagal rezultatų išsibarstymą būtų galima spręsti, ar stipriai nuo vidurkio besiskiriančios vertės atspindi atsitiktinius paviršiaus defektus, ar standartinis nuokrypis tiesiog auga proporcingai impulsų skaičiui.

1 lentelė

$F (J/cm^2)$	$N_{vid}$	$\sigma$
0,709	6547	3478,9
0,748	3001	676,6
0,787	319	128,7
0,866	34	11,5
0,906	23	5,2
0,945	15	6,3
0,984	5	2,2
1,024	4	1,3
1,103	4	2,4

Gautų duomenų dėsningumui įvertinti pasirinkta atvirkštinio skaičiaus impulsų vidurkiui priklausomybė nuo energijos įtėkio  $\frac{1}{N_{vid}}(F)$  pateikiama 24 pav. Ši priklausomybė parodo tikimybę, kad bandinys bus pažeistas po pirmo žadinimo impulso, taigi maksimali vertė bus lygi 1 nesvarbu, kiek augs energijos įtėkis, o jam mažėjant tikimybė artėja į nulį. Tai leidžia įvertinti, ties kokių minimaliu energijos įtėkiu bandinys bus pažeidžiamas jau pirmojo žadinimo impulso - 0,2mm storio lydyto kvarco plokštelei, su kuria buvo atliekami eksperimentai minimalus energijos įtėkis pagal aproksimaciją įvertintas  $F_{min} = 1,143J/cm^2$ . Literatūroje pateikiama vertė atliekant panašų eksperimentą su 55fs trukmės žadinimo impulsu įvertinta  $F_{min} \approx 2,200J/cm^2$  [149]. Beveik dviejų kartų įverčių nesutapimas galėjo atsirasti dėl netikslios aproksimacijos ir per mažo duomenų kiekio jai atlikti. Taip pat, Chimier et al. darbe žadinimo pluoštas buvo sufokusuotas į  $w_0 = 4,65\mu m$  tašką ( $1/e^2$  intensyvumo lygyje), todėl impulso smailinis intensyvumas buvo daug didesnis nei naudotas šiame darbe, o pažeida tuomet gali būti indukuojama dėl kitokių fizikinių reiškinių.



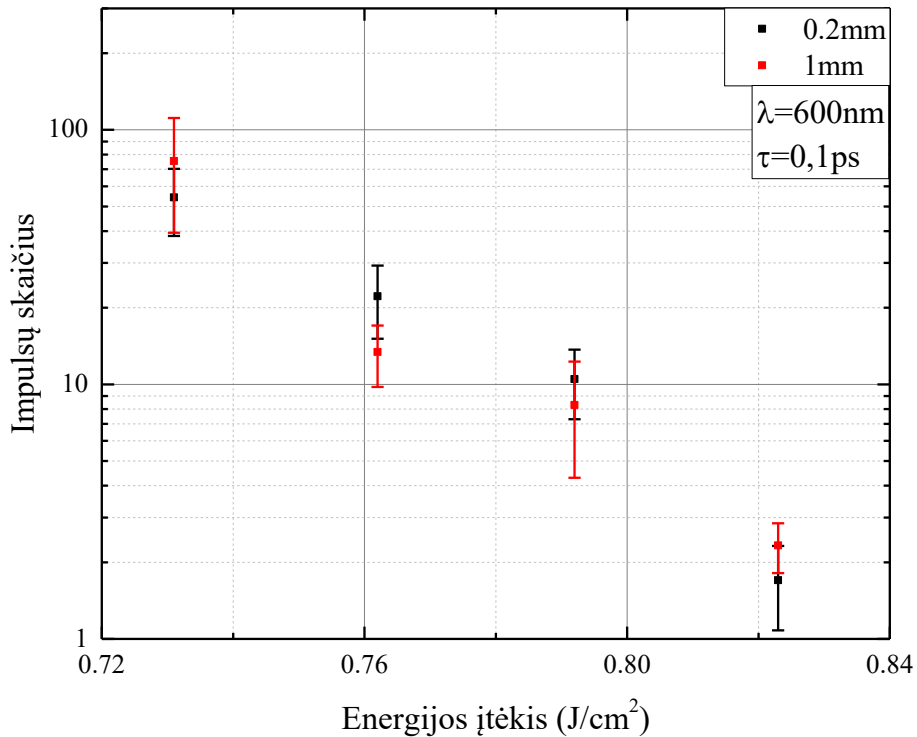
24 pav. Atvirktinio impulsų vidurkio priklausomybė nuo energijos įtekio ir jos aproksimacija dviem eksponentėmis.

## 5.2 1mm storio lydyto kvarco dengiamųjų stikliukų matavimai

Eksperimentai su 1mm lydyto kvarco dengiamuoju stikliuku pirmiausia buvo atliekami pakeitus žadinimo pluošto fokusavimo sąlygas: pluoštas fokusuojamas prieš pat bandinį, jo plokštumoje diametras  $d_{\text{žad}} = 140\mu\text{m}$ . Zondavimo pluošto diametras nepakito:  $d_{\text{zond}} = 50\mu\text{m}$ . Tokie matavimo parametrų pakeitimai atlikti įvertinus, kad esant  $d_{\text{žad}} = 200\mu\text{m}$  diametruui neužtenka turimos žadinimo impulsų galios, kad 1mm storio bandinys būtų pažeistas per mažiau nei  $10^5$  impulsų, taigi negalėtume palyginti gaunamų pažaidos slenksčių su 0,2mm storio lydyto kvarco stikliuku ir patys matavimai užtruktų palyginti gerokai ilgiau. Taip pat pažeidimas tokiomis sąlygomis indukuojamas pirmajame bandinio paviršiuje, į kurį krenta žadinimo ir zondavimo pluoštai, todėl yra išvengiama papildomo pluošto fokusavimosi 1mm storio bandinyje.

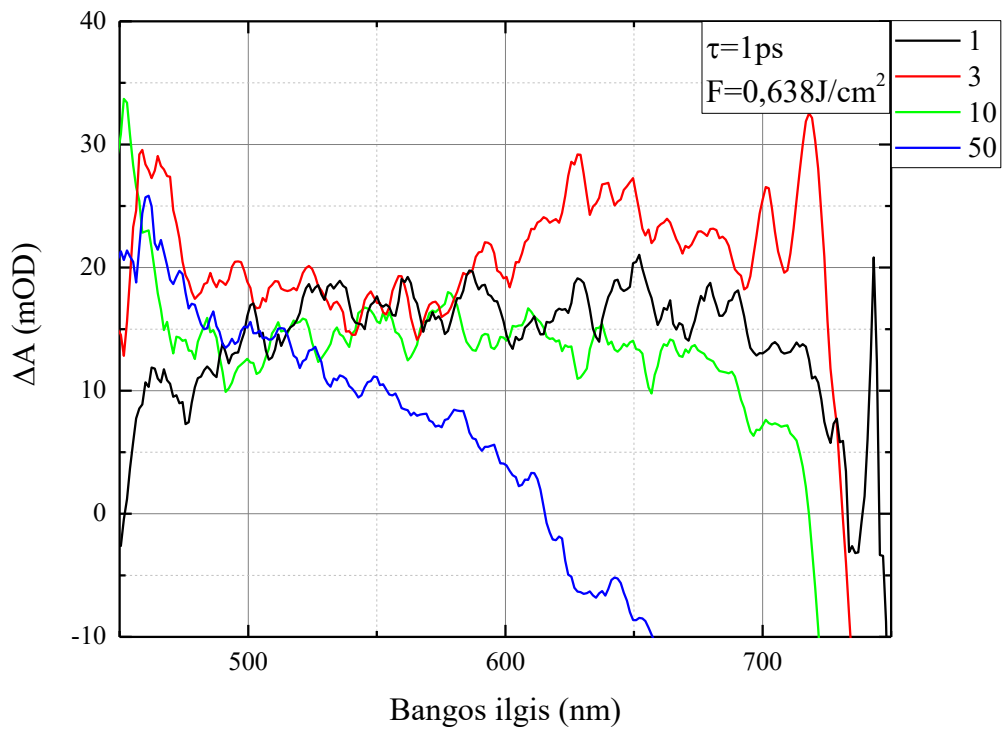
Pirmiausia buvo palyginti skirtingų storių bandinių pažaidos slenksčiai ties keliais skirtingais pavienio impulso energijos įtekiais (25 pav.). Buvo atlikta po dešimt matavimų ties kiekvienu energijos įtekiu. Standartinis nuokrypis skirtingų storių bandiniams gautas panašus eilės ribose, kaip matome rezultatai paklaidų ribose taip pat sutampa. Tokio rezultato buvo galima tikėtis, nes tiriami skirtingo storio bandiniai yra iš vienodos medžiagos – lydyto kvarco – ir netgi iš tos pačios gamybinės partijos. Kai žadinanti spinduliuotė yra fokusuojama taip, kad pažaida atsirastų ant pirmojo bandinio paviršiaus, lazerinė spinduliuotė turi su juo turi sąveikauti identišškai, nepriklausomai nuo to, koks toliau yra bandinio storis – tai ir buvo pademonstruota. Atliekant šį bandinių palyginimą buvo

pastebėta, kad LIPS 0,2mm storio lydyto kvarco stikliukui nesutampa su anksčiau atliktų tyrimų rezultatais. Tai atitinka 1.1 skyriuje aprašytą faktą, kad pažaidos slenkstis priklauso nuo žadinančio pluošto diametro, tačiau šiame darbe pateikiamų rezultatų atveju gavosi atvirkštinė nei nustatyta priklausomybė – LIPS krenta mažėjant pluošto diametrai. Tačiau šį neatitikimą veikiausiai nulėmė paprasčiausiai pakeistos žadinimo pluošto fokusavimo sąlygos, kai didesnio diametro atveju pluoštas buvo fokusuojamas už bandinio, o mažesnio – ant jo pirmojo paviršiaus.

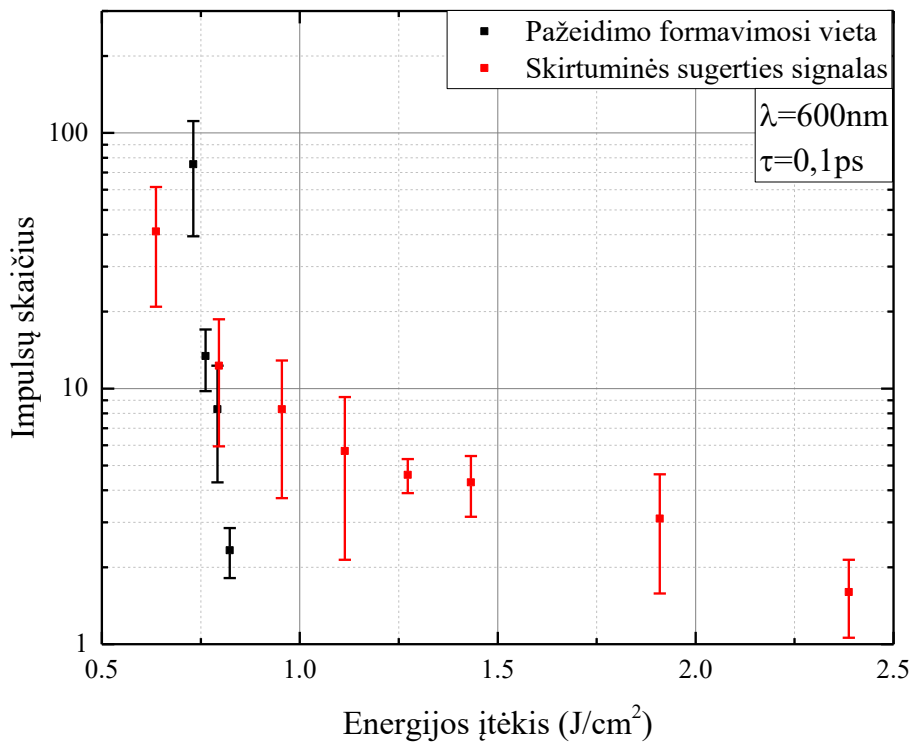


25 pav. Impulsų skaičiaus iki optinio pažeidimo priklausomybė nuo energijos įtėkio skirtingo storio lydyto kvarco stikliukams.

