

VILNIAUS UNIVERSITETAS

Domas Paipulas

**LŪŽIO RODIKLIO MODIFIKAVIMAS STIKLUOSE  
IR KRISTALUOSE VEIKIANT  
ULTRATRUMPAISIAIS LAZERIO IMPULSAIS**

Daktaro disertacija  
Fiziniai mokslai, Fizika (02P)

Vilnius 2011

Disertacija rengta 2007 – 2011 metais Vilniaus universitete.

**Mokslinis vadovas:**

prof. habil. dr. Valdas Sirutkaitis (*Vilniaus universitetas*, fiziniai mokslai, fizika – 02P).

**Konsultantai:**

habil. dr. Virgilijus Vaičaitis (*Vilniaus universitetas*, fiziniai mokslai, fizika – 02P).

# Turinys

<b>Įvadas</b>	<b>7</b>
<b>1 Ultratrumpųjų impulsų sąveika su skaidriomis terpėmis</b>	<b>19</b>
1.1. Intensityvi spinduliuotė skaidriose terpėse . . . . .	19
1.1.1. Netiesinis poliarizuotumas . . . . .	19
1.1.2. Optinis Kero efektas, fokusavimasis ir šviesos gijų formavimasis . . . . .	21
1.2. Netiesinė skaidriųjų terpių sugertis . . . . .	23
1.2.1. Tunelinė ir daugiafotonė jonizacija . . . . .	24
1.2.2. Griūtinė jonizacija . . . . .	25
1.2.3. Lazerio indukuotas medžiagos pažeidimas . . . . .	27
1.3. Skaidriųjų terpių modifikavimas . . . . .	33
1.3.1. Medžiagos pažeidimas ir modifikavimas . . . . .	33
1.3.2. Tūrinis medžiagos modifikavimas . . . . .	34
1.3.3. Skaidriųjų terpių modifikacijų tipai . . . . .	35
1.3.4. Spinduliuotės parametų įtaka modifikacijoms . . . . .	44
1.4. Fotoniniai elementai skaidriųjų medžiagų tūryje . . . . .	49
<b>2 Lydyto kvarco modifikavimas Yb:KGV lazerine sistema</b>	<b>51</b>
2.1. Eksperimento schema . . . . .	52
2.2. Kvarce indukuojamų modifikacijų parametrinė analizė . . . . .	54
2.3. Lūžio rodiklio pokyčio nustatymas. Brego gardelės . . . . .	62
2.3.1. Brego gardelių formavimas lydytame kvarce . . . . .	66

---

<b>3</b>	<b>Lūžio rodiklio pokyčio indukavimas netiesiniuose kristaluose</b>	<b>71</b>
3.1.	Ličio niobato optinių savybių modifikavimas ultratrumpais šviesos impulsais . . . . .	72
3.1.1.	Fotorefrakcinės modifikacijos ličio niobate . . . . .	72
3.1.2.	Fotorefrakcinių darinių indukavimas femtosekundiniais lazerio impulsais . . . . .	76
3.1.3.	Stabiliųjų modifikacijų įrašymas ličio niobate . . . . .	85
3.2.	Modifikacijos KDP kristale . . . . .	92
<b>4</b>	<b>Šviesos gija modifikuojami dariniai ir jų įtaka lydyto kvarco netiesiškumui</b>	<b>97</b>
4.1.	Eksperimento schema . . . . .	98
4.2.	Superkontinuumas . . . . .	99
4.2.1.	Superkontinuumo spektras . . . . .	99
4.2.2.	Modifikacijų įtaka superkontinuumo spektrui . . . . .	103
4.2.3.	Šviesos gijos ir medžiagos modifikavimas . . . . .	107
	<b>Išvados</b>	<b>111</b>
	<b>Literatūra</b>	<b>115</b>

---

# PADĖKA

Daug žmonių vienu ar kitu būdu prisidėjo prie to, kad ši disertacija visgi buvo parašyta. Vieni tiesiogiai, kantriai aiškindami gamtos paslaptis, o kiti netiesiogiai – tiesiog būdami šalia. Ir vieni ir kiti yra itin svarbūs. Ir vieni ir kiti nulėmė kas, koks ir kur aš esu.

Pirmiausiai norėčiau padėkoti *prof. Valdui Sirutkaičiui*, kuris buvo bene pirmasis žmogus supažindinęs mane su lazerių mokslu. Dar būdamas pag-rindinių studijų studentu pasirinkau klausyti jo dėstomą „lazerinių techno-logijų“ kursą, nes galvojau juk reikia, būsimam astronomui, žinoti ką nors ir apie lazerius, kuriais mūsų šalis ir mokslininkai itin garsėja. Kiek pamenu mažai tada ką supratau: netiesinė optika buvo per daug netiesinė, o femto-sekundė buvo kažkas per daug trumpa (ypač kai nesunkiai gali įsivaizduoti tokius dydžius kaip šviesmetis!). Bet man pačiam to nežinant, šios paskai-tos buvo kelionės pradžia. Kelionės, kuri vis dar tęsiasi ir dabar, rašant šias eilutes ir žvelgiant į ant stalo gulintį disertacijos rankraštį, kuriame, paradoksalu, yra ir netiesinė optika ir tos pačios femtosekundės. Taigi esu itin dėkingas prof. V. Sirutkaičiui už pagalbą visus tuos metus kuriuos pra-leidau ruošiant kursinius darbus, magistrinį darbą ir šią disertaciją, bei už tai, kad atsisuku, kai kas nors šūkteli: „lazeristas“!

Ypatingai norėčiau padėkoti žmonėms, kurie turėjo kantrybės ir išmokė mane valdyti lazerius ir visą kitą kas su jais susiję. Į šį ratą patenką ne tik šaunioji Kvantinės elektronikos katedros profesūra, kuriai tikrai nėra lygių (AČIŪ Jums), bet ypač tie žmonės kurie per petį stebėjo mano pirmuosius mokslinius bandymus ir negailėjo patarimų, pasiūlymų, kritikos. Iš šio rato norėtuši išskirti „vyresnius“ savo kolegas, jaunuosius LTC daktarus *Via-česlavą, Andrių, Miką, Oną, abu Martynus, Rytį ir kt.* Jie visada būdavo ir yra šalia kai tik iškyla kokių nors problemų, maloniai paskolina (kartais

---

net jiems patiems nežinant) kokį trūkstantą prietaisą ar veidrodį. Ačiū už tai.

Ačiū ir visiems jaunesniems kolegoms, kurie stebina savo smalsumu ir klausimais, į kuriuos kartais sunkiai galiu atsakyti. Jūs leidžiate man suprasti, kiek aš dar mažai žinau ir kiek man dar reikia mokytis.

Ačiū Kvantinės katedros administratorėms *Laimai* ir *Daliai* už pagalbą kovojant su popieriais ir visomis kitomis administravimo subtilybėmis.

AČIŪ vienintelei ir nepakartojamai trečiojo LTC aukšto „gaujai“! Dėl Jūsų nesunku kiekvieną darbo dieną keltis ir keliauti į „lazerinį“. Ačiū *Mangiuvi* už jo nepapasakojamas istorijas, kurias jis vis dėlto gali papasakoti, už nuotykius vykstančius ne tik LTC, bet ir už jo ribų, įveiktus tūkstančius kilometrų ir dar daug už ką. Ačiū *Karolinai* už IZI, *Simai* už juoką, *Aleksandrui* už arbatą, *Albertui* už rimtumą, *Lukui* už ramybę, *Justinui* už kultūrą ir visiems kitiems, kurie karts nuo karto čia apsilanko. Smagu yra dirbti kartu su draugais.

Taip pat dėkoju ir visiems draugams, kurie yra „už Universiteto“ ir matyt vargu ar kada nors skaitys šią disertaciją, bet tai nereiškia, kad jie nėra svarbūs. Dėkui „berazumiams“, „žuvėdronijos“ kolektyvui, „keliauninkams“ ir visiems kitiems draugams, kurie padeda suprasti, kad be lazerių egzistuoja dar ir kitas pasaulis.

O didžiausią padėką tariau savo tėvams bei kitiems šeimos nariams, už paramą, suteiktą per visus mano studijų metus. AČIŪ!

Domas Paipulas  
Vilnius  
2011 Spalis

## Įvadas

Jau nuo seniausiųjų laikų stiklai, kristalai ir kitos skaidrios medžiagos yra plačiai naudojamos optiniuose taikymuose. Veidrodžiai, lęšiai, prizmės, įvairios difrakcinės gardelės, šviesą poliarizuojantys kristalai buvo ir yra pagrindiniai daugelio optinių prietaisų elementai, kurie, bėgant amžiams, padeda žingeidžiam stebėtojui atverti vis naujas mus supančio pasaulio paslaptis. Naudodamiesi elektromagnetinių bangų savybėmis ir išmone, galime stebėti tolimiausius Visatos užkampius, įžiūrėti mažiausius elementus, tiksliai nustatyti medžiagos sudėtį, ilgais atstumais ir itin greit perduoti informaciją, galų gale į tamsą įnešti šviesos. Galiausiai elektromagnetinės spinduliuotės tyrinėjimas padėjo atrasti vieną iš unikaliausių reiškinių – priverstinį šviesos stiprinimą, kuriuo remiantis buvo sukonstruotas lazeris. Šis šviesos šaltinis leido iki tol įprastą spinduliuotę paversti didelės energijos šaltiniu, kurį galima selektyviai nukreipti į norimą vietą. Paaiškėjo, kad tokia intensyvi spinduliuotė, sąveikaudama su medžiagomis, sukelia aibę naujų reiškinių, susijusių tiek su paveiktų medžiagų pokyčiais, tiek su pačia elektromagnetine spinduliuote. Itin didelis susidomėjimas atsirado tyrinėjant elektromagnetinės spinduliuotės sąveikos su skaidriomis terpėmis aspektus. Iš čia gimė nauja mokslo šaka – netiesinė optika, kuri sudaro šiuolaikinės optikos pagrindą ir yra vienas iš pagrindinių mokslų, skatinančių visos lazerinės fizikos tobulėjimą.

Kitas svarbus posūkis spinduliuotės sąveikos su medžiaga tyrimuose įvyko XX a. pabaigoje, kai pavyko sukurti ultratrumpųjų impulsų lazerines sistemas, gebančias spinduliuoti femtosekundinės trukmės impulsus. Itin trumpi impulsai leido pasiekti intensyvumus, kurie medžiagose sužadina

naujus sąveikos mechanizmus. Pasirodė, jog įprastai spinduliuotei skaidrios terpės geba absorbuoti didelio intensyvumo impulsus. Įdomu tai, kad paveikus spinduliuote medžiagos optinės ir fizikinės savybės ima kisti. Be to, šį pokytį galima kontroliuoti ir jis neturi destruktivaus poveikio pačiai medžiagai, būdingo medžiagą veikiant ilgesnės trukmės impulsais. Nuo tada, kai 1996 m. buvo pirmą kartą stebėtas femtosekundine spinduliuote indukuotas vienalytis lūžio rodiklio pokytis įvairių tipų stikluose [1], kilo milžiniškas susidomėjimas. Šie atradimai atvėrė naujas taikymų perspektyvas. Atsirado būdas gaminti įvairesnius fotoninius elementus, juos tiesiogiai integruojant į skaidrią medžiagą. Šiuo aspektu lazerinio įrašymo technologija tapo unikali.

Nors ir gausiai tyrinėti, fizikiniai mechanizmai, lemiantys medžiagos pokyčius, lieka toli gražu nesuprasti. Tuo nereikėtų stebėtis, nes ultratrumpasis lazerio impulsas medžiagoje sukuria ekstremalias sąlygas, veikiančias medžiagą daugeliu aspektų: medžiaga patiria terminį šoką, yra staigiai perlydoma ir aušinama, vyksta cheminės sudėties pokyčiai, dideli slėgiai sukelia vidinius medžiagos įtempimus, trūkinėjantys cheminiai ryšiai formuoja medžiagos defektus ir pan. [2]. Kiekvienas šių procesų įneša indėlį į optinių medžiagos savybių kitimą, o tai apsunkina paties reiškinio analizę. Dėl šios priežasties didžiausias dėmesys skiriamas eksperimentiniams tyrimams, kuriuose stebima, kaip medžiaga reaguoja į vienu ar kitu parametru lazerio spinduliuotę, ir stengiamasi gautą informaciją iš karto panaudoti naujiems taikomiesiems sprendimams. Todėl net ir iki galo nesupratę medžiagos modifikavimo fizikos jau turime daugybę funkcionalių, integruotų elementų pavyzdžių: nuo įprastų bangolaidžių ar jų sistemų [3] iki atskirų mikrolaboratorijų, integruotų į vieną optinį lustą [4].

Kita vertus, taikomosios technologijos reikalauja ir naujo tipo femtosekundinių lazerinių sistemų: našių, paprasčiau valdomų, gebančių dirbti industrinėmis sąlygomis. Ilgą laiką femtosekundinės sistemos standartu buvo Ti:safyro pagrindu veikianči lazerinė sistema. Titanu legiruotas safyro kristalas turi itin platų stiprinimo spektrą, apimantį nuo 600 iki 1100 nm, su maksimaliu stiprinimu ties 800 nm. Tai leidžia generuoti rekordinės trukmės impulsus, siekiančius 5 fs [5]. Tradicinėse komercinėse sistemose nesunkiai pasiekiami 10 fs trukmės impulsai [6]. Tačiau vienas didžiausių tokio tipo sistemų trūkumų yra gana nepalanki Ti:safyro kristalo kaupinimo sritis, kuri apima regimąjį spektrą su maksimumu ties 500 nm, bei trumpa sužadinto



lygmens gyvavimo trukmė. Ši sritis nepalanki tuo, kad kol kas nėra efektyvių (ir pigių) šaltinių, kurie gali intensyviai spinduliuoti reikiamoje spektro srityje su kaupinamo impulso trukme mažesne nei 3  $\mu$ s. Todėl femtosekundinei spinduliuotei generuoti tenka naudoti specializuotus lazerių šaltinius, tokius kaip Nd:IAG lazerius, veikiančius antrosios harmonikos režimu. Papildomi reikalavimai kaupinimo šaltiniams Ti:safyro sistemas padarė gana sudėtingas, jų impulsų pasikartojimo dažnis būna gana mažas (1 kHz eilės), todėl jos nėra perspektyvios industriniams taikymams ir daugiausia naudojamos mokslinėse laboratorijose.

Pastaraisiais metais išaugo didelis susidomėjimas iterbiu legiruoto kalio gadolinio volframato (Yb:KGV) pagrindu veikiančiomis lazerinėmis sistemomis. Nors Yb:KGV kristalas turi siauresnę stiprinimo juostą (1023-1060 nm) ir spinduliuoja ilgesnius impulsus ( $< 80$  fs) nei Ti:safyras, tačiau jo sugerties juosta yra ties 981 nm [7]. Šią juostą galima kaupinti didelės galios lazeriniais diodais, todėl išnyksta poreikis naudoti sudėtingus kaupinimo šaltinius. Tai smarkiai supaprastina lazerio konstrukciją ir jo aptarnavimą. Mažesni terminiai nuostoliai padidina lazerio stabilumą bei našumą, todėl jis yra patrauklus naudoti pramoniniuose taikymuose.

Natūralu, kad skaidriųjų medžiagų modifikavimo tyrinėjimai buvo atliekami naudojant Ti:safyro sistemas, o rezultatų, gautų kitomis sistemomis, praktiškai nėra. Todėl nėra žinoma, ar naudojant kitas lazerines sistemas medžiagos modifikavimui galima tikėtis panašių rezultatų. Kita vertus, pagrindiniai skaidriųjų terpių modifikavimo tyrimai buvo atliekami amorfinėse medžiagose, o galimybės įrašyti pakitusio lūžio rodiklio sritis kristalinėse terpėse, įvairiuose netiesiniuose kristaluose yra menkai tyrinėtos, nors taikomoju požiūriu šios medžiagos turi itin didelį potencialą. Vis dėlto nėra aišku, ar kristaluose vyksta identiški fizikiniai mechanizmai, sukeltys medžiagos optinių savybių pokyčius, ir ar iš viso įmanoma indukuoti pakitusių optinių savybių darinius. Taigi **pagrindinis šios disertacijos tikslas** buvo eksperimentiškai ištirti galimybę indukuoti nedestruktyvius darinius skaidriose medžiagose – tiek amorfinėse, tiek kristalinėse, – daugiausia naudojant spinduliuotę, gaunamą iš Yb:KGV lazerinės sistemos. Darbo metu buvo stengiamasi išskirti mechanizmus, lemiančius tokius medžiagos optinių savybių pokyčius, ir panaudoti šias žinias kuriant funkcionalių fotoninius prietaisus.

## Užduotys, nagrinėjamos disertacijoje

Rašant disertaciją, buvo atliekamos tokios užduotys:

1. Lydyto kvarco tūrinis modifikavimas femtosekundiniais didelio pasikartojimo dažnio šviesos impulsais, naudojant tiesioginio lazerinio įrašymo metodiką. Spinduliuotės parametru įtakos modifikuoto darinio optinėms savybėms eksperimentinis tyrimas. Sąlygų, leidžiančių įrašyti nedestruktyvaus pobūdžio, stabilias, pakitusio lūžio rodiklio sritis lydytame kvarce, radimas.
2. Kristalinių medžiagų, tokių kaip ličio niobatas ir KDP, modifikavimas ultratrumpaisiais šviesos impulsais, siekiant išsiaiškinti, ar tokiose medžiagose yra įmanoma sukurti stabilius bei reguliarius darinius, išsiskiriančius pakitusiu lūžio rodikliu.
3. Ultratrumpą spinduliuote sukeliama fotorefrakcinio efekto panaudojimas lūžio rodiklio pokyčiams indukuoti ličio niobato kristale. Trimačių duomenų įrašymo ir nutrynimo fotorefrakciniuose kristaluose tyrimas.
4. Besiformuojančių modifikuotos medžiagos darinių poveikio trečiosios eilės netiesiniams reiškiniams, tokiems kaip šviesos gijų formavimasis ar superkontinuumo generavimas, tyrimas.
5. Funkcionalių fotoninių elementų, tokių kaip fazinės Brego gardelės, formavimas skaidriose terpėse naudojant tiesioginę lazerinę įrašymą.

## Mokslinis tyrimų naujumas

1. Pirmą kartą pademonstruota, kad naudojant Yb:KGV lazerio generuojamą fundamentinę spinduliuotę galima formuoti stabilius, pakitusio lūžio rodiklio darinius tiek lydytame kvarce, tiek ličio niobato kristale. Parodyta, kad lydytame kvarce pasireiškia akumuliacinis efektas, lemiantis formuojamų darinių vienalytiškumą.
2. Nustatyta, kad ultratrumpaisiais šviesos impulsais galima indukuoti fotorefrakcinį efektą ličio niobate, ir pirmą kartą parodyta, kad šio efekto sąlygotas kristalo lūžio rodiklio pokytis gali pasiekti anomaliai

dideles vertes. Pademonstruota trimatė duomenų įrašymo ir nutrynimo metodika, nustatytos priežastys, ribojančios efektyvų daugkartinių duomenų perrašymą tokiuose kristaluose.

3. Pirmą kartą pademonstruotos stabilios, rekordinio difrakcinio efektyvumo fazinės gardelės, įrašytos ličio niobato kristalo tūryje naudojant tiesioginio lazerinio įrašymo metodiką. Šie rezultatai rodo, kad ličio niobato kristale galima realizuoti trimačius fotoninius elementus, tinkamus tiek tiesinės, tiek netiesinės optikos taikymams.
4. Eksperimentiškai nustatytas modifikuotų darinių poveikis netiesiniams reiškiniams, vykstantiems lydytame kvarce. Parodyta, kad dėl modifikacijų didelio pasikartojimo dažnio impulsais kuriamas superkontinuumas sparčiai silpsta, vyksta spektro siaurėjimas ir trumpabangio krašto slinkimas link ilgesniųjų bangų. Parodyta, kad šviesos gija lydytame kvarce skyla išilgai pluošto sklidimo krypties, o šis skilimas sąlygoja nevienalyčius modifikuotos medžiagos darinius.

## Praktinė nauda

Atlikti tyrimai yra vertingi taikymams, nes buvo pademonstruota, jog Yb:KGV lazerinę sistemą galima pritaikyti fotoninių elementų formavimui skaidriųjų medžiagų tūryje, nepažeidžiant pačios medžiagos paviršiaus. Pademonstruota efektyvių difrakcinių elementų įrašymo galimybė tiek lydytame kvarce, tiek ličio niobato kristale. Surasti optimalūs spinduliuotės parametrai bei įrašėjimo algoritmai, leidžiantys pasiekti geriausią modifikuoto darinio kokybę. Parodyta, kad naudojantis tokia sistema galima įrašinėti fotoninius elementus visa eile sparčiau, nei naudojant įprastas Ti:safyro lazerines sistemas. Taip pat atskleista perspektyva naudoti ličio niobato kristalą kaip trimatės perrašomos informacijos talpyklą, kurioje kiekvienas informacijos bitas gali būti selektyviai ištrinamas ar įrašomas ultratrumpoju lazerio impulsu.

## Ginamieji teiginiai

1. Naudojant didelio impulsų pasikartojimo dažnio Yb:KGV lazerinę sistemą, lydytame kvarce galima formuoti pakitusio lūžio rodiklio sritis.

Gauti dariniai išsiskiria dvejopu šviesos lūžimu, o akumuliaciniai efektai lemia formuojamų darinių vienalytiškumą.

2. Yb:KGV sistema generuojamais femtosekundiniais lazerio impulsais galima formuoti ličio niobato kristale stabilias, vienalytes pakitusio lūžio rodiklio sritis, kurios atsiranda dėl lazerio paveiktos zonos amorfizacijos. Kita vertus, lazerio paveiktoje zonoje KDP kristale prasideda kristalo irimas, kuris neleidžia vienalyčiam lūžio rodiklio pokyčiui atsirasti.
3. Nelegiruotame ir geležies atomais legiruotame ličio niobato kristale ultratrumpaisiais šviesos impulsais galima indukuoti lūžio rodiklio modifikacijas, turinčias fotorefrakcinę prigimtį. Tokius nestabilius darinius galima panaudoti trimačiam perrašomų duomenų įrašymui.
4. Lazerio modifikuoti medžiagos dariniai silpnina trečiosios eilės medžiagos netiesiškumo sukeltus reiškinius lydytame kvarce. Superkontinuumo intensyvumo silpimas ir spektro slinkimas link ilgesniųjų bangų pusės, taip pat šviesos gijos išilginis suskilimas yra sąlygojami medžiagos struktūrinių pokyčių, kurie atsiranda dėl ultratrumposios spinduliuotės poveikio.
5. Lazerio indukuotą medžiagos lūžio rodiklio pokytį galima įvertinti analizuojant skaidrioje terpėje suformuotų skirtingų storių tūrinių Brego gardelių difrakcinius efektyvumus.

