

Vilniaus universitetas
Fizikos fakultetas
Lazerinių tyrimų centras

Vaida Marčiulionytė

LYGINAMASIS ULTRAVIOLETINIO SUPERKONTINUUMO GENERACIJOS TYRIMAS
SAFYRO, BaF₂ IR CaF₂ KRISTALUOSE ŽADINANT Yb:KGW LAZERIO ANTROSIOS
HARMONIKOS IMPULSAIS

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerinės fizikos ir optinių technologijų
studijų programa

Studentė	Vaida Marčiulionytė
Leista ginti	2021-06-01
Darbo vadovas	prof. Audrius Dubietis
Recenzentas	dr. Julius Vengelis
LTC direktorius	prof. Aidas Matijošius

Vilnius 2021

Turinys

Trumpinių sąrašas	3
Įvadas	4
1 Literatūros apžvalga	6
1.1 Superkontinuumo generaciją lemiantys fizikiniai reiškiniai	6
1.1.1 Šviesos pluoštų fokusavimasis	6
1.1.2 Daugiafotonė sugertis	8
1.1.3 Šviesos impulsų fazės moduliavimasis	11
1.2 Impulso skilimas ir spektro plitimas	13
1.3 Fokusavimo sąlygos	15
1.4 Medžiagos superkontinuumo generacijai	16
1.4.1 Safyras	16
1.4.2 CaF_2 ir BaF_2	17
1.5 Optinis medžiagos pažeidimas	20
2 Tyrimo metodika	23
3 Rezultatai ir jų aptarimas	25
3.1 Superkontinuumo spektrai	25
3.2 Liuminescencija ir sklaida	28
3.3 Skaitmeninio modeliavimo rezultatai	35
4 Išvados	38
5 Literatūros sąrašas	39
Santrauka	43
Summary	44

Trumpinių sąrašas

BaF₂ – bario fluoridas.

BBO – β -bario boratas.

CaF₂ – kalcio fluoridas.

CCD – krūvio sąsajos prietaisas.

GGD – grupinių greičių dispersija.

Yb:KGW – Yb³⁺:KGd(WO₄)₂.

IR – infraraudonoji spektro sritis.

LiF – ličio fluoridas.

LiSAF – LiSrAlF₆.

MgF₂ – magnio fluoridas.

NA – skaitinė apertūra.

NOPA – nekolinearus optinis parametrinis stiprintuvas.

SK – superkontinuumas.

UV – ultravioletinė spektro sritis.

Įvadas

Superkontinuumo generacija ultravioletinėje (UV) spektro dalyje vis dar yra sudėtingas uždavinys. Šiam tikslui įgyvendinti trūksta tinkamų netiesinių kietakūnių medžiagų. Spektro plitimą į trumpabangę (UV) pusę riboja žemos eilės netiesinė sugertis ir stipri chromatinė dispersija [1]. Pavyzdžiui safyre, kuris laikomas superkontinuumo generacijos etalonu, spektras beveik neplinta į ultravioletinę spektro sritį. Šarminių metalų fluoridai (BaF_2 , CaF_2 , MgF_2 , LiF ir LiSAF) iš visų kietakūnių dielektrinių medžiagų išsiskiria dideliu (>8 eV) draustinės juostos plociu (pralaidumo langas siekia gilų ultravioletą) ir pasižymi silpna chromatine dispersija, t.y. mažu lūžio rodikliu) [2, 3]. Dėl šių savybių didžiausias spektro išplitimas į trumpabangę pusę (<300 nm) pasiekiamas būtent šiose netiesinės terpėse, kai žadinimui buvo naudojami įvairių bangos ilgių (nuo UV iki vid-IR) lazerio impulsai [4–10].

Iš kitų fluoridų kalcio fluoride (CaF_2) generuojama superkontinuumo spinduliuotė išsiskiria geru spektriniu stabilumu, kai žadinimui naudojama Ti:safyro lazerio pirmoji harmonika [11–13]. CaF_2 kristaluose generuojamas superkontinuumas yra naudojamas ultrasparčios laiko skyros spektroskopijoje [14–16] ir nekolineariuose optiniuose parametriniuose stiprintuvuose [4, 17, 18]. Lyginant su kitomis panašiomis medžiagomis, CaF_2 optinio pažeidimo slenkstis vienam femtosekundiniam impulsui yra aukštas [19]. Tačiau CaF_2 sparčiai degraduoja veikiant pasikartojančiais lazerio impulsais, nes stipriai pasireiškia kaupiamieji efektai. Tokiomis sąlygomis CaF_2 kristale sparčiai formuojami autolokalizuoti eksitonai, relaksuojantys į ilgai gyvuojančius spalvinius centrus, kurie vėliau išauga į didesnius ilgalaikius defektus ir lemia medžiagos katastrofinį optinį pažeidimą [20, 21]. Iki šiol CaF_2 kristale norint generuoti stabilų superkontinuumą standartinėmis sąlygomis, t.y. santykinai aštriai ($\text{NA} > 0,01$) fokusuojant į kelių mm ilgio kristalą, kaip taisyklė, CaF_2 (kaip ir kiti fluoridai) turi būti nuolat transliuojamas arba sukamas žadinimo pluošto atžvilgiu. Tokiu būdu kiekvieną kartą yra apšviečiama nauja, lazerio spinduliuotės nepaveikta ir nepažeista kristalo zona.

Tačiau vis dar išlieka keli praktinės svarbos klausimai: kokios geriausios eksperimentinės sąlygos ultravioletinio superkontinuumo generavimui (fokusavimo geometrija ir žadinančios spinduliuotės bangos ilgis) ir ar stabilų gerai atsikartojantį ultravioletinį superkontinuumą galima generuoti netransliuojant kristalo. Pastebėta, kad superkontinuumo spektro plėtra į ilgabangę pusę didėja švelninant fokusavimo sąlygas ($\text{NA} < 0,01$) [22, 23]. Pastaruoju metu buvo parodyta, kad netiesinės terpės ilgaamžiškumas (laikas iki optinio pažeidimo atsiradimo

ir superkontinuumo spektro siaurėjimo) reikšmingai pailgėja žadinimui naudojant trumpesnio bangos ilgio spinduliuotę [24]. Be to, naudojant trumpesnio bangos ilgio žadinančią spinduliuotę superkontinuumo spektro trumpabangis kraštas pasiekia gilesnį ultravioletą.

Dažniausiai superkontinuumas generuojamas žadinant artimosios infraraudonosios spektro srities impulsais (Ti:safyro lazerio pirmoji harmonika), tačiau superkontinuumo generacijos tyrimų žadinant regimosios ar dar trumpesnių bangos ilgių impulsais yra nedaug, o tyrimų, atliktų esant didesniai nei 1 kHz impulsų pasikartojimo dažniui, nebuvo atlika išvis. Šio darbo tikslas – palyginti superkontinuumo generacijos dėsningumus safyro, BaF₂ ir CaF₂ kristaluose žadinant antrosios Yb:KGW lazerio harmonikos didelio pasikartojimo dažnio impulsais esant švelniam ir aštriam fokusavimui.

1 Literatūros apžvalga

1.1 Superkontinuumo generaciją lemiantys fizikiniai reiškiniai

Superkontinuumo (dar vadinamo baltos šviesos kontinuumu) generacija yra erdvėje ir laike koherentinės labai plataus ir tolydaus spektro spinduliuotės formavimas didelės smailinės galios lazerio impulsams sklindant skaidria netiesine terpe. Superkontinuumą žadinančio impulso dažnių spektras išplinta šimtus ar net tūkstančius kartų. Išplitęs spektras gali apimti UV – IR spektro sritį. Kitaip nei įprastų plataus spektro šaltinių (Saulės, lempos ar šviestukų), superkontinuumo spinduliuotė yra koherentinė - sklinda šviesos pluošto ir impulso pavidalu.

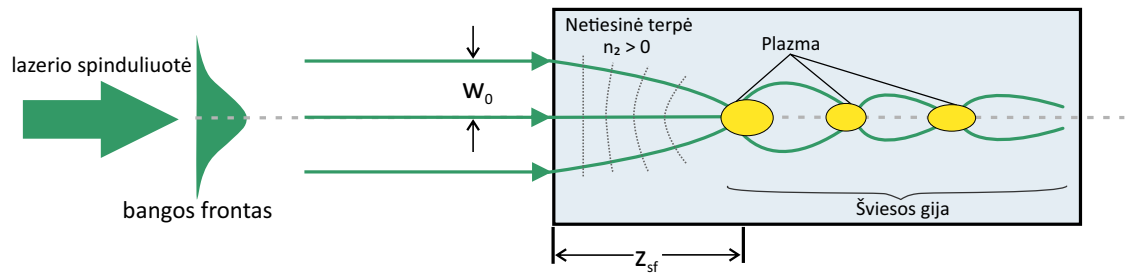
Superkontinuumo generaciją lemia keli, vienu metu pasireiškiantys ir tarpusavyje sąveikaujantys, netiesinės optikos reiškiniai: šviesos pluoštų fokusavimasis ir šviesos gijos formavimasis, impulso fazės moduliavimasis, daugiafotonė sugertis, laisvųjų elektronų plazmos formavimas, keturbangis dažnių maišymas. Superkontinuumo generacijai taip pat daro įtaką netiesinės terpės dispersija, lazerio impulso bangos ilgis ir smailinė galia bei impulso trukmė. Superkontinuumo generacija skaidriose kristalinėse terpėse apjungia reiškinius vienu metu vykstančius erdvėje ir laike. Superkontinuumo generacijos metu erdvėlaikyje pasireiškia dinaminiai efektai: erdvėlaikinis fokusavimasis, laikinis impulsų skilimas, smūginių bangų susidarymas, kūginės spinduliuotės atsiradimas [25]. Kūginė spinduliuotė – superkontinuumo generacijos kietakūnėje terpėje skiriamasis bruožas, kai balta šviesa spinduliuojama ne lazerio spinduliuotės ašimi. Šis reiškinys atsiranda dėl keturbangio dažnių maišymo šviesos gijoje, o tolimajame lauke aplink baltą dėmę (ašinį baltos šviesos kontinuumą) yra stebimi spalvoti koncentriniai žiedai – skirtingais kampais sklindantys skirtingi šviesos dažniai (didžiausiu kampu sklinda didžiausi šviesos dažniai). Kokiu kampu sklis skirtingi optiniai dažniai priklauso nuo kietakūnės terpės chromatinės dispersijos, kuri lemia fazinio sinchronizmo sąlygas [26].

1.1.1 Šviesos pluoštų fokusavimasis

Lūžio rodiklio priedas, kuris priklauso nuo krentančios šviesos intensyvumo, atsiranda didelio intensyvumo lazerio pluoštui sklindant skaidrioje terpėje. Bendras medžiagos lūžio rodiklis lygus

$$n(r, t) = n_0 + n_2 I(r, t), \quad (1.1)$$

čia n_0 – tiesinis lūžio rodiklis, n_2 – netiesinis lūžio rodiklis, $I(r,t)$ – lazerio pluošto intensyvumas. Netiesinis lūžio rodiklis yra susijęs su medžiagos trečiojo laipsnio (kubiniu) netiesiniu poliarizuojamumu $P^{(3)}$ ir atitinkamai su netiesiniu optiniu jautriu $\chi^{(3)}$. Netiesinis lūžio rodiklis įgyja teigiamas vertes $n_2 > 0$ terpės (dielektrinės) skaidrumo srityje. Spinduliuotės intensyvumas yra didžiausias pluošto centre, o mažiausias pluošto kraštuose. Dėl to, atsiranda terpės lūžio rodiklio moduliacija.



1 pav. Šviesos pluošto fokusavimas ir šviesos gija.

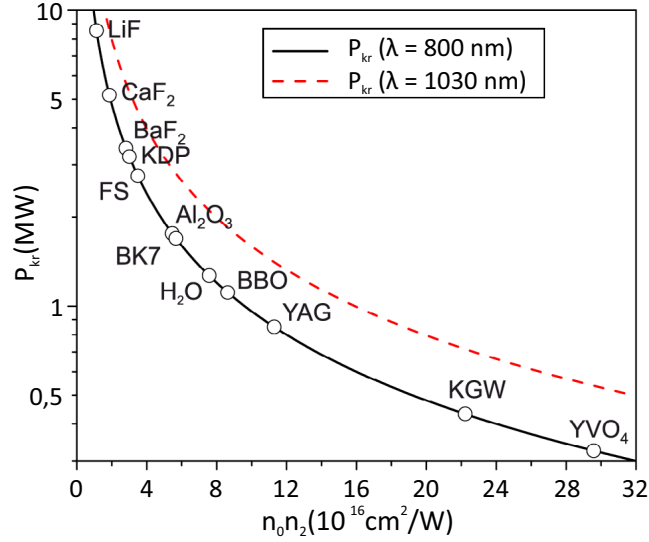
Medžiaga pradeda veikti kaip glaudžiamasis lęšis ir pluoštas ima fokusuotis (žr. 1 pav). Kritinė pluošto fokusavimosi galia – pluošto galia, kuomet pluošto fokusavimas atsveria pluošto difrakcinę plėtrą, ir yra lygi

$$P_{kr} = \frac{3,72\lambda^2}{8\pi n_0 n_2}, \quad (1.2)$$

čia λ – žadinančios spinduliuotės bangos ilgis. Kai $P > P_{kr}$, tada fokusavimosi atstumas (netiesinio židinio nuotolis) yra tam tikru baigtiniu atstumu z_f nutolęs nuo terpės priekinio paviršiaus:

$$z_f = \frac{0,367z_R}{\sqrt{[(P/P_{kr})^{1/2} - 0,852]^2 - 0,0219}}, \quad (1.3)$$

čia $z_R = \pi n_0 \omega_0^2 / \lambda$ yra Relėjaus ilgis, ω_0 – lazerio pluošto spindulys. Kritinės žadinančio pluošto galios priklausomybė nuo terpės netiesiškumo skirtingoms medžiagoms naudojant 800 nm ir 1030 nm bangos ilgio spinduliuotę yra pavaizduotos 2 paveiksle. Superkontinuumo žadinimo slenkstinė galia yra labai artima kritinei pluošto fokusavimosi galiai. Didžiausia kritinė žadinančio pluošto galia P_{kr} pasižymi fluoridai (LiF, CaF₂ ir BaF₂).



2 pav. Kritinė fokusavimosi galia įvairioms medžiagoms priklausomai nuo netiesinio lūžio rodiklio.

Fokusavimosi reiškinys atsveria pluošto difrakcinę skėstį, tada kai pasiekiamas P_{kr} [25]. Formuojama šviesos gija (subdifrakcinis pluošto sklaidimas) su plazmos kanalu (žr. 1 pav). Lazerio impulso spektro plitimas vyksta generuojant šviesos gijas. Iš vienos šviesos gijos kilęs superkontinuumas išlaiko žadinančio impulso poliarizaciją [1].