Įsitikinus, jog skirtingo storio lydyto kvarco stikliukų pažaidos slenkščiai sutampa žadinant juos vienodomis sąlygomis galima pabandyti stebėti medžiagoje vykstančius procesus iki pažeidimo. Tam pasirinktas  $\tau = 1ps$  vėlinimas, ties kuriuo po kiekvieno žadinimo impulso skirtuminės sugerties spektre turėtų matytis nebe Kero efekto, o sugeneruotų dalelių ar būsenu įtaka. 26 pav. pavaizduoti skirtuminės sugerties spektrai po tam tikro impulsų skaičiaus (pateikiamuose rezultatuose spektrai suglotninti eliminuojant triukšmus). Matome, kad po palyginus su pirmojo impulso spektru – sekančių spektrų forma yra šiek tiek pradeda keistis jau po trečiojo impulso, nors dar nėra stebimas joks pralaidumo pokytis ar pagal anksčiau aprašytą metodiką užfiksuotas įvykęs pažeidimas. Sugerties padidėjimas „mėlynojoje“ spektro pusėje indikuoja eksitonų generaciją, ko ir tikimės žadinant dielektrinę terpę ir pamatyti jų įnešamą signalo pokytį vėlinimuose jau gerokai po Kero efekto ir sugeneruotų laisvųjų elektronų indukuoto signalo [150–152]. Tai reiškia, kad šių dalelių generavimas vyksta iki pažeidimo, jo metu ir tęsiasi toliau ekspozuojant pažeistą vietą lazerine spinduliuote, ką matome iš spektro po 50 impulsų.



26 pav. Skirtuminės sugerties signalo spektrai po skirtingo impulsų skaičiaus.



27 pav. Impulsų skaičiaus iki optinio pažeidimo priklausomybė nuo energijos įtėkio skirtingais žadinimo ir zondavimo pluoštų erdvinio suvedimo atvejais.

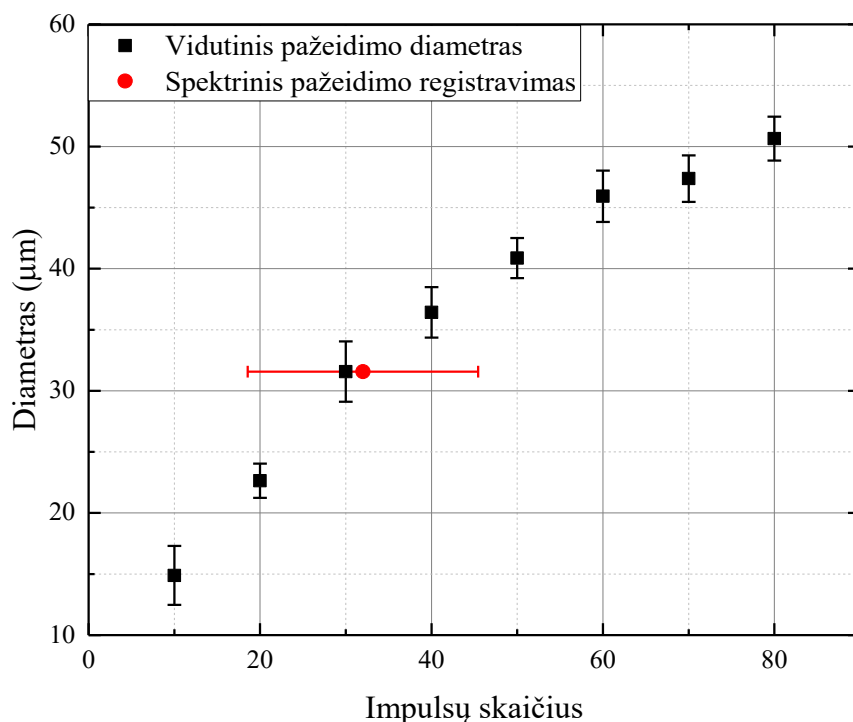
Pagrindinė problema, trukdanti stebėti ir aiškiai pagal spektrinį signalą išskirti iki pažeidimo generuojamų dalelių įtaką yra silpnas jų įnašas į skirtuminės sugerties signalą. Dirbant su turimos įrangos detektavimo jautriu vieninteliu būdu sustiprinti signalą – didinti žadinimo impulso galią,

tačiau tokiu atveju pažeidimas būtų indukuojamas prie mažesnio impulsų skaičiaus, taigi lieka mažiau galimybių išskirti aiškų signalo pokytį. Be to, 26 pav. pateikiami matavimai ties  $\tau = 1ps$  vėlinimu buvo atlikti suvedus žadinimo ir zondavimo pluoštus pagal signalo intensyvumą, taigi nors turėjome kiek įmanoma didesnę signalo amplitudę, negalime teigti, kad matavimas buvo atliekamas tiksliai stebint pažeidimo vietą.

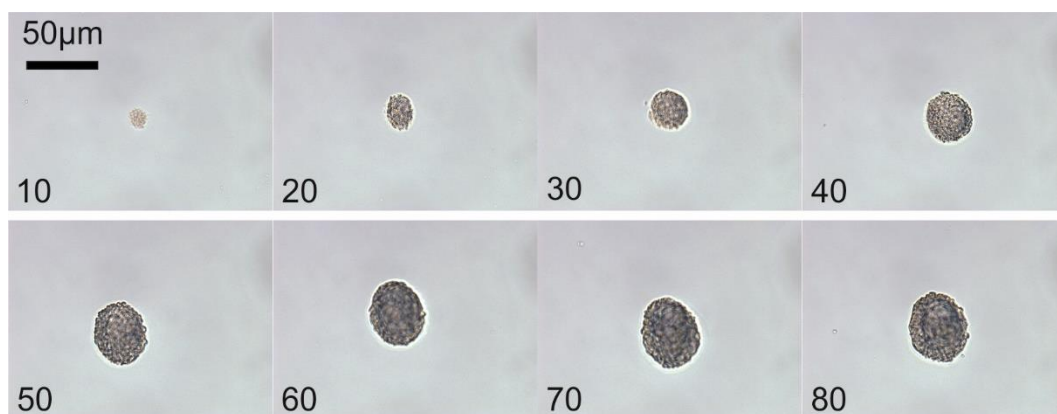
Pluoštų erdvinio suvedimo pagal pažeidimo formavimosi pradžios vietą svarbai pademonstruoti buvo atlikti papildomi matavimai suvedus žadinimo ir zondavimo pluoštus erdvėje pagal skirtuminės sugerties signalo intensyvumą. 27 pav. pateikiamuose rezultatuose aiškiai atsispindi 17 pav. schemeje pateikiamų pluoštų erdvinio suvedimo praktinis rezultatų skirtumas. Suvedimo pagal skirtuminės sugerties signalą atveju atrodo, kad pažeidimas gali įvykti esant daugiau nei dvigubam energijos įtėkiui su tuo pačiu impulsų skaičiumi. Be to, atliekant matavimus nebeužteko žadinimo pluošto galios sukelti garantuotą pažeidimą jau pirmuoju impulsu. Tačiau realiai šie rezultatai tik atspindi faktą, kad pažeidimas iš tikrųjų įvyksta šalia, o ne per vidurį kaip suvedimo pagal jo formavimosi vietą atveju, zondavimo pluošto, todėl registruojamas yra ne pažeidimas, o jo išplitimas. Akivaizdu, jog norint tirti medžiagoje vykstančius akumuliacinius procesus iki jos pažeidimo, reikia matavimus atlikti identiškomis sąlygomis bei tokiomis kai yra tiksliausiai nustatoma pati pažaida.

Eksperimentai buvo tęsiami suvedant žadinimo ir zondavimo pluoštus pagal praktiškai pirmajame elemento paviršiuje įvykstantį pažeidimą ir iškart susidurta su numatyta problema. Skirtuminės sugerties signalas ženkliai sumažėjo, o triukšmai išliko tokios pat amplitudės, todėl pasidarė gerokai sunkiau išskirti momentą, po kurio impulso įvyksta pažaida. Taip pat kilo įtarimas, kad pažeidimas spektruose ima matytis šiek tiek vėliau nei realiai atsiranda, todėl buvo nuspręsta atlikti *post mortem* pažeidimų nuotraukas mikroskopu. Žadinant bandinį impulsų, kurių vieno energijos įtėkis lygus  $F = 0,752J/cm^2$ , serijomis iš  $N = 10; 20; 30; \dots; 80$  impulsų buvo atlikta po dešimt matavimų kiekvienai serijai ( $\tau = 0,1ps; \lambda = 600nm$ ) ir iš rezultatų nustatyta, kad vidutiniškai pagal skirtuminės sugerties pokyčio signalą pažeidimas pamatomas po 32 impulsų (28 pav. raudonas taškas). Mikroskopo nuotraukos (29 pav.) parodė, kad visos bandinio vietos buvo pažeistos jau iki 10 impulso ir po to su kiekviena serija jų diametras tiesiog augo. Tai reiškia, kad arba suvedimas nebuvo absoliučiai tikslus, arba pažeidimas būna iš pat pradžių toks mažas, kad dirbant su esamais spinduliuotės parametrais bei matavimų įrenginiais neturi reikšmingos užfiksujamos įtakos rezultatams. Taip pat galima įtarti, kad nepaisant spektrinio intensyvumo stabilumo pats zondavimo pluoštas nėra pakankamai stabilus erdvėje: netgi suvedus pluoštus pagal pažeidimo atsiradimo vietą yra tikimybė, kad zonduojama zona šiek tiek kinta matavimo metu. Dėl to net atsiradus pakankamai ryškiam paviršiaus struktūriniam pokyčiui (18 pav. po 53 impulso) jis

gali būti neužfiksuojamas arba įnešti iš pradžių tik triukšmų lygio pokytį į signalą, taigi iš skirtuminės sugerties signalo pokyčio pažeidimas bus nustatomas vėliau nei realiai įvyksta.



28 pav. Lazerinio pažeidimo diametro priklausomybė nuo impulsų skaičiaus (juodi taškai) ir pagal skirtuminės sugerties pokyčio signalą nustatytas vidutinis pažeidimą sukeliančių impulsų skaičius (raudonas taškas).



29 pav. *Post mortem* lazerio spinduliuotės indukuotų pažeidimų nuotraukos po skirtingo žadinimo impulsų skaičiaus lydyto kvarco stikliuko paviršiuje.