## Aprobacija

### Publikacijos

1. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, M. Malinauskas, V. Smilgevičius, V. Sirutkaitis, The structural modifications induced in lithium niobate and KDP crystals with high repetition rate femtosecond laser pulses, *Appl. Phys. A.*, **104**(3), 769–773 (2011).
2. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, K. Kuršelis, M. Malinauskas, V. Sirutkaitis, Manufacturing of diffractive elements in fused silica by high repetition rate femtosecond Yb:KGW laser pulses, *Lith. J. Phys.*, **50**, 129–134 (2010).

3. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, K. Kuršelis, M. Malinauskas, S. Ost, V. Sirukaitis, Volume Bragg grating formation in fused silica with high repetition rate femtosecond Yb:KGW laser pulses, *J. Laser Micro/Nanoeng.*, **5**(3), 218–222 (2010).
4. (ne ISI) **D. Paipulas**, V. Kudriašov, K. Kuršelis, M. Malinauskas, S. Ost, V. Sirukaitis, Volume Bragg grating formation in fused silica with high repetition rate femtosecond Yb:KGW laser pulses, *Proc. of LPM* (2010).

### Pranešimai konferencijose

- 39th Lithuanian National Conference of Physics, Vilnius, Lietuva. **D. Paipulas**, V. Mizeikis, V. Sirutkaitis, Photorefractive modifications induced in lithium niobate crystal using ultrashort light pulses (2011).
- LPM2011, Takamatsu, Japonija. V. Mizeikis, V. Purlys, **D. Paipulas**, S. Juodkasis, Reversible writing of photorefractive structures in lithium niobate by laser lithography (2011).
- CLEO2011, Miunchenas, Vokietija. **D. Paipulas**, M. Malinauskas, V. Smilgevičius, V. Sirutkaitis, Permanent volume Bragg grating fabrication in pure lithium niobate crystal using direct laser writing technique (2011).
- ICPEPA7, Kopenhaga, Danija. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, M. Malinauskas, V. Smilgevičius, V. Sirutkaitis, The structural modifications induced in lithium niobate and KDP crystals with high repetition rate femtosecond laser pulses (2010).
- LPM2010, Štutgartas, Vokietija. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, K. Kuršelis, M. Malinauskas, V. Sirutkaitis, Volume Bragg grating formation in fused silica with high repetition rate femtosecond Yb:KGW laser pulses (2010).
- Developments in Optics and Communications, Riga, Latvia. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, K. Kuršelis, M. Malinauskas, V. Sirukaitis, Refractive index modifications induced in fused silica with high repetition rate femtosecond laser pulses (2010).
- Mokslas ir visuomenė moderniojoje Europoje, Vilnius, Lietuva. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, M. Malinauskas, V. Smilgevičius, V. Sirutkaitis, The structural modifications induced in lithium niobate and KDP crystals with high repetition rate femtosecond laser pulses (2010).

- 38th Lithuanian National Conference of Physics, Vilnius, Lietuva. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, K. Kuršelis, M. Malinauskas, V. Sirutkaitis, Modification of fused silica by high repetition rate femtosecond Yb:KGW laser pulses (2009).
- Northern Optics 2009, Vilnius, Lietuva. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, K. Kuršelis, M. Malinauskas, V. Sirutkaitis, Manufacturing of diffractive elements in fused silica by high repetition rate femtosecond Yb:KGW laser pulses (2009).
- Lasers and Optical Nonlinearity 2009, Vilnius, Lietuva. **D. Paipulas**, V. Kudriašov, K. Kuršelis, M. Malinauskas, V. Sirutkaitis, Manufacturing of diffractive elements in fused silica by high repetition rate femtosecond Yb:KGW laser pulses (2009).

### Kitos publikacijos (nesusijusios su disertacija)

- **D. Paipulas**, R. Grigonis, V. Staliulionis, V. Sirutkaitis, Group-delay dispersion measurements of laser mirrors using white-light interferometry, Proc. of SPIE, **6596**, 659614–1 (2007).
- M. Malinauskas, H. Gilbergs, A. Žukauskas, V. Purlys, **D. Paipulas** and R. Gadonas, A femtosecond laser-induced two-photon photopolymerization technique for structuring microlenses, J. Opt. **12**(3), 035204(1–8) (2010).
- A. Žukauskas, M. Malinauskas, L. Kontenis, V. Purlys, **D. Paipulas**, M. Vengris and R. Gadonas, Doped polymeric microstructures for optically active functional devices, Lith. J. Phys. **50**(1), 55–61 (2010).
- M. Malinauskas, G. Bičkauskaitė, M. Rutkauskas, V. Purlys, **D. Paipulas** and R. Gadonas, Self-polymerization of nano-fibers and nano-membranes induced by two-photon absorption, Lith. J. Phys. **50**(1), 135–140 (2010).
- M. Malinauskas, P. Danilevičius, D. Baltriukienė, M. Rutkauskas, A. Žukauskas, Ž. Kairyte, G. Bičkauskaitė, V. Purlys, **D. Paipulas**, V. Bukelskienė and R. Gadonas, 3D artificial polymeric scaffolds for stem cell growth fabricated by femtosecond laser, Lith. J. Phys. **50**(1), 75–82 (2010).
- M. Malinauskas, H. Gilbergs, A. Žukauskas, K. Belazaras, V. Purlys, P. Danilevičius, M. Rutkauskas, G. Bičkauskaitė, **D. Paipulas**, R. Gadonas, A. Gaidukevičiūtė, I. Sakellari, M. Farsari and S. Juodkazis, Femtosecond laser polymerization of hybrid/integrated micro-optical elements and their characterization, J. Opt. **12**, 124010(1–9) (2010).

- K. Kuršelis, T. Kudrius, **D. Paipulas**, O. Balachninaite, V. Sirutkaitis, Experimental study of femtosecond laser micromachining of grooves in stainless steel, *Lith. J. Phys.* **50**(1), 95–103 (2010).
- M. Malinauskas, H. Gilbergs, A. Žukauskas, K. Belazaras, V. Purlys, M. Rutkauskas, G. Bičkauskaitė, A. Momot, **D. Paipulas**, R. Gadoonas, S. Juodkazis and A. Piskarskas, Femtosecond laser fabrication of hybrid micro-optical elements and their integration on the fiber tip, *Proc. SPIE*, **7716–9** (2010).
- M. Malinauskas, V. Purlys, A. Žukauskas, G. Bičkauskaitė, T. Gertus, P. Danilevičius, **D. Paipulas**, M. Rutkauskas, H. Gilbergs, D. Baltriukienė, L. Bukelskis, R. Širmenis, V. Bukelskienė, R. Gadonas, V. Sirvydis and A. Piskarskas, Laser two-photon polymerization micro- and nanostructuring over a large area on various substrates, *Proc. SPIE*, **7715–49** (2010).
- M. Malinauskas, A. Žukauskas, G. Bičkauskaitė, M. Rutkauskas, K. Belazaras, H. Gilbergs, P. Danilevičius, V. Purlys, **D. Paipulas**, T. Gertus, R. Gadonas, A. Piskarskas, D. Baltriukienė, V. Bukelskienė and A. Gaidukevičiūtė, Fabrication of Three-Dimensional Nanostructures by Laser Polymerization Technique, *Proc. CYSENI* (2010).
- P. Danilevičius, A. Žukauskas, G. Bičkauskaitė, V. Purlys, M. Rutkauskas, T. Gertus, **D. Paipulas**, J. Matukaitė, D. Baltriukienė and M. Malinauskas, Laser 3D micro/nanofabrication of polymers for tissue engineering applications, *Latvian J. Phys. Tech. Sci.*, **48**(2), 32–43 (2010).
- M. Malinauskas, V. Purlys, A. Žukauskas, M. Rutkauskas, P. Danilevičius, **D. Paipulas**, G. Bičkauskaitė, L. Bukelskis, D. Baltriukienė, R. Širmenis, A. Gaidukevičiūtė, V. Bukelskienė, R. Gadonas, V. Sirvydis and A. Piskarskas, Large scale laser two-photon polymerization structuring for fabrication of artificial polymeric scaffolds for regenerative medicine, *Proc. AIP*, **1288**, 12–17 (2010).

## Bendra autorių indėlis

Visi šioje disertacijoje aprašyti tyrimai atlikti 2007-2011 metais Vilniaus universiteto Lazerinių tyrimo centro laboratorijose vadovaujant prof. V. Sirutkaičiui. Dalis eksperimentų, susijusių su fotorefrakcinių darinių indukvimu ličio niobato kristaluose, atlikti Shizuokos universitete, Japonijoje, stažuotės, vykusios 2011 m. sausio – vasario mėn., metu vadovaujant

dr. V. Mizeikiui. Disertacijoje paminėtus eksperimentinius tyrimus ir teoretinius modeliavimus atliko pats autorius, tačiau svarbu išskirti svarbų indėlį šių bendraautorių:

- **prof. V. Sirutkaitis** vadovavo visam tiriamojo darbo procesui ir sukūrė palankias sąlygas darbe aprašytiems eksperimentams atlikti, konsultavo interpretuojant duomenis, kuriant naujas užduotis ir padėjo pristatant rezultatus mokslo visuomenei;
- **prof. V. Smilgevičius** konsultavo netiesinių reiškinių, antrosios harmonikos generavimo ličio niobato kristale klausimais;
- **dr. V. Kudriašov** supažindino su skaidriųjų terpių modifikavimo principais, konsultavo interpretuojant duomenis ir padėjo atlikti dalį eksperimentų, susijusių su lydyto kvarco modifikavimo tyrimais;
- **dr. V. Mizeikis** supažindino su fotorefrakcinių darinių indukavimo ličio niobato kristale fizika, sudarė puikias sąlygas ličio niobato kristalo modifikavimo tyrimams atlikti Shizuokos universitete ir padėjo interpretuoti gautus rezultatus;
- **dr. M. Malinauskas** konsultavo interpretuojant duomenis bei rengiant mokslines publikacijas;
- studentai **S. Ost, K. Kuršelis** prisidėjo atliekant dalį eksperimentų.

Atliekant eksperimentus, vertingų patarimų ir pasiūlymų pateikė *dr. M. Vengris* ir *dr. A. Melninkaitis*; interpretuoti šviesos gijų formavimosi bei superkontinuumo generavimo rezultatus padėjo diskusijos su *dr. E. Gaižausku*, *dr. G. Valiuliu*, *dokt. V. Jukna*; difrakcinių gardelių formavimo klausimais pagelbėjo *dr. V. Vaičaitis*; Ramano spektrus užfiksuoti padėjo *dr. G. Niuara*; netiesinių kristalų modifikavimo svarbą bei galimus tokios technologijos pritaikymus suprasti padėjo *prof. A. P. Piskarskas*.

## Disertacijos struktūra

Disertacija yra suskirstyta į keturis pagrindinius skyrius. Pirmame skyriuje pateikiamas skaidriųjų terpių modifikavimo lazerio impulsais įvadas. Jame apžvelgiami pagrindiniai elektromagnetinės spinduliuotės sąveikos su medžiaga aspektai, įvardijami skirtingi modifikacijų tipai, paaiškinami pagrindiniai modeliai, grindžiantys šių modifikacijų atsiradimą, aptariami šių modelių privalumai ir trūkumai, pateikiama pavyzdžių. Antrame skyriuje



dėstomi rezultatai, gauti modifikuojant lydyto kvarco stiklą Yb:KGV lazerine sistema generuojamais impulsais. Aprašomas eksperimento planas, spinduliuotės parametrų įtaka gautų modifikuotų darinių kokybei, lūžio rodiklio nustatymo naudojant tūrinės Brego gardeles metodika. Trečiame skyriuje pateikiami lūžio rodiklio pokyčio indukavimo netiesiniuose kristaluose rezultatai. Nagrinėjamas fotorefrakcinis reiškinys ir jo sukiamas lūžio rodiklio pokytis, indukuotas ultratrumpaisiais lazerio impulsais. Taip pat aprašomi eksperimentiniai rezultatai, gauti formuojant stabilius, pakitusio lūžio rodiklio darinius ličio niobato ir KDP kristaluose. Ketvirtas skyrius skirtas darinių, įrašymų lydytame kvarce naudojant šviesos gijas, tyrimams. Aprašomi eksperimentai, atlikti tiriant modifikuotos medžiagos įtaką generuojamo superkontinuumo spektrui, stebėtas erdvinis pačios gijos suskilimas. Disertacijos pabaigoje yra išvados ir naudotos literatūros sąrašas.



# Ultratrumpųjų impulsų sąveika su skaidriomis terpėmis

## 1.1. Intensyvi spinduliuotė skaidriose terpėse

Intensyvių šviesos impulsų sąveika su skaidriomis terpėmis iš esmės skiriasi nuo silpnos elektromagnetinės spinduliuotės sąveikos. Šis skirtumas pasireiškia tuo, kad intensyvus pluoštas geba sužadinti netiesinius spinduliuotės ir medžiagos sąveikos mechanizmus, kurie sukelia platų spektrą naujų, unikalių reiškinių. Medžiaga dėl joje vykstančių netiesinių procesų veikia sklindantį pluoštą bei jį transformuoja erdvės ir laiko atžvilgiu. Pluoštas taip pat keičia pačios medžiagos struktūrą. Šioje disertacijoje daugiausia bus nagrinėjamas pastarasis sąveikos aspektas, t. y. analizuojami procesai, vykstantys skaidrioje terpėje, veikiant ją intensyvia, ultratrumpa lazerio spinduliuote. Kita vertus, svarbu apžvelgti ir esminius, nedestrukcinis netiesinės optikos reiškinius, kurie svarbų vaidmenį vaidina medžiagos struktūriniais pokyčiams.

### 1.1.1. Netiesinis poliarizuotumas

Elektromagnetinė spinduliuotė, sklisdama per dielektrinę medžiagą, ją poliarizuoja, t. y. periodiškai kintantis šviesos elektrinio lauko vektorius indukuoja atitinkamai periodiškai kintantį medžiagos dipolinį momentą. Kai spinduliuotės intensyvumas nėra didelis, dipolio atsakas į lauką būna inertiškas ir dipolio momentas (poliarizuotumas) visada tiesiškai priklauso nuo spinduliuotės elektrinio lauko stiprio. Tokia situacija atitinka klasikinės,

tiesinės optikos atveji. Medžiaga veikia sklindantį pluoštą tik tuo, kad dėl inertiško poliarizuotumo atsako į elektromagnetinę spinduliuotę (kuris, be to, priklauso ir nuo spinduliuotės dažnio), šviesos sklidimas skaidrijoje medžiagoje sulėtėja ir atsiranda dispersijos reiškinys. Intensyvios spinduliuotės atveju, poliarizuotumo priklausomybė nuo elektrinio lauko stiprio tampa netiesinė. Paprastai tariama, kad netiesiškumas nėra didelis, todėl poliarizuotumą galima skleisti eilute elektrinio lauko stiprio atžvilgiu [8]:

$$P(t) = \varepsilon_0 \chi^{(1)} E(t) + \varepsilon_0 \chi^{(2)} E^2(t) + \varepsilon_0 \chi^{(3)} E^3(t) + \dots, \quad (1.1)$$

čia  $\varepsilon_0$  yra dielektrinė skvarba vakuume,  $\chi^{(1,2,3)}$  – tiesinis, antrosios ir trečiosios eilės dielektriniai jautriai, o  $E(t)$  nusako elektrinio lauko stiprio kitimą laike. Antrosios eilės netiesinio jautrio vertė siekia  $10^{-12}$  m/V, o trečiosios eilės –  $10^{-24}$  m<sup>2</sup>/V<sup>2</sup>. Tad akivaizdu, kad netiesinis poliarizuotumas gali pasireikšti tik tada, kai elektrinio lauko stipris siekia  $10^{12}$  V/m ar daugiau.

Skirtingos eilės netiesinio poliarizuotumo pataisos lemia visiškai skirtingo tipo reiškinius. Antrosios eilės dielektrinis jautris, kuris nėra lygus nuliui tik necentrosimetriniuose kristaluose, yra atsakingas už tribangės sąveikos efektus, tokius kaip suminio ir skirtuminio dažnio generacija ir optinis lyginimas. Terpės struktūriniais pokyčiams ši sąveika yra svarbi tuo, kad dėl dažnių konversijos naujos komponentės gali patekti į kristalo sugerties juostą. Paprastai toks procesas nėra pageidaujamas, nes mažina konversijos efektyvumą, be to, trumpina kristalo darbo laiką. Pastebima, kad dėl antrosios harmonikos generacijos tokiuose kristaluose kaip KTP padidėja spalvinių centrų formavimosi tikimybė [9]. Tačiau selektyviam terpės modifikavimui šie efektai kol kas nėra plačiai taikomi, nes mažai efektyvūs.

Gerokai svarbesni medžiagos modifikavimui yra kubinio netiesiškumo sukelti reiškiniai, būdingi visoms skaidrioms medžiagoms. Iš jų ko gero didžiausią įtaką daro vadinamasis optinis Kero efektas. Dėl šio efekto medžiagos lūžio rodiklis tampa priklausomas nuo spinduliuotės intensyvumo ir per medžiagą sklindantis šviesos pluoštas patiria erdvinę transformaciją. Esant tam tikroms sąlygoms, pluoštas savaime ima fokusuotis ir jo intensyvumas gali išaugti iki verčių, pakankamų medžiagos suardymui sukelti. Tokia pluošto saviveika dažnai sudaro sąlygas pluoštui persiformuoti į šviesos giją, kuria šviesa gali sklisti medžiagoje be difrakcijos reiškinio. Kitame skyrelyje detaliau apžvelgiamos sąlygos, reikalingos tokiam šviesos sklidimui

sukelti.

### 1.1.2. Optinis Kero efektas, fokusavimasis ir šviesos gijų formavimasis

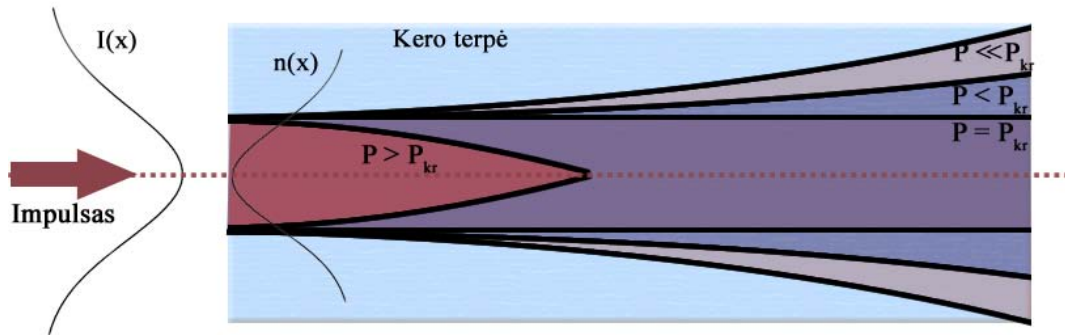
Žinoma, kad medžiagos (ne magnetinės) lūžio rodiklį ir medžiagos dielektrinę skvarbą galima susieti priklausomybe  $n^2 = \varepsilon$ , o dielektrinę skvarbą ir jautrį sieja sąryšis  $\varepsilon = \chi + 1$ . Stipriuose laukuose dielektrinis jautris tampa priklausomas nuo elektrinio lauko stiprio. Kvadratinis netiesiškumas lemia tiesinę jautrio priklausomybę nuo elektrinio lauko stiprio, t. y. Pokelso efektą, kuris stebimas necentrosimetriniuose kristaluose. Tačiau elektromagnetinė banga lūžio rodiklio pokyčiui įtakos nedaro, nes Pokelso efektas stebimas tik esant pastoviams ar lėtai kintantiems laukams. Visai kitokia situacija vyksta kubinio netiesiškumo terpėse, nes čia jautris jau priklauso nuo elektrinio lauko stiprio kvadrato, t. y. intensyvumo. Visą izotropinės terpės, turinčios kubinį netiesiškumą, dielektrinį jautrį galima išreikšti taip:  $\chi = \chi^{(1)} + 3/4\chi^{(3)}|E|^2$ . Tada jo sąlygotas lūžio rodiklis bus:

$$n(I) \approx n_0 + \frac{3}{8n_0}\chi^{(3)}|E|^2 = n_0 + n_2I, \quad (1.2)$$

čia  $I$  yra intensyvumas,  $n_0$  – tiesinis medžiagos lūžio rodiklis, o  $n_2 = 3\chi^{(3)}/(4\varepsilon_0cn_0^2)$  – netiesinis lūžio rodiklis. Skaidrių medžiagų netiesinis lūžio rodiklis paprastai yra teigiamas, todėl intensyvi spinduliuotė padidina medžiagos lūžio rodiklį.