1.1.2 Daugiafotonė sugertis

Dėl fokusavimosi reiškinio auga lazerinės spinduliuotės intensyvumas, dėl to sustiprėja fokusavimosi reiškinys. Tačiau pluoštas nesusitraukia į be galo mažų matmenų tašką ir nepasiekia be galo didelio intensyvumo. Taip nutinka, nes pluoštas nustoja fokusuotis – daugiafotonė sugertis (vienu metu medžiagoje sugeriami du ar daugiau fotonų) pradeda veikti didelio intensyvumo pluoštą ir medžiagoje pradeda generuoti laisvųjų elektronų plazma. Laisvieji elektronai indukuoja neigiamą lūžio rodiklio pokytį Δn . Taigi, laisvųjų elektronų plazma turi defokusuojantį poveikį ir iki tam tikro didžiausio, t.y ribinio intensyvumo (I_{rib}), apriboja pluošto intensyvumo didėjimą. Ribinis intensyvumas apibrėžiamas kaip

$$I_{rib} = \frac{e^2}{2\pi m_e c^2} \rho_e \frac{\lambda^2}{n_0 n_2}, \quad (1.4)$$

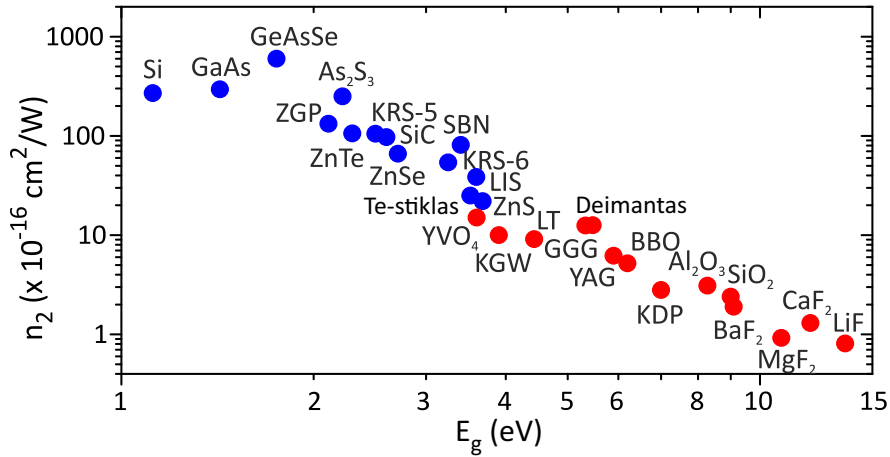
čia m_e – elektrono masė, c – šviesos greitis, ρ_e – laisvųjų elektronų tankis. Laisvųjų elektronų tankis aprašomas

$$\frac{\partial \rho_e}{\partial t} = \frac{\beta_K}{K \hbar \omega_0} I^K \quad (1.5)$$

lygtimi, čia β_K – daugiafotonės sugerties koeficientas, K – daugiafotonės sugerties eilė, $\hbar\omega_0$ – fotono energija [27]. Daugiafotonė sugertis apriboja ir pluošto diametrą, t.y. pradinis lazerio pluoštas gali susitraukti iki tam tikro mažiausio ribinio diametro, kuris aprašomas

$$d_{rib} = \frac{4E}{I_{rib}\pi t_p} \quad (1.6)$$

lygtimi (čia E – impulso energija ir t_p – impulso trukmė) ir gali siekti 5–10 μm . Lygtis 1.4 rodo, kad ribinis intensyvumas ultravioletinei spinduliutei yra mažesnis nei infraraudonajai spinduliutei. Jeigu intensyvumas yra apriojamas žemesniame lygyje, tai superkontinuumo spektro kraštas išplis mažiau nei intensyvumą apriojus aukštesniame lygyje. Taip pat, didelio n_2 medžiagoms ribinis intensyvumas žemesnis, dėl $n_2 \sim 1/E_g^4$ priklausomybės (žr. 3 pav.).



3 pav. Netiesinio lūžio rodiklio ir draustinės juostos (E_g) priklausomybės įvairiose medžiagose [28].

Norint pasiekti superkontinuumo generaciją, daugiafotonės sugerties eilė turi būti $K \geq 3$. Daugiafotonės sugerties eilė apskaičiuojama pagal 1.7 formulę

$$K = \left(\frac{E_g}{\hbar\omega_0} \right) + 1, \quad (1.7)$$

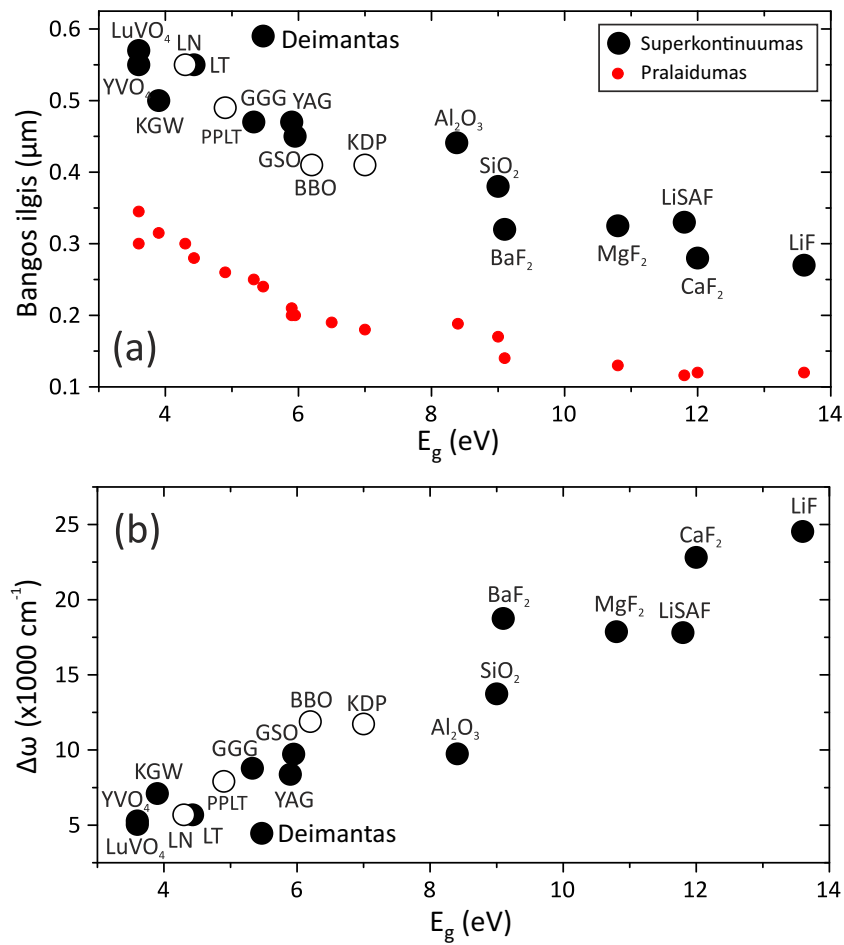
čia E_g – draustinės juostos tarpas. Jeigu daugiafotonės sugerties eilė $K < 3$, tai superkontinuumo generacija nevyksta. Vadinasi, trifotonė sugertis yra mažiausios eilės netiesinė sugertis, kuriai esant dar galima superkontinuumo generacija. Dvifotonės sugerties atveju intensyvumas (kartu ir pluošto diametras) yra apriojamas tokiame lygyje, kad spektras nespėja išplisti. Kuo daugiafotonės sugerties eilė yra aukštesnė, tuo intensyvumas apriojamas aukštesniame lygyje. Atitinkamai apriojamas ir pluošto diametras (kuo mažesnis diametras, tuo didesnis intensyvumas). Visa tai (daugiafotonės sugerties eilė, defokusavimas dėl neigiamo Δn , dau-

giafotonė sugertis bei jonizacija, pluošto skersmuo) lemia superkontinuumo spektro plitimą į trumpabangę spektro pusę.

Trumpabangis spektro poslinkis gali būti įvertintas pagal formulę

$$\Delta\omega = \left(\frac{1}{\lambda_m} - \frac{1}{\lambda_0}\right) \times 10^4, \quad (1.8)$$

čia λ_m – trumpabangį superkontinuumo spektro kraštą atitinkantis bangos ilgis, λ_0 – superkontinuumą žadinančio impulso centrinis bangos ilgis, $\Delta\omega$ vienetai yra atvirkštiniai centimetrai (cm^{-1}).



4 pav. Superkontinuumo spektro ir pralaidumo trumpabangio krašto (a) bei trumpabangio spektro poslinkio ($\Delta\omega$)(b) priklausomybė nuo medžiagos draustinės juostos pločio (adaptuota pagal [28]).

Kai žadinama 800 nm bangos ilgio impulsais, superkontinuumo generacija dar stebima jei $K > 3$, bet spektro išplitimas nedidelis (žr. 4 pav). Taip yra todėl, kad tokiose medžiagose optinis pažeidimas, nepriklausomai nuo fokusavimo sąlygų ir žadinančios spinduliuotės intensy-

vumo, yra pasiekiamas greičiau už spektro išplitimą. Pluošto skersmuo yra santykinai didesnis, netiesinis fazės poslinkis yra mažas, todėl spektro išplitimas yra nedidelis. Šiuo atveju, laisvųjų elektronų defokusavimo poveikis atsveria impulsų fokusavimosi reiškinį dar prieš pluoštui pasiekiant pakankamą intensyvumą. Tuo tarpu, didelio E_g medžiagoms reikalinga aukštesnės eilės daugiafotonė sugertis, kuri pasireiškia tik tuomet kai pasiekiamas aukštas intensyvumas dėl fokusavimosi (santykinai mažas pluošto skersmuo), o tai reiškia aukštesnę ribinį intensyvumą ir didesnę maksimalų Δn [14]. Aukšto intensyvumo spinduliuotė indukuoja didelį netiesinį fazės poslinkį, todėl spektro išplitimas yra didelis.

Superkontinuumo generacijai naudojant regimąją ar ultravioletinę spinduliuotę reikia atsižvelgti į tai, kad daugiafotonės sugerties eilė mažėja didėjant žadinančiosios spinduliuotės dažniui. Superkontinuumo generacija, medžiagą žadinant ultravioletinės spektro srities impulsais, įmanoma tik didelės draustinės energijos juostos medžiagose, pavyzdžiui, LiF, CaF₂ [25].

1.1.3 Šviesos impulsų fazės moduliavimasis

Fazės moduliavimasis yra laikomas pagrindiniu netiesiniu reiškiniu, dėl kurio superkontinuumo generacijos metu vyksta lazerio impulso spektro plėtra, t.y. pradiniam impulse atsiranda nauji dažnio komponentai. Laike kintantis lūžio rodiklis (žr. 1.1 formulę) sukelia netiesinį (laikinio intensyvumo profilio) lazerio impulso fazės pokytį

$$\phi_n(t) = \frac{\omega_0}{c} n_2 \int_0^L I(t, z) dz, \quad (1.9)$$

čia ω_0 – nešantysis dažnis, z – impulso sklidimo atstumas. Ši lygtis rodo, kad netiesinis fazės pokytis yra sukaupiamas viso lazerio impulso sklidimo metu. Atsiranda dažnio moduliacija

$$\delta\omega(t) = \frac{d}{dt} \phi_n(t) \quad (1.10)$$

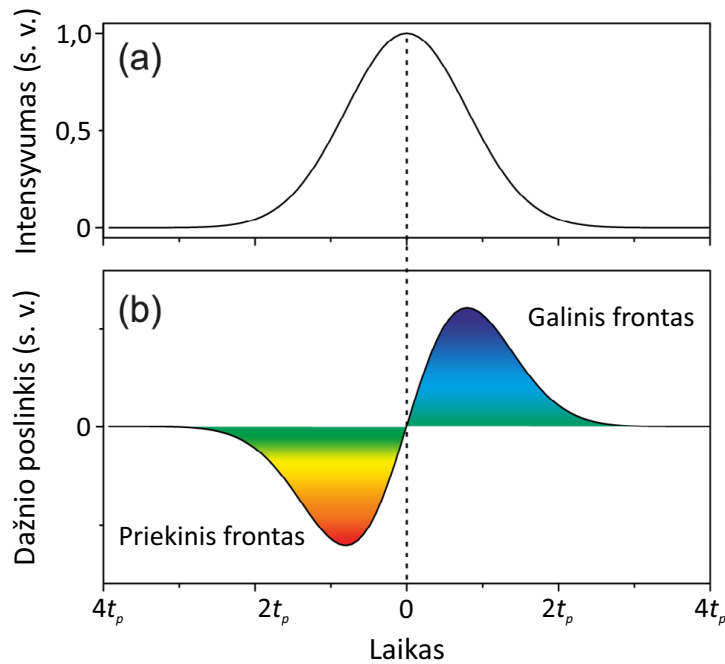
ir tada laike kintantis momentinis dažnis, dėl kurio išplinta impulso spektras, yra lygus

$$\omega(t) = \omega_0 + \delta\omega(t). \quad (1.11)$$

Momentinio dažnio pokytis aprašomas

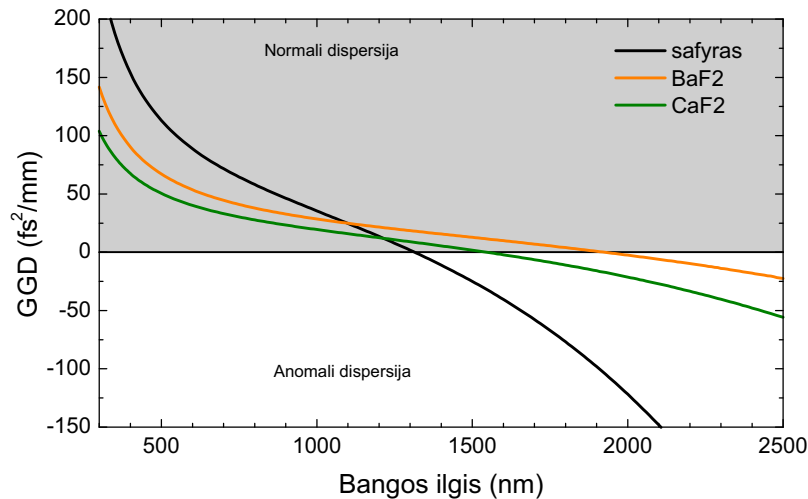
$$\delta\omega(t) = -2 \frac{\omega_0}{ct_p^2} n_0 I_0 \exp\left(-\frac{t^2}{t_p^2}\right) t z, \quad (1.12)$$

čia t_p – impulso trukmė. Fazės moduliavimosi fizikinis reiškinys sukuria naujus dažninius komponentus nešančiojo lazerio impulso spektre. Normalios grupinių greičių dispersijos atveju (ilgabangiai spektro komponentai sklinda greičiau negu trumpabangiai) fazės moduliavimasis sukuria neigiamą momentinio dažnio poslinkį ties impulso priekiniu frontu (spektras išplinta į ilgabangę pusę), o impulso galiniame fronte sukuria teigiamą momentinio dažnio poslinkį (spektras išplinta į trumpabangę pusę) [1, 25]. Šiuo atveju impulso priekyje yra ilgabangiai spektro komponentai, o impulso gale - trumpabangiai spektro komponentai (žr. 5 pav.).



5 pav. Šviesos impulso laikinė gaubtinė (a), dažnio pokytis (b), kai grupinių greičių dispersija yra normali [1].

Jeigu lazerio impulsas yra simetrinis ir yra veikiamas tik fazės moduliavimosi, tai tokio impulso spektre atsiranda intensyvumo moduliacijos ir impulso spektras išplinta simetriškai nešančiojo dažnio atžvilgiu. Asimetrinio lazerio impulso atveju, dėl fazės moduliavimosi impulso spektro plitimas yra asimetrinis. Pavyzdžiui, jeigu galinis impulso frontas statesnis už priekinį, tai tada spektras išplinta toliau į trumpabangę nei į ilgabangę pusę [27].

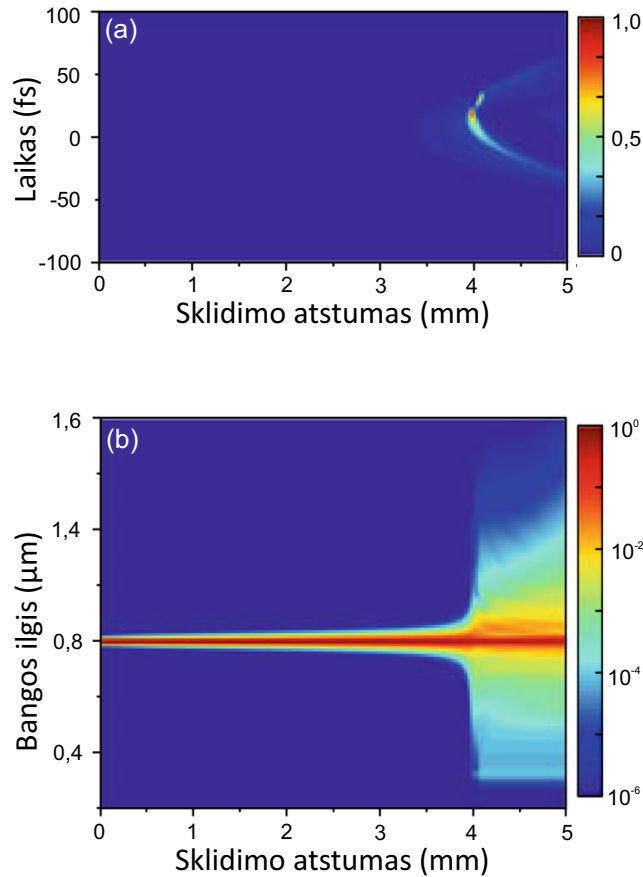


6 pav. Safyro, BaF₂, CaF₂ grupinių greičių dispersijos (GGD) priklausomybė nuo bangos ilgio.

Plačios draustinės juostos dielektrikai (safyras, BaF₂ ir CaF₂) pasižymi normalia grupinių greičių dispersija, jei žadinimo bangos ilgiai yra UV, regimosios ir artimosios IR spektro ruože (žr. 6 pav.).