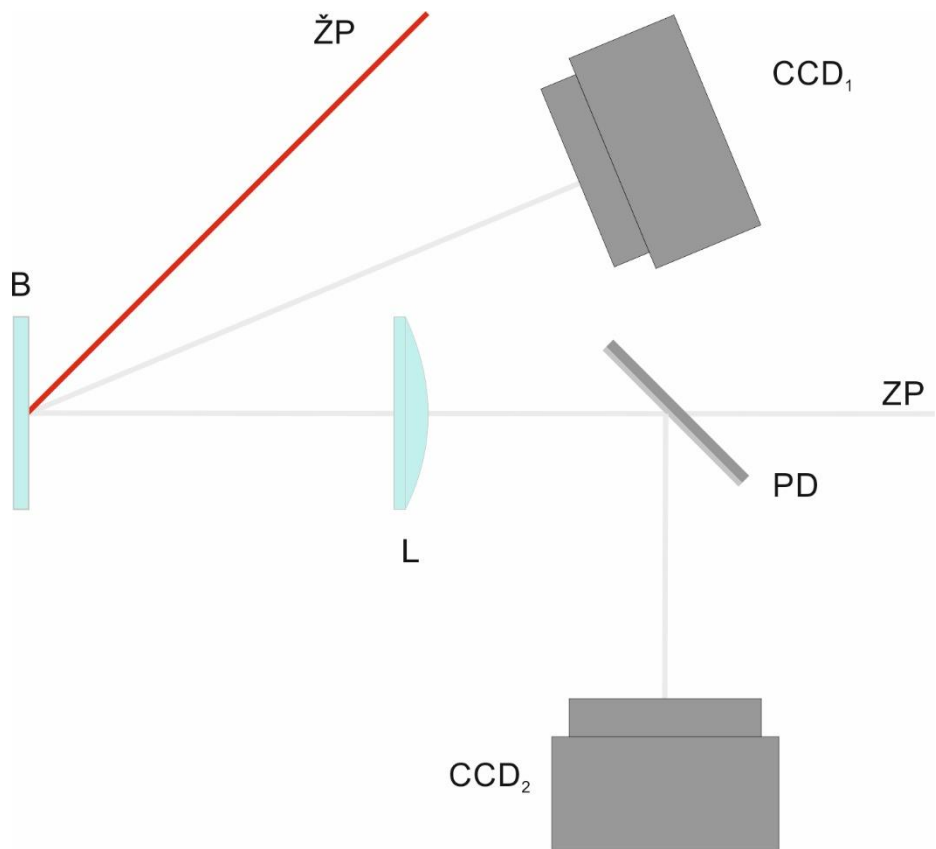
Šiuos netikslumus galimai įnešančių faktorių įtaką nuspręsta sumažinti papildomu glaudžiančiuoju lęšiu fokusuojant zondavimo pluoštą į bandinio paviršį. CCD kamera išmatuotas zondavimo pluošto diametras buvo sumažintas iki  $d_{zond} = 18,75\mu m$  ties intensyvumo amplitudės maksimumo puse. Mažesnio diametro zondavimo pluoštas turėtų būti jautresnis besiformuojančiam pažeidimui dėl dviejų priežasčių. Pirma, nepaisant mažo pradinio pažaidos diametro, ji užims santykinai daugiau pluošto zonduojamo ploto, todėl turėtų įnešti didesnę pokytį į signalą. Antra, net jeigu zondavimo pluoštas nėra visiškai pastovus erdvėje, dėl jo mažesnių matmenų atitinkamai

sumažės ir erdvinio svyravimo amplitudė, taigi išliks didesnė tikimybė susiformavusiam pažeidimui persikloti su pluoštu ir indukuoti registruojamo signalo pokytį. Laikinis vėlinimas, koku momentu po sužadavimo registruojamas skirtuminės sugerties signalas, buvo parinktas  $\tau = 0,3ps$  siekiant eksperimento metu ne tiesiog užfiksuoti pažaidos slenkstį, tačiau ir stebėti pažeidimo vietoje sugeneruojamų dalelių įnešamą spektrinį pokytį. Taip pat su papildoma CCD kamera buvo užfiksuojamas paviršiaus atvaizdas po kiekvieno žadinimo impulso. Po skirtuminės sugerties spektro užregistravimo apšviečiant tiriamą bandinio vietą pačiu žadinimo pluoštu stebima, ar kameros padarytoje nuotraukoje matoma spinduliuotės sklaida. Aplinkos apšvietimo sąlygos parinktos taip, kad zondavimo pluošto atspindys nuo bandinio nebūtų išskiriamas kameroje, tačiau bet koks sklaidos pokytis jau galėtų būti identifikuojamas. Iš principo su tokiu sistemos patobulinimu suderiname klasikinių LIPS nustatymo eksperimentą stebint sklaidą nuo elemento su tiriamuoju pažaidos slenksčio nustatymu pasitelkiant ultrasparčiosios spektroskopijos matavimų metodus.

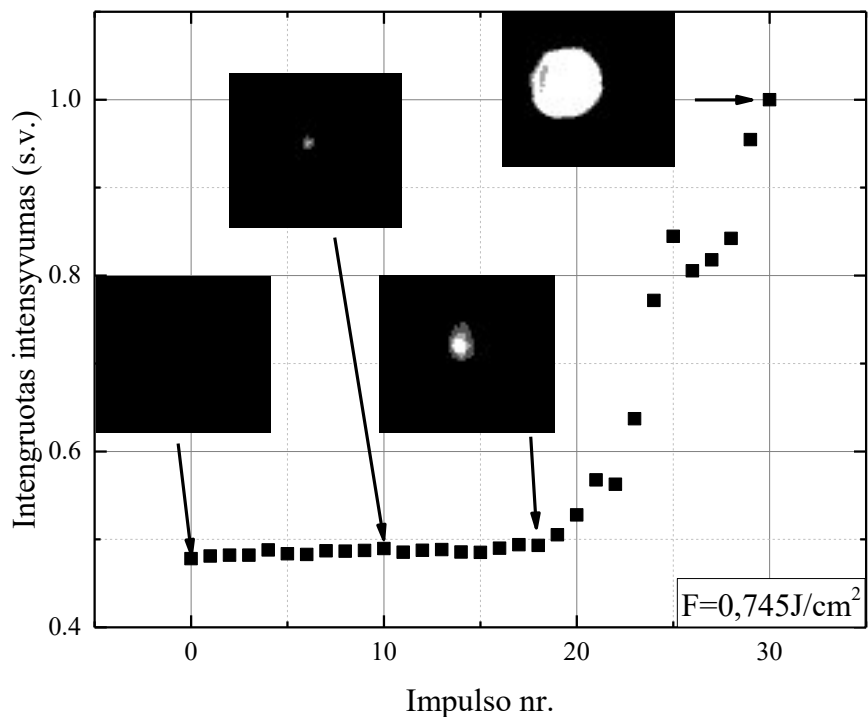
Atlikus eksperimentus žadinant bandinį pavieniais impulsais ir po kiekvieno impulso užfiksuojant paviršiaus sklaidą CCD kamera buvo nustatyti du pagrindiniai dalykai:

- a) Impulsų skaičius, po kurio įvyksta lazerinis pažeidimas išsibarstęs  $\sim 23\%$  mažiau palyginti su ankstesniuose eksperimentuose nustatytu standartiniu nuokrypiu ties  $F = 0,762J/cm^2$  energijos įtėkiu. Tai reiškia, kad zondavimo pluošto diametro ties pažeidimo susidarymo plotu bandinio paviršiuje sumažinimas leidžia tiksliau nustatyti LIPS. Likusi rezultatų variacija atspindi pažeidimo susidarymo tikimybinę prigimtį;
- b) Pažeidimai stebint indukuotos sugerties signalo spektrinio intensyvumo pokytį yra užfiksuojami po daugiau impulsų negu stebint sklaidą nuo pažeidimo vietos CCD kameroje. Ties  $F = 0,762J/cm^2$  pažaida spektriškai užregistruojama po vidutiniškai 65% daugiau impulsų nei stebint sklaidą ir šis atotrūkis auga mažėjant energijos įtėkiui, o taip pat tampa sunkiau išskirti konkretų pažaidos pradžios tašką, nes pats spektrinis intensyvumas artėja į triukšmų lygį.

Šie rezultatai privertė iš naujo įvertinti bandomojo matavimų metodo galimybes tiksliai nustatyti optinio elemento LIPS ir padaryti tai ne vėliau, negu pažeidimas gali būti užfiksuojamas vizualiai stebint pačios zondavimo spinduliuotės sklaidą nuo jo. Patikrinimą nuspręsta atlikti stebint ne tik sklaidą nuo pažaidos taško, bet ir pačios zondavimo spinduliuotės pluošto erdvinį pokytį iš pradžių atspindyje, o tuomet ir pralaidume, kaip iki šiol buvo atliekami eksperimentai. 30 pav. pavaizduota šiai eksperimento daliai pritaikyta schema kai stebimas zondavimo pluošto **ZP** atspindys nuo elemento paviršiaus su kamera **CCD<sub>2</sub>**, o kamera **CCD<sub>1</sub>** su papildomu objektyvu sufokusavus vaizdą į bandinio **B** paviršių stebi sklaidą nuo žadinimo pluošto **ŽP** indukuoto pažeidimo. Atliekant eksperimentą pralaidumo režime **CCD<sub>2</sub>** kamera yra patalpinama už bandinio.



30 pav. Principinė lazerio indukuoto optinio pažeidimo stebėjimo schema. ZP – zondavimo pluoštas, ŽP – žadinimo pluoštas, PD – pluošto daliklis, L – glaudžiantysis lęšis, B – bandinys, CCD<sub>1</sub> ir CCD<sub>2</sub> – CCD kameros.

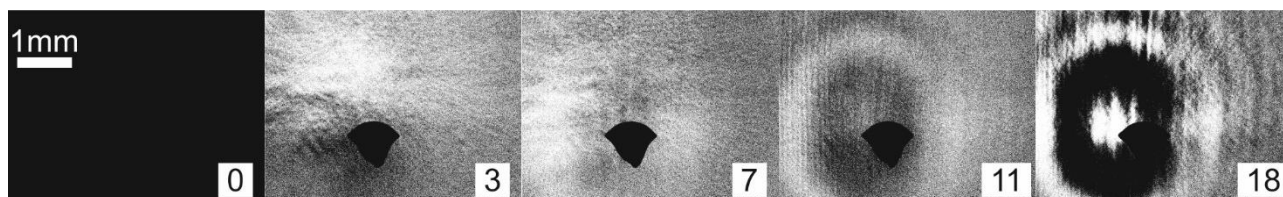


31 pav. CCD kamera užfiksuoto sklaidos signalo integruoto intensyvumo ploto vienetė priklausomybė nuo impulsų skaičiaus.

Sklaidos nuo pažeidimo vietos bandinio paviršiuje nuotraukos, užfiksuotos CCD<sub>1</sub> kamera, analizuojamos lyginant pasirinkamo plotelio, kuriame įvyksta pažeidimas, integruotą spektrinį

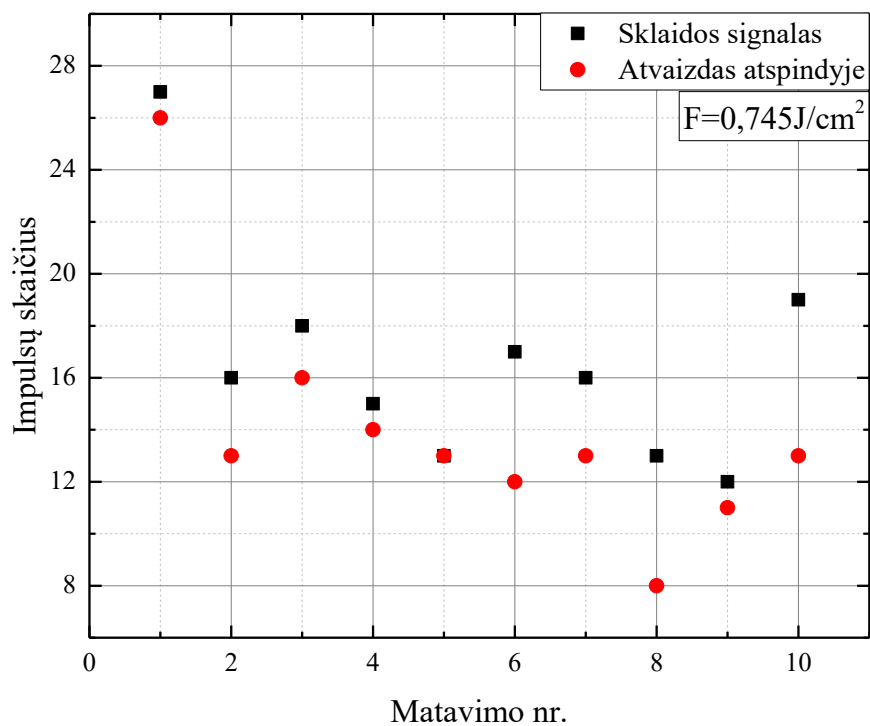


intensyvumą. Šis parametras pasirinktas objektyviam pažeidimo momento nustatymui, kadangi galima aiškiai išskirti impulsą, po kurio signalas pradeda augti – analogiškai pažeidimo nustatymui iš skirtuminės sugerties pokyčio signalo. Matavimų pavyzdys pateikiamas 31 pav. Zondavimo pluošto erdvinio iškraipymo dėl besiformuojančio pažeidimo vertinimas yra sudėtingesnis. **CCD<sub>2</sub>** kameros nuotraukos matomas pluošto erdvinis nepastovumas, todėl negalima tiesiogiai lyginti integruoto intensyvumo per ploto vienetą. Dėl to, visos nuotraukos yra skaitmeniškai padalinamos iš atraminės – padarytos dar prieš pirmąjį impulsą – ir tuomet stebima, kada pradeda formotis pažeidimo kontūras. To pačio matavimo kaip 31 pav. pateikiami rezultatai metu darytos **CCD<sub>2</sub>** kameros nuotraukos po kiekvieno impulso pateikiamos 32 pav. Po pirmųjų impulsų nuotraukose stebime tik tam tikrą foninį vaizdą, kuris atspindi sistemos triukšmus. Po vienuolikto impulso padarytoje nuotraukoje pradeda ryškėti zonduojančio pluošto fronto iškraipymas – ši paviršiaus modifikacija yra negrįžtama, todėl gali būti klasifikuojama kaip optinis pažeidimas. LIPS nustatymas pagal pluošto iškraipymą yra subjektyvesnis nei stebint sklaidos nuo pažeidimo intensyvumą, tačiau sumažinus pluošto erdvinį nestabilumą, kad būtų galima skaitmeniškai atimti nuotraukas iš atraminės išvengiant triukšmų, šis metodas taptų labiau matematiškai apibrėžtu.