Optinio Kero efekto sąlygota lūžio rodiklio moduliacija sukelia du svarbius reiškinius: savaiminį fokusavimąsi, atsirandantį dėl pluošto erdvinių sąvybių, ir fazės moduliavimąsi, kurį kuria sparčiai kintanti impulso gaubtinė. Fokusavimosi reiškinių schema pateikta 1.1 paveiksle. Intensyvumas pluoštuose, turinčiuose Gauso pavidalo profilį, nėra pasiskirstęs tolygiai. Centrinėje pluošto dalyje jis būna didesnis negu periferijoje, todėl Kero efekto kuriamas lūžio rodiklio profilis ( $n(x)$ ) atkartos pluošto profilį ir medžiagoje suformuos glaudžiantįjį lęšį. Svarbu pastebėti, kad tokio lęšio „glaudžiamoji geba“ iš tiesų priklauso nuo spinduliuotės galios. Gauso pluoštams egzistuoja tam tikras kritinės galios dydis, apibrėžiamas išraiška

$$P_{kr} = \frac{0,61^2\pi\lambda^2}{8n_0n_2}. \quad (1.3)$$

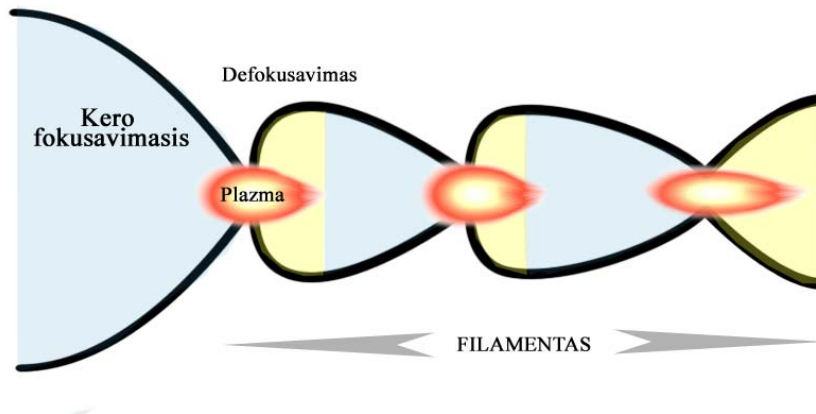


1.1 pav. Fokusavimosi reiškinys Kero terpėje su teigiamu netiesiniu lūžio rodikliu.

Jis nusako galią, kuriai esant fokusavimasis teoriškai kompensuoja pluošto difrakciją. Jei impulso galia mažesnė už kritinę galią, fokusavimosi efektas neatstoja pluošto difrakcijos, todėl toks pluoštas skėsis ir toliau. Impulso galiai viršijus kritinę vertę, fokusavimasis jau bus katastrofinis, t. y. pradinis kolimuotas pluoštas tam tikrame atstume kolapsuos į tašką. Realūs pluoštai kolapsuos į tašką, kurio diametras bus artimas bangos ilgiui [10]. Jei lazerio pluoštas jau yra fokusuojamas objektyvu, fokusavimosi reiškinys pakeis tikrąją židinio poziciją - pluoštas fokusuosis prieš geometrinį židinį net ir esant galiai, mažesnei nei kritinė. Be to, mažės ir sąsmaukos diametras. Todėl net ir su silpnai fokusuojančiais lęšiais pluoštą galima sufokusuoti į mažesnę dėmelę, nei leidžia fokusuojanti optika (tikslų teorinį šio efekto aprašymą su matematinėmis išraiškėmis galima rasti R. Boyd'o [8] ar kitose netiesinės optikos pagrindus aptariančiose knygose).

XX a. pabaigoje sukūrus femtosekundinius lazerius, buvo pastebėta, kad ultratrumpieji impulsai medžiagoje nebūtinai fokusuojasi į vieną tašką. Jie gali transformuotis į siaurą, kelių dešimčių mikrometrų diametro giją, kuria šviesa nedifragavusi gali nusklisti atstumus, siekiančius metrus ar net kilometrus [11, 12]. Toks sklidimo būdas buvo pavadintas filamentacija, arba šviesos gijos formavimusi.

Gijos formavimosi mechanizmai yra sudėtingi, nes tenka atsižvelgti ne tik į pluošto charakteristikas, bet ir į laikines impulso savybes bei pačios medžiagos atsaką į tokią spinduliuotę. Yra keletas modelių, aiškinančių gijų formavimosi principus. Žinoma, kad ultratrumpojo spinduliuotė medžiagos tūryje geba sukurti plazmą, kuri veikia kaip pluoštą defokusuojanti terpė. Vienas iš modelių aiškina, kad gija formuosis tada, kai tarp Kero



1.2 pav. Fokusavimosi ir plazmos defokusavimo ciklas, lemiantis šviesos gijos atsiradimą medžiagoje.

fokusavimosi ir plazmos defokusavimo susidarys dinaminis balansas [13]. Ši gijos formavimasi galima iliustruoti kaip periodiškai kintantį fokusavimosi ir defokusavimo procesų ciklą (1.2 pav.).

Impulsas gijoje patiria ne tik erdvinę, bet ir laikinę transformaciją. Žinoma, kad dėl Kero efekto vyksta impulso savispūda, stebimas galinio fronto statėjimas [14–16], impulso spektro plėtra. Tokia spektro plėtra pirmiausia siejama su fazinio moduliavimosi efektu. Impulso sklidimo eigoje dinamiškai kintantis medžiagos lūžio rodiklis moduliuoja impulso fazę, dėl to generuojasi naujos spektro dedamosios. Praktiškai visada susiformavusi šviesos gija generuoja *superkontinuumą* – šimtus ar net tūkstančius kartų išplitusį spektrą [17], užimantį visą regimąją (ir platesnę) spektrinę dalį. Superkontinuumo generacijos medžiagoje niuansai dar nėra iki galo suprasti. Procesai vyksta ekstremaliomis, dinaminėmis sąlygomis, todėl didelė efektų įvairovė įneša savo indėlį į spektro plėtimąsi: tai ir fazinis moduliavimas [18], keturbangis maišymas [19], Ramano sklaida [20], impulso statėjimas ir skilimas [14], erdvinės sąveikos inicijuoti efektai, medžiagos jonizacija [21] ir kt. Taigi šių reiškinių tyrinėjimas yra svarbus norint suprasti tiek šviesos sklidimo medžiagoje principus, tiek medžiagos modifikavimo ypatumus.

## 1.2. Netiesinė skaidriųjų terpių sugertis

Skaidriųjų terpių draustinės juostos plotis yra didelis, todėl regimosios srities fotonų energijos nepakanka norint elektroną perkelti iš valentinės

į laidumo juostą. Būtent dėl šios priežasties medžiagos ir yra skaidrios. Tačiau veikiant medžiagą itin intensyvia spinduliuote, įsitraukia netiesiniai spinduliuotės sugerties mechanizmai, kurių metu dideli energijos kiekiai gali būti tiesiogiai perduodami medžiagai. Šiame poskyryje tokius sugerties mechanizmus aptarsime detaliau.

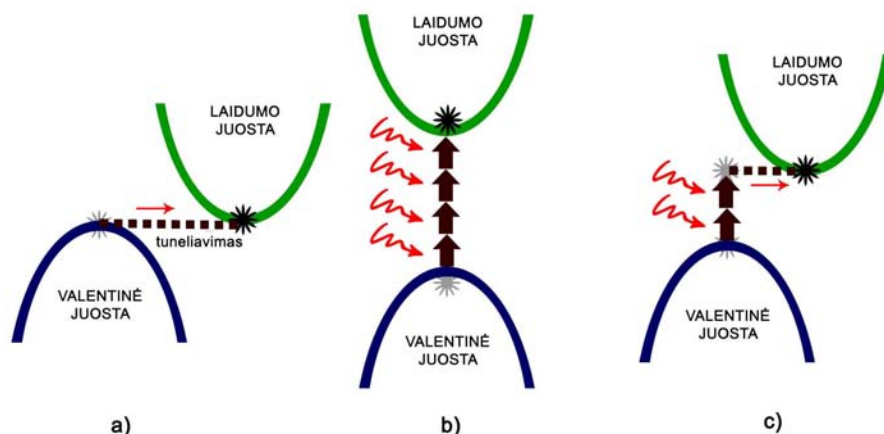
### 1.2.1. Tunelinė ir daugiafotonė jonizacija

Netiesiniai sugerties mechanizmai, vykstantys skaidriose medžiagose, buvo teoriškai išnagrinėti L. Keldyšo dar 1964 metais [22]. Iš esmės galima būtų išskirti du vyraujančius sugerties tipus: *tunelinę jonizaciją* ir *daugiafotonę jonizaciją*. Kai elektromagnetinės spinduliuotės laukas yra labai didelis, medžiagos energetinių lygmenų sistema gali būti smarkiai iškreipta, kad susidarytų sąlygos tuneliniam elektrono šuoliui į laidumo juostą (1.3 pav., a). Toks sugerties tipas yra vadinamas tuneline jonizacija. Kita vertus, jei fotonų skaičius yra pakankamai didelis, tuo pat metu gali būti sugerti keletas fotonų, kurių bendra energija viršija draustinės energijos tarpą. Toks sugerties būdas yra vadinamas daugiafotone jonizacija (1.3 pav., b). Koks sugerties tipas vyrauja medžiagoje, iš esmės nusako Keldyšo parametras

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{mcn\Delta E\epsilon_0}{I}}, \quad (1.4)$$

čia  $\omega$  atitinka spinduliuotės dažnį,  $m$  ir  $e$  – elektrono redukuotą masę bei krūvį,  $c$  ir  $n$  – šviesos greitį bei medžiagos lūžio rodiklį,  $\epsilon_0$  – dielektrinę skvarbą vakuume,  $\Delta E$  – dielektriko draustinės energijos tarpą, o  $I$  – spinduliuotės intensyvumą. L. Keldyšas parodė, kad jei  $\gamma \ll 1$ , medžiagoje vyrauja tunelinės jonizacijos režimas. Toks režimas pasiekiamas tada, kai elektromagnetinės spinduliuotės osciliacijos dažnis būna gana žemas. Tuomet smarkiai deformuota energetinių lygmenų sistema išsilaiko pakankamą laiką tarpą, kad elektronas spėtų tuneliuoti į laidumo zoną. Esant dideliame spinduliuotės dažniui ( $\gamma \gg 1$ ), tikimybė elektronui tuneliuoti smarkiai sumažėja, todėl sugertis gali vykti tik daugiafotonės jonizacijos būdu. Taip pat reikia pastebėti, kad daugiafotonės jonizacijos tikimybė itin smarkiai priklauso nuo spinduliuotės intensyvumo ir medžiagos draustinės energijos tarpo:  $P = \sigma_k I^k$ , čia  $k$  nurodo fotonų skaičių, reikalingą elektronui perkelti į laidumo juostą ( $k\hbar\omega \geq \Delta E$ ), o  $\sigma_k$  nusako  $k$  fotonų sugerties koeficientą (pvz.





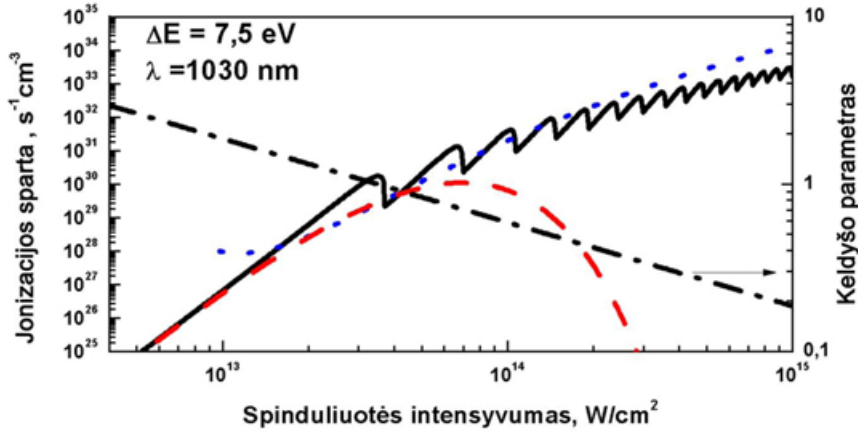
1.3 pav. Scheminės diagramos, vaizduojančios netiesinius sugerties metodus: a) tuneliavimą; b) daugiafotonę sugertį; c) kombinuotą sužadimą.

$\sigma_4 \sim 10^{-112} \text{ cm}^8\text{s}^3$ ) [23]. Tunelinės jonizacijos sparta medžiagos draustinės energijos tarpo dydžiui nėra tiek jautri [22, 24].

Lydytą kvarcą ( $\text{SiO}_2$ ), kurio draustinės juostos tarpas yra vienas didžiausių ( $\Delta E = 7.5 \text{ eV}$ ), paveikus 1030 nm ilgio spinduliuote bei intensyvumu, artimu lazerio pažeidimo slenksčiui ( $\approx 10^{14} \text{ W/cm}^2$ ), Keldyšo parametras tampa artimas vienetui (1.4 pav.). Vadinasi, medžiagoje nėra vieno dominuojančio sugerties mechanizmo ir tuo pat metu vyksta abu procesai, kaip pavaizduota 1.3 pav., c). Kitose medžiagose draustinės juostos tarpas paprastai yra mažesnis, todėl ir spinduliuotės intensyvumai, reikalingi medžiagai pažeisti, yra mažesni. Būtent dėl šios priežasties modeliuojant netiesinius sugerties procesus praktiškai be išimties turima omenyje, kad vyraujantis netiesinės sugerties mechanizmas yra daugiafotonė jonizacija, o tunelinės jonizacijos įtaka yra labai maža.

### 1.2.2. Griūtinė jonizacija

Laisvas elektronas, būdamas laidumo juostoje, gali absorbuoti krintančius fotonus ir taip įgyti papildomos energijos [25]. Kai įgyta energija viršija medžiagos draustinės juostos tarpą, šis elektronas, sąveikaudamas su kristalo gardele, gali perduoti energiją valentinės juostos elektronui ir perkelti jį į laidumo juostą (1.5 pav., a) [26]. Taip vyksta smūginės jonizacijos procesas. Jei elektromagnetinis laukas yra intensyvus bei veikia pakankamai ilgą laiką, kurio užtenka įgreitinti ir naujam, jau laisvam elektronui, tada ir jis smūginės jonizacijos būdu gali sukurti laisvą elektroną. Besikarto-



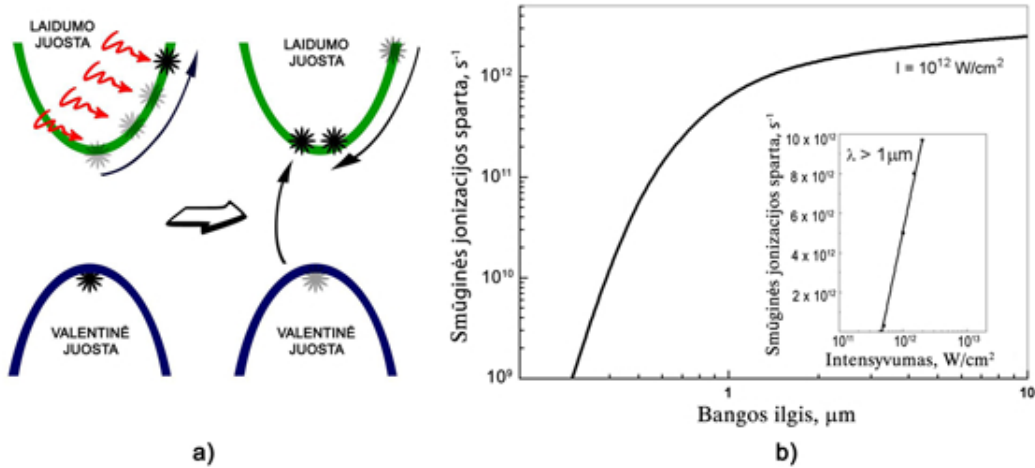
1.4 pav. Jonizacijos sparta lydytame kvarce, veikiant 1030 nm bangos ilgio spinduliuote. Ištininė kreivė rodo jonizacijos spartą pagal Keldyšo modelį [22]. Brūkšninė kreivė vaizduoja tik daugiafotonės sugerties įtaką, o taškinė – tunelinės jonizacijos spartą. Matyti, kad Keldyšo parametrui esant artimam vienetui, tiek tunelinės, tiek daugiafotonės jonizacijos įtaka yra vienoda.

jant šiam procesui ima vykti elektromagnetinės spinduliuotės inicijuotas griūtinis procesas, kuris vadinamas *griūtine jonizacija*. Jos metų laisvųjų elektronų skaičius auga eksponentiškai:

$$n(t) = n_0 e^{\beta t}, \quad (1.5)$$

čia  $n_0$  – pradinis elektronų tankis, o  $\beta$  nusako griūtinės jonizacijos spartą. Akivaizdu, jog norint, kad toks sugerties procesas vyktų, laidumo juostoje jau turėtų būti „užkratinis“ laisvas elektronas. Toks elektronas gali atsirasti po daugiafotonės sugerties proceso arba dėl medžiagos defektų bei priemaišų, padidinančių laidumo juostos elektronų koncentraciją.

Laisvas elektronas, sugerdamas fotoną, privalo sąveikauti su kristalo lauku, nes kitaip nebus tenkinamas judesio kiekio tvermės dėsnis. Todėl sugerties metu kristale visada vyksta fotono-elektrono-fonono sąveika [25]. Tikimybė elektronui sugerti fotoną fonono sklaidos metu iš esmės priklauso nuo krintančios spinduliuotės bangos ilgio. Paprastai ji yra mažesnė esant trumpesniems bangos ilgiams [27]. Kaip matyti iš 1.5 pav., b), efektyviausiai smūginė jonizacija vyks tada, kai  $\lambda > 1 \mu\text{m}$ . Bangos ilgiui mažėjant, sparta krenta ir daugiafotonės sugerties mechanizmas medžiagoje tampa dominuojantis. Teoriniai modeliai leidžia teigti, kad smūginės jonizacijos sparta tiesiškai priklauso nuo spinduliuotės intensyvumo [27, 28].



1.5 pav. a) Smūginės jonizacijos schema ir b) smūginės jonizacijos spartos priklausomybė nuo bangos ilgio bei spinduliuotės intensyvumo [27].

### 1.2.3. Lazero indukuotas medžiagos pažeidimas

Paveikus skaidrią terpę lazerio impulsu, kurio intensyvumas yra didesnis už gana griežtai apibrėžtą kritinį dydį, medžiagoje atsiranda optiniais metodais identifikuojami struktūriniai pakitimai. Toks pakitimas bendrai yra vadinamas lazerio indukuotu medžiagos pažeidimu, o spinduliuotės intensyvumas (ar energija), kuriai esant pažeidimas atsiranda, – lazerio indukuoto pažeidimo slenkstiniu intensyvumu. Medžiagos pažeidimo slenkstis, kuris gali būti tiksliai nustatytas, teikia daug informacijos apie dinaminčius procesus, vykstančius medžiagoje veikiant ją intensyvia lazerio spinduliuote.

Pagrindine lazerio indukuoto pažeidimo atsiradimo priežastimi laikoma šuoliškai pakitusi medžiagos sugertis. Dėl netiesinės sugerties medžiagoje formuojasi plazmos sritis, kurią sudaro laisvieji elektronai bei jonai. Plazmos sugertis yra artima metalų, o ne dielektrinių medžiagų sugerčiai.

Nagrinęjant plazmos sugertį galima remtis Drudės-Lorentco modeliu, kuris plačiai taikomas elektromagnetinės spinduliuotės sąveikai su metalais nagrinėti. Žinoma, kad metalai itin efektyviai atspindi regimąją spinduliuotę, tačiau didėjant spinduliuotės dažniui įvyksta šuoliškas atspindžio pakitimas [29]. Ribą, ties kuria įvyksta toks sugerties šuolis, apibūdina vadinamasis plazmos dažnis:

$$\omega_p = \sqrt{\frac{ne^2}{\varepsilon_0 m_0}}, \quad (1.6)$$

čia  $n$  yra tūrio vienetu esančių laisvųjų elektronų skaičius,  $m_0$  – elektrono masė, o  $e$  – elektrono krūvis. Plazmos dažnis metaluose yra medžiagos charakteristika, nes jis priklauso tik nuo laisvųjų elektronų skaičiaus ( $n$ ), kuris savo ruožtu priklauso nuo medžiagos cheminės sudėties. O lazerio indukuotoje plazmoje laisvųjų elektronų skaičius nuolat kinta. Todėl, remiantis (1.6) formule, galima įvertinti kritinį laisvųjų elektronų tankį, kuriam esant įvyks šuoliškas atspindžio (bei sugerties) pokytis [30]:

$$n = \frac{\omega^2 \varepsilon_0 m^*}{e^2}, \quad (1.7)$$

čia  $m^*$  – redukuota elektrono masė,  $\omega$  – spinduliuotės dažnis. Taigi lazerio indukuoto pažeidimo slenkstis iš esmės nusako intensyvumą, prie kurio laisvųjų elektronų tankis pasiekia kritinę vertę, kuri yra apie  $10^{21} \text{ cm}^{-3}$  regimajame diapazone.

Vyrauja nuomonė, kad medžiagos pažeidimas gali įvykti ir tada, kai elektronų kritinis tankis yra keliomis eilėmis mažesnis už apskaičiuotąjį remiantis Drudės-Lorentco modeliu. Ji grindžiama tuo, kad medžiaga yra pažeidžiama tada, kai energija, sutelkta laisvuosiuose elektronuose, tampa didesnė už gardelės ryšio energiją, o šuoliškas medžiagos sugerties pakitimas yra nebūtinai [31]. Tada daugeliui joniniu ryšiu susijusių dielektrinių medžiagų užtektų laisvųjų elektronų tankio  $\sim 10^{19} \text{ cm}^{-3}$  [32]. Vis dėlto tikroji kritinio tankio vertė, reikalinga pažeidimui sukelti, iki šiol nėra aiški.