1.2 Impulso skilimas ir spektro plitimas

Teoriniai modeliai ir skaitmeniniai modeliavimai parodė, kad pradinis impulsas skyla į du sub-impulsus netiesiniame židinyje [27]. Impulso (800 nm, 100 fs), kuris sklinda safyro kristale laikinė dinamika yra pavaizduota 7 (a) paveiksle. Sub-impulsai vienas nuo kito skiriasi savo trukme, amplitude ir dažnio moduliacija. Priekinio (ilgabangio) sub-impulso priekinis frontas yra mažiau status, jo dažnio moduliacija yra silpna bei neigiama, todėl jo spektras plinta į ilgabangę pusę, tačiau nežymiai. Galinis (trumpabangis) sub-impulsas turi stačius frontus, jo dažnio moduliacija yra stipri bei teigiama, todėl spektras stipriai plinta į trumpabangę pusę. Galinis sub-impulsas pasižymi tiesine dažnio moduliacija, todėl trumpabangę superkontinuumo spektro dalis yra spūdi [25]. Ši superkontinuumo savybė taikoma femtosekundinių impulsų nekolineariuose parametriniuose šviesos stiprintuvuose (*NOPA*). Kaip pavaizduota 7 (b) paveiksle, iš karto po impulsų skilimo netiesiniame židinyje pasireiškia sprogstamasis pradinio impulso spektro išplitimas, kuris atsiranda dėl sub-impulsų frontų sustatėjimo.



7 pav. Skaitmeniškai sumodeliuota laikinė (a) ir spektrinė (b) dinamika 800 nm bangos ilgio (normali dispersija) 100 fs trukmės lazerio impulsui sklindant safyro kristale (adaptuota pagal [1]).

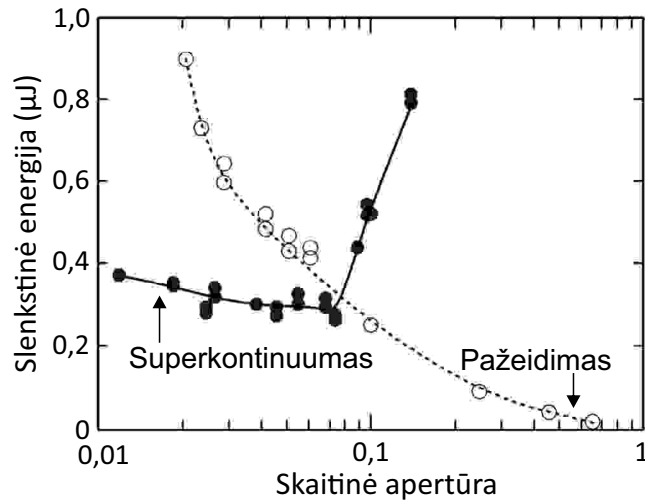
Sub-impulsų spektrai tarpusavyje interferuoja, nes priekinis ir galinis sub-impulsai turi tuos pačius (tik laike pastumtus, t.y. pastumtomis fazėmis) optinius dažnius. Jeigu fazės sutampa, tai gauname maksimumą, o jeigu fazės nesutampa – gauname minimumą. Spektre atsiranda moduliacijos, o pagal moduliacijos dažnį galima pasakyti kokių atstumų sub-impulsai yra nutolę vienas nuo kito. Atstumas tarp impulsų priklausys nuo to, kiek skirtingais greičiais bėgantys sub-impulsai yra nusklidę medžiagoje. Tokia spektro moduliacija matoma skaitmeniškai sumodeliuotuose spektruose. Superkontinuumo spektras yra tolydus generuojant vieną šviesos giją. Tačiau padidinus impulso energiją atsiranda spektrinės moduliacijos aplink žadinantį bangos ilgį, o toliau didinant impulso energiją pluoštas fokusuojasi pakartotinai (generuojamos kelios šviesos gijos), superkontinuumo spektre atsiranda moduliacijos ir pablogėja superkontinuumo spinduliuotės savybės (pvz, koherentiškumas). Dėl to, praktiniams taikymams tokio sklidimo režimo stengiamasi išvengti.

1.3 Fokusavimo sąlygos

Pradinio pluošto fokusavimo sąlygų parinkimas yra svarbus faktorius superkontinuumo generacijos eksperimentinėse sistemose. Skaitinė apertūra (NA) apskaičiuojama pagal

$$NA = \frac{d}{2f} \quad (1.13)$$

formulę, čia d – pluošto diametras ($1/e^2$ intensyvumo lygyje), f – lęšio židinio nuotolis.



8 pav. Superkontinuumo generacijos (tuščiaviduriai taškai) ir optinio pažeidimo (juodi taškai) slenkstinės energijos priklausomybė nuo skaitinės apertūros lydyto kvarco kristale [29].

Labai aštriai ($NA \geq 1$) fokusuojant į netiesinę terpę medžiaga yra pažeidžiama anksčiau nei yra pasiekama kritinė fokusavimosi galia ir superkontinuumo generacija (žr. 8 pav.). Tačiau optinio pažeidimo slenkstinė energija yra nuo kelių iki kelių dešimčių kartų didesnis esant švelniam fokusavimui. Eksperimentiškai nustatyta, kad optimalios sąlygos superkontinuumo generacijai yra pasiekiamos skaitinei apertūrai patenkant į 0,01 - 0,1 intervalo ribas. Optimaliomis superkontinuumo generavimo pavieniais impulsais iki pažeidimo sąlygomis yra standartiškai laikoma $NA \geq 0,05$ [29]. Didinant lazerio impulsų pasikartojimo dažnį superkontinuumo generacija be pažeidimo priklauso nuo medžiagos (kurioje generuojamas superkontinuumas) savybių ir liekamųjų kaupiamųjų efektų, pavyzdžiui tokių kaip šiluminis. Norint išvengti kaupiamųjų efektų, kaip taisyklė, medžiaga yra nuolat transliuojama arba sukama.

Taip pat nuo fokusavimo sąlygų priklauso superkontinuumo spektro simetriškumas. Švelnaus fokusavimo sąlygomis priekinis sub-impulsas (lyginant su aštriu fokusavu) turi statesnius

frontus, todėl gali spektrą labiau išplėsti į ilgabangę pusę. Aštraus fokusavimo sąlygomis priekinis sub-impulsas nespėja išplėsti spektro į ilgabangę pusę [23].

1.4 Medžiagos superkontinuumo generacijai

Superkontinuumas gali būti generuojamas įvairiose plačios apertūros skaidriose terpėse: kietuose kūnuose, skysčiuose ir dujose. Visgi, superkontinuumas dažniausiai generuojamas kietakūnėse medžiagose, nes tokios sistemos yra efektyvios, kompaktiškos, pigios ir nesudėtingai derinamos. Šiuo atveju pakanka lazerio spinduliuotę fokusuoti į kristalą, tada tolimajame lauke stebimi spalvoti koncentriniai žiedai (kūginė spinduliuotė), kurių centre yra superkontinuumas (matomas kaip balta dėmė) [25]. Pagrindinės medžiagos superkontinuumo generacijai yra įvairūs kristalai ir stiklai: safyras, itrio aliuminio granatas, fluoridų kristalai, BK7 stiklas, UV-lydytas kvarcas ir t.t.. Šiose medžiagose žadinamas superkontinuumas pasižymi skirtingomis spektrinėmis charakteristikomis, tokiomis kaip spektro forma ir spektrinis stabilumas. Taip pat skiriasi medžiagų netiesiškumas, lūžio rodiklis, kritinė fokusavimosi galia (skiriasi medžiagų draustinės energijos tarpas), optinio pažeidimo slenkstis ir kitos medžiagų savybės. Šiame darbe tyrinėjamų medžiagų (safyro, BaF_2 ir CaF_2) svarbiausi parametrai yra pateikti 1 lentelėje.

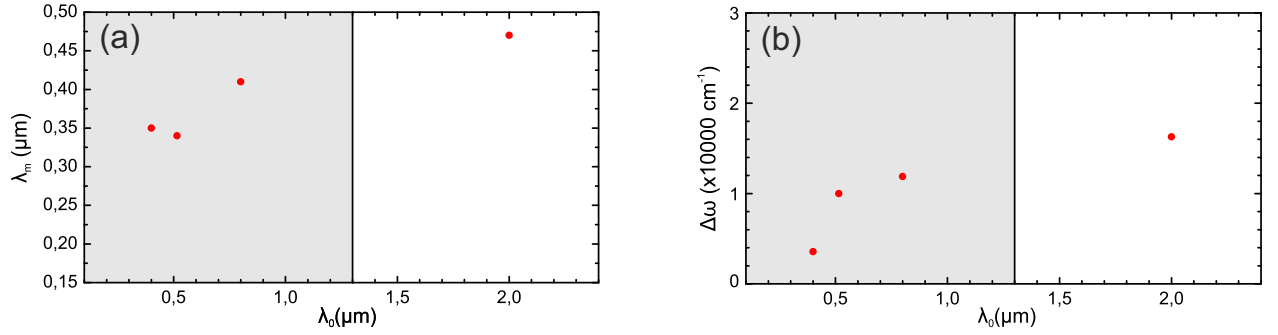
1 lentelė. Superkontinuumo generacijai naudojamų medžiagų tiesiniai ir netiesiniai parametrai, kai žadinantis bangos ilgis 800 nm, $\lambda_{GGD=0}$ – bangos ilgis ties medžiagos grupinių greičių dispersijos nuliui, I_p – optinio pažeidimo slenkstis vienam impulsui

Medžiaga	E_g	Pralaidumas (μm)	$n_2 (\times 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W})$	n_0	$\lambda_{GGD=0}$	I_p (J/cm^2)
Safyras	8	0,19 – 5,2	3,1	1,76	1,31	5,36
BaF_2	9,1	0,14 – 13	1,91	1,47	1,93	2,91
CaF_2	12,1 [30]	0,12 – 10	1,3	1,43	1,55	5,17

1.4.1 Safyras

Superkontinuumo generacijai tinkamiausios tos medžiagos, kurias galima kaupinti femtosekundiniais lazerio impulsais plačiame optinio spektro diapazone. Safyras (Al_2O_3) yra viena iš populiariausių medžiagų superkontinuumo generacijai. Safyro kristale netgi jo netransliuojant yra pasiekiamas didelis ilgalaikis superkontinuumo stabilumas, o tai ypatingai patrauklu norint supaprastinti eksperimentines sistemas. Safyras taip pat pasižymi žemu superkontinuumo

generacijos slenksčiu, aukštu optinio pažeidimo slenksčiu.



9 pav. Safyre generuojamo superkontinuumo spektro trumpabangį kraštą atitinkančio bangos ilgio λ_m (a) ir trumpabangio poslinkio $\Delta\omega$ (b) priklausomybė nuo žadinančios spinduliuotės bangos ilgio.

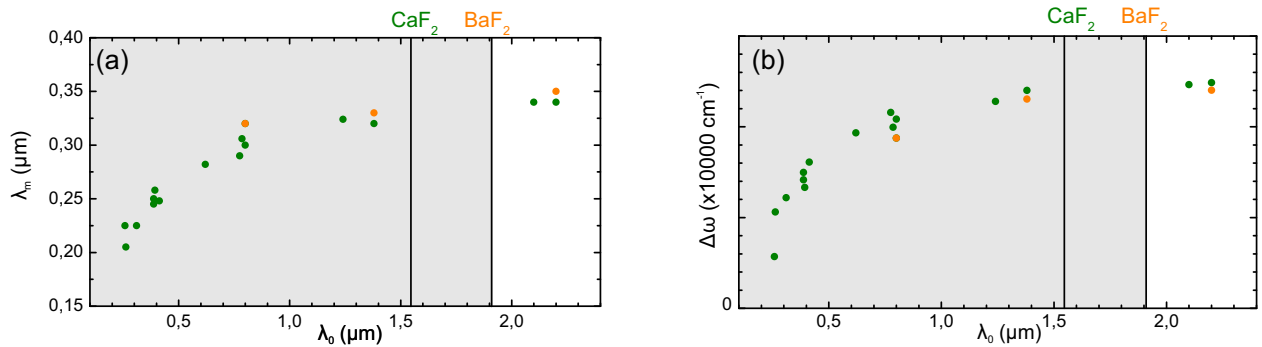
Žadinant superkontinuumą safyro 2 mm storio plokštelėje artimąja infraraudonąja spinduliuote paprastai gaunamas spektras, apimantis didžiąją dalį regimosios spektro srities, tačiau trumpabangis spektro kraštas išplinta tik iki 475 nm (žr. 9 (a) pav.) [6]. Dėl tokio mažo spektro plitimo į trumpabangę spektro pusę (žr. 9 (b) pav.) safyras netinkamas naudoti ultravioletinio superkontinuumo generavimui.

1.4.2 CaF_2 ir BaF_2

Ankščiau jau buvo aptarta, jog trumpabangis superkontinuumo spektro plitimas vyksta efektyviau didesnio ($E_g > 8 \text{ eV}$) draustinės energijos tarpo medžiagose (žr. 4 pav.). Šarminių metalų fluoridai yra vienos iš tokių medžiagų. Jos pasižymi ypatingai plačia (nuo vakuuminio ultravioleto iki vidurinėsios infraraudonosios srities) skaidrumo juosta. Be to, šios medžiagos išsiskiria dideliu draustinės energijos tarpu ir maža medžiagos dispersija [1]. Lyginant su kitomis medžiagomis, šarminių metalų fluoriduose sugeneruotas superkontinuumo spektras pasižymi didžiausiu spektro trumpabangiu poslinkiu (žr. 4 (b) pav.). Eksperimentiniai šarminių metalų fluoridų tyrimai (orientuoti į trumpabangį superkontinuumo kraštą) naudojant Ti:safyro lazerio pagrindinio dažnio impulsus parodė, kad iš visų fluoridų svarbu išskirti dvi medžiagas: kalcio fluoridą (CaF_2) ir ličio fluoridą (LiF). Literatūroje teigiama, kad tik šiose netiesinėse medžiagose sugeneruotas superkontinuumo spektras apima visą arba beveik visą regimąjį diapazoną ir reikšmingą ultravioletinės spektro srities dalį (trumpabangis superkontinuumo spektro kraštas $< 350 \text{ nm}$, bet tam tikrais atvejais gali siekti $< 300 \text{ nm}$) [28]. BaF_2 kristale buvo mažai tyrinėta superkontinuumo generacija, o didžiausias užregistruotas superkontinuumo spektro plitimas

siekė 320 nm [9] žr. 10 pav..

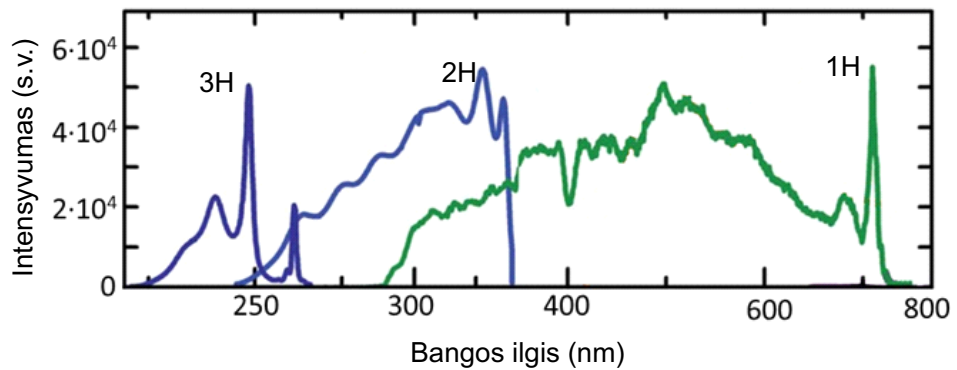
Iš visų fluoridų plačiai naudojamas tik CaF_2 , nes kitose medžiagose iš karto atsiranda optinis pažeidimas. CaF_2 turi plačią (12,1 eV) draustinę juostą ir skaidrumo langas siekia tolimą UV žr. 1 lentelę [30]. CaF_2 kristale superkontinuumo generacija buvo tirta naudojant įvairių bangos ilgių femtosekundinius impulsus (žr. 10 pav.). Superkontinuumą žadinant 800 nm bangos ilgio impulsais buvo užregistruotas 300 nm – 2 μm diapazono spektras, o spektras 0,34 – 3,3 μm srityje buvo išmatuotas žadinant 2.1 – 2.2 μm bangos ilgio impulsais (anomalios grupinių greičių dispersijos srityje) [5]. Kitų eksperimentų metu buvo registruotas ypatingai tolydus spektras 500 – 1700 nm srityje, žadinant 15 fs trukmės 2 μm bangos ilgio impulsais [8]. Literatūroje minima, kad žadinančios spinduliuotės poliarizaciją ir stabilumą išlaikantis superkontinuumo spektras buvo užregistruotas nuo 250 nm iki 650 nm kristalą žadinant 387 nm bangos ilgio spinduliuote [6].