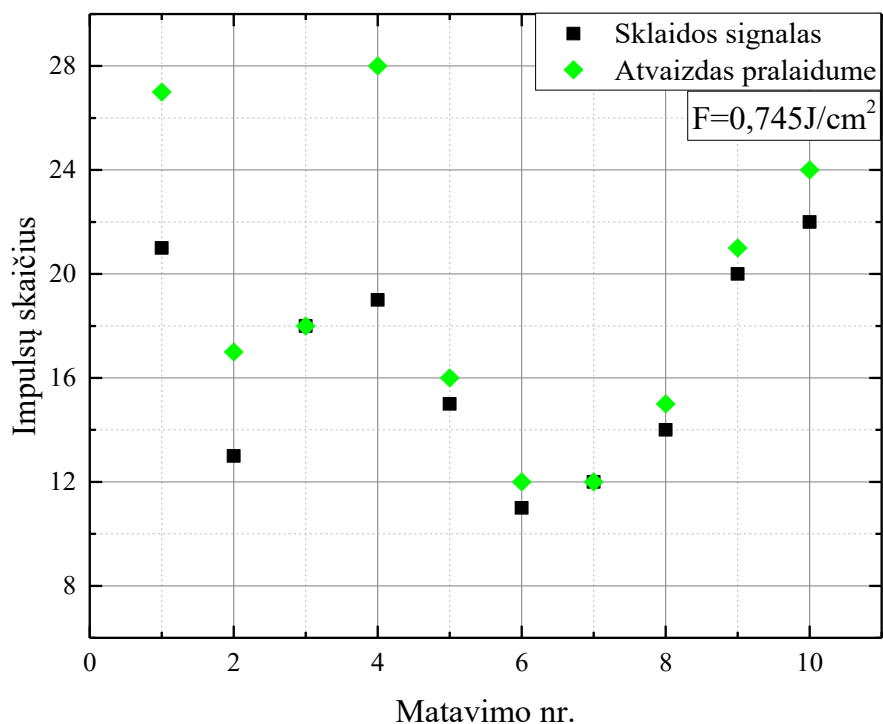


32 pav. CCD kamera užfiksuotas zondavimo pluošto pokytis po nurodyto impulso skaičiaus, stebint pluošto atspindį nuo bandinio paviršiaus, į kurį yra fokusuojama žadinanti spinduliuotė. Visos nuotraukos yra skaitmeniškai padalintos iš atraminės, užfiksuotos prieš bandinio žadinimą. Juoda dėmė nuotraukose – nebeaktyvūs kameros pikseliai, pažeisti eksponavus juos per didelio intensyvumo spinduliuote.

Lyginant impulsų skaičių, po kurio galima aukščiau aprašytais metodais išskirti pažaidos slenkstį, buvo nustatyta, kad zondavimo pluošto fronto pokytis stebint jo atspindį indikuoja pažeidimą ne vėliau nei sklaidos signalas (33 pav.). Įdomu pastebėti, kad registruojant zondavimo pluošto fronto pokytį už bandinio gauti rezultatai yra priešingi – pažeidimas identifikuojamas ne anksčiau negu iš sklaidos signalo (34 pav.). Rezultatų išsibarstymas tarp skirtingų matavimų stebint sklaidą yra panašus į pluošto atspindžio matavimų svyravimus, vidutiniškai sklaida identifikuoja pažeidimą 2,7 impulso vėliau. Pralaidumo konfigūracijoje vidutinis jau pluošto fronto pokyčio detektavimo atsilikimas yra toks pat, tačiau standartinis nuokrypis siekia 3 impulsus, kai atspindžio konfigūracijoje tik 2, kas parodo, kad rezultatai yra daugiau išsibarstę. Tai ir pats faktas, kad atspindyje pluošto fronto pokytis dėl pažeidimo pastebimas ne vėliau, o pralaidume – ne anksčiau nei iš sklaidos nuo pažeidimo signalo, vienareikšmiškai parodo, kad LIPS nustatymo ir akumuliacinių reiškinių tyrimus reikėtų atlikti registruojant zondavimo pluoštą atspindyje.



33 pav. Impulsų skaičius, po kurio nustatytas optinis pažeidimas CCD kameromis stebint sklaidą nuo jo ir jo indukuotą zondavimo pluošto fronto pokytį atspindyje.



34 pav. Impulsų skaičius, po kurio nustatytas optinis pažeidimas CCD kameromis stebint sklaidą nuo jo ir jo indukuotą zondavimo pluošto fronto pokytį už bandinio.

Šie rezultatai paaiškina ir kodėl iš skirtuminės sugerties pokyčio signalo pažaida ankstesniuose bandymuose buvo užfiksuojama vėliau nei tą gali pastebėti CCD kamera registruodama sklaidos signalą. Skirtuminės sugerties signalo intensyvumas priklauso ir nuo žadinančio ir zonduojančio

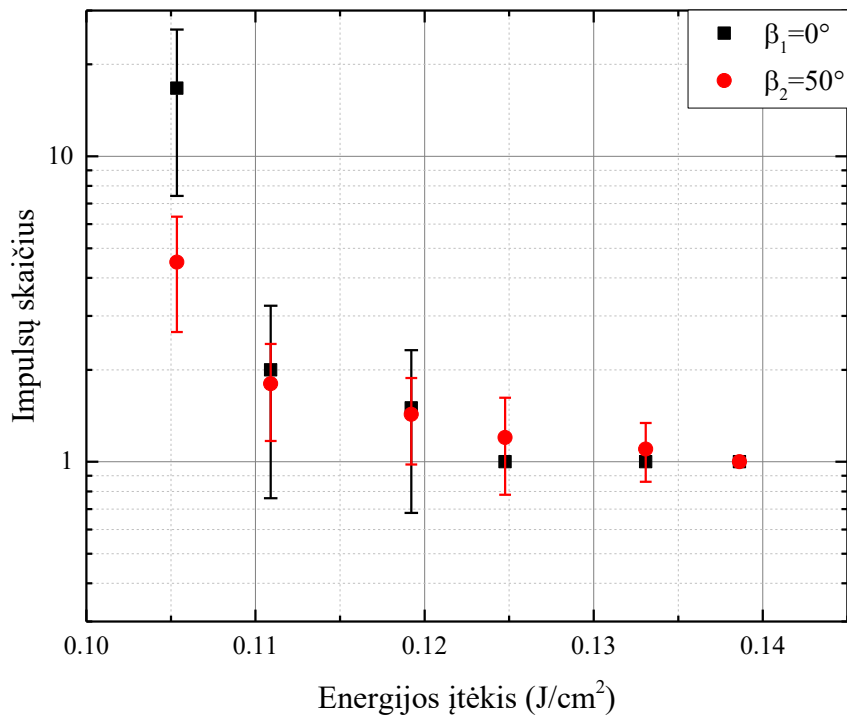
pluoštų intensyvumo – kadangi pastarasis krenta kai pradeda formuotis pažeidimas, pradedame stebėti ir skirtuminės sugerties pokyčio signalo augimą. Tačiau šio darbo tikslas buvo dar iki to, kai signalas kinta dėl mechaninio zondavimo spinduliuotės blokavimo dėl indukuotos pažaidos, iš indukuotos sugerties spektro pokyčio arba atsirandančių papildomų spektrinių komponentių būtent ir numatyti būsimą po tam tikro skaičiaus impulsų pažeidimą. Tai būtų tiesioginis akumuliacinių reiškinių medžiagoje stebėjimas. Paskutinio atlikto eksperimento metu išsiaiškinome, kad aiškesnis ir anksčiau pasireiškiantis zondavimo pluošto pokytis stebimas atspindyje nuo paviršiaus, todėl iš principo skirtuminės sugerties pokyčio signalą taip pat reikėtų stebėti būtent atspindyje, ne pralaidume kaip buvo daryta viso eksperimento metu. Besiformuojant pažeidimui, ypač žadinant bandinį su mažesniais energijos įtėkiais, galima pastebėti, kad tai nėra iškart spinduliuotės nepraleidžiantis paviršiaus suardymas kaip matoma 29 pav. nuotraukose, o iš pradžių tam tikras žiedinės formos lokalus paviršiaus iškraipymas (32 pav. po 11 impulso). Būtent šis pažeidimo formavimosi etapas yra geriau matomas atspindyje ir neįneša didesnio nei triukšmo lygis pokyčio į zondavimo pluošto signalą registruojant jo intensyvumo pralaidumo režime, todėl iš principo bet kokio signalo pokyčio pralaidumo režime registravimas lazerinės pažaidos slenksčio nustatymui atsiliks nuo klasikinio slenksčio įvertinimo registruojant sklaidą nuo pažeidimo vietos.

Bendru atveju, tiriant nedengtų optinių terpių pažeidimus ir akumuliacinius reiškinius kai zondavimo pluoštas stebimas atspindėtas nuo bandinio paviršiaus – dėl to smarkiai sumažėja jo intensyvumas. Tai apsunkina reikšmingo signalo pokyčio išskyrimą, kurį galima traktuoti kaip optinio pažeidimo slenkstį. Be to, tiriant kaupiamuosius reiškinius dėl mažo pavienio impulso energijos įtėkio registruojamas ir mažo intensyvumo skirtuminės sugerties signalas taigi analogiškai tenka dirbti su signalais, kurių amplitudės yra arti triukšmo lygio. Dėl šių priežasčių sisteminiai matavimų schemos triukšmai, kaip erdvinis pluoštų nestabilumas, spektrinio intensyvumo svyravimai turi būti minimizuojami bei didinamas detektorių jautrumas.

### 5.3 Nanostruktūrizuotų dielektrinių dangų matavimai

Dielektrinių dangų LIPS tyrimai buvo atliekami su  $d_{zond} = 18,75\mu m$  diametro zondavimo pluoštu ir  $d_{žad} = 150\mu m$  žadinimo pluoštu. Jo fokusavimo sąlygos buvo analogiškos kaip 1mm storio lydyto kvarco dengiamųjų stikliukų: pluoštas fokusuojamas į pirmąjį paviršių, kuris yra uždengtas danga, taip užtikrinant, kad pažeidimas įvyks būtent joje. Pažaidos slenksčio nustatymas buvo atliktas dviem skirtingais kampais  $\beta_1 = 0^\circ$  ir  $\beta_2 = 50^\circ$  dengtomis  $SiO_2$  dangoms. Pagrindinis tikslas buvo nustatyti dangų LIPS, todėl matavimai atlikti tiesiog registruojant zondavimo pluošto fronto pokytį CCD kamera atspindyje nuo elemento paviršiaus.

Pagrindiniai dviejų skirtingais kampais padengtų struktūrinių  $SiO_2$  dangų lazerinės pažaidos slenksčių rezultatai pateikiami 35 pav. Abiem bandiniams ties kiekvienu energijos įtėkiu buvo atlikta po 10 matavimų ir suskaičiuotas vidurkis, po kurio impulso užfiksuojamas pažeidimas, taip pat standartinis nuokrypis, pažymėtas kaip paklaidos intervalas ordinačių ašyje. Energijos įtėkis, ties kuriuo bandinys pažeidžiamas pirmuoju impulsu ir be jokių paklaidų, t.y. rezultatai atsikartoja 10/10 kartų, yra elemento pavienio impulso pažaidos slenkstis.  $\beta_1 = 0^\circ$  kampu uždengtos dangos LIPS  $F_{\beta_1} = 0,125J/cm^2$ , o  $\beta_2 = 50^\circ$  kampu uždengtos dangos:  $F_{\beta_2} = 0,139J/cm^2$ . Todėl galima teigti, kad ne statmenai bandinio paviršiui, o  $\beta_2 = 50^\circ$  kampu dengta danga yra 11% atsparesnė lazerinei pažaidai.