Tiek taikomuoju, tiek fundamentiniu požiūriu yra svarbu nustatyti sugerties pobūdį, vyraujantį medžiagoje veikiant trumpaisiais lazerio impulsais. Kai procesas yra grynai daugiafotonis, tada visa spinduliuotės perduodama energija medžiagoje sukaupiama laisvuosiuose elektronuose, o gardelės temperatūra išlieka nepakitusi. Kita vertus, jei vyraus griūtinės jonizacijos procesas, dėl fononų sklaidos gardelės temperatūra ims kisti jau lazerio impulso sklidimo metu. Norint nustatyti sritį, kurioje šie abu procesai atsiskiria, sprendžiama laisvųjų krūvininkų generacijos spartos lygtis [28]:

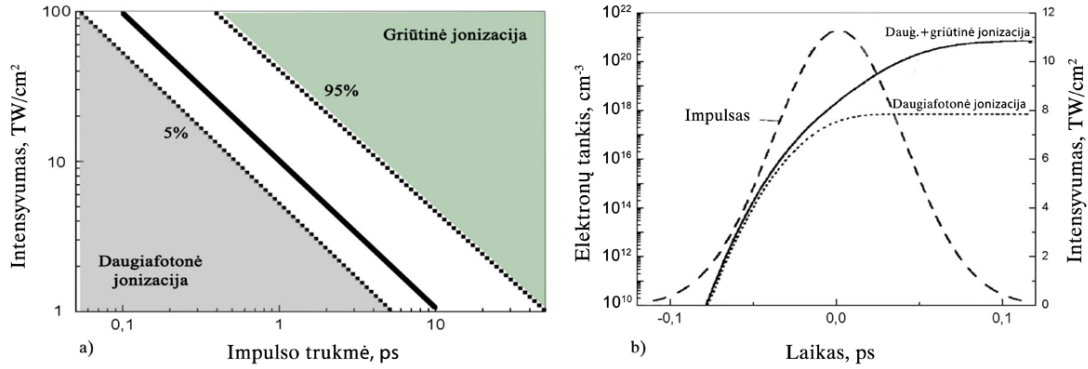
$$\frac{dn}{dt} = \sigma_k I^k + \beta n, \quad (1.8)$$

čia pirmasis narys apibūdina daugiafotonės jonizacijos įtaką, o antrasis nusako elektronų skaičiaus augimą dėl griūtinės jonizacijos.

Šios lygties sprendimas iš tiesų nėra trivialus. Literatūroje galima ras-

ti įvairių sprendimo metodų, kurie iš esmės skiriasi supaprastinimais ar prielaidomis, palengvinančiomis lygties sprendimą. Eksperimentai rodo, kad daugiafotonės jonizacijos būdu generuojamų elektronų skaičius gali būti pakankamai tiksliai įvertintas taikant Keldyšo teorinį modelį [28], nors kai kurie eksperimentiniai darbai leidžia abejoti šios teorijos tikslumu [33], mat ji neįskaito karštų elektronų kolektyvinės sąveikos [34], o ir pats modelis yra supaprastinamas, nes atmetamas tunelinės jonizacijos efektas, kuris kietuose kūnuose nėra nykstamai mažas [35]. Griūtinės jonizacijos modelyje taip pat yra daug neaiškumų. Nėra iki galo suprasta, kaip ir nuo kokių parametrų priklauso griūtinės jonizacijos koeficientas  $\beta$ . B. Stuart'as ir kt., analizuodami eksperimentinius rezultatus, priėjo prie išvados, kad šis koeficientas esant stipriems laukams tiesiškai priklauso nuo spinduliuotės intensyvumo [28]. Tačiau vėlesni griūtinės jonizacijos tyrimai puslaidininkiuose [36] bei dielektrikuose [27] leidžia spręsti, kad tokia priklausomybė yra mažai tikėtina. Todėl eksperimentinių duomenų analizėje dažnai naudojamas dar 1981 m. K. Thornber'o pasiūlytas modelis, kuris numato tiesinę griūtinės jonizacijos koeficiento priklausomybę nuo elektrinio lauko stiprio [35, 37]. Tokia komplikauta situacija yra susidariusi dėl to, kad koeficientas  $\beta$  sieja du skirtingus fizikinius procesus: laisvųjų elektronų sugertį bei smūginę jonizaciją. Šie procesai ir atskirai nėra gerai suprasti. Taip pat teiginys, kad laisvųjų elektronų generacijos sparta griūtinės jonizacijos metu yra proporcinga laisvųjų elektronų skaičiui, nėra iš esmės teisingas. Pirmiausia dėl to, kad tik elektronai, turintys energiją didesnę už draustinės juostos tarpą, gali dalyvauti griūtinės jonizacijos procese. Be to, yra įrodyta, kad medžiagoje egzistuoja laisvieji elektronai, turintys itin didelę energiją [27], o tai reiškia, kad ne visi elektronai dalyvauja jonizacijos procese. Taip pat laisvasis elektronas turi tikimybę rekombinuoti su atomo jonu, dėl to mažėja laisvųjų krūvininkų skaičius. Visi šie procesai apsunkena lazerinio pažeidimo formavimosi analizę ir egzistuoja gana skirtingos nuomonės apie griūtinės jonizacijos įtaką medžiagoje, veikiant ją femtosekundine lazerio spinduliuote.

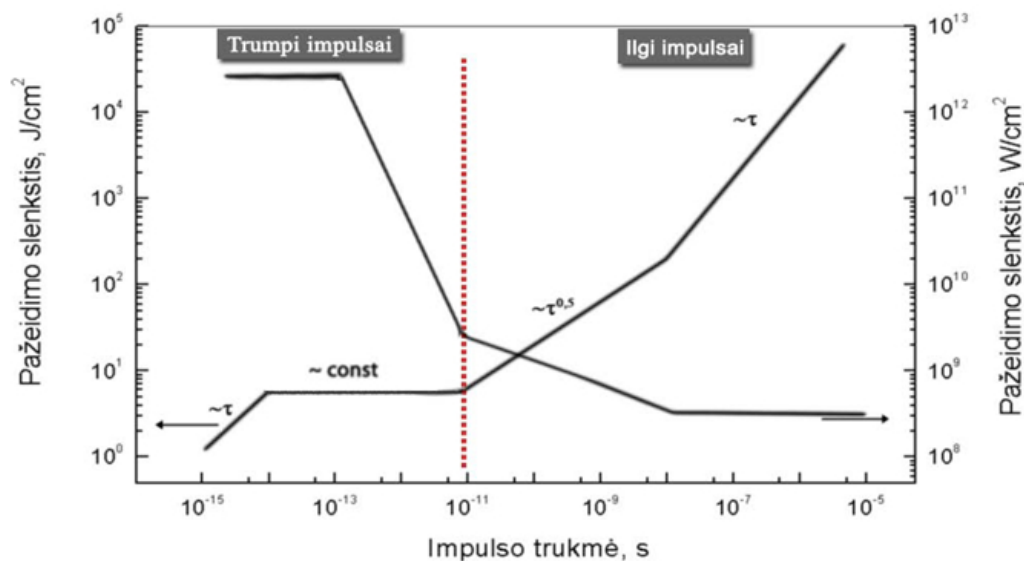
Atsiradus pakankamai eksperimentinių rezultatų ir pradėjus modeliuoti laisvųjų elektronų generacijos procesus, buvo manoma, kad, femtosekundiniu impulsu veikiant dielektrinę medžiagą, lazerinis pažeidimas formuojasi daugiausia tik dėl griūtinės jonizacijos proceso, o daugiafotonė jonizacija veikia tik kaip pirminis laisvųjų elektronų šaltinis. Buvo nustatyta, kad,



1.6 pav. a) Griūtinės jonizacijos metu sugeneruotų laisvųjų elektronų procentinės dalies priklausomybė ( $n_{gr}/n_{visi}$ ) nuo impulso trukmės bei intensyvumo. Užtamsintos zonos atskiria sritis, kur yra vienas dominuojantis sugerties procesas, ištisinė linija rodo sritį, kurioje abu sugerties procesai yra vienodi (pagal [38]). b) Elektronų tankio (ištisinė linija) kitimo dinamika Gauso lazerio impulso metu (brūkšninė linija). Kartu pateikiamas ir daugiafotonės jonizacijos proceso metu sugeneruotų elektronų tankio kitimas (taškinė linija), (pagal [28]).

pavyzdžiui, lydytame kvarce, daugiafotonė jonizacija yra vyraujantis sugerties procesas tik tada, kai impulsai yra trumpesni nei 10 fs [33]. Tačiau kiti tyrimai parodė, kad dėl anksčiau aptartų griūtinės jonizacijos savybių daugiafotonė sugertis išties vaidina esminį vaidmenį impulsams, kurie yra trumpesni nei 1 ps [39]. Kaip matyti iš 1.6 pav., a), veikiant femtosekundiniais impulsais, griūtinės jonizacijos metu sukurti laisvieji elektronai sudaro ne daugiau 5 % visų laisvųjų elektronų. Be to, reikia pastebėti, kad griūtinei jonizacijai pasireikšti reikalingas tam tikras laiko tarpas, todėl generuojami elektronai „vėluoja“ impulso atžvilgiu (1.6 pav., b). Dėl to laisvųjų elektronų kritinis tankis gali būti pasiekiamas tik impulso pabaigoje ir tik nedidelė impulso dalis patiria plazmos sugertį. Būtent dėl šios priežasties griūtinės jonizacijos procesas veikiant ilgesniais impulsais yra efektyvesnis.

Taigi įvairūs fizikiniai mechanizmai lemia skirtingas lazerio indukuoto pažeidimo slenksčio priklausomybes nuo lazerio impulso trukmės. R. Wood'as išskiria keturias zonas, kuriose paviršinio pažeidimo slenkstis kinta vis pagal kitą dėsnį (1.7 pav.) [40]. Tačiau apskritai galima atskirti dvi sritis – tai ilgųjų ir trumpųjų impulsų zonas, kuriose lazerinio pažeidimo formavimosi fizika iš esmės skiriasi. Ilgųjų impulsų ( $> 10$  ps) sukurtas pažeidimas yra grynai terminio pobūdžio – lazerio spinduliuotė medžiagoje sugerama laisvųjų elektronų, kurie perduodami savo energiją gardelei ją kaitina. Šilumos difuzijos koeficientas dielektrinėse medžiagose yra mažas,



1.7 pav. Lazero indukuoto pažeidimo slenkščio priklausomybė nuo impulso trukmės lydytame kvarce (bangos ilgis – 1064 nm, pagal [35, 40]).

todėl temperatūra lazero veikiamoje srityje gali pakilti pakankamai aukštai, kad medžiagoje pradėtų vykti faziniai virsmai arba atsirastų įtempimų sąlygoti įskilimai. Labai ilgų impulsų ( $> 10$  ns) smailinis intensyvumas yra per mažas, kad vyktų griūtinės jonizacijos procesas, todėl laisvųjų elektronų koncentracija gali padidėti tik dėl terminių efektų. Dėl šios priežasties spinduliuotės slenkstinis pažeidimo atsiradimo intensyvumas yra pastovus, o impulso energija tiesiškai priklauso nuo impulso trukmės ( $\tau$ ). Mažėjant impulso trukmei, smailinis spinduliuotės intensyvumas ima augti, todėl medžiagoje jau gali vykti griūtiniai procesai, kurie eksponentiškai didina laisvųjų elektronų skaičių, taip efektyvindami spinduliuotės sugertį. Todėl srityje maždaug nuo 10 ps iki 10 ns pažeidimo slenkstis mažėja pagal  $\sqrt{\tau}$  dėsnį. Svarbu pastebėti, kad norint, jog medžiagoje prasidėtų sugertis, joje jau turi būti laisvųjų elektronų. Nustatyta, kad net ir itin švariose medžiagose dėl priemaišų bei defektų savaiminių laisvųjų elektronų skaičius gali siekti  $> 10^8 \text{ cm}^{-3}$  [41], todėl ne visada lazero pluoštas gali pataikyti į sritį, kurioje toks laisvas elektronas egzistuoja. Taigi esant spinduliuotės intensyvumams, artimiems slenkstinėms vertėms, medžiagos lazerinis pažeidimas yra atsitiktinis. Todėl tiksliai nustatyti pažeidimo slenkstį gana sunku.

Toliau mažėjant impulso trukmei, pažeidimo slenkstis ima krypti nuo  $\sqrt{\tau}$  dėsnio. Tai vyksta dėl to, kad mažėja griūtinės jonizacijos įtaka lais-

vųjų elektronų generavimui – impulsas pasidaro per trumpas ir griūtinės jonizacijos procesas yra nutraukiamas anksčiau, nei reikia, kad būtų galima pasiekti kritinį laisvųjų elektronų tankį [34]. Taigi pati impulso trukmė pradeda riboti laisvųjų elektronų generacijos spartą, elektronai impulso veikimo metu nebespėja perduoti energijos gardelės fononams, todėl šis procesas ir pats medžiagos pažeidimas vyksta jau pasibaigus lazerio impulsui. Toks yra esminis skirtumas tarp medžiagos pažeidimo formavimosi veikiant ilgaisiais ir trumpaisiais impulsais. Nukrypimas nuo  $\sqrt{\tau}$  dėsnio prasideda, kai impulsų trukmės yra mažesnės nei 10 ps. Kita vertus, femtosekundinių impulsų trukmė jau yra pakankama, kad vyktų ir daugiafotonės jonizacijos procesas, kuris efektyviai didina laisvųjų elektronų skaičių. Kritinis tankis pasiekiamas net ir be griūtinės jonizacijos įtakos. Tuo metu lazerinio pažeidimo slenkstis vėl pradeda tiesiškai mažėti.

Reikia pastebėti, kad čia aptariamos lazerio indukuoto pažeidimo slenkščio variacijos atsižvelgiant į lazerio impulso trukmę yra tik kokybinio pobūdžio, nes realios pažeidimo vertės priklauso nuo gerokai daugiau spinduliuotės bei medžiagos parametrų. Analizuodami netiesinės sugerties mechanizmus, matėme, kad sugerties koeficientas iš esmės priklauso ir nuo spinduliuotės bangos ilgio, tad ir šis parametras daro įtaką pažeidimo slenkščiui. Svarbu paminėti, kad pažeidimo slenkstis priklauso ir nuo lazerio impulsų skaičiaus. Veikiant daugeliui impulsų tą pačią vietą, pastebėta, kad slenkstis lydytame kvarce gali sumažėti iki 70 %, dėl vadinamojo inkubacinio efekto [42]. Toks efektas pasireiškia dėl to, kad veikiant medžiagą lazerio spinduliuote, kurios intensyvumas yra mažesnis už medžiagos pažeidimo slenkstį, joje formuojasi ilgai gyvuojantys taškiniai defektai [43], surištieji ar Frenkelio eksitonai [44], atsiranda spalviniai centrai [45], kurie padidina medžiagos sugertį. Paskesnis lazerinis impulsas jau yra absorbuojamas efektyviau, ir medžiagos lazerinio pažeidimo slenkstis sumažėja.

Akivaizdu, kad reikia dar daug eksperimentinių ir teorinių tyrimų, kurie tiksliau atsakytų, kokią įtaką medžiagai turi spinduliuotės netiesinės sugerties procesai. Nors pagrindiniai netiesinės sugerties mechanizmai yra gana gerai suprantami, tačiau kai kurių jų poveikis medžiagai dar nėra iki galo išaiškintas, nėra nustatytos sąlygos, reikalingos lazeriniam medžiagos pažeidimui įvykti, trūksta tunelinės jonizacijos modeliavimo darbų.

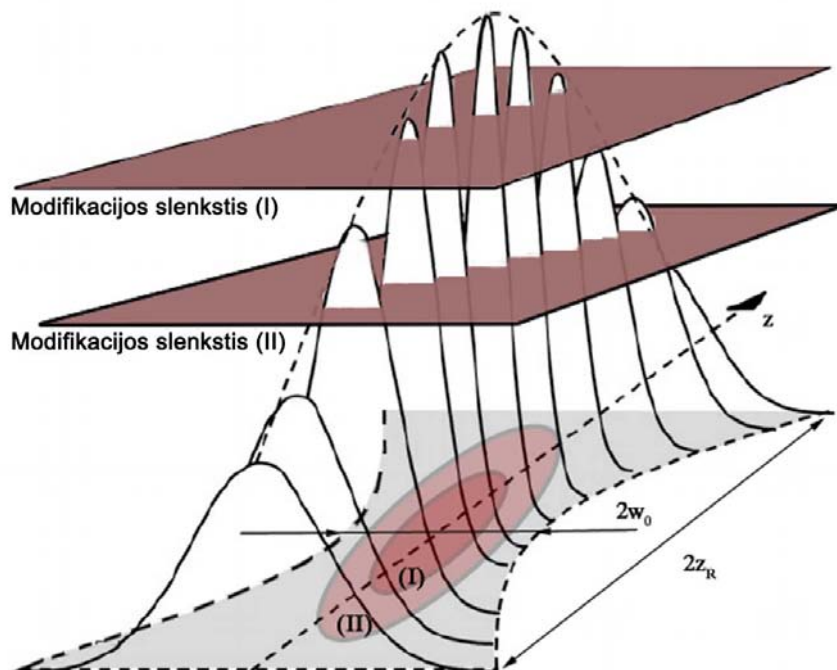


### 1.3. Skaidriųjų terpių modifikavimas

Slenkstinio intensyvumo, kuriam esant atsiranda lazerinis pažeidimas, egzistavimas atveria unikalias taikymo skaidriųjų medžiagų apdirbimui galimybes. Kontroliuojant lazerio impulso intensyvumą, galima parinkti tokias sąlygas, kad slenkstinis intensyvumas būtų viršijamas tik pluoštą fokusuojančio lęšio židinyje. Tokiu būdu lazerio indukuoto pažeidimo zona bus griežtai apibrėžta skaidriosios medžiagos tūryje. Pamažu keičiant židinio poziciją, skaidrioje terpėje galima formuoti įvairius trimačius objektus, foninius elementus ar integruotas optines sistemas su mikrometrine ar submikrometrine skiriamąja geba. Šiame poskyryje aptarsime tokių darinių formavimo principus.

#### 1.3.1. Medžiagos pažeidimas ir modifikavimas

Prieš pradėdant analizuoti lazerio indukuotų darinių ypatumus, svarbu išspręsti kai kurias terminologines subtilybes. Literatūroje terminu *lazerio indukuotas medžiagos pažeidimas* paprastai yra vadinamas bet koks lazerio spinduliuotės sukeltas negrįžtamas terpės savybių pakitimas, įprastai detektuojamas optiniais metodais (skaidriosioms terpėms dažnai dar naudojama *optinio pažeidimo* sąvoka) [40]. Šis terminas yra labai platus ir iš esmės apibūdina visus lazerio spinduliuotės sukurtus medžiagos struktūrinius pakitimus. Tačiau tam tikromis sąlygomis darinys, susiformavęs po medžiagos pažeidimo, išsiskiria itin aukštu reguliarumu, būna vienalytiškas ir jį galima aiškiai klasifikuoti. Tokie dariniai formuojasi todėl, kad lazerio impulsas, kurio intensyvumas yra artimas pažeidimo slenksčiui, gali reguliariai pakeisti ir modifikuoti medžiagos struktūrą. Todėl norint išskirti šiuos darinius iš kitų, darbe bus vartojamas terminas *lazerio indukuota medžiagos modifikacija*. Sąvoka *medžiagos pažeidimas* toliau vartojama tik tais atvejais, kai turima omenyje nereguliarūs dariniai, vizualiai detektuojamus medžiagos įskilimus ir pan. Tikimasi, kad tokiu būdu bus išvengta terminologinės painiavos, kuri dažnai pasitaiko mokslinėje literatūroje netiksliai apibrėžiant medžiagos pažeidimo bei lazerinio pažeidimo slenksčio sąvokas.



1.8 pav. Gauso pluošto intensyvumo pasiskirstymas židinyje ( $z$  – pluošto sklidimo kryptis). Medžiagos modifikavimas yra įmanomas tik slenkstinio intensyvumo apribotoje srityje. Atsižvelgiant į slenkščio vertę (ar spinduliuotės intensyvumą), pačios modifikuotos srities dydis gali būti mažesnis nei difrakcijos apribotas sąsmaukos diametras ( $2w_0$ ) ar sąsmaukos ilgis ( $2z_R$ ), [46].

### 1.3.2. Tūrinis medžiagos modifikavimas

Norint pasiekti didesnius nei  $\text{TW}/\text{cm}^2$  lazerio impulso intensyvumus reikalingus medžiagai modifikuoti, neišvengiamai tenka lazerio pluoštą fokusuoti. Kita vertus, fokusavimas leidžia selektyviai parinkti erdvės vietą, kurioje spinduliuotės intensyvumas pakankamas netiesinei sugerčiai inicijuoti.

Difrakcija apriboja minimalią erdvės sritį, į kurią lazerio pluoštas gali būti sufokusuotas. Jeigu fokusuotume plokščiąją bangą lęšiu, kurio skaitmeninė apertūra yra  $NA$  ( $NA = n \times \sin\theta$ , čia  $\theta$  yra lęšio fokusavimo kampas, apibrėžiamas kaip suformuoto fokusavimo kūgio puskampis, o  $n$  – terpės, kurioje yra židinio vieta, lūžio rodiklis), tada minimalus galimas pluošto spindulys sąsmaukoje apytiksliai būtų lygus

$$w_0 = \frac{0,61\lambda_0}{nNA}, \quad (1.9)$$

čia  $\lambda_0$  – spinduliuotės bangos ilgis [47]. Šis dydis iš tiesų nusako susiforma-

vusio Airy disko spindulį. Lazerio pluošto profilis paprastai yra artimesnis Gauso pasiskirstymui, tačiau jei lygintume tokių pluoštų erdvinį energijos pasiskirstymą, šis skirtumas būtų labai nedidelis. Plokščiosios bangos atveju 83 % energijos yra sutelkta Airy diske [48], o Gauso pluošto atveju 86 % energijos patenka po Gauso gaubtine  $1/e^2$  lygyje [49]. Todėl (1.9) formulė gana tiksliai aprašo fokusuotos dėmės dydį, aišku neįskaitant fokusuojančios optikos aberacijų. Gauso profilio pluošto pačios sąsmaukos ilgis, vadinamasis konfokalus parametras, atitinka dvigubą Reilėjaus ilgį (atstumą, kai spinduliuotės intensyvumas sumažėja du kartus):

$$2z_R = 2\frac{\pi w_0^2}{\lambda_0}n. \quad (1.10)$$

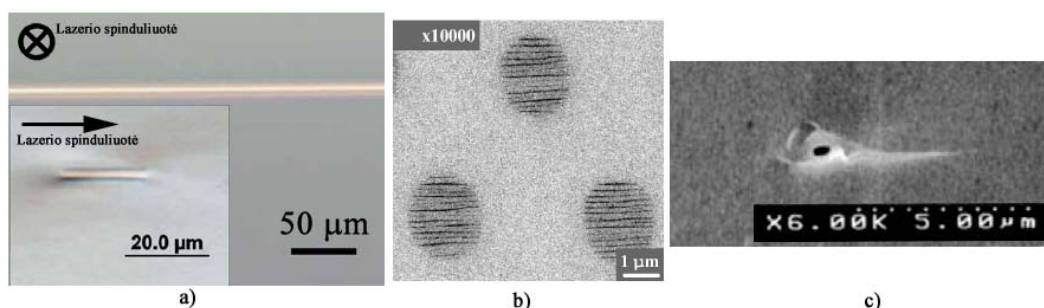
Kaip jau minėjome, norint modifikuoti medžiagą, reikia pasiekti tokį spinduliuotės intensyvumą, kuris būtų didesnis už tam tikrą slenkstinę vertę. Kaip matyti iš 1.8 paveikslo, nesunkiai galima įgyvendinti tokią situaciją, kad slenkstinis intensyvumas būtų viršijamas tik židinio aplinkoje. Taigi šiuo būdu galima kurti modifikuotus darinius medžiagos tūryje visiškai nepažeidžiant jos paviršiaus. Tai unikalus lazerinio apdirbimo pritaikymas, nes nėra daugiau technologijų, kuriomis būtų galima pasiekti panašius rezultatus. Parenkant intensyvumą, artimą pažeidimo slenkščiui, įmanoma sukurti darinius, kurie yra mažesni nei difrakcijos apribotas pluošto diametras. Tokia technologija ypač sėkmingai taikoma kuriant trimačius darinius su submikrometrine skiriamąja geba polimeruose [50]. Stikluose panašią skiriamąją gebą taip pat galima pasiekti [51], tačiau dėl netiesinių procesų, tokių kaip šviesos gijos formavimasis, modifikuotos medžiagos sritis padidėja. Nepaisant to, trimačių mikrodarinių formavimas yra sėkmingai įgyvendinamas.