10 pav. CaF_2 (žali taškai) ir BaF_2 (oranžiniai taškai) kristaluose generuojamo superkontinuumo spektro trumpabangį kraštą atitinkančio bangos ilgio λ_m (a) ir trumpabangio poslinkio $\Delta\omega$ (b) priklausomybė nuo žadinančios spinduliuotės bangos ilgio.

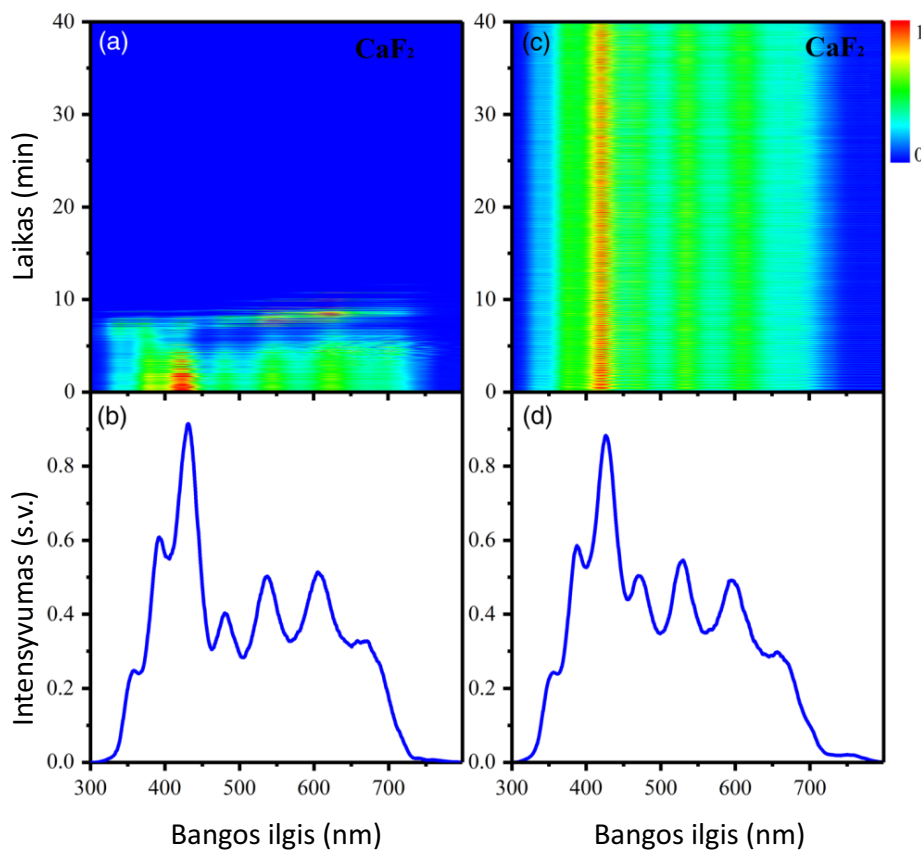
Riedlis (Riedle) ir k.t., superkontinuumą žadino 5 mm storio CaF_2 plokštelėje naudojant skirtingas Ti:safyro lazerio, veikiančio 1 kHz pasikartojimo dažniu, harmonikas [11]. CaF_2 plokštelė buvo transliuojama siekiant išvengti optinio medžiagos pažeidimo. Žadinimui naudojant Ti:safyro lazerio pirmąją harmoniką (bangos ilgis 775 nm) buvo užregistruotas superkontinuumo spektras apimantis dalį ultravioletinės ir visą regimąją spektro sritį 290 – 720 nm (žr. 11 pav. žalia kreivė). Superkontinuumo spektro trumpabangis kraštas buvo užregistruotas ties 245 nm, kai CaF_2 kristalo žadinimui buvo naudojama Ti:safyro antroji harmonika (bangos ilgis 387 nm) (žr. 11 pav. mėlyna kreivė). Superkontinuumo spektro ultravioletinis kraštas buvo išmatuotas ties 225 nm žadinant trečiosios harmonikos (bangos ilgis 258 nm) impulsais

(žr. žr. 11 pav. tamsiai mėlyna kreivė) [11].



11 pav. Superkontinuumo spektrai, transliuojamą CaF_2 5 mm plokštelę žadinant Ti:safyro lazerio pirmąja, antrąja ir trečiąja harmonikomis [11].

Panašus tyrimas buvo atliktas žadinant superkontinuumą Cr:forsterito lazerio pirmąja, antrąja, trečiąja ir ketvirtąja harmonikomis 3 mm storio nuolat transliuojamoje CaF_2 plokštelėje [31]. Superkontinuumo spektro trumpabangis kraštas siekė 324 nm, 282 nm, 248 nm ir 225 nm, žadinimui atitinkamai naudojant 1240 nm, 620 nm, 413 nm ir 310 nm bangos ilgio spinduliuotę. CaF_2 kristale generuotas superkontinuumas, lyginant su LiF ir MgF_2 pasižymėjo puikiu spektriniu stabilumu ir geru atsikartojamumu [12]. Tai ypatingai svarbu praktiniuose taikymuose ultraspārčioje skirtuminėje spektroskopijoje ir UV-žadinamu nekolineariaus optinio parametrinio stiprintuvo charakteristikų gerinimui.



12 pav. Superkontinuumo spektro dinamika laike (viršuje) ir superkontinuumo spektrai (apačioje) netransliuojant (a, b) ir sukant (c, d) CaF₂ kristalą [12].

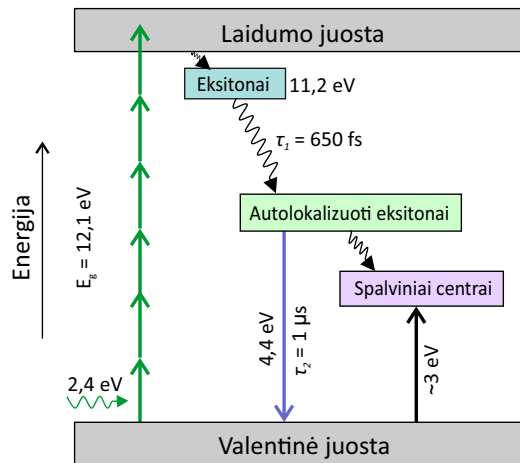
Vienas iš pagrindinių trūkumų fokusuojant femtosekundinius lazerio impulsus į CaF₂ kristalą yra dėl šiluminių efektų greitai pasireiškiantis superkontinuumo spektro siaurėjimas ir spektrinės fluktuacijos. Gero atsikartojamumo CaF₂ superkontinuumo spektras buvo gaunamas tik tada, kai superkontinuumo generacijos metu kristalas buvo nuolat transliuojamas arba sukamas (žr. 12 pav.), čia superkontinuumo žadinimui buvo naudojami 40 fs trukmės 800 nm bangos ilgio impulsai 1 kHz pasikartojimo dažniu [6, 12].

1.5 Optinis medžiagos pažeidimas

Optinis medžiagos pažeidimas - negrįžtamas medžiagos struktūros suardymas, dėl joje sukuriamų defektų ir medžiagos modifikavimo. Daugelio pasikartojančių impulsų poveikyje jis vyksta laipsniškai ir pradžioje pasireiškia sumažėjusiu pralaidumu, kadangi medžiagos draustinės energijos juostoje įsiterpia defektų (spalvinių centrų, t.y. F centrų ir H centrų) energiniai lygmenys. F centrai – kristalinės gardelės anijono (fluorido jono) vakansijos vietoje pagautas

elektronas. H centrais CaF_2 kristale vadinami F_2^- molekulinės fluorido vietoje. Taip pat optinį medžiagos pažeidimą mikroskopinėje skalėje indukuoja sklaidos centrų formavimasis. Sklaidyti šviesą gali sugerties centrai (pavyzdžiui, spalviniai centrai), priemaišos ir metalų koloidai (kuo didesni koloidai tuo stipresnė sklaida). Metalų koloidai – tai kristaluose susiformuojančios 1 – 100 nm diametro metalo dalelės medžiagą apšvietus didelio intensyvumo lazerine ar jonizuojančia spinduliuote, dėl kurios sparčiai didėja taškinių defektų kiekis [32].

Defektų vystymosi CaF_2 ir panašiose medžiagose (apšviečiant lazerine ar jonizuojančia spinduliuote bei veikiant aukštos energijos dalelėmis) tyrimų sritis yra plati ir sudėtinga. Literatūroje bendrai sutariama, kad CaF_2 (ir panašios struktūros kristalus) veikiant intensyvia lazerine spinduliuote optinis pažeidimas pirmiausiai pasireiškia taškinių defektų (spalvinių centrų) susidarymu. Principinė CaF_2 energinių lygmenų schema pavaizduota 13 paveiksle.



13 pav. CaF_2 kristalo energinių lygmenų ir defektų formavimosi principinė schema (adaptuota pagal [20]).

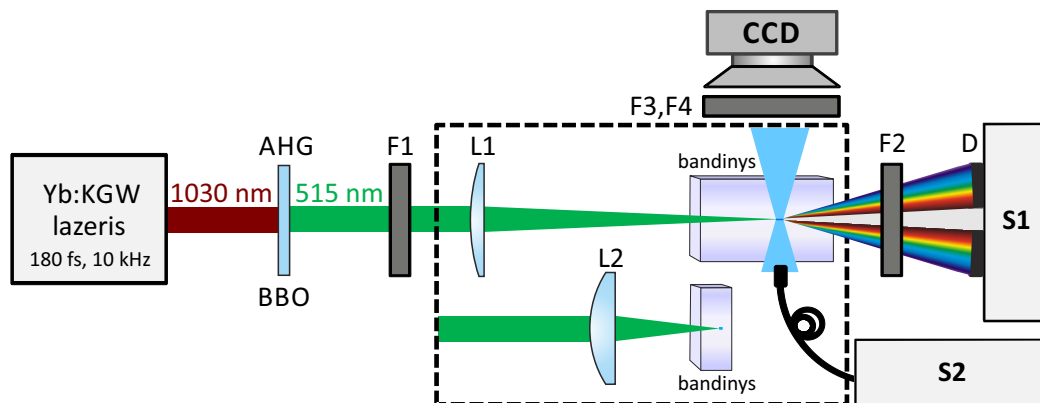
Defektų formavimasis (CaF_2 ir panašiuose kristaluose) gali būti apibendrinamas keliais pagrindiniais etapais. Elektronas sužadinas į laidumo juostą ir tuo pačiu sukuriama elektronų ir skylių pora (eksitonai). Dėl stiprios elektrono ir fonono sąveikos (angl. *electron-phonon coupling*) eksitonai lokalizuojasi deformuodami gardelę ir tokiu būdu sukuriama autolokalizuoti eksitonai (angl. *self-trapped exciton, STE*) [20]. Autolokalizuoto eksitono būseną yra stabilesnė už laisvo eksitono būseną. Autolokalizuoto eksitono formavimosi trukmė buvo apskaičiuota iš skirtuminės sugerties rezultatų ir yra ~ 690 fs [33]. Autolokalizuoto eksitono struktūra (CaF_2 kristale) literatūroje bendrai aiškinama artimiausių F centrų ir H centrų pora [21]. Zonduo-

jant skirtingos energijos fotonais, buvo nustatyta, kad F centro sugerties juostos maksimumas ties 3,28 eV, o H centro sugerties maksimumas ties 4 eV. Autolokalizuoti eksitonai gali išnykti spinduliniu arba nespinduliniu būdu. Pirmuoju atveju yra stebima autolokalizuočių eksitonų rekombinacija su charakteringu liuminescencijos juostos maksimumu ties ~ 280 nm (4,4 eV) [34–36]. Liuminescencijos gesimo trukmė τ_1 yra laikoma pagrindine gesimo komponente. Ji buvo išmatuota ir šiame darbe, gauti rezultatai bus palyginti su literatūroje nurodytomis vertėmis vėliau. Nespinduliniu būdu autolokalizuoti eksitonai gali išnykti dviem keliais: per gardelės relaksacijas kuriant fononus, t.y. kristalas šyla, arba toliau modifikuojant medžiagą.

Defektų (F-H porų) formavimosi sparta priklauso nuo I^2 (čia, I –lazerio spinduliuotės intensyvumas). Jeigu visi lazerinės spinduliuotės sukurti F centrai ir H centrai rekombinuotų (gardelė vėl būtų taisyklinga), tai tada būtų išvengiama defektų formavimosi ir optinio pažeidimo. Tačiau didinant impulsų pasikartojimo dažnį (mažinant laiko tarpą tarp impulsų) išauga defektų koncentracija kristale. Pasireiškia defektų kaupimasis – pirmojo lazerio impulso sukurti ilgai gyvuojantys defektai (pvz, M centrai) nespėja rekombinuoti iki sekančio impulso. Be to, H centrai gali lengviau migruoti nei F centrai (vyksta difuzija dėl skirtingų koncentracijų lazerio paveiktoje ir nepaveiktoje zonoje) į didesnę kristalo tūrį už lazerio spinduliuotės veikiamą zoną. Dėl to, didėja F centrų, kurie gali formuoti stabilius defektus (M centrus ir Ca koloidus) koncentracija lazerio spinduliuotės veikiamoje zonoje. F centrai stabilizuojasi sudarydami F-F centro porą (M centrą), šių ilgai gyvuojančių spalvinių centrų sugerties juosta ties 2,4 eV. M centras laikomas stabiliu defektu, darančiu didelę įtaką medžiagos optinio pažeidimo vystymuisi.

2 Tyrimo metodika

Ekspperimentai buvo atlikti naudojant tokią sistemą, kuria buvo galima greitai ir paprastai keisti kristalo padėtį. Šiame darbe naudota eksperimento schema yra pavaizduota 14 paveiksle.



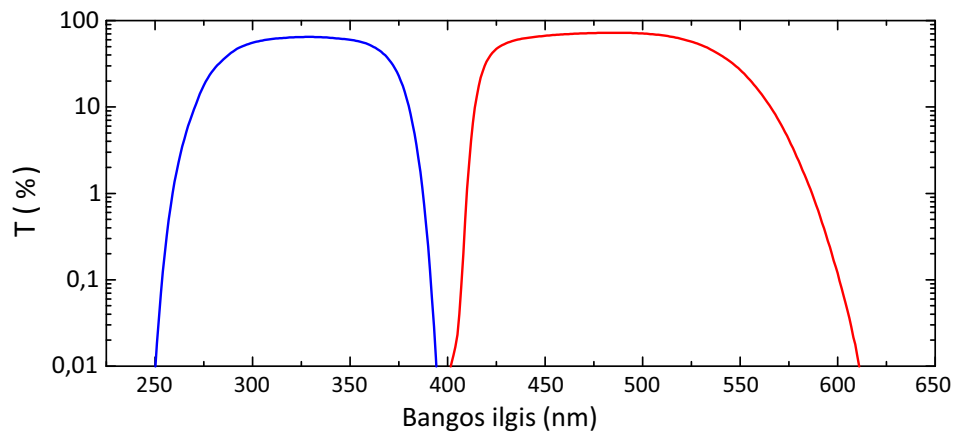
14 pav. Superkontinuumo, liuminescencijos ir sklaidos matavimo principinė schema: Yb:KGW lazeris, antrosios harmonikos generacijos kristalas (AHG), pirmosios harmonikos intensyvumą mažinantis filtras (F1), $f = +400$ mm ir $f = +150$ mm glaudžiamieji lęšiai (L1 ir L2), antrosios harmonikos intensyvumą mažinantis filtras (F2), diafragma (D), spektrometrai (S1, S2), liuminescencijos ir sklaidos matavimams skirta filtrų sistema (F3, F4), CCD kamera.