35 pav. Skirtingais kampais  $\beta$  garintų skulptūrinių dielektrinių dangų pažeidimą indukuojančių impulsų skaičiaus priklausomybė nuo energijos įtėkio.

Be akivaizdaus lazerinio pažeidimo slenksčių skirtumo galima pastebėti ir daug didesnę rezultatų išsibarstymą  $\beta_1 = 0^\circ$  dangoje bei staigesnę impulsų skaičiaus, reikalingo indukuoti pažeidimą, augimą mažėjant energijos įtėkiui nei  $\beta_2 = 50^\circ$  dangoje. Didelis rezultatų išsibarstymas viena vertus rodo dangos potencialą pasiekti aukštesnius pažeidimo slenksčius – gali būti, jog jie skiriasi per mažiau nei 11% arba visai nesiskiria, tačiau dėl didelio išsibarstymo paprasčiausiai per visus 10 bandymų ties  $F_{\beta_1} = 0,125J/cm^2$  buvo užregistruoti pažeidimai jau po pirmojo impulso. Antra vertus, išsibarstymas rodo ir skirtingą dangos atsaką į lazerinę spinduliuotę. Kadangi matavimai su fiksuotu energijos įtėkiu yra atliekami greta, per 0,5mm atstumą tarp žadinimo taškų, tai veikiausiai nėra sisteminis dangos dengimo trūkumas, kad, tarkime, per centrą stebime aukštesnę

pažeidimo slenkstį, o kraštuose – žemesnį. Labiausiai tikėtina, kad tokiam rezultatų išsibarstymui daugiausiai įtakos turėjo tiesiog pašalinis deguonis, ar kitos garinimo kameroje esančios medžiagos, kurios įsiskverbė į dangos struktūrą ir liko joje kaip defektai, kurie LIPS matavimuose suveikia kaip pažaidos prekursoriai. Tokiu atveju galima daryti išvadą, kad dengiant skulptūrinę dielektrinę dangą  $\beta_2 = 50^\circ$  kampu joje proceso metu įstringa mažiau pašalinių medžiagų ar dalelių, kurios gali veikti kaip pažeidimo pirmtakai, ką patvirtina eksperimentiniai defektų priklausomybės nuo dengimo kampo vertinimai [153] ir LIPS tyrimai [154-156].

Šiame darbe buvo detaliau ištyrinėtas katastrofinių pažeidimų optinėse terpėse nustatymas ultrasparchiosios spektroskopijos metodais. Lyginant su vizualiu katastrofinio pažeidimo detektavimo metodu išskirta pagrindinė rekomendacija matavimams patikslinti ir jautrumui padidinti – registruoti nuo bandinio paviršiaus atsispindėjusio zondavimo pluošto spektrą. Siūloma metodikos korekcija patvirtinta ir dielektrinėms dangoms, kurias tiriant matavimai atspindyje turėtų būti dar tikslesni, nes indukuotos sugerties spektriniam signalui minimaliai įtakos turėtų pačio optinio elemento pagrindo signalo komponentė.

Siekiant detaliau išnagrinėti kaupiamuosius reiškinius pirmiausia reikėtų bandinį zonuoti ultravioletiniame diapazone, kur turėtų būti lengviau stebėti surišųjų eksitonų indukuotą sugertį, ką indikuoja ir 26 pav. pateikiami matavimų rezultatai. Teisingai parinktas pavienis zondavimo bangos ilgis vietoje kontinuumo spektro dėl savo intensyvumo galėtų išgauti daug geresnį signalo/triukšmo santykį ir leisti tiksliau stebėti krūvininkų dinamiką. Taip pat, įrodyta pluoštų fokusavimo sąlygų įtaka leidžia manyti, kad dar sumažinus tiek žadinimo, tiek zondavimo pluoštų diametrus būtų galima tikslingiau surinkti skirtuminės sugerties signalo informaciją. Tai leistų gauti daugiau ieškomos informacijos apie medžiagoje vykstančius kaupiamuosius reiškinius ir suteiktų žinių apie pažeidimų formavimosi mechanizmus. Galiausiai, privaloma mažinti sisteminius triukšmus bei aplinkos įtaką matavimų stendui, nes nuovargio efekto indukuoti medžiagos pokyčiai yra bent eile silpnesni nei jau vizualiai stebimas pažeidimas, kas itin apsunkina jų išskyrimą iš bendro signalų triukšmo.

## 6. IŠVADOS

1. Vidutinis impulsų pasikartojimo dažnis žadinančios spinduliuotės voroje neturi reikšmingos įtakos akumuliaciniams reiškiniams iki lazerinės spinduliuotės indukuoto optinio pažeidimo slenksčio kai dažnis kinta ne daugiau nei viena eile (tirtu atveju  $10 \div 100\text{Hz}$ ).
2. Spektroiniu metodu užfiksuotų  $0,2\text{mm}$  storio lydyto kvarco plokštelės akumuliacinių efektų indukuotų pažeidimo slenksčių sutapimas  $F = 0,984 \div 1,103\text{J}/\text{cm}^2$  energijos įtėkių diapazone rodo, kad augant pavienio impulso energijos įtėkiui pažeidimo slenkstį apsprendžia bandinio paviršiuje esančių defektų tankis, o ne faktinė įtėkio vertė.
3. Aproximuojant atvirkštinio pažeidimą sukeliančių impulsų skaičiaus vidurkio priklausomybę nuo energijos įtėkio galima nustatyti minimalią energijos įtėkio vertę, ties kuria bandinys bus pažeidžiamas iškart po pirmojo impulso. Šiame darbe tirtai  $0,2\text{mm}$  storio lydyto kvarco plokštei šis slenkstis įvertintas ties  $F_{min} = 1,143\text{J}/\text{cm}^2$ .
4. Lazerio indukuotas pažeidimo slenkstis nepriklauso nuo bandinio storio, jeigu bandiniai yra iš vienos medžiagos ir žadinami vienodomis sąlygomis fokusuojant spinduliuotę į priekinį paviršių.
5. Žadinant dielektrinę terpę lazerine spinduliuote iki optinio pažeidimo, jo metu ir po to medžiagoje yra generuojami eksitonai, kurių įtaką į skirtuminės sugerties spektrinį signalą galima stebėti ties  $\tau = 1\text{ps}$  vėlinimu regimosios spinduliuotės mėlynojoje spektro srityje.
6. Optinis pažeidimas registruojant atsispindėjusio nuo bandinio pažeidimo vietos zondavimo pluošto fronto pokytį gali būti užfiksuojamas anksčiau nei vizualiai stebint sklaidą nuo pažeidimo vietos. Todėl skirtuminės sugerties signalo spektras norint tirti akumuliacinius reiškinius priešslenkstiniame režime ir tiksliai nustatyti LIPS taip pat turi būti registruojamas iš atsispindėjusio nuo bandinio paviršiaus pažeidimo zonos.
7. Nanostruktūrizuota  $\text{SiO}_2$  dielektrinė danga, užgarinta  $\beta_2 = 50^\circ$  kampu yra 11% atsparesnė femtosekundinės lazerinės spinduliuotės indukuojamai pažeidai nei  $\beta_1 = 0^\circ$  kampu užgarinta analogiška danga dėl proceso metu struktūroje įstringančių pašalinių medžiagų, kurios veikia kaip pažeidimo pirmtakai.

## 7. LITERATŪROS SĄRAŠAS

- [1] C. R. Giuliano, Laser-induced damage to transparent dielectric materials, *Applied Physics Letters*, t. 5, p. 137–139, 1964, doi: 10.1063/1.1754087.
- [2] ISO, ISO 21254-1:2011, 2011. <https://www.iso.org/obp/ui/#iso:std:iso:21254:-1:ed-1:v1:en>
- [3] J. Natoli *et al.*, Laser-induced damage of materials in bulk , thin-film , and liquid forms, *Applied Optics*, t. 41, p. 3156, 2002, doi: 10.1364/ao.41.003156.
- [4] D. W. Fradin *et al.*, Comparison of laser-induced surface and bulk damage, *Applied Physics Letters*, t. 22, p. 157–159, 1973, doi: 10.1063/1.1654594.
- [5] E. S. Bliss, Pulse duration dependence of laser damage mechanisms, *Opto-electronics*, t. 3, p. 99–108, 1971, doi: 10.1007/BF01424087.
- [6] D. Giguère *et al.*, Laser ablation threshold dependence on pulse duration for fused silica and corneal tissues: experiments and modeling, *Journal of the Optical Society of America A*, t. 24, p. 1562, 2007, doi: 10.1364/josaa.24.001562.
- [7] X. Wang *et al.*, Laser-induced damage threshold of silicon in millisecond, nanosecond, and picosecond regimes, *Journal of Applied Physics*, t. 108, 2010, doi: 10.1063/1.3466996.
- [8] P. V. Avizonis *et al.*, Internal self-damage of ruby and Nd-glass lasers, *Applied Physics Letters*, t. 7, p. 205–206, 1965, doi: 10.1063/1.1754379.
- [9] W. Koechner, *Solid-State Laser Engineering*, 4th ed. Springer-Verlag Berlin Heidelberg, 2006. doi: 10.1007/978-3-662-14105-2.
- [10] V. Nathan *et al.*, Review of multiphoton absorption in crystalline solids, *Journal of the Optical Society of America B*, t. 2, p. 294, 1985, doi: 10.1364/JOSAB.2.000294.
- [11] D. Du *et al.*, Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO<sub>2</sub> with pulse widths from 7 ns to 150 fs, *Applied Physics Letters*, t. 64, p. 3071–3073, 1994, doi: 10.1063/1.111350.
- [12] J. R. Palmer, Continuous Wave Laser Damage On Optical Components, *Optical Engineering*, t. 22, 1983, doi: 10.1117/12.7973140.
- [13] J. Xia *et al.*, CW laser induced thermal and mechanical damage in optical window materials, *Guangxue Xuebao/Acta Optica Sinica*, t. 17, p. 20–23, 1997.
- [14] M. Lapczynya *et al.*, Ultra high repetition rate (133 MHz) laser ablation of aluminum with 1.2-ps pulses, *Applied Physics A: Materials Science and Processing*, t. 69, p. 883–886, 1999, doi: 10.1007/s003390051552.
- [15] L. Gang *et al.*, Laser-induced damages to charge coupled device detector using a high-repetition-rate and high-peak-power laser, *Optics and Laser Technology*, t. 47, p. 221–227, 2013, doi: 10.1016/j.optlastec.2012.07.030.