### 1.3.3. Skaidriųjų terpių modifikacijų tipai

Parenkant skirtingus lazerio spinduliuotės parametrus, skaidrioje medžiagoje galima sukurti įvairių tipų modifikacijas. Nors pats modifikuotos srities pobūdis dažnai priklauso nuo medžiagos fizikinių savybių, iš esmės galima išskirti tam tikrus modifikacijų tipus, būdingus didžiai daliai skaidriųjų medžiagų (1.9 pav.). Veikiant medžiagą impulsu, kurio intensyvumas yra mažesnis nei modifikacijos slenkstis, terpėje jau gali atsirasti trumpai



1.9 pav. Ultratrumpaisiais lazerio impulsais indukuojamų modifikuotų darinių pobūdis.



1.10 pav. Ultratrumpaisiais lazerio impulsais modifikuota medžiaga. a) Šviesolaidis įrašytas fosfatiniame stikle (išilginis ir skersinis vaizdas, I tipo modifikuotas darinys) [53]; b) nanogardelės lydytame kvarce (II tipo modifikuotas darinys) [54]; c) mikroertmės lydytame kvarce [55].

gyvuojantys nestabilūs dariniai, kurie išsiskiria pakitusia sugertimi ar lūžio rodikliu [52]. Tokios modifikacijos vadinamos nestabiliosiomis. Kai spinduliuotės intensyvumas tik viršija slenkstinę liekamosios modifikacijos atsiradimo vertę, joje formuojasi vienalytė sritis su pakitusiu lūžio rodikliu (dažnai literatūroje dar vadinama *I tipo* modifikacija) [1]. Didinant intensyvumą, modifikuotos srities vienalytiškumas ima mažėti, be to, joje atsiranda dvigubas šviesos lūžimas (*II tipo* modifikacija) [56]. Dar smarkiau išaugus intensyvumui bei parinkus atitinkamas fokusavimo sąlygas, medžiagoje galima formuoti mikroprogimų inicijuotas mikroertmes [57]. Tipinės modifikacijų iliustracijos pateiktos 1.10 paveiksle. Tokie yra šiandienai žinomi pagrindiniai skaidriose medžiagose lazerio indukuojamų modifikacijų tipai. Vienose medžiagose tam tikro tipo modifikacijos gali dominuoti, o kitų tipų iš viso nebūti. Kitose medžiagose, pavyzdžiui, lydytame kvar-

ce, galima realizuoti visų tipų modifikacijas. Toliau detaliau aparsime šių modifikacijų formavimosi mechanizmus.

### **Nestabilios modifikacijos**

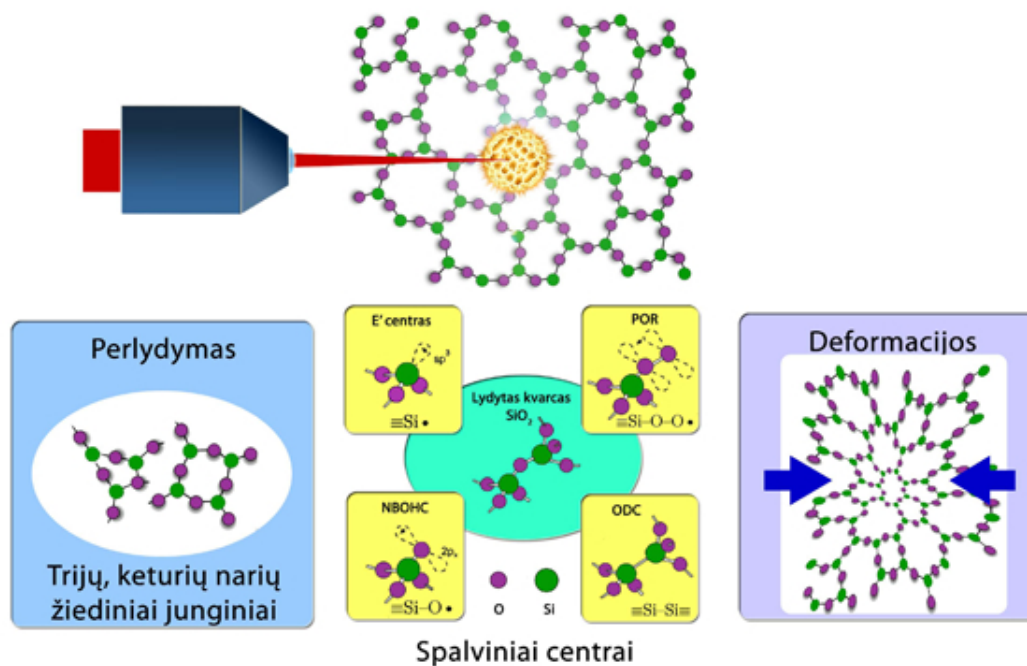
Prie šio modifikacijų tipo priskirsime visus lazerio impulso sukurtus darinius, kurie yra nestabilūs. Šiame kontekste vartodami „nestabilių modifikacijų“ sąvoką, turime omenyje darinius, kurie gali būti lengvai ištrinti arba išnyksta savaime ir neturi jokio liekamojo poveikio pačios terpės savybėms. Tokias modifikacijas galima atskirti ir kitu aspektu – tai modifikuotos medžiagos sritys, kurių atsiradimo mechanizmai nėra susiję su medžiagos struktūriniais pokyčiais.

Fokusuojant lazerio pluoštą į skaidrios terpės tūrį, dėl netiesinio sugerties proceso židinyje ima daugėti laisvųjų elektronų. Vien šių elektronų, t. y. plazmos, buvimas mažina medžiagos dielektrinę skvarbą, kartu mažindamas ir terpės lūžio rodiklį [29]. Kita vertus, jei spinduliuotės intensyvumas nėra pakankamas kritiniam tankiui pasiekti, pasibaigus impulso poveikiui laisvieji elektronai rekombinuoja. Rekombinacijos trukmė priklauso nuo medžiagos savybių, pavyzdžiui, lydytame kvarce ji yra labai trumpa ir siekia 150 fs (safyre ir kituose oksiduose  $< 100$  ps) [58]. Tokia greita relaksacija kvarce vyksta dėl to, kad elektronai efektyviai formuoja surištuosius eksitonus (angl. *self-trapped exciton*, STE) [59], kurie didina terpės lūžio rodiklį [52]. Nepaisant to, tokių defektų gyvavimo laikas yra  $< 1$  ms [60], todėl lūžio rodiklio pokytis yra trumpalaikis ir medžiaga relaksuoja į savo pradinę būseną.

Egzistuoja medžiagos, kurios savaime yra jautrios elektromagnetinei spinduliuotei. Pavyzdžiui, fotorefrakciniuose kristaluose lūžio rodiklio moduliācijas gali sukelti fotorefrakcinis efektas. Tačiau šiuo atveju tokios modifikacijos taip pat yra nestabilios, nes jei nenaudojamas papildomas terminis apdorojimas, jos gali būti ištrintos intensyvia spinduliuote (plačiau apie fotorefrakcinį medžiagos modifikavimą aprašyta 3.1 poskyryje).

### **Vienalytis lūžio rodiklio pakitimas**

Spinduliuotės intensyvumui viršijant tam tikrą kritinę vertę, modifikuotos medžiagos darinys jau tampa stabilus. Reguliarios formos skaidrius darinius įvairių tipų stikluose 1996 m. pirmasis pademonstravo Davis ir



1.11 pav. Lūžio rodiklio pokyčio atsiradimo mechanizmai lydytame kvarce. Intensyvia spinduliuote paveikta medžiaga po perlydymo gali sutankėti. Dėl cheminės struktūros pakitimo vietoj dominuojančių 5, 6 narių žiedinių darinių formuojasi 3 ir 4 narių dariniai. Taip pat galimas taškinų defektų - spalvinių centrų formavimasis. Medžiagą sparčiai kaitinant, susiformuoja vidinis slėgis, todėl vyksta gardelės deformacija. Visi šie reiškiniai daro įtaką lūžio rodiklio pokyčiui medžiagoje.

kt. [1]. Buvo nustatyta, kad sukurti dariniai turi izotropinį lūžio rodiklio pokytį, kuris gali siekti iki  $10^{-2}$ . Toks pokytis yra pakankamas, kad terpės tūryje galėtų būti realizuoti veikiantys bangolaidžiai, kuriuos ta pati mokslininkų grupė pademonstravo vėlesniuose darbuose [61]. Šie darbai smarkiai pastūmėjo integrinės optikos technologijos vystymąsi.

Nepaisant gausių tyrinėjimų, fizikiniai mechanizmai, lemiantys lūžio rodiklio pokytį, šiandienai nėra iki galo suprasti. Paveikus intensyviu lazerio impulsu, kietakūnėje terpėje gali vykti daug skirtingų procesų, kurie vienaip ar kitaip gali keisti lūžio rodiklį. Išskiriami trys galimi modeliai, aprašantys lūžio rodiklio pokyčius: terminis modelis, ilgai gyvuojančių defektų modelis bei gardelės deformacijų modelis (1.11 pav.).

**Terminis modelis.** Šis modelis yra grindžiamas tuo, jog medžiagos temperatūra židinio aplinkoje gali būti pasiekama pakankamai aukšta, kad galėtų įvykti medžiagos fazinis virsmas. Dielektrinių terpių šilumos laidumo koeficientas yra mažas, karštoji zona yra sukoncentruota mažoje erdvės

sirtyje, todėl net ir esant mažoms impulso energijoms ( $\approx 500$  nJ) galima įkaitinti medžiagą iki 2000 K ar dar daugiau [62,63]. Pasibaigus kaitinimui, dėl didelio temperatūros gradiento ši sritis sparčiai aušta (charakteringa relaksacijos trukmė  $> 1 \mu\text{s}$  [64]). Tokiu būdu terpės tūryje susiformuoja perlydytos medžiagos sritis, turinti peršaldyto skysčio savybių, kurios skiriasi nuo nepaveiktos medžiagos savybių. Žinoma, kad lydyto kvarco lūžio rodiklis būna didesnis ( $\approx 10^{-3}$ ), jei aukštos temperatūros būsenos kvarcas yra greitai atšaldomas [65]. Toks pokytis atsiranda dėl anomalaus šios medžiagos sutankėjimo: lydyto kvarco gardelė turi žiedinį darinį, suformuotą iš -O-Si-O- elementų. Įprastame kvarce dominuoja 5 ir 6 elementų žiedai, tačiau greitai aušinant karštos būsenos kvarcą itin ženkliai padaugėja 3 ir 4 elementų žiedų [66], todėl medžiaga tampa tankesnė. Iš tiesų lazerio modifikuotos zonos Ramano spektroskopiniai tyrimai patvirtina tokių žiedų atsiradimą [67], o eksperimentiniai darbai demonstruoja lūžio rodiklio padidėjimą lydytame kvarce [1, 68, 69]. Daugelio kitų stiklų peršaldyto lydalo fazė išsiskiria įprastu tankio sumažėjimu [65], todėl paveikus lazerio impulsu tikimasi ir sumažėjusio lūžio rodiklio. Iš tiesų eksperimentai borosilikatinuose, fosfatinuose ir kituose stikluose patvirtina tokį lūžio rodiklio sumažėjimą paveikus femtosekundiniu lazerio impulsu [70, 71]. Žinoma, kad pakaitinus lazeriu medžiagoje taip pat vyksta jonų persiskirstymas, kuris daro įtaką lūžio rodiklio pokyčiui [72].

Toks lūžio rodiklio modifikavimo aiškinimas remiantis termine medžiagos elgsena leidžia kokybiškai numatyti galimus medžiagos lūžio rodiklio pokyčius, tačiau toli gražu nepakankamas norint paaiškinti visus modifikuotos zonos ypatumus. Mikroskopinė modifikuotos zonos analizė rodo, kad lazerio impulso paveiktoje srityje lūžio rodiklio pasiskirstymas yra gana sudėtingas, stebimos įvairios lūžio rodiklio variacijos, kurios, be to, labai priklauso nuo krintančios spinduliuotės parametrų [73]. Paprastai jei modifikacijos centre yra padidėjęs lūžio rodiklis, tai periferijoje stebimos sumažėjusio lūžio rodiklio zonos, ir atvirkščiai. Parenkant atitinkamus impulso parametrus, galima toje pačioje medžiagoje indukuoti zonas su priešingo ženklo lūžio rodiklio pokyčiais [74]. Tokia situacija leidžia manyti, kad lazerio impulso sugerties metu vykstantys spartūs dinaminiai procesai sukelia papildomas gardelės deformacijas, kurios taip pat daro įtaką lūžio rodiklio pokyčiui.

***Deformacinis modelis.*** Kaip jau minėjome, femtosekundiniu impulsu

sugeneruotų laisvųjų elektronų relaksacija vyksta labai sparčiai ( $< 1$  ps). Iškart po relaksacijos didelis energijos kiekis yra žaibiškai perduodamas gardelai, todėl pakeliama jos temperatūra ir smarkiai apribotoje erdvėje sukuriamas aukštas termoelastinis įtempis. Relaksuodamas įtempis medžiagoje gali sukelti stiprias akustines bangas, kurios savo ruožtu gali sukelti plastines gardelės deformacijas. Tokių bangų egzistavimas yra patvirtintas eksperimentais [63]. Sklindanti banga sąveikauja su įkaitusia gardele ir sukuria nevienalytes tankio variacijas, kurios turi įtakos ir lūžio rodiklio pokyčiui. Kad vyksta toks medžiagos suspaudimas, taip pat patvirtina ir molekulinio ryšio kampo kitimas  $\text{SiO}_2$  molekulėje, fiksuojamas Ramano spektruose [75, 76]. Lokalūs tankio pakitimai neišvengiamai sukelia įtempio lauką lazerio nepaveiktoje srityje, matomą poliarizuojančiu mikroskopu [77]. Tačiau lūžio rodiklio pokyčio modeliavimai parodė, kad gardelės deformacijos sudaro tik apie 10 % viso stebimo lūžio rodiklio pokyčio [62, 68], taigi vien toks modelis negali išsamiai paaiškinti lūžio rodiklio atsiradimo priežasties.

Žinoma, kad kai kuriuos šviesai jautrius stiklus, tokius kaip germanio-silikatinis stiklas, paveikus šviesa, juose lūžio rodiklio pokytis atsiranda dėl smarkiai padidėjusių defektų skaičiaus [78]. Defektai keičia medžiagos pralaidumą, sukurdami naujas spektrines sugerties linijas, o dėl Kramerso ir Kroningo sąryšio [29] kartu ir terpės lūžio rodiklį. Panašūs procesai gali vykti ir kituose stikluose, todėl spalvinių centrų bei jų įtakos lūžio rodiklio pokyčiui tyrinėjimas yra neišvengiamas.

***Spalvinių centrų modelis.*** Dar praeito amžiaus viduryje pradėti plėtoti elektronų paramagnetinio rezonanso (EPR), liuminescencijos, šviesos sugerties matavimo metodai leido identifikuoti įvairius stiklo defektus, stebėti jų dinamikos kitimą veikiant įvairia spinduliuote, apšaudant didelės energijos dalelėmis ir pan. Stiklai yra amorfinės struktūros, todėl juose gausu įvairių gardelės defektų [79, 80]. Tokios pat konsistencijos stiklų terminė istorija gali skirtis, todėl skiriasi ir defektų pobūdis bei kiekis [81]. Taigi defektų tyrimai yra gana komplikuoti.

Nagrinėjant gryną lydytą kvarcą, būtų galima išskirti keturias būdingiausias defektų grupes: E' centrai ( $\equiv \text{Si} \bullet$ , čia ir toliau nesuporuotą elektroną žymėsime  $\bullet$ ), nesurištieji deguonies – skylės centrai ( $\equiv \text{Si}-\text{O} \bullet$ ) (angl. *non bonded oxygen hole centers* – NBOHC), peroksi radikalai ( $\equiv \text{Si}-\text{O}-\text{O} \bullet$ ) (angl. *peroxy radicals* – POR) bei deguonies vakancijos ( $\equiv \text{Si}-\text{Si} \equiv$ )



(angl. *oxygen deficiency centers* – ODC). Šių defektų formulės ir sandara pavaizduotos 1.11 paveiksle. Kiekvienas defektas turi ir atskirus poklasius, kurių čia neanalizuosime (detalią apžvalgą galima rasti [80]). Visi išvardyti defektai gali būti indukuoti tiek ultravioletine lazerio spinduliuote [82], tiek femtosekundine infraraudonąja spinduliuote [83].

Spalvinių centrų, inicijuotų ultratrumpąja lazerio spinduliuote, sistemingų tyrimų kol kas dar nėra, todėl jų formavimasis dar nėra visiškai suprastas. Skirstant defektus pagal jų atsiradimą nuo krintančios impulso energijos, pirmiausiai pastebimas spalvinis centras (esant impulso energijai  $> 0,4 \mu\text{J}$  ir naudojant vidutinio aštrumo fokusavimą ( $\text{NA}=0.5$ )) yra NBOHC, turintis sugerties linijas ties 258 nm bei 620 nm [67, 81]. Kai impulso energijos taip pat mažos, pastebima liuminescensinė linija ties 540-560 nm, kuri kol kas nėra identifikuota [67, 84]. Padidinus impulso energiją ( $> 1 \mu\text{J}$ ), atsiranda ir kiti spalviniai centrai: E' centrai su sugerties linija ties 214 nm, POR ties 230 nm ir ODC ties 248 nm [81, 83]. Kaip jau minėjome, defektų atsiradimas priklauso ir nuo paties stiklo tipo, pavyzdžiui, turint šiek tiek kitokio tipo lydytą kvarcą (šiuo atveju - Infrasil), E' centrai esant mažesnėms energijoms generuojasi efektyviau negu NBOHC [81].

Kituose stikluose aptinkami panašių tipų defektai: germaniosilikatiniuose stikluose dominuoja germanio-deguonies skylės centrai [85], borosilikatiniuose stikluose – boro-deguonies skylės centrai [86] ir pan.

Pats defektų atsiradimo mechanizmas taip pat nėra iki galo suprastas. Akivaizdu, kad staigus medžiagos perlydymas, dideli įtempimai gali traukyti molekulinius ryšius ir kurti defektus [84]. Kita vertus, ir tiesioginis daugiafotonis žadinimas be šiluminio poveikio gardelei yra galimas [81]. Nėra iki galo suprasta, kokią įtaką defektams daro STE generavimas. Žinoma, kad apie 1 % STE relaksuodami sukelia gardelės defektus [87]. Taip pat fiksuojami ir defektų virsmai iš vieno tipo į kitą, kurie intensyvėja didinant terpės temperatūrą [83].

Spalvinių centrų įtaka lūžio rodiklio pokyčiui yra diskutuotina. EPR matavimai rodo, kad sužadintoje medžiagoje gali atsirasti iki  $10^{19} \text{ cm}^{-3}$  defektų, kurie atitinkamai sukeltų lūžio rodiklio pokytį iki  $10^{-3}$  [62]. Kita vertus, tiesiogiai matuojant sugertį, dėl defektų fiksuojamas gerokai mažesnis lūžio rodiklio pokytis ( $10^{-8}$ ) [76]. Tokius skirtumus greičiausiai lemia skirtingi lazerio impulso ir fokusavimo parametrai, tačiau yra bendra nuomonė, kad spalviniai centrai neišsiskiria ilgalaikiu stabilumu ir gali būti išnaikinti

terminio apdorojimo metu (atkaitinant 200 °C temperatūroje). Tačiau pačios lūžio rodiklio modifikacijos yra gana stabilios iki 700 °C [62, 69].

Reali lūžio rodiklio pokyčio atsiradimo priežastis, ko gero, slypi visuose trijuose modeliuose. Manoma, kad dažniausiai lūžio rodiklio pokytis atsiranda dėl terminio medžiagos poveikio, kuris savo ruožtu sukelia gardelės deformacijas [88]. Tačiau terminiu modeliu pilnai negalima paaiškinti lūžio rodiklio pokyčio atsiradimo medžiagą veikiant mažo intensyvumo (nepakankamo medžiagos faziniam virsmui sukelti), bet didelio impulso pasikartojimo dažnio lazerio spinduliuote [62]. Kita vertus, deformaciniu ar spalvinių centrų modeliu prognozuojamas gerokai mažesnis pokytis nei yra stebimas. Tokia situacija verčia daryti išvadą, kad nepaisant 15 metų tyrimų šioje srityje yra dar daug neaiškumų.

### **Dvejopai laužianti sritis. Nanogardelės**

Esant didesnėms energijoms, modifikuotos zonos vienalytiškumas sumažėja, be to, šie dariniai pasižymi dvejopu šviesos lūžimu. Kad būtų galima atskirti nuo kitų, šios modifikacijos pavadintos II tipo modifikacijoms [56]. Tik visai neseniai surastos priežastys, lemiančios dvejopo lūžio rodiklio atsiradimą. Buvo nustatyta, kad jis atsiranda dėl nanostruktūrizacijos, vykstančios lazerio paveiktoje zonoje [54].