Superkontinuumas buvo žadinamas naudojant Yb:KGW femtosekundinį lazerį (*Pharos, Light Conversion Ltd.*), kuris generuoja 1030 nm centrinio bangos ilgio 180 fs trukmės impulsus 10 kHz pasikartojimo dažniu. Antroji harmonika (bangos ilgis 515 nm) buvo generuota 1 mm storio BBO kristale (AHG), kuris išpjautas pirmo tipo faziniam sinchronizmui. Pirmosios harmonikos spinduliuotė buvo filtruojama filtru (F1), sudarytu iš spalvoto stiklo (*SZS-21*) ir dielektrinio veidrodžio (atspindinčio ties 1030 nm). Registruojant superkontinuumo spektrus antrosios harmonikos (515 nm) spinduliuotės intensyvumas buvo mažinamas dielektriniu veidrodžiu (F2), siekiant sumažinti intensyvią smailę ties 515 nm bangos ilgiu. Tokiu būdu buvo praplėstas spektrometro dinaminis diapazonas. Antrosios harmonikos spinduliuotė buvo fokusuojama į bandinį $f = +150$ mm (L2) židinio nuotolio (NA = 0,012, aštrius fokusavimas) ir $f = +400$ mm (L1) židinio nuotolio (NA = 0,004, švelnus fokusavimas) glaudžiamaisiais lęšiais. Pluošto diametras prieš lęšį (L1 ir L2) lygus 3,5 mm ($1/e^2$ intensyvumo lygyje).

Superkontinuumo generacijos dėsninėjimai buvo detaliam tyrinėjami CaF_2 (5 mm ir 25 mm ilgio) ir BaF_2 (6 mm ir 25 mm ilgio) kristaluose. Gauti rezultatai buvo lyginami su tokiais

pačiomis fokusavimo sąlygomis (5 mm ir 15 mm ilgio) safyro kristale generuojamu superkontinuumu. Visų matavimų metu bandiniai buvo stacionarūs, t.y. nebuvo sukami ir nebuvo transliuojami skersai ar išilgai lazerio pluoštui. Superkontinuumą žadinančios spinduliuotės energija buvo matuojama (*Ophir 3A-P-SH-V1-ROHS*) galios matuokliu.

Superkontinuumo spinduliuotė nuo kūginės spinduliuotės buvo išskirta diafragma (D) ir registruojama spektrometras (S1) (*Avantes AvaSpec-3648*), kurio detektavimo diapazonas apima 200 – 1100 nm spektrinę sritį. Užregistruoti spektrai vėliau buvo koreguoti pagal spektrometro jautrio funkciją ir prieš spektrometrą pastatyto filtro (F2) pralaidumo funkciją.



15 pav. Filtrų sistemos, kuri buvo naudojama liuminescencijos spinduliuotės (mėlyna kreivė) ir išsklaidytos spinduliuotės (raudona kreivė) registravimui, pralaidumo spektrai.

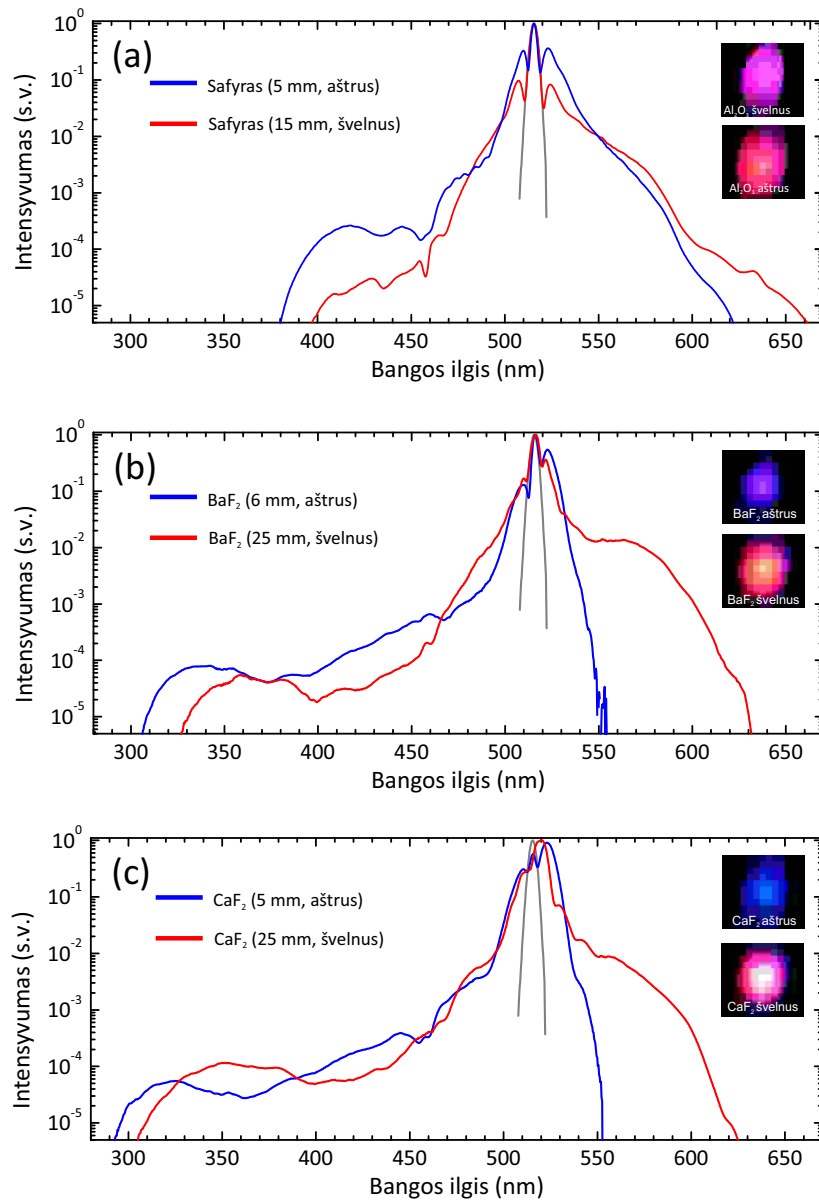
Liuminescencijos signalas buvo surenkamas prie kristalo nupoliruoto šono pridėtu šviesolaidžiu, o liuminescencijos spektras buvo registruojamas (S2) šviesolaidiniu spektrometru (*OceanOptics QE65000*). Kartu su superkontinuumo spektru tuo pačiu metu buvo registruojama ir liuminescencijos intensyvumo pasiskirstymo išilgai šviesos gijos evoliucija laike. Tam tikslui įgyvendinti į nupoliruoto kristalo šoną buvo nukreipta CCD kamera (*Flir Grasshopper2*, pikselio dydis 4,4 μm) su 1:1 didinimo objektyvu. Prieš CCD kamerą buvo pastatytas filtras (F3), sudarytas iš spalvotų stiklų (*YFS-1* ir *YFS-2*) kombinacijos su pralaidumo langu nuo 250 iki 390 nm. (žr. 15 pav. mėlyna kreivė). Kitu atveju, generuojant superkontinuumą buvo lygia-grečiai registruojama išsklaidytos spinduliuotės intensyvumo pasiskirstymo evoliucija laike. Tai buvo padaryta pakeitus prieš CCD kamerą stovinčių filtrų sistemą į (F4), sudarytą iš spalvotų stiklų (*ŽS-16* ir *SZS-22*), kurių bendras pralaidumas yra 400 – 600 nm diapazone (žr. 15 pav. raudona kreivė).

3 Rezultatai ir jų aptarimas

3.1 Superkontinuumo spektrai

Visų pirma, eksperimentiškai buvo surasta optimali bandinio padėtis lęšio židinio atžvilgiu visiems bandiniams aštraus ir švelnaus fokusavimo atvejais. Bandiniai buvo transliuojami išilginėje koordinatėje (z) ir palaipsniui buvo didinama lazerio impulso energija, o spektrometru buvo registruojamas spektras. Surasta, kad kai fokusuojama kristalo viduje, netiesinis židiny susiformuoja antroje kristalo pusėje, o superkontinuumo generacijos slenkstis yra 25 % žemesnis nei fokusuojant ant priekinio paviršiaus, sutinkamai su kitų autorių pastebėjimais [27]. Žemesnis superkontinuumo generacijos slenkstis ir plataus superkontinuumo generacija naudojant žemesnės energijos impulsus yra privalumas. Tai ypatingai svarbu siekiant išvengti medžiagos pažaidos. Superkontinuumo generacijos tyrimams buvo pasirinktos tokios impulsų energijos (arti superkontinuumo generacijos slenksčio), su kuriomis trumpabangis spektro kraštas nustoja plėstis, t.y. spektro plėtra įsisotina (žr. 2 lentelę).

Visų pirma buvo išmatuoti ašinės superkontinuumo spinduliuotės spektrai pradiniu laiko momentu trumpuose ir ilguose safyro, BaF_2 ir CaF_2 kristaluose, atitinkamai aštraus ir švelnaus fokusavimo sąlygomis (žr. 16 pav.).

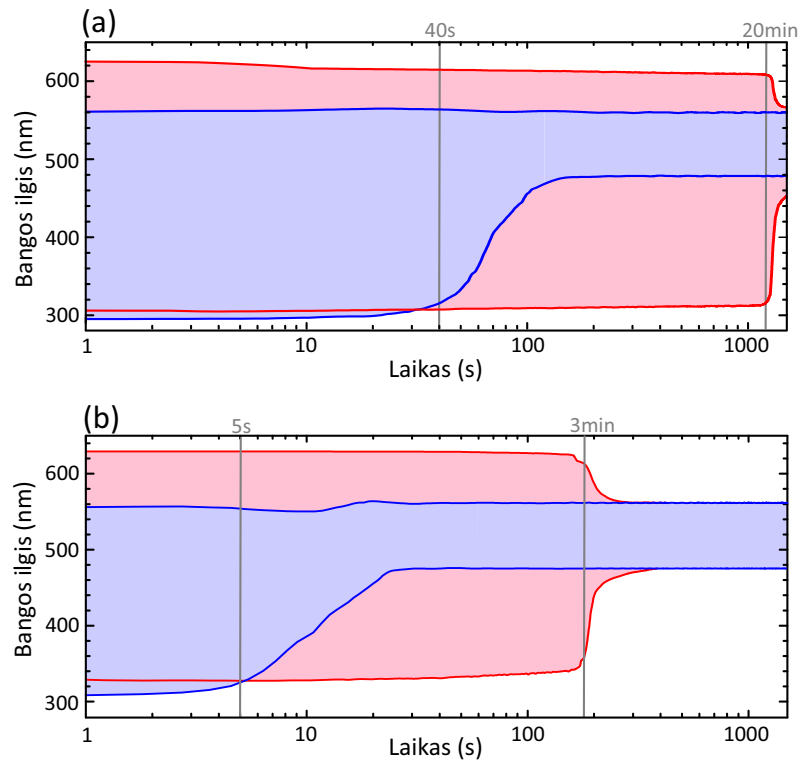


16 pav. Superkontinuumo ašinis spektras safyro (a), BaF₂ (b) ir CaF₂ (c) kristaluose aštraus (mėlyna kreivė) ir švelnaus (raudona kreivė) fokusavimo sąlygomis, kai superkontinuumas žadinamas femtosekundinio Yb:KGW lazerio 515 nm bangos ilgio 10 kHz pasikartojimo dažnio impulsais. Pradinio impulso spektras pavaizduotas pilka kreive. Paveikslų tarpuose pavaizduoti superkontinuumo spinduliuotės skirstiniai už bandinių esant skirtingoms fokusavimo sąlygoms.

Superkontinuumo spektras mažiausiai išplito į ultravioletinę spektro pusę safyre iki ~380 nm, daugiau išplito BaF₂ iki ~310 nm, o daugiausia CaF₂ kristale iki ~300 nm (žr. 16 pav. ir 2 lentelę). Kartu nustatyta, kad superkontinuumo spektro forma priklauso nuo fokusavimo geometrijos. Šis dėsniumas buvo stebimas visose šiame darbe tirtose medžiagose. Esant

aštriam fokusavimui į trumpą bandinį spektras labiau išplitęs į trumpabangę spektro pusę, lyginant su švelniu fokusavimu į ilgą kristalą. Šie skirtumai yra gerai matomi paveikslų in-
 tarpuose pateiktose superkontinuumo nuotraukose (žr. 16 pav.). Užregistruotas trumpabangis
 superkontinuumo spektro kraštas ir pagal 1.8 formulę apskaičiuotas trumpabangis spektro po-
 slinkis irgi pateiktas 2 lentelėje. Visgi švelniai fokusuojant į ilgą kristalą buvo užregistruota
 platesnė superkontinuumo spektro ilgabangė dalis. Šis skirtumas ypatingai ryškus BaF₂ ir CaF₂
 kristaluose, kur su pasirinktomis impulso energijomis (žr. 2 lentelę) aštraus fokusavimo atveju
 spektro plitimas į ilgabangę pusę yra nežymus.

Toliau buvo atliktas superkontinuumo spektro ilgalaikio stabilumo tyrimas. Safyro kristale
 spektras išliko stabilus nepriklausomai nuo fokusavimo sąlygų ir jokio siaurėjimo laike nepa-
 stebėta. Tuo tarpu BaF₂ ir CaF₂ kristaluose superkontinuumo spektrai po kurio laiko ėmė
 siaurėti, o jų dinamikos laike rezultatai pavaizduoti 17 paveiksle.



17 pav. Superkontinuumo spektro dinamika laike, netransliuojamuose CaF₂ (a) ir BaF₂ (b) kristaluose
 superkontinuumo žadinimui naudojant aštraus (NA = 0,012, trumpas kristalas, mėlyna kreivė) ir (b)
 švelnaus (NA = 0,004, ilgas kristalas, raudona kreivė) fokusavimo sąlygas.

Nustatyta, kad superkontinuumo spektro dinamika netransliuojamuose CaF₂ ir BaF₂ kri-
 staluose stipriai priklauso nuo fokusavimo sąlygų. 17 paveiksle pavaizduoti superkontinuumo

spektrų pločiai 10^{-5} intensyvumo lygyje aštraus (mėlyna kreivė) ir švelnaus (raudona kreivė) fokusavimo sąlygomis. Aštriai fokusuojant į trumpą kristalą superkontinuumo spektras pradeda siaurėti beveik iš karto (po kelių sekundžių). CaF_2 (5 mm) kristale superkontinuumo spektras pradeda siaurėti po ~ 40 s (SK generacija pilnai išnyksta po ~ 2 min), o 6 mm BaF_2 kristale SK spektras pradeda siaurėti jau po ~ 5 s (SK generacija pilnai išnyksta po ~ 20 s), kai atitinkamai naudojami $0,4 \mu\text{J}$ ir $0,2 \mu\text{J}$ energijos impulsai. Toks pats matavimas buvo atliktas švelniai fokusuojant į ilgus (25 mm) kristalus. Šiuo atveju superkontinuumo generacijos laikas ženkliai pailgėjo. BaF_2 kristale superkontinuumo generacija išsilaikė ~ 3 min (impulso energija $0,3 \mu\text{J}$). Visgi ilgiausia (~ 20 min) stabiliausia superkontinuumo generacija buvo užregistruota naudojant 25 mm ilgio CaF_2 kristalą ir švelniai fokusuojant $0,48 \mu\text{J}$ energijos impulsus. Be to buvo pastebėta, kad superkontinuumo spektras nuolat lėtai siaurėjo viso matavimo metu.

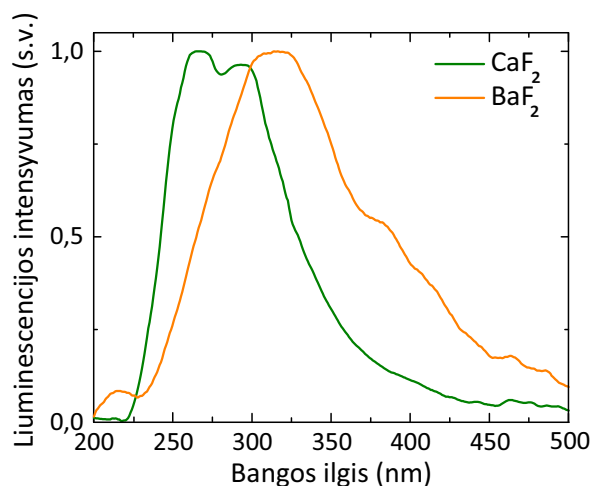
2 lentelė. Superkontinuumo (SK) generacijos netransliuojamuose safyro, BaF_2 , CaF_2 kristaluose eksperimentinių parametrų ir rezultatų apibendrinimas

Medžiaga	Safyras		BaF_2		CaF_2	
Kristalo ilgis (mm)	5	15	6	25	5	25
Impulso energija (μJ)	0,17	0,34	0,2	0,3	0,4	0,48
Fokusavimas	aštrus	švelnus	aštrus	švelnus	aštrus	švelnus
Trumpabangis SK spektro kraštas (nm)	383	402	308	331	296	309
Trumpabangis poslinkis (cm^{-1})	6692	5458	13050	10794	14370	12940
Ilgabangis SK spektro kraštas (nm)	617	654	550	630	550	620
Laikas iki SK spektro siaurėjimo	–	–	~ 5 s	~ 3 min	~ 40 s	~ 20 min

Norint daugiau sužinoti apie superkontinuumo generacijos skirtumus aštraus ir švelnaus fokusavimo sąlygomis buvo atlikti papildomi matavimai, kurie suteikė informacijos apie šviesos gijos formą, lazerinės spinduliuotės sklaidą, optinę medžiagos pažaidą bei jų laikinę evoliuciją.