- [16] F. Rainer *et al.*, Laser damage to production-and research-grade KDP crystals, in *24th Annual Boulder Damage Symposium Proceedings*, 1993, t. 1848, p. 46–58.
- [17] K. Yoshida *et al.*, Wavelength dependence of laser-induced damage in fused silica and fused quartz, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1997*, t. 3244, p. 164, 1998, doi: 10.1117/12.306979.
- [18] C. W. Carr *et al.*, Wavelength dependence of laser-induced damage: Determining the damage initiation mechanisms, *Physical Review Letters*, t. 91, p. 1–4, 2003, doi: 10.1103/PhysRevLett.91.127402.
- [19] L. Gallais *et al.*, Wavelength dependence of femtosecond laser-induced damage threshold of optical materials, *Journal of Applied Physics*, t. 223103, p. 1–15, 2015, doi: 10.1063/1.4922353.
- [20] M. Chambonneau *et al.*, Wavelength dependence of the mechanisms governing the formation of nanosecond laser-induced damage in fused silica, *Optics Express*, t. 26, p. 21819, 2018, doi: 10.1364/oe.26.021819.
- [21] M. Jupé *et al.*, Scaling law investigations in spot sizes dependence in the ns regime, *Laser Beam Control and Applications*, t. 6101, p. 61011G, 2006, doi: 10.1117/12.647408.
- [22] N. Sanner *et al.*, Influence of the beam-focus size on femtosecond laser-induced damage threshold in fused silica, *Commercial and Biomedical Applications of Ultrafast Lasers VIII*, t. 6881, p. 68810W, 2008, doi: 10.1117/12.762767.
- [23] L. Jensen *et al.*, Spot-size dependence of the LIDT from the NIR to the UV, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2009*, t. 7504, p. 75041E, 2009, doi: 10.1117/12.836066.
- [24] G. Mann *et al.*, Beam diameter dependence of surface damage threshold of fused silica fibers and preforms for nanosecond laser treatment at 1064 nm wavelength, *Applied Surface Science*, t. 276, p. 312–316, 2013, doi: 10.1016/j.apsusc.2013.03.088.
- [25] ISO, *Lasers and laser-related equipment — Test methods for laser-induced damage threshold — Part 2: Threshold determination*. 2011, p. 36.
- [26] B. C. Stuart *et al.*, Laser-Induced Damage in Dielectrics with Nanosecond to Subpicosecond Pulses, *Physical Review Letters*, p. 2248–2251, 1995, doi: 10.1103/physrevlett.74.2248.
- [27] R. M. Wood, Laser induced damage thresholds and laser safety levels . Do the units of measurement matter ?, t. 29, 1998, doi: 10.1016/s0030-3992(97)00054-6.
- [28] D. Ashkenasi *et al.*, Surface damage threshold and structuring of dielectrics using femtosecond laser pulses: the role of incubation, *Applied Surface Science*, t. 150, p. 101–106, 1999, doi: 10.1016/S0169-4332(99)00228-7.
- [29] F. R. Wagner *et al.*, Contrasted material responses to nanosecond multiple-pulse laser damage:



- from statistical behavior to material modification, *Optics Letters*, t. 38, p. 1869, 2013, doi: 10.1364/ol.38.001869.
- [30] Z. Sun *et al.*, Generic incubation law for laser damage and ablation thresholds, *Journal of Applied Physics*, t. 117, p. 1–7, 2015, doi: 10.1063/1.4913282.
- [31] A. A. M. L. P. M. K. Koldunov, Multishot laser damage in transparent solids theory of accumulation effect, t. 2428, p. 653–667, 1990.
- [32] L. Gallais *et al.*, Optical measurement of size and complex index of laser-damage precursors: the inverse problem, *Journal of the Optical Society of America B*, t. 21, p. 1073, 2004, doi: 10.1364/josab.21.001073.
- [33] H. Krol *et al.*, Investigation of nanoprecursors threshold distribution in laser-damage testing, *Optics Communications*, t. 256, p. 184–189, 2005, doi: 10.1016/j.optcom.2005.06.059.
- [34] T. A. Laurence *et al.*, Extracting the distribution of laser damage precursors on fused silica surfaces for 351 nm, 3 ns laser pulses at high fluences (20-150 J/cm<sup>2</sup>), *Optics Express*, t. 20, p. 11561, 2012, doi: 10.1364/oe.20.011561.
- [35] J. Bude *et al.*, High fluence laser damage precursors and their mitigation in fused silica, *Optics Express*, t. 22, p. 5839, 2014, doi: 10.1364/oe.22.005839.
- [36] Y. Furukawa *et al.*, Investigation of the bulk laser damage of lithium triborate , LiB<sub>3</sub>O<sub>5</sub> , single crystals Investigation crystals of the bulk laser damage of lithium triborate , *Applied Physics B: Lasers and Optics*, t. 1480, p. 10–13, 1994, doi: 10.1063/1.112018.
- [37] Y. Nishida *et al.*, Improvement of the bulk laser damage threshold of potassium dihydrogen phosphate crystals by reducing the organic impurities in growth solution Improvement of the bulk laser damage threshold of potassium dihydrogen phosphate crystals by reducing the organ, *Applied Physics Letters*, t. 420, p. 5–7, 1988, doi: 10.1063/1.99429.
- [38] M. Yoshimura *et al.*, Bulk Laser Damage in CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> Crystal and Its Dependence on Crystal Structure Bulk Laser Damage in CsLiB<sub>6</sub>O<sub>10</sub> Crystal and Its Dependence on Crystal Structure, *Japanese Journal of Applied Physics*, t. 129, 1999, doi: 10.1143/jjap.38.1129.
- [39] H. Yoshida *et al.*, Investigation of bulk laser damage in KDP crystal as a function of laser irradiation direction , polarization , and wavelength, *Applied Physics B: Lasers and Optics*, t. 201, p. 195–201, 2000, doi: 10.1007/s003400050032.
- [40] Y. Furukawa *et al.*, Investigation of bulk laser damage threshold of lithium niobate single crystals by Qswitched pulse laser Investigation of bulk laser damage threshold crystals by Q-switched pulse laser of lithium niobate single, t. 3372, p. 3–6, 2014, doi: 10.1063/1.348537.
- [41] N. Bloembergen, Role of Cracks , Pores , and Absorbing Inclusions on Laser Induced Damage Threshold at Surfaces of Transparent Dielectrics, t. 12, p. 661–664, 1973, doi:

10.1364/ao.12.000661.

- [42] J. Yoshiyama *et al.*, A study of the effects of polishing, etching, cleaving and water leaching on the UV laser damage of fused silica, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1997, 1998*, doi: 10.1117/12.307041.
- [43] B. Bertussi *et al.*, Effect of polishing process on silica surface laser-induced damage threshold at 355 nm, *Optical Communications*, t. 242, p. 227–231, 2004, doi: 10.1016/j.optcom.2004.08.016.
- [44] H. Krol *et al.*, Influence of polishing and cleaning on the laser-induced damage threshold of substrates and coatings at 1064 nm, *Optical Engineering*, t. 46, p. 1–5, 2007, doi: 10.1117/1.2542122.
- [45] G. I. Finch *et al.*, The Beilby Layer, *Nature*, t. 137, p. 516–519, 1936, doi: 10.1038/137516a0.
- [46] Z. Zheng *et al.*, Effect of HF etching on the surface quality and laser-induced damage of fused silica, *Optics and Laser Technology*, t. 44, p. 1039–1042, 2012, doi: 10.1016/j.optlastec.2011.10.013.
- [47] P. Allenspacher *et al.*, Vacuum laser damage test bench, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2005*, t. 5991, p. 599128, 2005, doi: 10.1117/12.638550.
- [48] A. V. Smith *et al.*, Bulk and surface laser damage of silica by picosecond and nanosecond pulses at 1064 nm, *Applied Optics*, t. 47, p. 4812–4832, 2008, doi: 10.1364/AO.47.004812.
- [49] S. V. Starinskiy *et al.*, Laser-induced damage thresholds of gold, silver and their alloys in air and water, *Applied Surface Science*, t. 396, p. 1765–1774, 2017, doi: 10.1016/j.apsusc.2016.11.221.
- [50] W. G. Kannuluik *et al.*, The temperature dependence of the thermal conductivity of air, *Australian Journal of Chemistry*, t. 4, p. 305–314, 1951, doi: 10.1071/CH9510305.
- [51] K. Kadoya *et al.*, Viscosity and Thermal Conductivity of Dry Air in the Gaseous Phase, *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, t. 14, p. 947–970, 1985, doi: 10.1063/1.555744.
- [52] C. Wang *et al.*, Effect of temperature on surface error and laser damage threshold for self-healing BK7 glass, *Applied Optics*, t. 57, p. 2025, 2018, doi: 10.1364/ao.57.002025.
- [53] M. D. Feit *et al.*, Modeling of laser damage initiated by surface contamination, *28Th Annual Symposium on Optical Material for High Power Lasers*, t. 2966, p. UCRL-JC-12, 1996.
- [54] T. Jitsuno *et al.*, Recent progresses on insights of laser damage mechanisms and influence of contamination in optics, *Pacific Rim Laser Damage 2013: Optical Materials for High Power Lasers*, t. 8786, p. 87860B, 2013, doi: 10.1117/12.2021026.
- [55] F. Y. Génin *et al.*, Rear-surface laser damage on 355-nm silica optics owing to Fresnel

- diffraction on front-surface contamination particles, *Applied Optics*, t. 39, p. 3654, 2000, doi: 10.1364/ao.39.003654.
- [56] H. Schröder *et al.*, Laser-induced contamination and its impact on laser damage threshold, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2013*, t. 8885, p. 88850R, 2013, doi: 10.1117/12.2030002.
- [57] A. L. Rigatti, Cleaning process versus laser-damage threshold of coated optical components, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2004*, t. 5647, p. 136, 2005, doi: 10.1117/12.584720.
- [58] H. P. Howard *et al.*, Improving the performance of high-laser-damage threshold, multilayer dielectric pulse-compression gratings through low-temperature chemical cleaning, *Applied Optics*, t. 52, p. 1682–1692, 2013, doi: 10.1364/AO.52.001682.
- [59] D. Ristau *et al.*, Laser damage thresholds of optical coatings, *Thin Solid Films*, t. 518, p. 1607–1613, 2009, doi: 10.1016/j.tsf.2009.07.150.
- [60] S. Kralj *et al.*, Producing ultra-thin silica coatings on iron-oxide nanoparticles to improve their surface reactivity, *Journal of Magnetism and Magnetic Materials*, t. 322, p. 1847–1853, 2010, doi: 10.1016/j.jmmm.2009.12.038.
- [61] S. Mathur *et al.*, CVD of titanium oxide coatings: Comparative evaluation of thermal and plasma assisted processes, *Surface and Coatings Technology*, t. 201, p. 807–814, 2006, doi: 10.1016/j.surfcoat.2005.12.039.
- [62] X. Shi-Gang *et al.*, Properties of aluminium oxide coating on aluminium alloy produced by micro-arc oxidation, *Surface and Coatings Technology*, t. 199, p. 184–188, 2005, doi: 10.1016/j.surfcoat.2004.11.044.
- [63] H.-L. Huang *et al.*, Antibacterial properties and cytocompatibility of tantalum oxide coatings with different silver content, *Journal of Vacuum Science & Technology A: Vacuum, Surfaces, and Films*, t. 32, p. 02B117, 2014, doi: 10.1116/1.4862543.
- [64] M. Thomann *et al.*, Influence of a magnesium-fluoride coating of magnesium-based implants (MgCa0.8) on degradation in a rabbit model, *Journal of Biomedical Materials Research - Part A*, t. 93, p. 1609–1619, 2010, doi: 10.1002/jbm.a.32639.
- [65] B. Feng *et al.*, A Study of the Influence of Lanthanum Fluoride of the Tribological Properties of Bonded Solid Film Lubricants and its Mechanism of Function, *Lubrication Science*, t. 1991, p. 171–179, 1991.
- [66] C. Fritz *et al.*, Preparation and stabilization of aluminium trifluoroacetate fluoride sols for optical coatings, *Dalton Transactions*, t. 41, p. 11351–11360, 2012, doi: 10.1039/c2dt31113e.
- [67] Y. Zhao *et al.*, Laser conditioning and multi-shot laser damage accumulation effects of HfO<sub>2</sub>