Savaiminis nanodarinių formavimasis medžiagos paviršiuje veikiant lazerio spinduliuote pastebėtas jau pačioje lazerinių tyrimų aušroje [89]. Paviršiaus abliacijos metu atsirandančios nanogardelės (vadinamieji „nanoraibuliai“), turinčios periodą, artimą lazerio spinduliuotės bangos ilgiui, ir orientaciją, priklausomą nuo spinduliuotės poliarizacijos, yra pastebimos praktiškai visose medžiagose: metaluose [90], puslaidininkiuose [91], dielektrikuose [92], veikiant įvairiais nuolatiniais ar ultratrumpaisias spinduliuotės šaltiniais. Šis gana universalus reiškinys nėra iki galo suprastas. Šie dariniai formuojasi medžiagos paviršiuje, todėl manoma, kad jų atsiradimo priežastis yra krintančios ir nuo paviršiaus išsklaidytos spinduliuotės interferencija [93].

Shimotsuna ir kt. Ožė mikroskopu analizuodami II tipo modifikacijas lydytame kvarce, nustatė, kad nanogardelės gali formotis ir medžiagos tūryje [54]. Lazerio paveiktoje zonoje susiformuoja nanogardelė, kurios režio storis  $< 10$  nm, o periodas keletą kartų mažesnis už bangos ilgį. Be to, gar-

delės orientacija yra statmena krintančios spinduliuotės poliarizacijai [94]. Spektroskopiniai tyrimai parodė, kad nanogardelėje periodiškai kinta medžiagos tankis. Be to, lydyto kvarco atveju stebimas deguonies atomų sumažėjimas praretėjusios medžiagos zonoje, o silicio atomų skaičius išlieka nepakitęs. Taip pat pastebėta, kad nanogardelės režiai iki 300 kartų efektyviau išsinašami HF rūgštyje nei tarp režijų esanti nepaveikta medžiaga [95]. Panašios gardelės taip pat buvo užregistruotos ir telūro dioksido ( $\text{TeO}_2$ ), kuriame nanogardelė susiformuoja iš periodiškai išsidėsčiusių pažeidimų [96]. Kitose medžiagose tokios nanogardelės dar nebuvo užfiksuotos.

Tokių nanodarinių formavimo fizika dar nėra suprasta, nes kol kas trūksta eksperimentinių duomenų. Vienas iš aiškinimų grindžiamas tuo, kad intensyvios elektromagnetinės bangos ir elektronų plazmos kuriamo elektrinio lauko interferencija gali suformuoti panašius darinius [54, 96]. Dėl šios interferencijos, spinduliuotė moduliuoja plazmos tankį ir iš esmės padalija plazmą į atskiras nanoplokštumas, kurios atskirtos viena nuo kitos periodu, lygiu pusei spinduliuotės bangos ilgio. Kituose darbuose gardelių periodiškumas gaunamas gerokai mažesnis nei pusė bangos ilgio. Be to, pastebima, jog gardelės periodui turi įtakos impulsų pasikartojimų dažnis [97]. Šie rezultatai leidžia abejoti interferencine gardelės formavimosi teorija ir plazmos nanoplokštumų formavimasis aiškinamas remiantis plazmoniniais efektais [94]. Sąlygos, reikalingos plazmos tankio pasiskirstymui susidaryti, yra neišaiškintos. Reikia pastebėti, kad gardelės periodiškumas ir reguliarumas išsilaiko ir makroskopiniais atstumais, įrašymo metu lėtai transliuojant bandinį fiksuotos židinio pozicijos atžvilgiu [94]. Todėl galima teigti, kad plazmos tankio persiskirstymą gali lemti ir medžiagos defektai. Vieno lazerio impulso sukurti medžiagos defektai „atsimena“ pirminį plazmos pasiskirstymą ir šią informaciją perduoda kitiems impulsams pakartotinai veikiant tą pačią vietą arba lėtai transliuojant bandinį.

Toks nanogardelių, orientuotų viena kryptimi, buvimas paaiškina dvejojimo lūžio rodiklio atsiradimą II tipo modifikacijose [98]. Keičiant spinduliuotės poliarizaciją, intensyvumą bei modifikuotos zonos plotą, galima manipuluoti šiuo dvejopai laužiančiu efektu. Jau yra demonstruojamos tokiu principu suformuotos fazinės plokštelės [99].

## Mikroertmės

Aštriai fokusuojant itin intensyvią lazerio spinduliuotę, galima medžiagoje inicijuoti mikrosprogimus. Mikrosprogimo eigoje medžiaga iš sprogimo epicentro yra išstumiamą į periferines zonas. Taip suformuojamos tuščios (ar gerokai praretėjusios) ertmės medžiagos tūryje. Mikrosprogimą sukelia vadinamasis Kulono sprogimas [57]. Intensyvi lazerio spinduliuotė staigiai nuplėšia gardelę rišančius kovalentinius elektronus, o likę teigiami jonai išsisklaido į šalis veikiami kuloninių jėgų. Šis staigus medžiagos plitimas ir aukšta temperatūra medžiagos tūryje gali sukelti itin ekstremalias sąlygas, kurias galima palyginti su sąlygomis, esančiomis Žemės branduolyje ar net žvaigždėse. Modeliavimai rodo, kad sprogimo metu sukurti slėgiai gali pasiekti  $> 10$  TPa, temperatūra per itin trumpą laiko tarpą (medžiagos kaitimo (aušimo) greičiai siekia  $10^{18}$  K/s) gali pakilti iki  $10^5$  K [47, 100]. Tokios sąlygos iš esmės gali pakeisti pačios medžiagos cheminę sudėtį, suformuoti tokias medžiagos fazes, kurios paprastomis sąlygomis negali būti sukurtos. Šiuo metodu buvo pademonstruotas safyro amorfinės fazės kūrimas [101].

Taip pat demonstruojama mikroertmių manipuliavimo galimybė. Mikroertmei galima pritaikyti oro burbulo vandenyje analogą. Stumdant židinio poziciją bandinyje, galima keisti ertmės poziciją, perstumti į kitą vietą ar sujungti kelias ertmes į vieną. Toks procesas yra įmanomas dėl to, kad lazerio pluoštas išlydo medžiagą, o lydalas geba užpildyti prieš tai sukurtas ertmes [102]. Manoma, kad tokia technologija gali pasinaudoti trimačių duomenų perrašinėjimo technologijos vystymuisi.

### 1.3.4. Spinduliuotės parametru įtaka modifikacijoms

Praeitame poskyryje aptartos įvairių pobūdžių modifikacijos, indukuojamos ultratrumpaisiais lazerio impulsais. Tačiau visiškai neanalizavome lazerio spinduliuotės parametru, reikalingų tokioms modifikacijoms sukurti. Spinduliuotės intensyvumas, bangos ilgis, impulso trukmė, impulsų pasikartojimo dažnis, fokusavimo aštrumas, medžiagos optinės bei fizikinės savybės ir kiti parametrai gali daryti įtaką indukuojamų modifikacijų tipui ar jų kokybei. Be to, dar ne iki galo suprasti fizikiniai mechanizmai, lemiantys modifikacijų atsiradimą, apsunkina tokią šviesos ir medžiagos sąveikos analizę. Todėl, norint indukuoti norimo tipo modifikacijas su pasirinkta

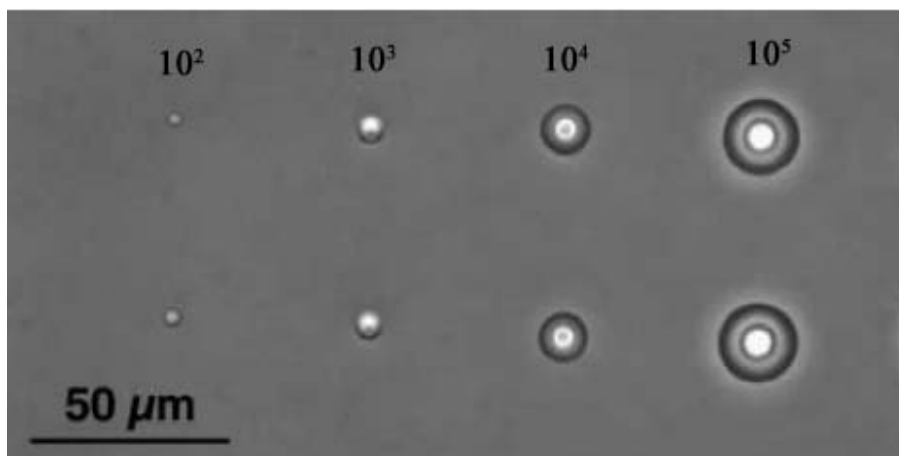
lazerine sistema, kol kas tenka eksperimentiniu būdu parinkti reikiamus spinduliuotės parametrus. Vis dėlto gana platus spektras mokslinių darbų, susijusių su skaidriųjų terpių modifikavimo tyrimais, leidžia perprasti esminių įrašymo parametrų įtaką modifikacijų kūrimui.

Didžiausioji dalis tyrimų buvo atlikti naudojant populiariausias, Ti:safyro pagrindu veikiančias lazerines sistemas. Jos generuoja 800 nm bangos ilgio impulsus, kurių trukmė siekia mažiau nei 100 fs. Tokių sistemų impulsų pasikartojimo dažnis būna nedidelis ir siekia 1 kHz. Vienalytės lūžio rodiklio modifikacijos lydytame kvarce naudojant tokio tipo sistemas stebimos esant impulso intensyvumui apie 40–200 TW/cm<sup>2</sup> (spinduliuotės energijos tankis 4–20 J/cm<sup>2</sup>). II tipo modifikacijos pradeda atsirasti, kai intensyvumai yra 200–600 TW/cm<sup>2</sup> (20–60 J/cm<sup>2</sup>), o mikropažeidimai atsiranda, kai intensyvumas didesnis nei 600 TW/cm<sup>2</sup> (> 60 J/cm<sup>2</sup>). Tokios vertės gaunamos fokusuojant spinduliuotę su lęšiu, kurio skaitmeninė apertūra lygi 0,65 [103].

Intensyvumą galima keisti naudojant kitokio aštrumo fokusuojančią optiką, tačiau pats lęšio židinio nuotolis gali labai pakeisti sukurtos modifikacijos pobūdį. Naudojant mažos skaitmeninės apertūros lęšius (NA < 0,2), modifikacijos atsiradimo slenkstis yra pasiekiamas tik tada, kai spinduliuotės galia jau viršija medžiagos fokusavimosi slenkstį. Dėl to susidariusios medžiagos modifikacijos jau būna smarkiai paveiktos filamentacijos reiškinio. Gijos formavimosi metu spinduliuotės energija persiskirsto dideliame plote, todėl modifikacijos išilginiai matmenys smarkiai pakinta, jos išilginis ilgis gali siekti net keletą milimetrų [104]. Židinyje padidėjusi laisvųjų elektronų koncentracija mažina medžiagos dielektrinę skvarbą, todėl spinduliuotė visada yra iš dalies sklaidoma bei atsiranda filamentacijos užuomazgos net ir naudojant vidutinio aštrumo objektyvus (NA ∈ (0,4 – 1)). Dėl šios priežasties modifikacijos morfologija tampa nevienalytė. Arti židinio esančioje srityje lūžio rodiklio pokytis paprastai būna didesnis, o jos matmenys artimi ar net mažesni nei lęšio apribotas sąsmaukos plotis ar fokusavimo gylis. Už šios zonos išilgai impulso sklidimo krypties atsiranda silpniau modifikuota sritis, kurios ilgis priklauso nuo fokusuojančio lęšio parametrų. Taigi reguliarių mikroertmių formavimas galimas tik su itin aštriais fokusuojančiais objektyvais (NA > 1) [105]. Mat norint inicijuoti mikroprogimus, visa spinduliuotės energija turi būti sutelkta į kuo mažesnę tūrio vieneta. Todėl filamentacijos reiškinys turi būti kiek įmanoma mažesnis.

Kaip jau minėta, medžiagos relaksacinės trukmės, paveikus ultratrumpaisiais lazerio impulsais, siekia mikrosekundines skales. Todėl naudojant lazerines sistemas, kurių impulsų pasikartojimų dažnis yra didelis, galimas terminės akumuliacijos efektas, nes medžiaga jau nebespėja ataušti iki to laiko, kol ateina kitas impulsas. Ši akumuliacija keičia modifikacijos pobūdį. Pastebima, kad tokiomis sąlygomis modifikuotas darinys tampa didesnis ir jo matmenys ima priklausyti nuo lazerio ekspozicijos trukmės. Svarbu pastebėti, kad šis efektas stebimas ne visose medžiagose: jis yra ypač ryškus borosilikatiniuose stikluose, bet visiškai silpnas lydytame kvarce [106, 107]. Toks efekto selektyvumas medžiagai nėra iki galo suprastas, tačiau manoma, kad priežastis galėtų būti didesnis lydyto kvarco draustinės juostos tarpas bei aukštesnė fazinio virsmo temperatūra (1800 °C) [107]. Ribinis lazerio impulsų pasikartojimo dažnis, kuriam esant jau pastebimas terminės akumuliacijos efektas, yra 0,5 MHz (impulsai krinta į medžiagą kas 2 μs). Kai dažniai mažesni (< 0,2 MHz), šis efektas pastebimas tik esant intensyvumams, gerokai viršijantiems pažeidimo slenkstį [108].

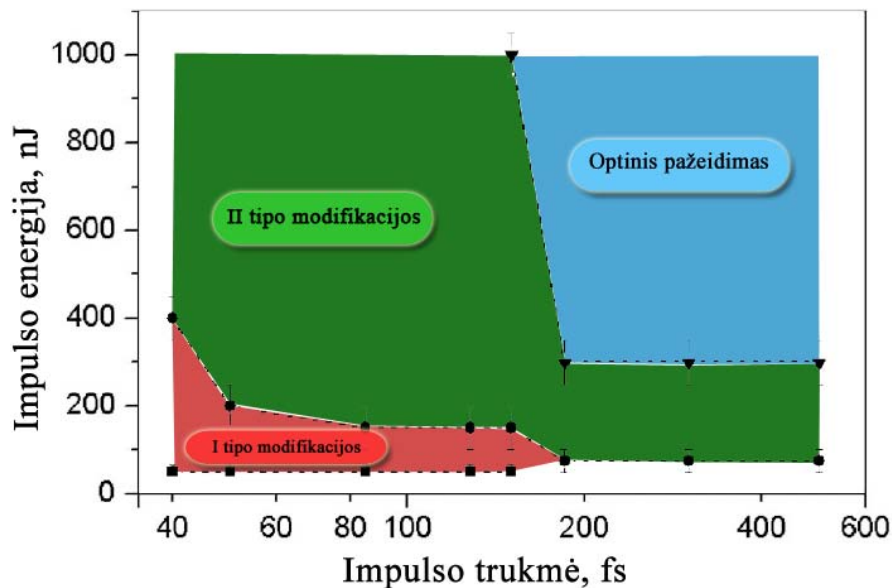
Tipinės modifikacijos borosilikate, sukurtos 25 MHz lazerinėmis sistemomis pavaizduotos 1.12 paveiksle. Kaip matome, šios modifikacijos nuo mažesnio impulsų pasikartojimo dažnio indukuotų modifikacijų skiriasi tuo, kad turi papildomą sferiškai simetrinį apvalkalą. Jo lūžio rodiklis yra pakitęs, o diametras daug kartų didesnis nei fokusuotos dėmės dydis. Šis diametras priklauso nuo kritusių impulsų skaičiaus, t. y. nuo lazerio ekspozicijos trukmės. Toks kvazinuolatinis lazerinis kaitinimas leidžia židinio aplinkoje pasiekti temperatūras, gerokai viršijančias medžiagos fazinio virsmo temperatūrą, net ir esant mažai lazerio impulso energijai (tokie dariniai sėkmingai užrašomi su 5 nJ energijos femtosekundiniais impulsais [109]). Be to, paveikta zona išplinta dėl šilumos difuzijos. Modifikuotas darinys turi aiškiai identifikuojamas ribas, todėl manoma, kad tokia termoakumuliacinė modifikacija yra slenkstinis procesas, ir medžiagos lūžio rodiklis pakinta tik tada, kai pasiekiamas tam tikra slenkstinė temperatūra. Šią temperatūrą kai kurie autoriai prilygina tiesiog fazinio virsmo temperatūrai, kuriai esant vyksta medžiagos perlydymas [106, 110]. Kituose modeliuose parodoma, kad ši temperatūra yra kiek mažesnė ir artima vadinamajam darbinės temperatūros slenksčiui, t. y. temperatūrai, kurią viršijant šuoliškai pakinta stiklo klampumas [107, 111, 112]. Ši temperatūra nėra tik medžiagos parametras, bet priklauso ir nuo išorinių sąlygų: aplinkos temperatūros, slėgio,



1.12 pav. Modifikacijos borosilikatiniame stikle, įrašytos su skirtinga lazerio ekspozicija (skaičius virš modifikuotos zonos nurodo kritusių impulsų skaičių) naudojant didelio impulsų pasikartojimo skaičiaus (25 MHz) lazerinį osciliatorių, gebantį generuoti 5 nJ, 30 fs trukmės impulsus [109].

medžiagos kaitinimo spartos ir kt. [111]. Lyginant su centrine modifikuotos zonos dalimi, apvokale stebimas lūžio rodiklio sumažėjimas, todėl apvokalas smarkiai pagerina įrašomų šviesolaidžių borosilikatiniuose stikluose kokybę [108, 109].

Kitas svarbus parametras, lemiantis modifikacijos tipą, yra impulso trukmė. Impulso trukmės įtaką medžiagos pažeidimui jau nagrinėjome aptardami netiesinės sugerties niuansus. Čia aptarsime tik eksperimentinius rezultatus, susijusius su lūžio rodiklio modifikacijų indukavimu. Modifikacijų morfologijos įtaka kintant impulso trukmei iki šiol nėra nuosekliai tyrinėta. Yra keltas darbų, kuriuose buvo gilintasi į šią problemą, tačiau jie gana skiriasi modifikacijų įrašymo režimais. Tyrinėjant modifikacijas lydytame kvarce, indukuotas šviesos gija, t. y. naudojant silpnai fokusuojančią optiką ( $NA < 0,1$ ), buvo nustatyta, kad lūžio rodiklio modifikaciją (šiuose darbuose nebuvo tyrinėjama, kokio tipo ši modifikacija yra) galima sukelti tik tada, kai trukmė yra mažesnė nei 250 fs [104, 113]. Esant ilgesnėms trukmėms formuojasi intensyviai šviesą sklaidantis optinis pažeidimas. Impulso trukmės įtaką modifikacijų morfologijai naudojant aštriau fokusuojančius objektyvus tyrinėjo Hnatovsky ir kt. [114]. Pagrindiniai rezultatai pavaizduoti 1.13 paveiksle. Matome, kad I tipo modifikacijos formuojasi tik esant trukmėms, mažesnėms nei 200 fs. Kai trukmės yra ilgesnės, modifikacijos jau išsiskiria dvejopu lūžimu. Apie siaurėjantį I tipo modifikacijos induka-



1.13 pav. Lazerio impulso trukmės įtaka modifikacijos tipui lydytame kvarce (spinduliuotės bangos ilgis - 800 nm, fokusuota 0,65 NA objektyvu)(pagal [114]).

vimo langą didėjant impulso trukmei praneša ir Cheng ir kt. [115]. Borosilikatiniuose stikluose, kuriuose II tipo modifikacijos nestebimos, vienalyčiai lūžio rodiklio pokyčiai gaunami ir su impulsais, kurių trukmė siekia keletą pikosekundžių [74].

Spinduliuotės bangos ilgio įtaka modifikacijų indukavimui vis dar lieka labai diskutuotina. Matuojant modifikacijų, indukuotų su skirtingais bangos ilgiais, atsiradimo slenksčius įvairiose skaidriose medžiagose, didelio skirtumo nepastebima – slenksčio skirtumas tarp 800 nm ir 400 nm indukuotų slenksčių sudarė tik 10 % [24]. Remiantis Keldyšo teorija, trumpesnis bangos ilgis padidina daugiafotonės jonizacijos tikimybę, tačiau esant ilgesnėms bangoms atitinkamai išauga tunelinės jonizacijos sparta. Remiantis šiais samprotavimais, galima teigti, jog bendrasis netiesinės sugerties koeficientas mažai kinta, keičiantis bangos ilgiui. Tačiau vis dar trūksta tyrimų, kurie galėtų tvirčiau pagrįsti šį teiginį.



## 1.4. Fotoniniai elementai skaidriųjų medžiagų tūryje

Pastebėjus, kad ultratrumpaisiais lazerinio impulsais galima keisti skaidriųjų terpių optines savybes, net ir galutinai nesupratus šio reiškinio prigimties, prasidėjo galimų šios technologijos taikymų analizė, pademonstruota didelė gausa įvairių fotoninių elementų, įrašytų įvairaus tipo stikluose. Išsamią tokiu metodu sukurtų elementų apžvalgą galima rasti Della Valle ir kt. straipsnyje bei ten esančiose nuorodose [3]. Todėl šiame skyrelyje apžvelgsime tik esminius taikymus, demonstruojančius įvairių tipų modifikacijų panaudojimą praktiniais tikslais.