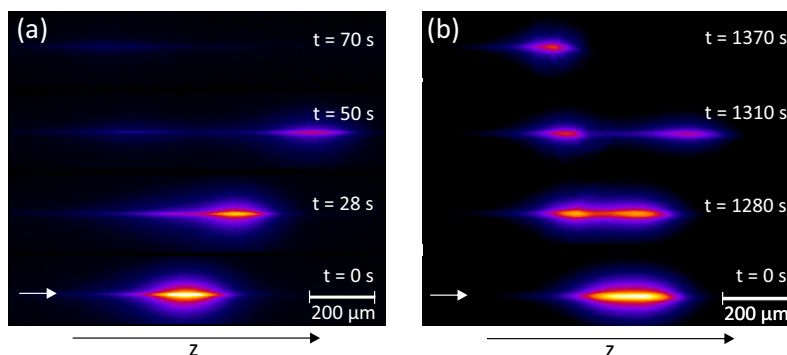
3.2 Liuminescencija ir sklaida

Superkontinuumo generacijos metu pasireiškia intensyvi netiesinės terpės liuminescencija išilgai šviesos gijos. Safyras, BaF_2 ir CaF_2 (kaip ir daugelis oksidų, fluoridų ir kitų medžiagų) liuminescuoja UV spektro srityje.



18 pav. BaF₂ (oranžinė kreivė) ir CaF₂ (žalia kreivė) kristalų liuminescencijos spektrai.

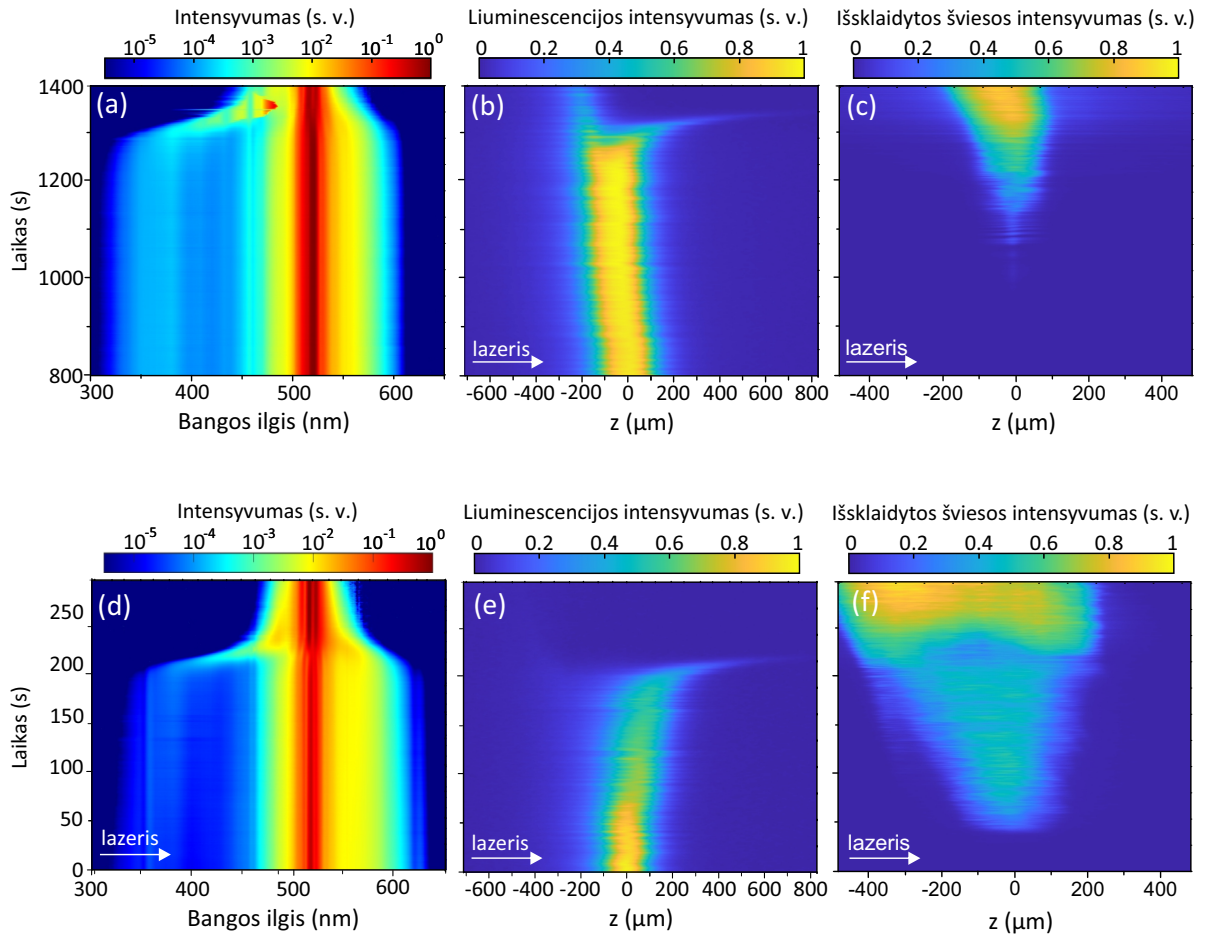
Superkontinuumo generacijos metu užregistruoti BaF₂ ir CaF₂ liuminescencijos spektrai yra pateikti 18 paveiksle. Liuminescencijos juostos maksimumas CaF₂ kristale ties ~275 nm, o BaF₂ ties ~315 nm. Išmatuoti liuminescencijos spektrai gerai sutampa su kitų mokslinių grupių rezultatais [34–37]. Šiuose kristaluose liuminescencija priskiriama autolokalizuotų eksitonų spindulinei rekombinacijai.



19 pav. Liuminescencijos intensyvumo išilgai šviesos gijos dinamika laike aštriai ($NA = 0,012$) fokusuojant į 5 mm (a) ir švelniai ($NA = 0,004$) fokusuojant į 25 mm ilgio (b) CaF₂ kristalą, balta rodyklė žymi spinduliuotės sklaidimo kryptį.

Liuminescencijos intensyvumo pasiskirstymas išilgai šviesos gijos (liuminescencijos pėdsako vaizdas) superkontinuumo generacijos metu buvo užregistruotas CCD kamera trumpame ir ilgame CaF₂ kristaluose, atitinkamai naudojant aštrų ir švelnų fokusavimą, skirtingais laiko momentais (žr. 19 pav.). Svarbu pabrėžti, kad šiame matavime vieno impulso pėdsakas nebuvo registruojamas, o užfiksuotame CCD kameros vaizde suintegruoti keli impulsai. Matavimo pra-

džioje ($t = 0$ s) buvo stebima tolygi šviesos gija. Didžiausio liuminescencijos intensyvumo vieta atitinka netiesinio židinio padėtį, kuri nuo galinio CaF_2 kristalo paviršiaus nutolusi ~ 2 mm (aštrus fokusavimas, trumpas kristalas) ir ~ 8 mm (švelnus fokusavimas, ilgas kristalas). Laiko momentais ($t = 28$ s (a) ir $t = 1280$ s (b)) buvo stebimas liuminescencijos pėdsako trūkis į dvi dalis (priekinę ir galinę). Vėlesniais laiko momentais ($t = 50$ s (a) ir $t = 1310$ s (b)) liuminescencijos pėdsako dalys tolsta viena nuo kitos. Pastebėta, kad tai sutampa su sparčia superkontinuumo spektro siaurėjimo pradžia. Liuminescencijos pėdsako vaizdas pasibaigus superkontinuumo generacijai pateiktas viršutinėje eilėje ($t = 70$ s (a) ir $t = 1370$ s (b)), kur matoma tik likusi viena (silpnesnė) priekinė liuminescencijos pėdsako dalis. Taigi, aštraus ir švelnaus fokusavimo sąlygomis liuminescencijos pėdsako kitimo laike dėsningumai yra panašūs, tik švelnaus fokusavimo sąlygomis vyksta ilgesnėje laiko skalėje. Labai panaši tendencija buvo stebima ir BaF_2 kristale.

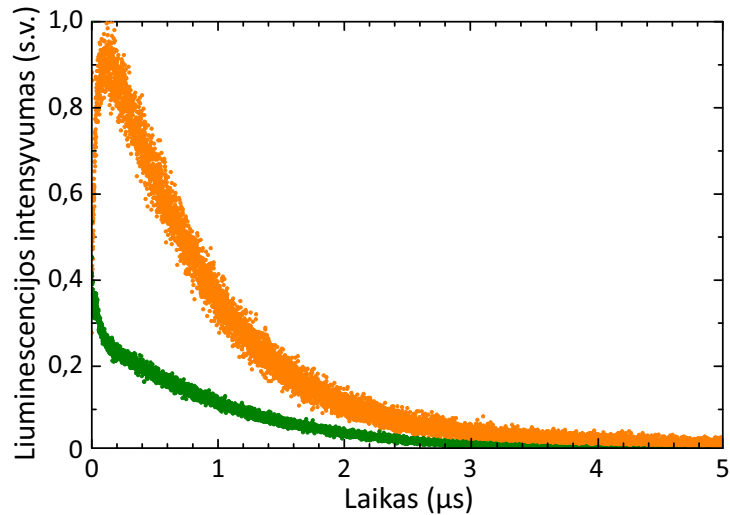


20 pav. Superkontinuumo spektro (a, d), liuminescencijos intensyvumo išilgai šviesos gijos (b, e) ir išsklaidytos spinduliuotės intensyvumo laikinė dinamika (c, f), kai superkontinuumas generuojamas 25 mm ilgio CaF_2 (viršuje) ir BaF_2 (apačioje) kristaluose naudojant švelnų ($\text{NA} = 0,004$) fokusavimą.

Išsamesnis superkontinuumo spektro (a ir d), UV liuminescencijos pėdsako (b ir e) ir išsklaidytos šviesos (c ir f) ties superkontinuumą žadinančios lazerio spinduliuotės bangos ilgiu (515 nm) evoliucijos palyginimas yra pateiktas 20 paveiksle. Čia superkontinuumas buvo žadinamas 25 mm ilgio CaF_2 (viršuje) ir BaF_2 (apačioje) kristaluose naudojant švelnaus fokusavimo sąlygas. CaF_2 atveju vaizduojamas laiko intervalas nuo 800 s iki 1400 s, kuriame buvo stebimi registruojamų charakteristikų pokyčiai. Viduriniame stulpelyje vaizduojamas liuminescencijos pėdsako intensyvumas laikui bėgant, čia $z = 0$ atitinka liuminescencijos pėdsako centro padėtį matavimo pradžioje. Trečiame stulpelyje pateiktas išsklaidytos šviesos signalo vaizdas šviesos gijos aplinkoje bėgant laikui, kur $z = 0$ apytiksliai atitinka pradinės sklaidos centro padėtį.

Superkontinuumo spektras pradeda sparčiai siaurėti tada, kai liuminescencijos pėdsakas sutrūksta. Likus tik priekinei jo daliai, superkontinuumas visai nebegeneruojamas. Tai reišk-

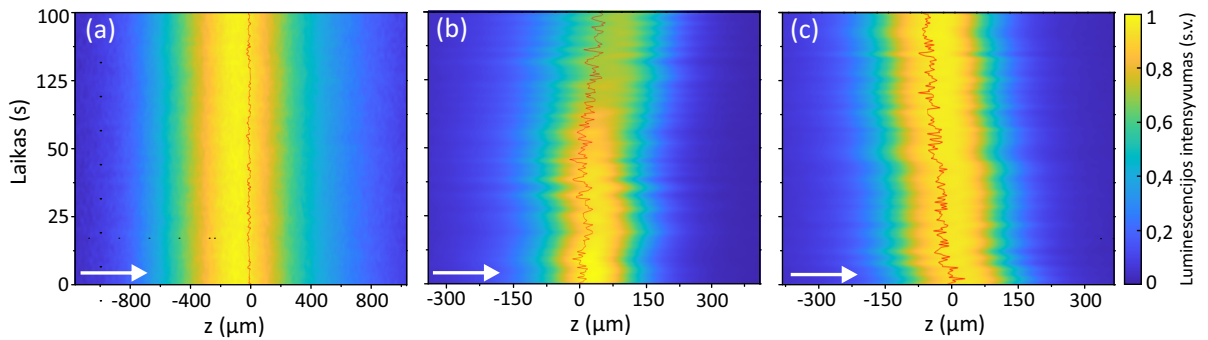
kia, kad nesiformuoja pilnavertė šviesos gija. Tuo tarpu, sklaidos signalas buvo užregistruotas ankščiau ($t = \sim 200$ s CaF_2 kristale ir $t = \sim 50$ s CaF_2 kristale) dar nevykstant jokiems pastebimiems liuminescencijos pėdsako ir superkontinuumo spektro pokyčiams. Šie dėsniumai buvo matomi abiejose medžiagose, tačiau viskas vyksta kitoje laiko skalėje.



21 pav. BaF_2 (oranžiniai taškai) ir CaF_2 (žali taškai) kristalų liuminescencijos kinetika.

Superkontinuumą žadinančios spinduliuotės sklaidos atsiradimas rodo ankstyvą medžiagos optinę pažaidą. Netiesiniame židinyje, kuriame yra didžiausias spinduliuotės intensyvumas, didėja pradinių taškinių defektų (spalvinių centrų kurie susidaro suyrant autolokalizuotiems eksitonams) tankis. Taškiniai defektai mikroskopiniame mastelyje pasireiškia kaip sklaidos centrai, bet makroskopiniame mastelyje liuminescencijos pėdsake tuo metu dar neatsiranda jokių pokyčių. Šiame darbe autolokalizuotų eksitonų formavimąsi patvirtino liuminescencijos spektro (žr. 18 pav.) ir liuminescencijos kinetikos matavimai (žr. 21 pav.). Kinetikos buvo išmatuotos su lazeriu sinchronizuotu fotonų skaitikliu. BaF_2 ir CaF_2 kristaluose buvo išmatuota ~ 1 μs trukmės liuminescencijos gesimo komponentė (pagrindinė). Išmatuotos liuminescencijos gesimo kinetikos gerai atitiko kitų mokslinių grupių rezultatus [21, 37]. Kitaip nei CaF_2 kristale, BaF_2 liuminescencijos signalo kinetikoje buvo stebėta ilgesnė liuminescencijos intensyvumo gesimo komponentė. Tai rodo didesnę ilgai gyvuojančių autolokalizuotų eksitonų kiekį BaF_2 kristale ir paaikškina spartesnę superkontinuumo spektro siaurėjimą. Pradiniai (taškiniai) defektai išplinta į didesnę už netiesinio židinio tūrį kristale. Vėliau jie išauga į didesnes medžiagos struktūrines modifikacijas ir ilgai gyvuojančius sudėtingesnius ir didesnius defektus. Formuojami spalviniai centrai ir metalų koloidai, kurie ne tik sklaido, bet ir sugeria spinduliuotę. Tuomet formuo-

jamoms nanogardelėms ir deformuojama medžiaga ir galiausiai pasireiškia medžiagos katastrofinis pažeidimas (staigiai sustiprėja sklaida) [20, 21, 38].



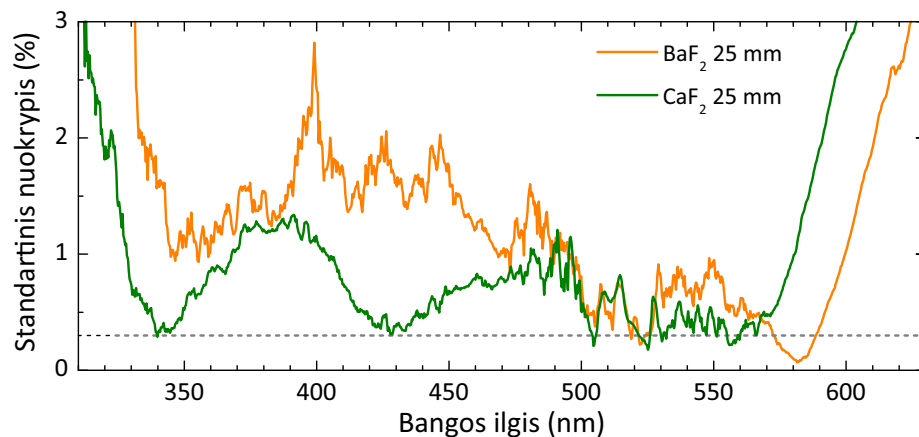
22 pav. Liuminescencijos pėdsako evoliucija bėgant laikui safyro (a), BaF_2 (b) ir CaF_2 (c) kristaluose esant švelnaus fokusavimo sąlygoms. Raudona linija žymi liuminescencijos pėdsako intensyvumo masės centro padėtį.