- /SiO<sub>2</sub> antireflective coatings, *Applied Surface Science*, t. 245, p. 335–339, 2005, doi: 10.1016/j.apsusc.2004.10.028.
- [68] J. M. Khoshman *et al.*, Amorphous hafnium oxide thin films for antireflection optical coatings, *Surface and Coatings Technology*, t. 202, p. 2500–2502, 2008, doi: 10.1016/j.surfcoat.2007.07.095.
- [69] M. Zhu *et al.*, Nanolaminate-based design for UV laser mirror coatings, *Light: Science and Applications*, t. 9, p. 0–5, 2020, doi: 10.1038/s41377-020-0257-4.
- [70] B. L. Gehman *et al.*, Influence of manufacturing process of indium tin oxide sputtering targets on sputtering behavior, *Thin Solid Films*, t. 220, p. 333–336, 1992, doi: 10.1016/0040-6090(92)90594-2.
- [71] J. W. Lim *et al.*, Improvement of Zr film purity by using a purified sputtering target and negative substrate bias voltage, *Surface and Coatings Technology*, t. 201, p. 1899–1901, 2006, doi: 10.1016/j.surfcoat.2006.01.009.
- [72] D. Bociaga *et al.*, Surface properties and biological behaviour of Si-DLC coatings fabricated by a multi-target DC-RF magnetron sputtering method for medical applications, *Diamond and Related Materials*, t. 67, p. 41–50, 2016, doi: 10.1016/j.diamond.2016.01.025.
- [73] O. Lyngnes *et al.*, Coating Technologies for High-Damage-Threshold Optics, *Optics and Photonics News*, t. 17, p. 28, 2006, doi: 10.1364/opn.17.6.000028.
- [74] L. M. Sheehana *et al.*, The advantages of evaporation of Hafnium in a reactive environment to manufacture high damage threshold multilayer coatings by electron-beam deposition, 1999. doi: 10.1117/12.360095.
- [75] M. Alvisi *et al.*, HfO<sub>2</sub> films with high laser damage threshold, *Thin Solid Films*, t. 358, p. 250–258, 2000, doi: 10.1016/S0040-6090(99)00690-2.
- [76] A. Hervy *et al.*, Femtosecond laser-induced damage threshold of electron beam deposited dielectrics for 1-m class optics, *Optical Engineering*, t. 56, p. 011001, 2016, doi: 10.1117/1.oe.56.1.011001.
- [77] M. Alvisi *et al.*, Deposition of SiO<sub>2</sub> films with high laser damage thresholds by ion-assisted electron-beam evaporation, *Applied Optics*, t. 38, p. 1237, 1999, doi: 10.1364/ao.38.001237.
- [78] D. Zhang *et al.*, High laser-induced damage threshold HfO<sub>2</sub> films prepared by ion-assisted electron beam evaporation, *Applied Surface Science*, t. 243, p. 232–237, 2005, doi: 10.1016/j.apsusc.2004.09.083.
- [79] A. Melninkaitis *et al.*, Comparison of optical resistance of ion assisted deposition and standard electron beam deposition methods for high reflectance dielectric coatings, *Advances in Optical Thin Films II*, t. 5963, p. 59631H, 2005, doi: 10.1117/12.619987.

- [80] D. Zhang *et al.*, Employing oxygen-plasma posttreatment to improve the laser-induced damage threshold of ZrO<sub>2</sub> films prepared by the electron-beam evaporation method, *Optics Letters*, t. 29, p. 2870, 2004, doi: 10.1364/ol.29.002870.
- [81] J. Dijon *et al.*, High damage threshold fluoride UV mirrors made by Ion beam sputtering, 1997. doi: 10.1117/12.306989.
- [82] J. Neauport *et al.*, Effect of electric field on laser induced damage threshold of multilayer dielectric gratings, *Optics Express*, t. 15, p. 12508, 2007, doi: 10.1364/oe.15.012508.
- [83] M. Xu *et al.*, Investigation of laser-induced damage threshold improvement mechanism during ion beam sputtering of fused silica, *Optics Express*, t. 25, p. 29260, 2017, doi: 10.1364/oe.25.029260.
- [84] H. Liu *et al.*, Stress compensated anti-reflection coating for high power laser deposited with IBS SiO<sub>2</sub> and ALD Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub>, *Applied Surface Science*, t. 476, p. 521–527, 2019, doi: 10.1016/j.apsusc.2019.01.125.
- [85] Y. Nagata *et al.*, Development of high-throughput , high-damage-threshold beam separator for 13 nm high-order harmonics, *Optics Letters*, t. 31, p. 1316–1318, 2006.
- [86] J. Xu *et al.*, Influence of electric field on laser damage properties of DLC films by unbalanced magnetron sputtering, *Applied Surface Science*, t. 265, p. 234–238, 2013, doi: 10.1016/j.apsusc.2012.10.185.
- [87] L. Wang *et al.*, Evaluation of femtosecond laser damage to gold pulse compression gratings fabricated by magnetron sputtering and e-beam evaporation, *Applied Optics*, t. 56, p. 3087, 2017, doi: 10.1364/ao.56.003087.
- [88] Z. Gu *et al.*, Influence of glass surface layers on laser-induced damage threshold, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2001*, t. 4679, p. 75, 2002, doi: 10.1117/12.461704.
- [89] F. Liu *et al.*, Influence of the surface and subsurface contaminants on laser-induced damage threshold of anti-reflection sub-wavelength structures working at 1064 nm, *Optics and Laser Technology*, t. 127, p. 106144, 2020, doi: 10.1016/j.optlastec.2020.106144.
- [90] Z. X. Shen *et al.*, Influence of cleaning process on the laser induced damage threshold of substrates, *Optics InfoBase Conference Papers*, p. 10–12, 2010, doi: 10.1364/oic.2010.fa12.
- [91] M. Ando *et al.*, Super-smooth surface polishing on aspherical optics, in *Intl. Symp on Optical Fabrication*, 1992, t. 1720, p. 22–33. doi: 10.1117/12.132106.
- [92] Z. Ma *et al.*, Optik Ultra-smooth polishing of high-precision optical surface, *Optik - International Journal for Light and Electron Optics*, t. 124, p. 6586–6589, 2013, doi: 10.1016/j.ijleo.2013.05.093.
- [93] N. I. Chkhalo *et al.*, Roughness measurement and ion-beam polishing of super-smooth optical

- surfaces of fused quartz and optical ceramics, *Optics Express*, t. 22, p. 20094–20106, 2014, doi: 10.1364/OE.22.020094.
- [94] J. Neauport *et al.*, Polishing-induced contamination of fused silica optics and laser induced damage density at 351 nm, *Optics Express*, t. 13, p. 10163–10171, 2005, doi: 10.1364/opex.13.010163.
- [95] J. Hue *et al.*, R-on-1 automatic mapping: a new tool for laser damage testing, in *27th Annual Boulder Damage Symposium: Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1995*, 1996, t. 2714, p. 90–101. doi: 10.1117/12.240352.
- [96] R. E. Belford, Principles and Practice of hybrid sensors, The University of Edinburgh, 1986.
- [97] R. E. Belford *et al.*, High Power Laser Damage & Annealing, 2020.
- [98] S. Schrameyer *et al.*, Round-Robin experiment on LIDT measurements at 1064 nm in vacuum for space qualification of optics, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2013*, t. 8885, p. 88850F, 2013, doi: 10.1117/12.2030098.
- [99] A. Stewart *et al.*, Scattered Light as a Laser Damage Diagnostic, *Laser Induced Damage in Optical Materials: 1987*, p. 142–150, 1987, doi: 10.1520/STP24414S.
- [100] H. L. Spindler *et al.*, Effects of laser-ablation target damage on particulate production investigated by laser scattering with deposited thin film and target analysis, *Applied Physics Letters*, t. 68, p. 3245–3247, 1996, doi: 10.1063/1.116562.
- [101] B. Woods *et al.*, Investigation of Damage in KDP Using Light Scattering Techniques, *Laser-Induced Damage in Optical Materials*, t. 2966, p. 20–31, 1997, doi: 10.1117/12.274275.
- [102] E. Tanaka *et al.*, In situ diagnosis of a gear-tooth surface damage using laser scattering, *Journal of Advanced Mechanical Design, Systems and Manufacturing*, t. 5, p. 199–213, 2011, doi: 10.1299/jamdsm.5.199.
- [103] B. Kruijt *et al.*, Optical scattering measurements of laser induced damage in the intraocular lens, *PLoS ONE*, t. 7, p. 2–5, 2012, doi: 10.1371/journal.pone.0031764.
- [104] A. Melninkaitis *et al.*, Adaptive laser-induced damage detection, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2009*, t. 7504, p. 75041F, 2009, doi: 10.1117/12.836479.
- [105] J.-Y. Natoli *et al.*, Toward an absolute measurement of LIDT, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2002 and 7th International Workshop on Laser Beam and Optics Characterization*, t. 4932, p. 224, 2003, doi: 10.1117/12.472411.
- [106] L. Smalakys *et al.*, Quantitative investigation of laser-induced damage fatigue in HfO<sub>2</sub> and ZrO<sub>2</sub> single layer coatings, *Optics Express*, t. 28, p. 25335, 2020, doi: 10.1364/oe.397812.
- [107] J. Franke *et al.*, Photoacoustic Characterisation of Optical Laser Components for 10.6 um, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 1994*, t. 2428, p. 92–100, 1994, doi:

10.1117/12.213740.

- [108] K. Chen *et al.*, Laser-Induced Damage on Fused Silica with Photo-Acoustic Spectrum Analysis, *IEEE Photonics Technology Letters*, t. 31, p. 787–790, 2019, doi: 10.1109/LPT.2019.2908004.
- [109] S. Xiang *et al.*, Photo-acoustic detection of laser-induced damage on optical component based on PVDF electrospinning, 2020. doi: 10.1117/12.2587370.
- [110] S. Wang *et al.*, Photo-acoustic based non-contact and non-destructive evaluation for detection of damage precursors in composites, *ASME International Mechanical Engineering Congress and Exposition, Proceedings (IMECE)*, t. 1, p. 1–4, 2018, doi: 10.1115/IMECE2018-86148.
- [111] D. Ristau, *Laser-Induced Damage in Optical Materials*. 2015.
- [112] H. Nakatani *et al.*, Laser-induced damage in beta-barium metaborate, *Applied Physics Letters*, t. 53, p. 2587–2589, 1988, doi: 10.1063/1.100535.
- [113] EO, Laser Damage Threshold Testing, 2021. <https://www.edmundoptics.com/knowledge-center/application-notes/lasers/laser-damage-threshold-testing/>
- [114] S. G. Demos *et al.*, Application of fluorescence microscopy for noninvasive detection of surface contamination and precursors to laser-induced damage, *Applied Optics*, t. 41, p. 1977, 2002, doi: 10.1364/ao.41.001977.
- [115] T. W. Murray *et al.*, Adaptive optical array receivers for detection of surface acoustic waves, *Applied Optics*, t. 39, p. 3276, 2000, doi: 10.1364/ao.39.003276.
- [116] F. E. Lytle *et al.*, An Introduction to Time-Resolved Pump / Probe Spectroscopy, *Applied Spectroscopy*, t. 39, 1985.
- [117] O. Kühn *et al.*, Pump-probe spectroscopy of dissipative energy transfer dynamics in photosynthetic antenna complexes: A density matrix approach, *Journal of Chemical Physics*, t. 107, p. 4154–4164, 1997, doi: 10.1063/1.474803.
- [118] V. Nagarajan *et al.*, Excitation energy transfer between the b850 and b875 antenna complexes of rhodospirillum rubrum, *Biochemistry*, t. 36, p. 2300–2306, 1997, doi: 10.1021/bi962534b.
- [119] C. P. A. Multicolor *et al.*, Identifying the Pathways of Energy Transfer between Carotenoids and Chlorophylls in, *The Journal of Physical Chemistry B*, t. 104, p. 9330–9342, 2000, doi: 10.1021/jp001752i.
- [120] K. M. Gaab *et al.*, Wavelength and Temperature Dependence of the Femtosecond Pump - Probe Anisotropies in the Conjugated Polymer MEH-PPV: Implications for Energy-Transfer Dynamics, *Journal of Physical Chemistry B*, t. 108, p. 4619–4626, 2004, doi: 10.1021/jp036120l.
- [121] F. Sasaki *et al.*, Effects of photoreaction to optical nonlinearities in pseudoisocyanine J