Jau patys pirmieji skaidriųjų terpių modifikavimo darbai, atlikti Hirao grupės [1, 61], pademonstravo šviesolaidinį efektą, atsirandantį dėl lokaliai pakitusio medžiagos lūžio rodiklio. Lėtai stumiant bandinį židinio padėties atžvilgiu, automatiškai formuojasi šviesolaidis, kurio forma ir struktūra priklauso nuo bandinio transliavimo geometrijos bei rašančiojo pluošto parametrų. Nors skirtingos medžiagos skirtingai reaguoja į femtosekundinius impulsus, įvairūs technologiniai sprendimai leidžia kurti šviesolaidžius įvairaus tipo medžiagose: lydytame kvarce, borosilikatiniame stikle, daugiakomponentiniuose stikluose, netiesiniuose kristaluose, polimeruose ir kt. Tokios technologijos lankstumą demonstruoja sudėtingesni fotoniniai elementai, tokie kaip integruoti šviesolaidiniai daugiakanaliai šakotuvai, kaupikliai, interferometrai ir kitokie mikroprietaisai. Tipiniai šviesos sklidimo nuostoliai tokiuose elementuose siekia 0,1–1 dB/cm [61, 107]. Tokie elementai kol kas atsilieka savo efektyvumu nuo šviesolaidžių, integruotų ant silicio padėklo (angl. *silica-on-silicon technique*). Pastarųjų nuostoliai siekia mažiau nei 0,8 dB/m [116], tačiau tokia metodika nėra tiek universali ir jos taikymo galimybės yra gana ribotos. Tiesioginio įrašinėjimo technologija yra perspektyvi unikalių elementų gamybai. Kaip pavyzdį galima pateikti tuo pačiu apdirbimo metu lydytame kvarce įrašytą šviesolaidį kartu su Brego gardele [117].

Kita plati taikymų sfera yra difrakcinių elementų gamyba. Plonos vienmatės gardelės [118], tūrinės Brego gardelės [119], Damano gardelės [120], Frenelio lęšiai [121], holografijos [122] užrašytos femtosekundiniais impulsais demonstruojamos įvairių tipų stikluose. Paprastai tokie fotoniniai elementai

nėra labai efektyvūs, nes kol kas nėra metodų, galinčių tiksliai kontroliuoti reikiamą lūžio rodiklio pokytį bei paties darinio vienalytiškumą.

Kito tipo modifikacijos taip pat taikomos įvairiose srityse. Pavyzdžiui, suformuotos mikroertmės gali būti panaudotos kaip informacijos bitai, kurie kompaktiškai galėtų užpildyti visą skaidriosios medžiagos tūrį [123]. II tipo modifikacijos leidžia sukurti poliarizacijai jautrius šviesolaidžius [115] ar gardeles [124] bei kitokius elementus. Be to, tokių modifikacijų jautrumas HF rūgšties išsodinimui įgalina formuoti mikrokanalus, taikomus mikrotekių srityje [95, 125].

Jau yra demonstruojami ir iš įvairių modifikacijų tipų kombinuoti jutikliai, pagaminti taikant lazerinį apdirbimą. Pavyzdžiui, Belluard grupė lydytame kvarce pademonstravo jutiklį, skirtą mechaniniams poslinkiams matuoti [126], bei integruotą optomikrotekinį lustą, skirtą dumblių populiacijai stebėti [4]. Abu šie jutikliai pagaminti išsodinant mikrokanalus lydytame kvarce bei integruojant juos kartu su tuo pačiu lazeriu pagamintais šviesolaidžiais.

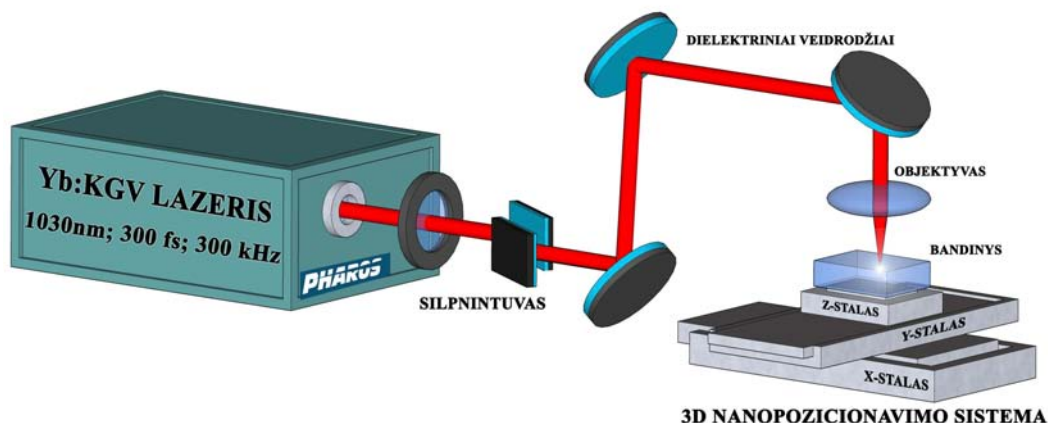
Taigi taikomieji darbai, atlikti naudojant skaidriųjų medžiagų modifikavimo ultratrumpaisiais lazerio impulsais metoda, rodo didelę šios technologijos perspektyvą. Todėl gilinimasis į šios mokslo srities problematiką yra itin svarbus.

## Lydyto kvarco modifikavimas Yb:KGV lazerine sistema

Lydytas kvarcas yra vienas iš plačiausiai naudojamų stiklų šiuolaikinėje optikoje. Jis turi geras optines bei fizikines savybes: skaidrus plačioje spektrinėje srityje (180 nm - 2,1  $\mu\text{m}$ ), tvirtas, mažas jo šiluminio plėtimosi koeficientas, labai atsparus intensyviai lazerio spinduliuotei. Ši medžiaga tapo nepakeičiama lazerių moksle, šviesolaidžių gamyboje, fotolitografijoje, plačiai naudojama puslaidininkių fizikoje ir daugelyje kitų sričių.

Lydytas kvarcas (kartais dar vadinamas kvarciniu stiklu) – tai amorfinė  $\text{SiO}_2$  kristalo būseną, susidedanti iš žiedu orientuotų silicio dioksido tetraedrų (žr. 1.11 pav.). Priklausomai nuo gamybos technologijos egzistuoja keletas skirtingų lydyto kvarco tipų, besiskiriančių priemaišų kiekiu bei optinėmis savybėmis. Amorfizuoti silicio kristalus galima aukštos temperatūros krosnyse vakuume ar inertinių dujų aplinkoje (komerciniai stiklai, tokie kaip Infrasil, IE-Vitreosil), kaitinant liepsna (Terasil, Optosil, Ultrasil) ar naudojant  $\text{SiCl}_4$  hidrolizaciją (Suprasil, Corning 7940 ir kt.). Be to, gaunamo stiklo savybės priklauso nuo to, ar naudojamas natūralus, ar sintetinis kvarcas [65]. Lazerinių optinių elementų gamyboje populiariausi stiklai, turintys itin mažą ( $< 10^{-6}$ ) metalo priemaišų skaičių (paprastai gaminama liepsnos lydymo metodu), nes juose galima pasiekti aukštą pralaidumą ultravioletinėje spektro srityje.

Kvarcinio stiklo modifikavimo tyrimai femtosekundiniais lazerinio impulsais yra atliekami jau gerą dešimtmetį, tačiau praktiškai nėra duomenų apie modifikacijas, indukuotas Yb:KGV lazerinėmis sistemomis. Šiame skyriuje pateikiami eksperimentiniai rezultatai, susiję su lydyto kvarco modifikacijomis, indukuotomis didelio impulsų pasikartojimo dažnio Yb:KGV



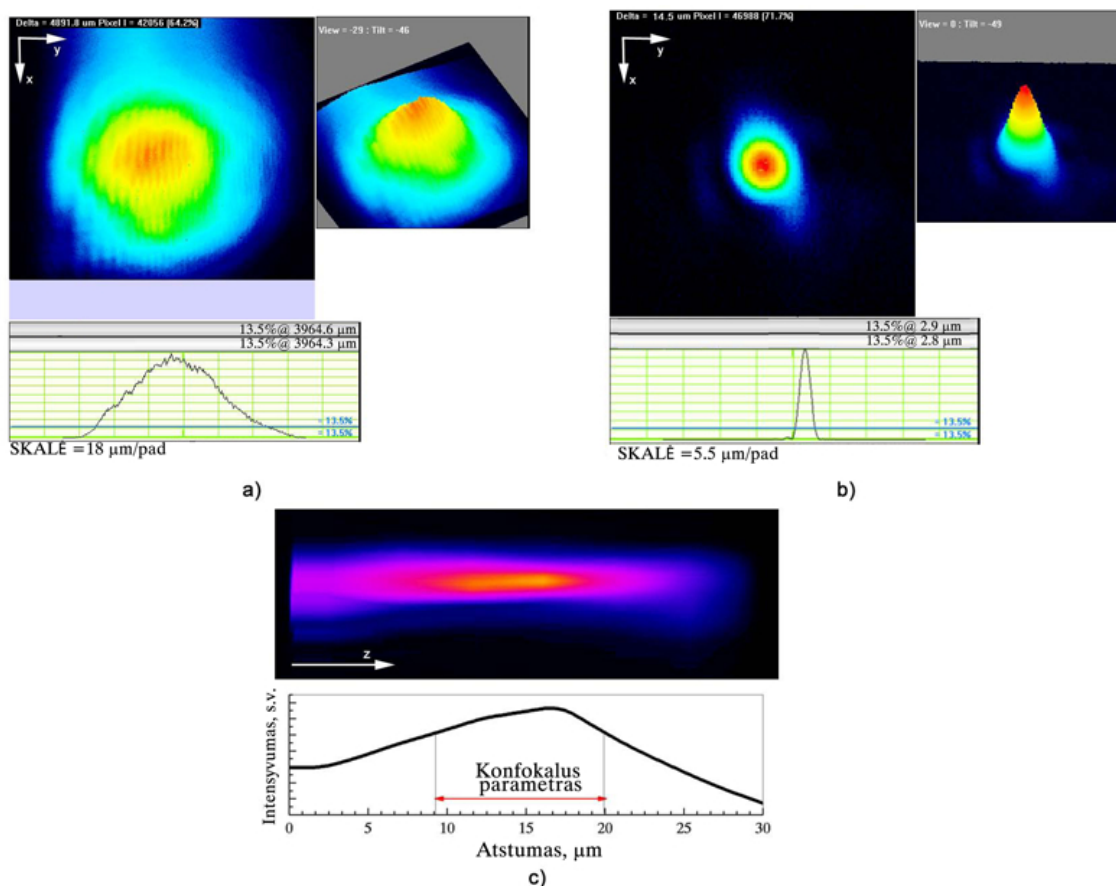
2.1 pav. Skaidriųjų terpių modifikavimo femtosekundiniais šviesos impulsais schema.

lazerine sistema *Pharos*.

## 2.1. Eksperimento schema

Yb:KGV lazerinė sistema *Pharos* (gamintojas – *UAB Šviesos konversija*) geba spinduliuoti 1030 nm bangos ilgio spinduliuotę, kurios trukmė siekia 300 fs. Lazerio spinduliuotės vidutinė galia siekia 3 W plačiame impulsų pasikartojimo dažnių intervale (25–300 kHz). Lazerio pluoštas pirmiausia yra silpninamas silpnintuvu, susidedančiu iš fazinės plokštelės ir dviejų polarizatorių, ir dielektriniais veidrodžiais nukreipiamas į bandinį, prieš tai lešiu sufokusavus lazerio pluoštą (2.1 pav.). Bandinys buvo tvirtinamas ant trimatės nanopozicionavimo sistemos. Sistemą sudaro trys transliaciniai stalai (XY kryptimis: *Aerotech* „ALS130-150“; Z kryptimi: *Aerotech* „ANT-4V“; surinkta *UAB Altechna*). Jų plati judėjimo amplitudė (15 cm XY plokštumoje ir 4 mm Z plokštumoje), mažas postūmio žingsnis, siekiantis 10 nm, o tikslumas neviršija 0,3  $\mu\text{m}$ . Stalų maksimalus transliavimo greitis siekia 300 mm/s. Taigi bandinio padėtį galima tiksliai keisti lešio židinio atžvilgiu ir, kompiuterine valdymo sistema (SCA, *UAB Altechna*) parenkant atitinkamą algoritmą, galima tiesioginio lazerinio įrašymo metodu (TLĮ) skaidriosios medžiagos tūryje suformuoti norimus trimačius darinius.

Kaip fokusuojantis lešis šiems tyrimams buvo naudojamas „vidutinio aštrumo“ asferinis lešis su 0,42 NA, ir židinio nuotoliu  $f = 6,24$  mm. Remiantis 1.9 formule, toks lešis idealiu atveju gali sufokusuoti lazerio pluoštą



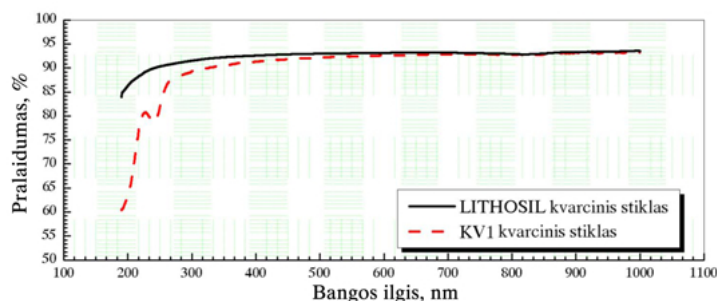
2.2 pav. Fokusavimosi reiškinys Kero terpėje su teigiamu netiesiniu lūžio rodikliu.

į dėmelę, kurios diametras siekia  $3,1 \mu\text{m}$ , o konfokalus parametras –  $14,5 \mu\text{m}$ . Išmatuoti erdviniai pluošto profiliai lęšio židinyje (45 kartų didinančiu objektyvu atvaizduojant židinio plokštumą ant 14 bitų CCD kameros *WinCamD* pagamintos *DataRay* kompanijos) gerai atitinka teorinius rezultatus, efektyvus dėmės diametras židinyje yra  $3,2 \mu\text{m}$  (2.2 pav.), o konfokalus parametras –  $11 \mu\text{m}$ . Šis parametras išmatuotas registruojant profilių seriją išilgai lazerio sklaidimo krypties židinio aplinkoje bei naudojant *ImageJ* programos interpoliacijos algoritmą. Visi matavimai buvo atlikti ore. Fokusuojant lazerio pluoštą stiklo tūryje, dėl bandinio plokštumo atsiranda sferinės aberacijos. Tačiau modeliavimai rodo, kad naudojant  $0,42 \text{ NA}$  lęšį, sferinės aberacijos tampa svarbios tik tada, kai fokusavimo gylis po bandinio paviršiumi būna didesnis nei  $300 \mu\text{m}$  [127].

Tyrimui buvo naudotas ultravioletinis lydytas kvarcas LITHOSIL, pagamintas iš sintetinio kvarco, ir standartinis natūralaus kvarco stiklas KV1. Šių medžiagų pralaidumo spektrai pateikti 2.3 paveiksle, o fizikiniai para-

2.1 lentelė. Pagrindiniai lydyto kvarco fizikiniai parametrai

Parametras	LITHOSIL [128]	KV1 [129]
Tankis ( $\text{g}/\text{cm}^3$ )	2,2	2,2
Šilumos laidumas ( $\text{W}/(\text{mK})$ )	1,31	1,38
Savitoji šiluminė talpa ( $\text{J}/(\text{gK})$ )	0,79	0,70
Maksimali darbinė temperatūra ( $^{\circ}\text{C}$ )	980	1150
Minkštėjimo temperatūra ( $^{\circ}\text{C}$ )	1600	1730
Lūžio rodiklis ( $1 \mu\text{m}$ )	1,45	1,45
Skaidrumo sritis (nm)	160-2300	190-2300
Draustinės energijos tarpas (eV)	7,5	6,5
Metalo priemaišų skaičius ( $10^{-6}$ )	$< 0,1$	$< 30$



2.3 pav. Ultravioletinio ir standartinio lydyto kvarco pralaidumo spektrai.

metrai – 2.1 lentelėje. Kaip matyti, praktiškai visi abiejų stiklų fizikiniai parametrai yra gana identiški, išskyrus metalo priemaišų kiekius, kurie lemia apatinę ultravioletinę skaidrumo ribą ir sumažina draustinės energijos tarpą (skirtumas siekia apie 1 eV).

## 2.2. Kvarce indukuojamų modifikacijų parametrinė analizė

Pirmame tyrimo etape svarbu išsiaiškinti energetinius modifikacijos atsiradimo slenksčius. Iš pradžių, naudodamiesi supaprastintu teoriniu Keldyšo modeliu, pabandykime įsivertinti teorines slenkstines vertes. Apžvelgdami pagrindinius intensyvios spinduliuotės sąveikos su skaidriosiomis medžiagomis dėsnius, minėjome, kad teorinis kriterijus medžiagos modifikacijos atsiradimui yra per plazmos dažnį apibrėžiamas kritinis laisvųjų elektronų tankis (1.6 formulė). Esant 1030 nm spinduliuotei, šis tankis yra

$1,05 \times 10^{21} \text{cm}^{-3}$ . Laisvųjų elektronų skaičius auga daugiafotonės, tunelinės bei griūtinės sugerties sąskaita. Daugiafotonės jonizacijos tikimybę galima išreikšti taip (pagal [130]):

$$w_{df} = \omega n_f^{3/2} \left( \frac{\varepsilon_{osc}}{2\Delta E} \right)^{n_f}, \quad (2.1)$$

čia  $n_f = \Delta E / \hbar\omega$ , o  $\varepsilon_{osc}$  yra laisvojo elektrono osciliacijos elektromagnetiniame lauke energija,  $\varepsilon_{osc}[\text{eV}] = 9,3 \times 10^{-14} I[\text{W}/\text{cm}^2] \lambda^2[\mu\text{m}]$  [131]. Tunelinės jonizacijos tikimybę ( $w_{tun}$ ) galima laikyti lygia daugiafotonės jonizacijos tikimybei. Šis teiginys yra teisingas tik  $\gamma \approx 1$  aplinkoje. Tokia sąlyga mūsų eksperimento sąlygomis yra tenkinama (žr. 1.4 pav.), o griūtinės sugerties tikimybė išreiškiama taip:

$$w_{lav} \approx 2 \frac{\varepsilon_{osc}}{\Delta E} \frac{\omega^2 \nu_{e-ph}}{\omega^2 + \nu_{e-ph}^2}, \quad (2.2)$$

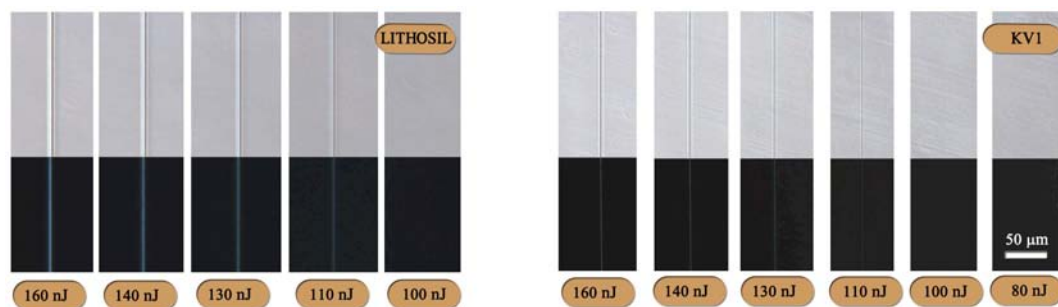
čia  $\nu_{e-ph}$  yra efektyvus elektronų ir fononų susidūrimų dažnis, kuris lydytame kvarce yra lygus  $4,3 \times 10^{13} \text{s}^{-1}$  [132]. Elektronų skaičiaus kitimą galima išreikšti taip:  $dn_e/dt = 2w_{df}n_a + w_{lav}n_e$ , čia  $n_a$  – atomų tankis, o  $n_e$  – laisvųjų elektronų tankis. Tada laisvųjų elektronų tankis, kritus  $\tau$  trukmės impulsui, bus lygus

$$n_e(I, \lambda, \tau) = \left( n_0 + \frac{2n_a w_{df}}{w_{lav}} \left[ 1 - e^{(-w_{lav}\tau)} \right] \right) e^{(w_{lav}\tau)}, \quad (2.3)$$

čia  $n_0$  yra pradinis laidumo elektronų tankis ( $\approx 10^8 \text{cm}^{-3}$ ).

Remiantis 2.3 formule galima įvertinti intensyvumą, kuriam esant pasiekiamas kritinis elektronų tankis. Kai impulsų trukmė yra 300 fs, bangos ilgis lygus 1030 nm, toks tankis LITHOSIL kvarce pasiekiamas esant  $1,13 \times 10^{13} \text{W}/\text{cm}^2$ .

Didelio impulsų pasikartojimo dažnio sistemose įprastai matuojamas lazerio spinduliuotės energetinis parametras yra spinduliuotės vidutinė galia ( $P_v$ ). Vidutinę impulso galią bei impulso energiją ( $E$ ) sieja sąryšis  $P_v = E\nu$ , čia  $\nu$  – impulsų pasikartojimo dažnis. Lazerio smailinė galia yra išreiškiama formule  $P_{smail} = E\tau^{-1}$ . Impulso intensyvumas ir energijos tankis apskai-



2.4 pav. Modifikacijos, indukuotos ultravioletiniame kvarce (LITHOSIL) ir standartiniame kvarce (KV1) ties slenkstinėmis lazerio impulso energijomis. Viršutinės nuotraukos darytos fazinio kontrasto režimu, apatinės – sukryžiuvus poliarizatorius. Impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz, bandinio transliavimo greitis – 0,1 mm/s, modifikacijos įrašytos 100 μm po paviršiumi.

čiuojami remiantis formulėmis:

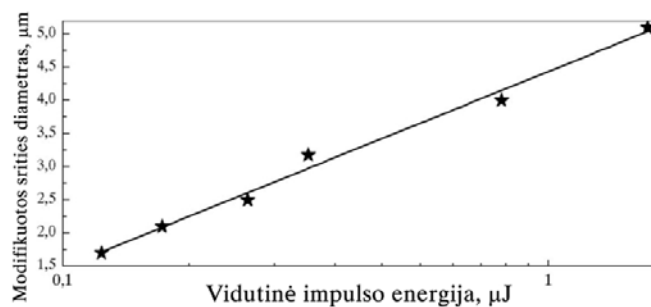
$$I = \frac{2P_{smail}}{\pi r_{e2}^2} \quad ir \quad I_E = \frac{2E}{\pi r_{e2}^2}, \quad (2.4)$$

čia  $r_{e2}$  – dėmelės spindulys, matuotas  $1/e^2$  lygyje. Taigi, pluoštą fokusuojant 0,42 NA lęšiu, lydytame kvarce liekamosios modifikacijos turėtų atsirasti impulso energijai siekiant 120 nJ. Tai atitinka 12 mW vidutinę galią esant 100 kHz impulsų pasikartojimo dažniui (KV1 lydytame kvarce šios vertės dėl mažesnio draustinės energijos tarpo atitinkamai yra 80 nJ ir 8 mW). Fokusavimosi slenkstis, naudojant Yb:KGV sistemos generuotus impulsus, lydytame kvarce siekia 3,3 MW (pagal 1.3 formulę, laikant  $n_2 = 3,5 \times 10^{-20} \text{ m}^2/\text{W}$  [133]). Taigi šis reiškinys gali atsirasti tada, kai impulso energijos  $> 1 \mu\text{J}$ .