Liuminescencijos pėdsako stabilumas visuose trijuose tirtuose ilguose kristaluose švelnaus fokusavimo sąlygomis yra palygintas 22 paveiksle. Liuminescencijos pėdsakas 15 mm ilgio safyro kristale yra ženkliai ilgesnis už liuminescencijos pėdsaką 25 mm ilgio BaF_2 ir CaF_2 kristaluose. Laikui bėgant liuminescencijos pėdsakas išlieka stabilus safyro kristale, tai gerai parodo liuminescencijos intensyvumo pasiskirstymo išilgai šviesos gijos masės centro padėtis (raudona kreivė)(žr. 22 (a) pav.). Tuo tarpu BaF_2 ir CaF_2 kristaluose stebimas nuolatinis liuminescencijos pėdsako tirtėjimas išilgai sklidimo krypties (22 (b ir c) pav.). Liuminescencijos pėdsako stabilumo tyrimas safyro kristale paneigia liuminescencijos pėdsako tirtėjimą fluoriduose dėl lazerio impulsų energijos fliktuacijų (lazerio standartinis nuokrypis lygus 0,3 %). Fluoridų liuminescencijos pėdsako tirtėjimas z koordinatėje gali būti aiškinamas dinamine sąveika tarp spalvinių centrų kūrimo suyrant autolokalizuotiems eksitonams ir spalvinių centrų išnykimo dėl lokalaus medžiagos išilimo. Autolokalizuotų eksitonų gyvavimo trukmė safyre yra daug mažesnė nei CaF_2 ir BaF_2 kristaluose ir ilgai gyvuojantys spalviniai centrai nesusidaro (manoma, kad jų gyvavimo trukmė žymiai mažesnė nei laikinis tarpas tarp lazerio impulsų) [39].

Pastebėta, kad liuminescencijos pėdsakas ne tik tirta išilginėje koordinatėje, bet kartu ir nuolat slenkasi link priekinio kristalo paviršiaus (geriausiai matoma CaF_2 kristale žr. 22 (c) pav.). Liuminescencijos pėdsako slinkimą galima paaikškinti spalvinių centrų sugertimi, kurių sugerties juostų maksimumai $< 3,0$ eV [40, 41]. Laisvieji elektronai yra generuojami dėl daugiafotonės sugerties lazerio impulso pradžioje. Lazerio impulso gale šie laisvieji elektronai yra greitunami

dėl to, kad pasireiškia atvirkštinės stabdančiosios spinduliuotės (angl. *inverse Bremsstrahlung*) efektas. Daugiafotonės sugerties eilė (K) buvo įvertinta pagal 1.7 formulę (BaF_2 ir CaF_2 draus-
tinės juostos plotis pateiktas 1 lentelėje). BaF_2 kristale $K = 4$, o CaF_2 kristale ($K = 6$),
kai žadinimui naudojama 515 nm (2,4 eV) bangos ilgio spinduliuotė. Medžiagoje, kurioje jau
yra susiformavusių defektų, gali atsirasti dvifotonė F centrų ir tiesioginė M centrų sugertis.
Dėl to keičiasi vėliau atėjusių lazerinių impulsų netiesinis sklaidimas medžiagoje, kuri jau turi
defektų. Lazerinė spinduliuotė medžiagai perduoda daugiau energijos (nei medžiagai be de-
fektų), sukuriama didesnis laisvųjų elektronų tankis ir didesnis kiekis liuminescencijos centrų
(autolokaluotų eksitonų). Taigi, kiekvienas sekantis impulsas artina plazmos kanalą link prie-
kinio kristalo paviršiaus. Analogiškas dėsningumas buvo stebimas ir išsklaidytos spinduliuotės
matavimuose, kur sklaidos signalas laikui bėgant registruojamas vis arčiau priekinio kristalo
paviršiaus.

BaF_2 ir CaF_2 kristaluose švelnaus fokusavimo sąlygomis generuojamo superkontinuumo
spektrinio intensyvumo stabilumas buvo įvertintas apskaičiuojant visų spektrinių dedamųjų stan-
dartinį nuokrypį procentais (žr. 23 pav.).



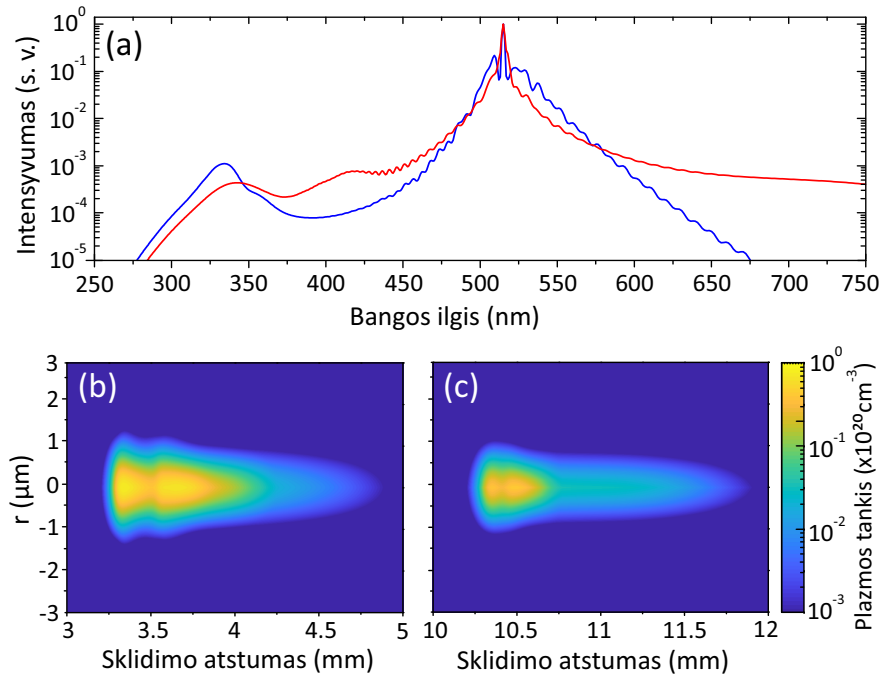
23 pav. BaF_2 (oranžinė kreivė) ir CaF_2 (žalia kreivė) kristaluose generuojamo superkontinuumo
spektrinio intensyvumo standartinis nuokrypys (%), pilka linija žymi lazerio stabilumą.

Nepaisant to, kad liuminescencijos pėdsakas fluoriduose nuolatos tirta, superkontinuumo
spektrinis stabilumas (lyginant su safyru) yra pakankamai geras. Tai yra svarbu praktiniams
taikymams. BaF_2 kristale spektro stabilumas $>1\%$ visame spektriniame diapazone, išsky-
rus ties žadinimo bangos ilgiu. BaF_2 ir CaF_2 stabilumas sparčiai mažėja (didėja standartinis
nuokrypys) spektro kraštuose, dėl mažėjančio spektrinio intensyvumo ir dėl nežymaus spektro
pulsavimo ties kraštais (spektro pločio didėjimo ir mažėjimo) tarp impulsų, kurio pavyzdys pa-

teiktas 12 paveiksle. CaF_2 kristale generuojamo superkontinuumo spektro ultravioletinė dalis pasižymi geresniu stabilumu. Plačiame spektriniame diapazone spektrinio intensyvumo stabilumas svyruoja $\sim 1\%$, o didžiausias standartinis nuokrypis ($>2\%$) buvo nustatytas 320 nm ir trumpesniems bangos ilgiams. Taip pat CaF_2 kristale pastebėtos trys stabilios spektrinės dalys ties 340 nm, 430 nm ir lazerio spinduliuotės (515 nm bangos ilgio) aplinkoje. Šios ypatingai stabilios zonos gali atsirasti dėl superkontinuumo spinduliuotės laikinių ir erdvinų spektrinių komponentų koreliacijos [42, 43].

3.3 Skaitmeninio modeliavimo rezultatai

Šio darbo eksperimentiniai rezultatai parodė, kad CaF_2 yra geriausia medžiaga superkontinuumo generavimui su didžiausiu spektro išplitimu į ultravioletinę spektro pusę ir CaF_2 pasižymi didžiausiu ilgalaikiu stabilumu švelnaus fokusavimo sąlygomis. Todėl norint detaliau išsiaiškinti veiksnius, galinčius įtakoti ir nulemti didelį (~ 30 kartų) superkontinuumo generacijos be optinės pažaidos ilgaamžiškumo skirtumą aštraus ir švelnaus fokusavimo sąlygomis CaF_2 kristale, buvo atliktas skaitmeninis modeliavimas. Svarbu pabrėžti, kad šiame darbe pateikti ir analizuoti skaitmeninio modeliavimo rezultatai vienam impulsui ir nebuvo atsižvelgta į kaupiamuosius reiškinius. Skaitmeninį modeliavimą atliko dr. V. Jukna, o šio darbo autorės buvo atlikta tik skaitmeninio modeliavimo rezultatų analizė.



24 pav. Skaitmeniškai sumodeliuoti superkontinuumo spektrai (a) aštraus (mėlyna kreivė) ir švelnaus (raudona kreivė) fokusavimo sąlygomis CaF_2 kristale, netiesinio židinio aplinkoje apskaičiuotas plazmos tankis aštraus (b) ir švelnaus (c) fokusavimo sąlygomis.

Superkontinuumo spektrai buvo skaitmeniškai modeliuoti sąlygomis, kurios atitiko anksčiau įvardintas ir aprašytas eksperimentines sąlygas (impulso trukmė, impulso energija ir fokusavimo sąlygos) superkontinuumą generuojant trumpame (5 mm ilgio) ir ilgame (25 mm ilgio) CaF_2 kristaluose. Sumodeliuoti superkontinuumo spektrai aštraus (mėlyna kreivė) ir švelnaus (raudona kreivė) fokusavimo sąlygomis pavaizduoti 24 (a) paveiksle. Nors sumodeliuoti superkontinuumo spektrai yra šiek tiek platesni už išmatuotus (žr. 16 pav.), abiem atvejais spektrai pasižymi bendromis savybėmis – nežymiu trumpabangio spektro krašto ir žymiu ilgabangio spektro krašto skirtumais esant skirtingoms fokusavimo sąlygoms. Trumpabangis sumodeliuoto superkontinuumo kraštas (10^{-5} intensyvumo lygyje) siekia 277 nm (aštriai fokusuojant) ir 284 nm (švelniai fokusuojant). Lyginant su eksperimentiniais rezultatais, ilgabangis sumodeliuoto superkontinuumo spektro kraštas (10^{-5} intensyvumo lygyje) yra toliau išplitęs į ilgabangę spektro pusę aštraus ir švelnaus fokusavimo atvejais. Eksperimentiniai ir modeliavimo rezultatai rodo simetriškesnį spektro plitimą švelnaus fokusavimo geometrijoje. Tai aiškinama priekinio sub-impulso frontų statėjimu [23]. Švelnaus fokusavimo sąlygomis priekinis sub-impulsas, lyginant su aštriu fokusavimu, turi statesnius frontus, todėl gali spektrą labiau išplėsti į ilgabangę pusę. Aštraus fokusavimo sąlygomis priekinis sub-impulsas nespėja išplėsti spektro į

ilgabangę pusę.

Plazmos tankio pasiskirstymas skersinėje koordinatėje (r) CaF_2 kristale vaizduojamas aštraus (žr. 24 (b) pav.) ir švelnaus (žr. 24 (c) pav.) fokusavimo atvejais. Šviesos gijos formavimosi sukurtas didžiausias plazmos tankis CaF_2 kristale priklauso nuo fokusavimo geometrijos. Didžiausias plazmos tankis, kurį galima pasiekti netiesiniame židinyje aštraus fokusavimo sąlygomis, yra lygus $7,3 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Švelnaus fokusavimo atveju netiesiniame židinyje didžiausias pasiekiamas plazmos tankis lygus $4,2 \times 10^{19} \text{ cm}^{-3}$. Tai reiškia, kad švelniai fokusuojant į ilgą kristalą sukuriamas $\sim 1,7$ karto mažesnis plazmos tankis. Nustatytas plazmos tankio skirtumas yra svarbus, nes autolokaluotų eksitonų ir spalvinių centrų skaičius priklauso nuo laisvųjų elektronų skaičiaus, t.y. plazmos tankio. Kuo daugiau generuojama laisvųjų elektronų medžiagoje, tuo daugiau sukuriama elektronų ir skylių porų. Sparčiai didėja autolokaluotų eksitonų ir spalvinių centrų koncentracija, kurie gali sudaryti defektus. Optinės pažaidos procesai dar labiau sustiprėja įsijungiant medžiagos kaupiamiesiems reiškiniams superkontinuumo generavimui naudojant pasikartojančius lazerio impulsus. Taigi, skaitmeninio modeliavimo rezultatai gerai atitinka eksperimentuose pastebėtas superkontinuumo generacijos iki medžiagos optinės pažaidos tendencijas skirtingomis fokusavimo sąlygomis CaF_2 kristale. Pagal plazmos tankio skaitmeninio modeliavimo rezultatus galima teigti, kad defektų formavimosi ir medžiagos ilgalaikio optinio pažeidimo vystymosi sparta netiesinio židinio aplinkoje priklauso nuo fokusavimo sąlygų.

4 Išvados

1. Ištyrus superkontinuumo generaciją safyro, BaF_2 ir CaF_2 kristaluose žadinant femtosekundiniais Yb:KGW lazerio antrosios harmonikos impulsais, didžiausia spektro plėtra į UV sritį (iki ~ 300 nm) pasiekta CaF_2 kristale, kuris iš tirtų medžiagų pasižymi plačiausiu draustinės energijos tarpu, mažiausia chromatine dispersija ir didžiausiu skaidrumo langu.
2. Atlikus tyrimą safyro, BaF_2 ir CaF_2 kristaluose, superkontinuumo spektro plitimas į trumpabangę pusę mažai priklauso nuo fokusavimo sąlygų, nes intensyvumas yra apribojamas daugiafotonės sugerties eilės. Visgi superkontinuumo spektro plitimas į ilgabangę pusę nuo fokusavimo sąlygų priklauso stipriai, nes jį lemia priekinio sub-impulso fronto statėjimas, kuris yra efektyvesnis švelnaus fokusavimo atveju.
3. Žadinimo pluošto fokusavimo geometrija turi didelę įtaką netiesinio kristalo atsparumui pažeidimams, kadangi tirtų BaF_2 ir CaF_2 kristalų optinis pažeidimas išsivysto dėl spalvinių centrų susidarymo relaksuojant autolokaluotiems eksitonams, kurie lemia defektų atsiradimą ir medžiagos struktūrinę modifikaciją. Šių procesų sparta priklauso nuo netiesiniame židinyje sugeneruoto pradinio laisvųjų elektronų plazmos tankio, kuris esant švelniam fokusavimui yra 1,7 karto mažesnis, todėl tokiomis sąlygomis medžiagos katastrofinis pažeidimas išsivysto daug vėliau (~ 30 kartų CaF_2 atveju).
4. Nepaisant gero superkontinuumo spektro atsikartojamumo, fluoridų kristaluose stebimas nuolatinis šviesos gijos liuminescencijos pėdsako tirtėjimas, kurio priežastis yra dinaminė sąveika tarp spalvinių centrų susidarymo ir jų išnykimo dėl lokalaus medžiagos kaitimo. Šie reiškiniai nėra stebimi safyro kristale, kuriame autolokaluoti eksitonai relaksuoja labai greitai ir nesukuria ilgai gyvuojančių defektų.