- aggregates, *Journal of Luminescence*, t. 74, p. 538–540, 1997, doi: 10.1016/s0022-2313(96)00380-8.
- [122] T. Nakamura *et al.*, Ultrafast pump-probe study of the primary photoreaction process in pharaonis halorhodopsin: Halide ion dependence and isomerization dynamics, *Journal of Physical Chemistry B*, t. 112, p. 12795–12800, 2008, doi: 10.1021/jp803282s.
- [123] A. E. Fitzpatrick *et al.*, Pump-dump-probe and pump-repump-probe ultrafast spectroscopy resolves cross section of an early ground state intermediate and stimulated emission in the photoreactions of the Pr ground state of the cyanobacterial phytochrome Cph1, *Journal of Physical Chemistry B*, t. 116, p. 1077–1088, 2012, doi: 10.1021/jp206298n.
- [124] J. M. L. Pecourt *et al.*, Ultrafast internal conversion of electronically excited RNA and DNA nucleosides in water, *Journal of the American Chemical Society*, t. 122, p. 9348–9349, 2000, doi: 10.1021/ja0021520.
- [125] H. Kang *et al.*, Mechanism for ultrafast internal conversion of adenine, *Journal of Chemical Physics*, t. 118, p. 6717–6719, 2003, doi: 10.1063/1.1566438.
- [126] D. Polli *et al.*, Broadband pump-probe spectroscopy with sub-10-fs resolution for probing ultrafast internal conversion and coherent phonons in carotenoids, *Chemical Physics*, t. 350, p. 45–55, 2008, doi: 10.1016/j.chemphys.2007.12.021.
- [127] H. Tao *et al.*, Ultrafast internal conversion in ethylene. I. the excited state lifetime, *Journal of Chemical Physics*, t. 134, 2011, doi: 10.1063/1.3604007.
- [128] K. C. Tang *et al.*, Rapid intersystem crossing in highly phosphorescent iridium complexes, *Chemical Physics Letters*, t. 386, p. 437–441, 2004, doi: 10.1016/j.cplett.2004.01.098.
- [129] Y. Harada *et al.*, Ultrafast intersystem crossing of 4-thiothymidine in aqueous solution, *Journal of Physical Chemistry Letters*, t. 1, p. 480–484, 2010, doi: 10.1021/jz900276x.
- [130] A. P. Veenstra *et al.*, Ultrafast Intersystem Crossing in Isolated Ag<sub>29</sub>(BDT)<sub>123</sub>- Probed by Time-Resolved Pump-Probe Photoelectron Spectroscopy, *Journal of Physical Chemistry Letters*, t. 11, p. 2675–2681, 2020, doi: 10.1021/acs.jpcllett.0c00482.
- [131] B. Wolfseder *et al.*, Femtosecond pump-probe spectroscopy of electron-transfer systems: A nonperturbative approach, *Chemical Physics*, t. 217, p. 275–287, 1997, doi: 10.1016/s0301-0104(97)00046-3.
- [132] S. Takeuchi *et al.*, Coherent nuclear wavepacket motions in ultrafast excited-state intramolecular proton transfer: Sub-30-fs resolved pump-probe absorption spectroscopy of 10-hydroxybenzo[h]quinoline in solution, *Journal of Physical Chemistry A*, t. 109, p. 10199–10207, 2005, doi: 10.1021/jp0519013.
- [133] K. Schnorr *et al.*, Electron rearrangement dynamics in dissociating i<sub>2</sub>n<sup>+</sup> molecules accessed



- by extreme ultraviolet pump-probe experiments, *Physical Review Letters*, t. 113, p. 1–5, 2014, doi: 10.1103/PhysRevLett.113.073001.
- [134] P.-T. Dong *et al.*, Pump – Probe Microscopy: Theory, Instrumentation, and Applications, *Spectroscopy*, t. 32, p. 2–11, 2017.
- [135] I. Robel *et al.*, Single-walled carbon nanotube-CdS nanocomposites as light-harvesting assemblies: Photoinduced charge-transfer interactions, *Advanced Materials*, t. 17, p. 2458–2463, 2005, doi: 10.1002/adma.200500418.
- [136] L. Tong *et al.*, Label-free imaging of semiconducting and metallic carbon nanotubes in cells and mice using transient absorption microscopy, *Nature Nanotechnology*, t. 7, p. 56–61, 2012, doi: 10.1038/nnano.2011.210.
- [137] Y. Jung *et al.*, Fast detection of the metallic state of individual single-walled carbon nanotubes using a transient-absorption optical microscope, *Physical Review Letters*, t. 105, p. 1–4, 2010, doi: 10.1103/PhysRevLett.105.217401.
- [138] G. Xing *et al.*, Ultralow-Threshold Two-Photon Pumped Amplified Spontaneous Emission and Lasing from Seeded CdSe/CdS Nanorod Heterostructures, *ACS Nano*, p. 10835–10844, 2012, doi: 10.1021/nn304200a.
- [139] B. P. Mehl *et al.*, The end is different than the middle: Spatially dependent dynamics in ZnO rods observed by femtosecond pump-probe microscopy, *Journal of Physical Chemistry Letters*, t. 2, p. 1777–1781, 2011, doi: 10.1021/jz200809c.
- [140] H. Sanada *et al.*, Optical pump-probe measurements of local nuclear spin coherence in semiconductor quantum wells, *Physical Review Letters*, t. 96, p. 1–4, 2006, doi: 10.1103/PhysRevLett.96.067602.
- [141] B. R. Walsh *et al.*, Excited state phononic processes in semiconductor nanocrystals revealed by excitonic state-resolved pump/probe spectroscopy, *Journal of Physical Chemistry C*, t. 123, p. 3868–3875, 2019, doi: 10.1021/acs.jpcc.8b11099.
- [142] G. Grancini *et al.*, Transient absorption imaging of P3HT:PCBM photovoltaic blend: Evidence for interfacial charge transfer state, *Journal of Physical Chemistry Letters*, t. 2, p. 1099–1105, 2011, doi: 10.1021/jz200389b.
- [143] D. Fu *et al.*, Label-free in vivo optical imaging of microvasculature and oxygenation level, *Journal of Biomedical Optics*, t. 13, p. 040503, 2008, doi: 10.1117/1.2968260.
- [144] W. Min *et al.*, Imaging chromophores with undetectable fluorescence by stimulated emission microscopy, *Nature*, t. 461, p. 1105–1109, 2009, doi: 10.1038/nature08438.
- [145] I. R. Piletic *et al.*, Estimation of molar absorptivities and pigment sizes for eumelanin and pheomelanin using femtosecond transient absorption spectroscopy, *Journal of Chemical*

- Physics*, t. 131, p. 1–5, 2009, doi: 10.1063/1.3265861.
- [146] F. E. Robles *et al.*, Quantifying melanin spatial distribution using pump-probe microscopy and a 2-D morphological autocorrelation transformation for melanoma diagnosis, *Journal of Biomedical Optics*, t. 18, p. 120502, 2013, doi: 10.1117/1.jbo.18.12.120502.
- [147] A. Pečiulis, Skaidrių terpių ir dielektrinių dangų pažeidimo mechanizmų tyrimas ultraspalčiosios spektroskopijos metodais, 2019.
- [148] L. Grineviciute *et al.*, Nanostructured Multilayer Coatings for Spatial Filtering, *Advanced Optical Materials*, t. 2001730, p. 1–7, 2021, doi: 10.1002/adom.202001730.
- [149] B. Chimier *et al.*, Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime, *Physical Review B - Condensed Matter and Materials Physics*, t. 84, p. 1–10, 2011, doi: 10.1103/PhysRevB.84.094104.
- [150] M. Lenzner, Femtosecond laser-induced damage of dielectrics, *International Journal of Modern Physics B*, t. 13, p. 1559–1578, 1999, doi: 10.1142/S0217979299001570.
- [151] J. Du *et al.*, Ultrafast UV laser induced dynamics in dielectric coating materials before laser damage, *Pacific Rim Laser Damage 2014: Optical Materials for High-Power Lasers*, t. 9238, p. 923805, 2014, doi: 10.1117/12.2073613.
- [152] A. Melninkaitis *et al.*, What time-resolved measurements tell us about femtosecond laser damage?, *Laser-Induced Damage in Optical Materials: 2015*, t. 9632, p. 963200, 2015, doi: 10.1117/12.2195333.
- [153] D. Bakaitytė, Nano-Struktūrinio Sio<sub>2</sub> Pagrindu Suformuotų Aukšto Atspindžio Veidrodžių Formavimas Ir Charakterizavimas, 2017.
- [154] X. Xiao *et al.*, Anisotropic laser-induced damage threshold and residual stress of TiO<sub>2</sub> sculptured thin films, *Journal of Nanoscience and Nanotechnology*, t. 13, p. 824–828, 2013, doi: 10.1166/jnn.2013.5961.
- [155] T. Tolenis *et al.*, Sculptured anti-reflection coatings for high power lasers, *Optical Materials Express*, t. 7, p. 1249, 2017, doi: 10.1364/ome.7.001249.
- [156] L. Grinevičiūtė *et al.*, Next-generation all-silica coatings for UV applications, p. 30, 2017, doi: 10.1117/12.2280517.

## 8. SANTRAUKA

### **KAUPIAMŪJŲ IR KATASTROFINIŲ PAŽEIDIMŲ OPTINĖSE TERPĖSE IR DANGOSE TYRIMAS ULTRASPARČIOSIOS SPEKTROSKOPIJOS METODAIS**

Lazerinė pažaida yra viena iš opiausių problemų nuo pat lazerių išradimo, apribojanti optinių elementų taikymo lazerinėse sistemose galimybes. Geresnis pažeidimo susidarymo mechanizmo suvokimas galėtų padėti optimizuoti optinių elementų bei jų dangų gamybą taip, kad optika būtų daug atsparesnė lazeriniams pažeidimams.

Šiame darbe yra tiriami kaupiamieji ir katastrofiniai optinių terpių ir dangų lazeriniai pažeidimai. Taikant ultrasparčiosios spektroskopijos tyrimų metodus yra siekiama atrasti iki pažaidos ir jos metu vykstančius spektrinius skirtuminės sugerties signalo pokyčius, kurių intensyvumas ir padėtis spektre leistų įvertinti, kokios būsenos susidaro pažeidimui formuojantis. Atliekamas žadinimo-zondavimo eksperimentas, pritaikytas kondensuotoms terpėms ir atsižvelgiant į vizualiai stebimą lazerio indukuotos pažaidos susidarymo dinamiką.

Ekperimentiniai rezultatai parodė, kad indukuotos sugerties signalo pokyčio stebėjimas yra tikslus ir atsikartojantis metodas lazerio indukuotos optinės pažaidos slenksčiui įvertinti. Tačiau norint tai nustatyti greičiau nei vizualiai iš sklaidos nuo pažeidimo – turi būti registruojamas zondavimo pluošto atspindys nuo priekinio bandinio paviršiaus. Iš spektrinės skirtuminės sugerties signalo dinamikos ties  $\tau = 1\text{ps}$  vėlinimu buvo nustatytas eksitonų generavimasis prieš pažeidimą, jo metu ir po to, tačiau matavimų tikslumo neužteko išskirti šio signalo kaupimosi dėsningumą, pagal kuriuos galima būtų prognozuoti, kada įvyks optinis pažeidimas. Taip pat buvo išmatuoti nanostruktūrizuotų  $\text{SiO}_2$  dielektrinių dangų pažaidos slenksčiai bei nustatyta garinimo kampo įtaka dangos lazerinės spinduliuotės atsparumui.

## 9. SUMMARY

### **ULTRAFAST SPECTROSCOPY OF CUMULATIVE AND CATASTROPHIC DAMAGE IN OPTICAL MATERIALS AND COATINGS**

Since the beginning of laser era, the performance of optical components in any laser system was always determined by their threshold of resistance to radiation. Increasing the laser-induced damage threshold of optical components requires detailed understanding of the principles or mechanisms, underlying the damage in optical materials and coatings.

This study focuses on cumulative and catastrophic laser induced damage in optical materials and coatings. Ultrafast spectroscopy methods allow to register spectral changes in differential absorption spectrum of the sample, which could then help to identify particles or states that are generated in the process of damage formation. For this application, a classic pump-probe experiment is adjusted to be performed on solid materials and to focus on the damage formation dynamics we usually see visually.

Results conclude that monitoring of changes in differential absorption spectrum is a capable way of determining the laser induced damage threshold of a sample with great repeatability. In order to register damage earlier than a standard visual detection of light scattering from the damaged surface would, one must register probe beam reflected from the front surface of the sample. Formation of exciton can be seen in induced absorption spectrum at  $\tau = 1ps$  delay time before, during and after the damage occurs. Despite that, measurements' accuracy just wasn't sufficient to distinguish spectral accumulation of the signal that would allow to anticipate precise moment of damage occurrence. Moreover, laser induced damage thresholds of nanostructured dielectric coatings were measured and compared between different coating angles.