5 Literatūros sąrašas

- [1] A. Dubietis, G. Tamosauskas, R. Šuminas, V. Jukna and A. Couairon, Ultrafast supercontinuum generation in bulk condensed media, *Lith. J. Phys.* **57**, 113–157 (2017).
- [2] A. Brodeur and S. L. Chin, Band-gap dependence of the ultrafast white-light continuum, *Phys. Rev. Lett.* **80**, 4406–4409 (1998).
- [3] M. Kolesik, G. Katona, J. V. Moloney and E. M. Wright, Physical factors limiting the spectral extent and band gap dependence of supercontinuum generation, *Phys. Rev. Lett.* **91**, 043905 (2003).
- [4] P. Tzankov, I. Buchvarov and T. Fiebig, Broadband optical parametric amplification in the near UV-VIS, *Opt. Commun.* **203**, 107–113 (2002).
- [5] A. K. Dharmadhikari, F. A. Rajgara, N. C. S. Reddy, A. S. Sandhu and D. Mathur, Highly efficient white light generation from barium fluoride, *Opt. Express* **12**, 695–700 (2004).
- [6] P. J. M. Johnson, V. I. Prokhorenko and R. J. D. Miller, Stable UV to IR supercontinuum generation in calcium fluoride with conserved circular polarization states, *Opt. Express* **17**, 21488–21496 (2009).
- [7] J. Kohl-Landgraf, J.-E. Nimsch and J. Wachtveitl, LiF, an underestimated supercontinuum source in femtosecond transient absorption spectroscopy, *Opt. Express* **21**, 17060–17065 (2013).
- [8] J. Darginavicius, D. Majus, V. Jukna, N. Garejev, G. Valiulis, A. Couairon and A. Dubietis, Ultrabroadband supercontinuum and third-harmonic generation in bulk solids with two optical-cycle carrier-envelope phase-stable pulses at 2 μm , *Opt. Express* **21**, 25210–25220 (2013).
- [9] J. A. Dharmadhikari, R. A. Deshpande, A. Nath, K. Dota, D. Mathur and A. K. Dharmadhikari, Effect of group velocity dispersion on supercontinuum generation and filamentation in transparent solids, *Appl. Phys. B* **117**, 471–479 (2014).
- [10] A. E. Dormidonov, V. O. Kompanets, S. V. Chekalin and V. P. Kandidov, Giantly blue-shifted visible light in femtosecond mid-IR filament in fluorides, *Opt. Express* **23**, 29202–29210 (2015).

- [11] E. Riedle, M. Bradler, M. Wenninger, C. F. Sailer and I. Pugliesi, Electronic transient spectroscopy from the deep UV to the NIR: unambiguous disentanglement of complex processes, *Faraday Discuss.* **163**, 139–158 (2013).
- [12] J. Wang, Y. Zhang, H. Shen, Y. Jiang and Z. Wang, Spectral stability of supercontinuum generation in condensed mediums, *Opt. Eng.* **56**, 076107 (2017).
- [13] I. V. Kryukov, N. K. Petrov and M. V. Alfimov, A supercontinuum generator with pumping by pulses of chromium-forsterite-based femtosecond laser in transparent condensed media, *Instrum. Exp. Tech.* **63**, 846–852 (2020).
- [14] M. Ziolk, R. Naskrecki and J. Karolczak, Some temporal and spectral properties of femtosecond supercontinuum important in pump-probe spectroscopy, *Opt. Commun.* **241**, 221–229 (2004).
- [15] U. Megerle, I. Pugliesi, C. Schrieber, C. F. Sailer and E. Riedle, Sub-50 fs broadband absorption spectroscopy with tunable excitation: putting the analysis of ultrafast molecular dynamics on solid ground, *Appl. Phys. B* **96**, 215–231 (2009).
- [16] N. Krebs, I. Pugliesi, J. Hauer and E. Riedle, Two-dimensional Fourier transform spectroscopy in the ultraviolet with sub-20 fs pump pulses and 250–720 nm supercontinuum probe, *New. J. Phys.* **15**, 085016 (2013).
- [17] R. Huber, H. Satzger, W. Zinth and J. Wachtveitl, Noncollinear optical parametric amplifiers with output parameters improved by the applications of a white light continuum generated in CaF₂, *Opt. Commun.* **194**, 443–448 (2001).
- [18] P. Tzankov, T. Fiebig and I. Buchvarov, Tunable femtosecond pulses in the near-ultraviolet from ultrabroadband parametric amplification, *Appl. Phys. Lett.* **82**, 517–519 (2003).
- [19] L. Gallais and M. M. Commandre, Laser-induced damage thresholds of bulk and coating optical materials at 1030 nm, 500 fs, *Appl. Opt.* **53**, A186–A196 (2014).
- [20] S. Mao, F. Quere, S. Guizard, X. Mao, R. Russo, G. Petite and P. Martin, Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics, *Appl. Phys. A* **79**, 1695–1709 (2004).
- [21] S. Rix, *Radiation-induced defects in calcium fluoride and their influence on material properties under 193 nm laser irradiation* (Johannes Gutenberg Universitat Mainz, 2011).

- [22] M. Bradler, P. Baum and E. Riedle, Femtosecond continuum generation in bulk laser host materials with sub-mJ pump pulses, *Appl. Phys. B* **97**, 561 (2009).
- [23] V. Jukna, J. Galinis, G. Tamosauskas, D. Majus and A. Dubietis, Infrared extension of femtosecond supercontinuum generated by filamentation in solid-state media, *Appl. Phys. B* **116**, 477–483 (2014).
- [24] A. Šuminiene, V. Jukna, R. Šuminas, G. Tamošauskas, M. Vengris and A. Dubietis, LiSAF: an efficient and durable nonlinear material for supercontinuum generation in the ultraviolet, *Lith. J. Phys.* **60**, 217–224 (2020).
- [25] A. Dubietis, *Netiesinė optika* (Vilniaus universitetas, 2009).
- [26] M. Kolesik, E. Wright and J. Moloney, Interpretation of the spectrally resolved far field of femtosecond pulses propagating in bulk nonlinear dispersive media, *Opt. Express* **13**, 10729–10741 (2005).
- [27] A. Dubietis and A. Couairon, *Ultrafast Supercontinuum Generation in Transparent Solid-State Media* (Springer International Publishing, 2019).
- [28] A. Dubietis, V. Jukna and A. Couairon, *Supercontinuum in IR–MIR from narrow band gap bulk solid state materials, Supercontinuum Laser source (4th edition)*, ed. R. R. Alfano (Springer Nature, 2021).
- [29] J. B. Ashcom, R. R. Gattass, C. B. Schaffer and E. Mazur, Numerical aperture dependence of damage and supercontinuum generation from femtosecond laser pulses in bulk fused silica, *J. Opt. Soc. Am. B* **23**, 2317–2322 (2006).
- [30] M. Verstraete and X. Gonze, First-principles calculation of the electronic, dielectric, and dynamical properties of CaF₂, *Phys. Rev. B* **68**, 195123 (2003).
- [31] I. V. Kryukov, N. K. Petrov and M. V. Alfimov, A Supercontinuum Generator with Pumping by Pulses of Chromium–Forsterite-Based Femtosecond Laser in Transparent Condensed Media, *Instruments Exp. Tech.* **63**, 846–852 (2020).
- [32] A. E. Hughes and S. C. Jain, Metal colloids in ionic crystals, *Adv. Phys* **28**, 717–828 (1979).

- [33] R. Lindner, M. Reichling, R. Williams and E. Matthias, Femtosecond laser pulse excitation of electrons and excitons in CaF_2 and SrF_2 , *J. Phys.: Condens. Matter* **13**, 2339 (2001).
- [34] R. T. Williams, M. N. Kabler, W. Hayes and J. P. Stott, Time-resolved spectroscopy of self-trapped excitons in fluorite crystals, *Phys. Rev. B* **14**, 725 (1976).
- [35] L. P. Cramer, T. D. Cumby, J. A. Leraas, S. C. Langford and J. T. Dickinson, Effect of surface treatments on self-trapped exciton luminescence in single-crystal CaF_2 , *J. Appl. Phys* **97**, 103533 (2005).
- [36] T. Tsujibayashi, M. Watanabe, O. Arimoto, M. Itoh, M. Nakanishi, H. Itoh, S. Asaka and M. Kamada, Two-photon excitation spectra of exciton luminescence in CaF_2 obtained by using synchrotron radiation and laser, *J. Lumin.* **87-89**, 254–256 (2000).
- [37] V. Mikhailik, H. Kraus, J. Imber and D. Wahl, Scintillation properties of pure CaF_2 , *Nucl. Instruments Methods Phys. Res. Sect. A Accel. Spectrometers, Detect. Assoc. Equip.* **566**, 522–525 (2006).
- [38] S. Richter, M. Heinrich, S. Doring, A. Tunnermann and S. Nolte, Formation of femtosecond laser-induced nanogratings at high repetition rates, *Appl. Phys. A* **104**, 503–507 (2011).
- [39] V. Kortov, A. Ermakov, A. Zatsepin, M. A. Uimin, S. V. Nikiforov, A. A. Mysik and V. S. Gaviko, Specific features of luminescence properties of nanostructured aluminum oxide, *Phys. Solid State* **50**, 957–961 (2008).
- [40] W. Hayes, Point defects in alkaline earth fluorides, *Radiat. Eff.* **4**, 239–246 (1970).
- [41] J. H. Beaumont, W. Hayes, D. L. Kirk and G. P. Summers, An investigation of trapped holes and trapped excitons in alkaline earth fluorides, *Proc. R. Soc. London. A. Math. Phys. Sci.* **315**, 69–97 (1970).
- [42] M. Bradler and E. Riedle, Temporal and spectral correlations in bulk continua and improved use in transient spectroscopy, *J. Opt. Soc. Am. B* **31**, 1465–1475 (2014).
- [43] D. Majus and A. Dubietis, Statistical properties of ultrafast supercontinuum generated by femtosecond Gaussian and Bessel beams: a comparative study, *J. Opt. Soc. Am. B* **30**, 994–999 (2013).

LYGINAMASIS ULTRAVIOLETINIO SUPERKONTINUUMO GENERACIJOS TYRIMAS
SAFYRO, BaF₂ IR CaF₂ KRISTALUOSE ŽADINANT Yb:KGW LAZERIO ANTROSIOS
HARMONIKOS IMPULSAIS

Santrauka

Didelės smailinės galios trumpiems lazeriniams impulsams sklindant skaidrioje netiesinėje terpėje yra formuojama koherentinė labai plataus ir glotnaus spektro spinduliuotė, vadinama superkontinuumu. Superkontinuumo generacija ultravioletinėje spektro srityje vis dar yra sudėtingas uždavinys, dėl tam tinkamų medžiagų pasirinkimo ir žinių apie optimalias eksperimentines sąlygas trūkumo.

Šio darbo tikslas palyginti superkontinuumo generacijos dėsningumus safyro, BaF₂ ir CaF₂ kristaluose žadinant antrosios Yb:KGW lazerio harmonikos impulsais švelnaus ir aštraus fokusavimo sąlygomis esant 10 kHz impulsų pasikartojimo dažniui. Vieno eksperimento atveju superkontinuumas buvo žadinamas 6 mm ilgio BaF₂ kristale, 5 mm ilgio safyro ir CaF₂ kristale atitinkamai 0,2 μJ, 0,17 μJ ir 0,4 μJ energijos impulsais aštraus (NA = 0,012) fokusavimo sąlygomis. Kitam eksperimentui buvo naudojami 15 mm ilgio safyro, 25 mm ilgio BaF₂ ir CaF₂ kristalai, į kuriuos buvo švelniai (NA = 0,004) fokusuojami atitinkamai 0,34 μJ, 0,3 μJ ir 0,48 μJ energijos impulsai. Gauti rezultatai buvo lyginami su safyro kristale generuojamu superkontinuumu.

Tyrimo metu buvo išmatuotas didžiausias (iki ~300 nm) superkontinuumo spektro išplitimas CaF₂ kristale, o safyro ir BaF₂ kristaluose spektras atitinkamai išplito iki ~380 nm ir ~310 nm. BaF₂ ir CaF₂ kristaluose buvo stebėtas superkontinuumo spektro siaurėjimas, kurį lemia spalvinių centrų susidarymas vėliau išsivystantis į optinį pažeidimą. Švelnaus fokusavimo (NA = 0,004) į ilgą (25 mm) netransliuojamą kristalą geometrija yra pranašesnė už aštrų fokusavimą (NA = 0,012) į trumpą (5 mm) kristalą. Nustatyta, kad esant švelniam fokusavimui spektras išplinta beveik simetriškai, o stabilaus superkontinuumo generacija CaF₂ kristale apie ~30 kartų ilgesnė nei aštraus fokusavimo sąlygomis. Skaitmeninio modeliavimo rezultatų analizė parodė, kad švelnaus fokusavimo sąlygomis sukuriamas ~1,7 karto mažesnis plazmos tankis, o tai reiškia mažesnę spalvinių centrų ir defektų kiekį medžiagoje. BaF₂ ir CaF₂ kristaluose nuo defektų išsklaidyta šviesa pasireiškia anksčiau už superkontinuumo siaurėjimą ir reikšmingą liuminescencijos pėdsako kitimą.

COMPARATIVE STUDY OF UV SUPERCONTINUUM GENERATION IN SAPPHIRE,
BaF₂ and CaF₂ CRYSTALS PUMPED BY SECOND HARMONIC PULSES FROM
Yb:KGW LASER

Summary

Supercontinuum generation is an effect produced by filamentation of ultrashort laser pulses in nonlinear media and resulting in a broadband coherent radiation. At present, there is an increasing demand of coherent broadband light sources in the ultraviolet spectral range. However, supercontinuum generation in ultraviolet faces many challenges such as lack of suitable non-linear materials and optimization of experimental settings.

This work aims at a comparative study of the specific features of ultraviolet supercontinuum generation in sapphire, BaF₂ and CaF₂ crystals pumped by second harmonic pulses from Yb:KGW laser (having a repetition rate of 10 kHz) in tight and loose focusing conditions. Firstly, 5 mm-long sapphire, 6 mm-long BaF₂ and 5 mm-long CaF₂ plates were pumped using tightly focused (NA = 0.012) pulses with an energy of 0.17 μJ, 0.2 μJ and 0.4 μJ, respectively. In the second experiment 15 mm-long sapphire, 25 mm-long BaF₂ and CaF₂ crystals were pumped with loosely focused (NA = 0.004) pulses with an energy of 0.34 μJ, 0.3 μJ and 0.48 μJ, respectively.

We observed spectral broadening down to ~380 nm, ~310 nm and ~300 nm in sapphire, BaF₂ and CaF₂, respectively. Also supercontinuum spectrum broadens more symmetrically with loosely focused pulses. Experiments show that supercontinuum spectrum shrinks rapidly under tight focusing conditions in short sample and shrinks much slower (~30 times in CaF₂ crystal) using long sample and loose focusing conditions. This is likely due to 1.7 times lower maximum plasma density and ultimately lower number of long-lived color centers that can rapidly evolve into optical damage of the material due to laser pulses at high repetition rates.

Šio darbo rezultatų pagrindu yra:

1. Parašytas straipsnis – V. Marčiulionytė, V. Jukna, G. Tamošauskas, A. Dubietis, High repetition rate green-pumped supercontinuum generation in calcium fluoride, *Scientific Reports*, pateikta redakcijai.
2. Ruošiamas pranešimas – Vaida Marčiulionytė, Vytautas Jukna, Gintaras Tamošauskas, Audrius Dubietis, High repetition rate green-pumped supercontinuum generation in calcium fluoride, *CLEO/Europe-EQEC 2021, 2021 Conference on Lasers and Electro-Optics/Europe-European Quantum Electronics virtual conferences*, priimtas standinis pranešimas.
3. Pristatyti pranešimai:
 - Vaida Marčiulionytė, Vytautas Jukna, Gintaras Tamošauskas, Audrius Dubietis, Supercontinuum generation in CaF₂ crystal pumped by high repetition rate green femtosecond laser pulses, *Open Readings 2021–64th International conference for students of physics and natural sciences* (2021).
 - Vaida Marčiulionytė, Gintaras Tamošauskas, Ultravioletinio femtosekundinio superkontinuumo generavimas kalcio fluorido kristale arti pažaidos slenksčio, *Studentų mokslinė konferencija 2021* (2021).

Kiti pranešimai:

1. Vaida Marčiulionytė, Danil Bulatov, Robertas Grigutis, Nail Garejev, Gintaras Tamošauskas, Audrius Dubietis, Supercontinuum generation in sapphire and YAG: a comparative study, *Open Readings 2020–63rd International conference for students of physics and natural sciences* (2020), atšaukta dėl COVID-19 pandemijos.
2. Robertas Grigutis, Gintaras Tamošauskas, Vaida Marčiulionytė, Danil Bulatov, Nail Garejev, Vytautas Jukna, Audrius Dubietis, Supercontinuum generation and optical damage in solid-state media at high repetition rates, *Open Readings 2020–63rd International conference for students of physics and natural sciences* (2020), atšaukta dėl COVID-19 pandemijos.