Modifikacijų, indukuotų lydytame kvarce, eksperimentiniai tyrimai buvo atliekami formuojant atskiras gijas po bandinio paviršiumi ir analizuojant jų morfologiją optiniu mikroskopu. Vidutinė lazerio galia buvo matuojama prieš fokusuojantį lęšį naudojant *Ophir* terminį matavimo sensorių (3A). Realiai į medžiagą kritusios spinduliuotės galia (ar energija) buvo įvertinta įskaičius lęšio pralaidumo koeficientą (kuris buvo išmatuotas ir siekė 83 %) ir atspindį nuo viršutinio bandinio paviršiaus (teoriškai apskaičiuotas naudojantis Frenelio formulėmis ir siekė 3 %). Modifikacijos stebėtos optiniu mikroskopu *Olympus BX51*, naudojant pereinančios šviesos, fazinius bei sukryžiuotų poliarizatorių režimus.

Tipinės gijos, suformuotos lydytame kvarce naudojant impulso energi-

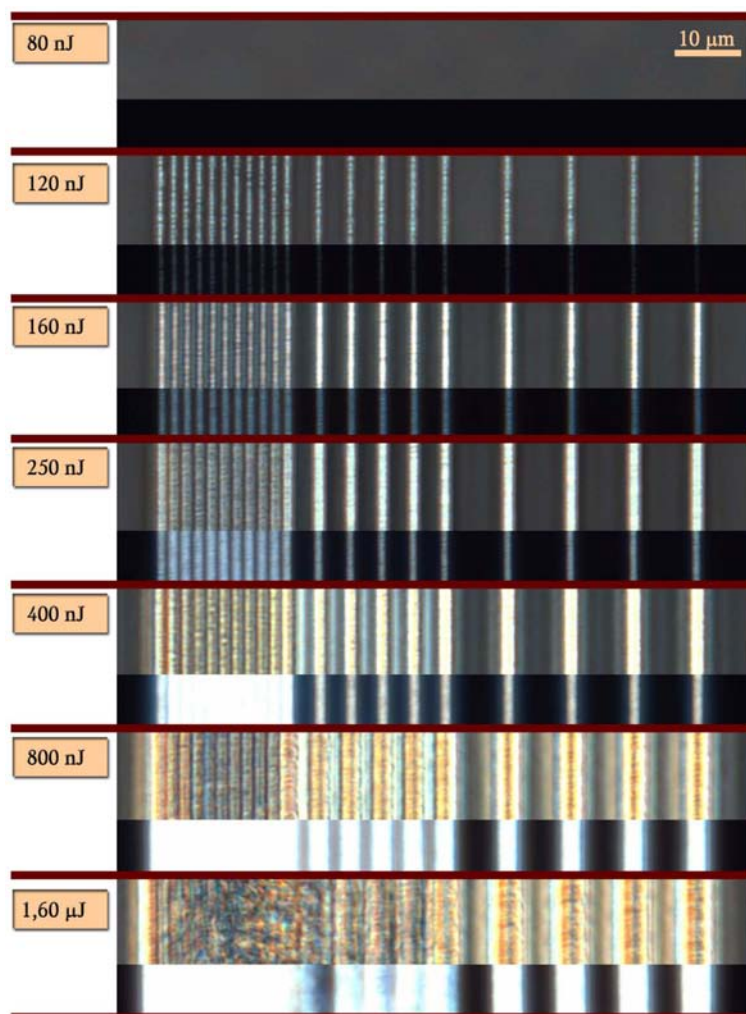




2.5 pav. Modifikacijos diametro priklausomybė nuo impulso energijos. Medžiaga – LITHOSIL, transliavimo greitis – 0,1 mm/s, impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz.

jas, artimas teorinėms slenkstinėms modifikacijos atsiradimo vertėms, pateiktos 2.4 paveiksle. Šios gijos buvo formuojamos transliuojant bandinį kryptimi, statmena lazerio pluoštui, 0,1 mm/s greičiu, fokusuojant lazerio pluoštą 100  $\mu\text{m}$  po bandinio paviršiumi. Matome, kad kai impulsų pasikartojimo dažnis siekia 100 kHz, modifikacijos ultravioletiniame kvarce pradamos optiškai detektuoti esant impulsų energijoms, aukštesnėms nei 110 nJ (3,1 J/cm<sup>2</sup>) (standartiniame kvarce – 100 nJ (2,8 J/cm<sup>2</sup>)). Šios vertės sutampa su teoriškai įvertintomis vertėmis. Varijuojant impulsų pasikartojimo dažnį 25–300 kHz intervale, slenkstis išliko pastovus ir nekito matavimo paklaidų ribose. Svarbu pastebėti, kad šis slenkstis yra įvertintas daugiašūviu režimu – t. y. kai bandinio transliavimo greitis yra lėtas, todėl daugelis impulsų veikia tą pačią bandinio vietą. Pavieniais impulsais modifikacijos buvo detektuojamos esant 50 % didesnėms energijoms, tačiau toks energijos slenksčio „padidėjimas“ labiau siejamas su optinio detektavimo trūkumais nei su pačiu akumuliaciniu efektu.

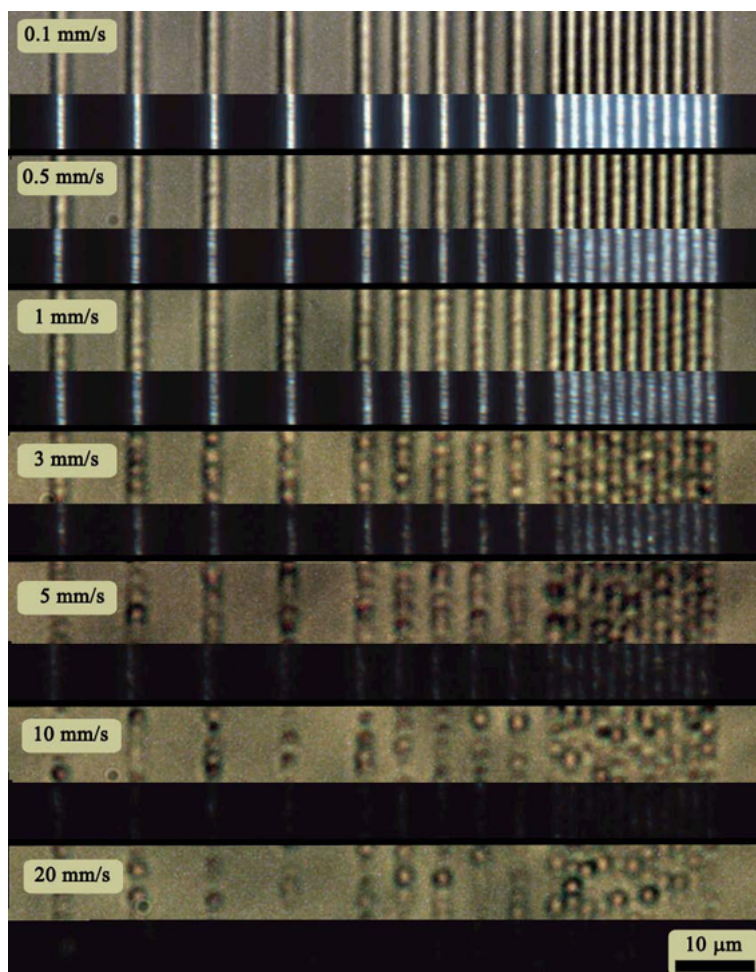
Modifikacijos morfologinė struktūra ima keistis didinant lazerio impulso energiją. Pirmiausia gijos diametras pradeda logaritmiškai augti (2.5 pav.), tačiau storėjanti gija ima netekti savo vienalytiškumo. Indukuojant gijas su impulso energija, mažesne nei 400 nJ, jų diametras gaunamas mažesnis nei fokusuojančios optikos sąlygotas sąsmaukos diametras. Tai akivaizdžiai rodo netiesinį modifikuoto darinio atsiradimo pobūdį. Stebint suformuotas gijas sukryžiuotų poliarizatorių režimu, matomas poliarizacijos sukimas (2.6 pav.), kuris auga didinant impulso energiją. Šis efektas sąlygojamas dvejopo šviesos lūžimo ir yra vienas iš indikatorių, nurodančių modifikacijos tipą. I tipo modifikuotuose dariniuose dvejopas šviesos lūžimas galimas



2.6 pav. Modifikacijos, indukuotos LITHOSIL kvarce su skirtingos energijos impulsais. Bandinio transliavimo greitis – 0,1 mm/s, impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz. Kairiosios serijos gijos formuotos 2  $\mu\text{m}$  periodu, centrinės – 5  $\mu\text{m}$ , dešiniojos – 10  $\mu\text{m}$ . Nuotraukos darytos fazinio kontrasto (viršutinė dalis) ir sukryžiuotų poliarizatorių (apatinė dalis) režimais.

tik modifikuotos zonos periferijoje ir jo atsiradimo priežastis yra medžiagos įtempimai [77]. O II tipo dariniuose dvejopą lūžį sukelia nanogardelės. Kaip matome iš 2.6 paveikslo, net ir naudojant mažiausias impulso energijas, gijos formuojasi iš II tipo modifikacijų.

Morfologinei darinio struktūrai labai svarbus parametras yra bandinio transliavimo greitis, lemiantis spinduliuotės ekspozicijos dydį. Kai bandinio transliavimo greitis yra lėtas, medžiaga, prieš įvykstant modifikacijai, būna veikiamą daugeliu lazerio impulsų, kurie sukelia akumuliacinius efektus. Žinodami paveiktos zonos spindulį  $r$ , impulsų pasikartojimo dažnį  $\nu$  ir transliavimo greitį  $v$ , galime įvertinti vidutinį impulsų kiekį, krentan-



2.7 pav. Modifikacijos, indukuotos LITHOSIL kvarce naudojant skirtingus bandinio transliavimo greičius. Impulso energija  $0,2 \mu\text{J}$ , pasikartojimo dažnis – 100 kHz. Nuotraukos darytos pereinančios šviesos mikroskopu (viršutinė dalis) ir sukryžiusius poliarizatorius (apatinė dalis).

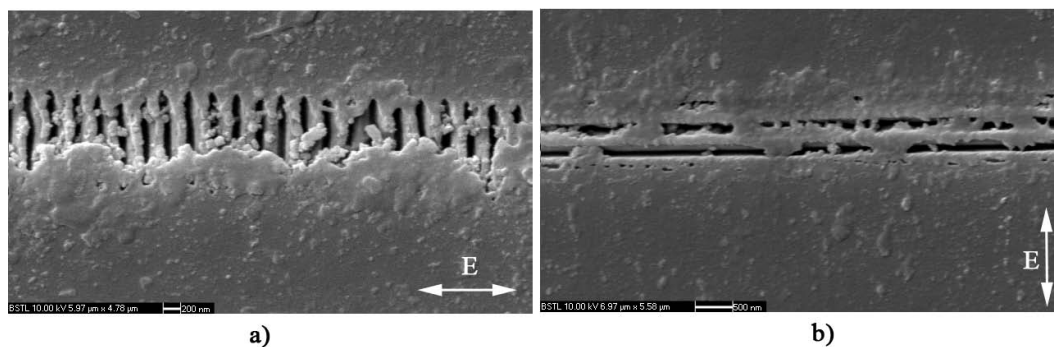
tį į modifikuojamos zonos plotą. Kol bandinys pasislinks per  $r$ , medžiaga paveiks  $n = rv/v$  impulsų. Žinant, kad mūsų eksperimento sąlygomis modifikuojamos zonos spindulys siekia  $1 \mu\text{m}$ , o impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz, transliuojant bandinį  $0,1 \text{ mm/s}$  greičiu, kiekviena modifikuojamos zonos vieta bus veikama  $\approx 1000$  impulsų. Didinant transliavimo greitį, šis skaičius mažėja. Esant greičiui  $20 \text{ mm/s}$ , modifikuojamai medžiagai tenka 5 impulsai, o kai greitis siekia  $100 \text{ mm/s}$ , impulsai nebepersidengia. Įrašinėjant gijas, svarbu parinkti tokį impulsų tankį, kad modifikuojamos sritys persidengtų viena su kita, kitaip apskritai neįmanoma gauti ištiso, vienalyčio darinio. Taigi šiuo atveju  $100 \text{ mm/s}$  nusako viršutinę bandinio transliavimo greičio ribą. Kita vertus, varijuojant transliavimo greitį, t. y. keičiant spinduliuotės eksponavimo laiką, stikle galima tikėtis sukelti skir-

tingo dydžio lūžio rodiklio modifikacijas. Vis dėlto realybė yra kiek kitokia ir eksperimentai rodo, kad varijuojant transliavimo greitį, keisti lūžio rodiklio pokytį nėra taip paprasta. Indukuotų gijų vaizdas, esant skirtingiems bandinio transliavimo greičiams, pateiktas 2.7 paveiksle. Kaip matome, akumuliacinis efektas daro didelę įtaką darinio morfologijai: vienalyčiai dariniai formuojasi tik tada, kai krintančių į tą pačią vietą impulsų skaičius būna didesnis už 100 (transliavimo greitis  $< 1$  mm/s esant 100 kHz). Kai impulsų skaičius yra mažesnis, gijos struktūra tampa netvarkinga, išilgai gijos atsiranda atsitiktiniai, šviesą sklaidantys centrai, kurių skaičius mažėja mažinant transliavimo greitį.

Toks akumuliacijos efektas glaudžiai susijęs su medžiagos tūryje besiformuojančiomis nanogardelėmis. Stebint formuotus darinius sukryžiuotų polarizatorių režimu matyti, kad gijų kontrastas mažėja didėjant transliavimo greičiui. Taigi šiuo atveju nyksta nanogardelių sukeltas dvejopas lūžimas. Be to, pastebima, kad jis nereguliarus išilgai suformuotos gijos. Taigi galima teigti, kad modifikuojamą medžiagos sritį veikiant per mažu skaičiumi impulsų, nanogardelės formuojasi nereguliariai arba iš viso nesiformuoja.

Nanogardeles užfiksuoti galima elektroniniu mikroskopu (SEM), tačiau toks metodas netinka giliai tūryje įrašytiems dariniams stebėti. Paprastai šie mikroskopai turi detektorius, galinčius detektuoti antrinius elektronus (SE režimas) arba atgaline sklaida išsklaidytus elektronus (BSE režimas). BSE režimu yra detektuojami statmenai bandinio paviršiaus sklindantys elektroni, atkeliaujantys iš gilesnių medžiagos sluoksnių. Be to, elektronų prasiskverbimo į medžiagą gylis priklauso nuo medžiagos tankio, todėl BSE režimu iš principo galima pamatyti medžiagos tankio variacijas. Labiau paplitęs SE režimas skiriasi tuo, kad yra detektuojami antriniai mažos energijos elektroni, palikę medžiagos paviršių po netamprios sąveikos (paprastai jie išsklinda iš sluoksnio, ne gilesnio nei 2 nm). Todėl šis režimas yra tinkamas tik medžiagos paviršiaus morfologijos tyrinėjimui.

Naudojant identiškus transliavimo greičius ir fokusuojantį objektyvą, LITHOSIL stikle buvo suformuotos gijos tiesiog ant paviršiaus. Stiklas buvo padengtas 15 nm aukso sluoksniu, kad jį būtų galima stebėti SEM mikroskopu BSE režimu. Svarbu pastebėti, kad tiesiogiai lyginti modifikacijas, indukuotas medžiagos tūryje ir paviršiuje, nėra visiškai teisinga, nes medžiagos paviršinio pažeidimo intensyvumo slenkstis yra mažesnis, be to, paviršiuje vyksta abliacijos reiškinys, kuris daro papildomą įtaką medžiagos



2.8 pav. Nanogardelės, stikle sukurtos transliuojant bandinį 10 mm/s greičiu (impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz), kai poliarizacija su bandinio transliavimo kryptimi yra: a) lygiagrečiai ir b) statmena.

struktūriniais pokyčiams. Tačiau kokybiniam įvertinimui toks palyginimas tinkamas, nes, kaip minėta, BSE režimu informacija apie medžiagos sandarą ateina iš gilesnių, abliacijos nepaveiktų sluoksnių. Tipinės nanogardelių nuotraukos pateiktos 2.8 paveiksle. Aiškiai matome, jog medžiagoje dėl daugelio impulsų poveikio pasireiškia periodiniai tankio svyravimai (matomos nuotraukose tamsios sritys rodo ne ertmes ar medžiagos įtrūkimus, bet pakitusio tankio sritis – mikroskopu stebint SE režimu šių darinių nematyti). Gardelės visada orientuojasi poliarizacijai statmena kryptimi ir išlaiko savitvarką atstumuose didesniuose nei modifikuojamos zonos plotas. Esant 100 kHz ir 10 mm/s transliavimo greičiui (10 šūvių į modifikuojamą plotą) bei šviesos poliarizacijai, lygiagrečiai su transliavimo kryptimi, vidutinis įrašytos gardelės periodas siekė 260 nm (įvertinta naudojant nuotraukos Furjė analizę). Pakitusio tankio zona yra dar mažesnė ir siekia < 60 nm. Naudojant poliarizaciją, statmeną bandinio transliavimo kryptį, gardelės periodas buvo kiek didesnis ir siekė 340 nm. Gautas periodas identiškas sutampa su Bhardwaj ir kt. [94] išmatuotais periodais, tačiau jie kaip lazerio šaltinį naudojo 800 nm ir 50 fs trukmės impulsus (impulsų pasikartojimo dažnis ir fokusavimo sąlygos buvo identiškos). Taigi šios grupės pastebėjimas, kad susiformavusios gardelės periodas atitinka  $\lambda/2$  dėsnį, nėra teisingas. Panašius periodus gavo ir Richter ir kt., naudodami 515 nm bangos ilgio ir 450 fs trukmės lazerio impulsus [97]. Tokie rezultatai leidžia suabejoti teorija, aiškinančia nanogardelių formavimąsi taikant elektromagnetinės bangos ir plazmos interferencijos modelį, siūlomą Shimotsumos ir kt. [54]. Maža spinduliuotės bangos ilgio įtaka nanogardelės periodui leidžia teigti, kad in-

terferenciniai reiškiniai nėra esminiai nanogardelės formavimuisi. Todėl iš principo reikalinga nauja teorija, paaiškinanti tokį medžiagos elgesį veikiant daugeliu ultratrumpųjų šviesos impulsų. Šiuo metu vis daugiau dėmesio susilaukia nanogardelių formavimąsi grindžianti teorija, kuri remiasi idėjomis, paimtomis iš nanoplazmonikos srities. Kiekvienas šviesos impulsas medžiagoje sukelia nanodefektus, kurių savybės panašios į metalas-dielektrikas tipo sandūras. Šie defektai yra atsakingi už plazmoninių efektų atsiradimą, dėl kurių defekto aplinkoje smarkiai iškreipiamas elektromagnetinis laukas. Kiekvienas paskesnis į medžiagą kritęs lazerio impulsas jaučia šį iškraipymą ir jau selektyviai formuoja naujus defektus, kurių geometrija yra priklausoma nuo spinduliuotės poliarizacijos. Todėl reikalingas didelis šūvių skaičius į vieną modifikuojamos zonos vietą, kad susiformuotų taisyklingi nanodariniai [94]. Pavieniais impulsais suformuotų gardelių mūsų eksperimente nebuvo užfiksuota, o esant per mažam kritusių impulsų skaičiui, nanogardelių formavimasis dėl stiklo nevienalytiškumo bei lazerio impulso energijos fliuktuacijų tapo neapibrėžtas. Tam tikrose medžiagos vietose atsirado nanogardelės užuomazgos, kurios ir nulėmė netvarkingą gijos sandarą, matomą 2.7 paveiksle. Kas daro įtaką gardelės periodiškumui, iki šiol kol kas nėra suprata.

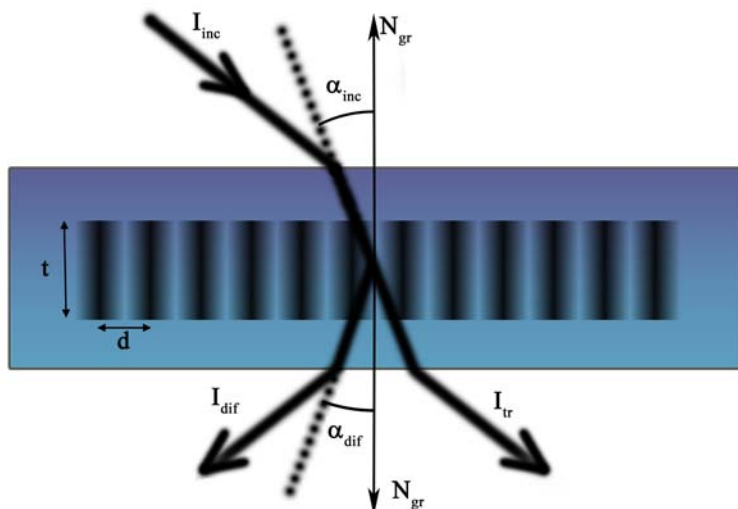
### 2.3. Lūžio rodiklio pokyčio nustatymas. Brego gardelės

Lazeriu sukurtos medžiagos modifikacijos, nepaisant sudėtingos vidinės mikrodarinio struktūros, išsiskiria pakitusiu lūžio rodikliu. Norint efektyviai panaudoti šį medžiagos optinių savybių pakitimą, reikia mokėti įvertinti šį pokytį, o tai nėra triviali užduotis. Paties darinio geometriniai matmenys siekia vos keletą mikrometrų, o lūžio rodiklio pokytis paprastai siekia vos tūkstantąsias lūžio rodiklio vertes, todėl jokia moderni metodika nėra pajėgi tiesiogiai išmatuoti modifikuotos zonos lūžio rodiklio pokyčius. Yra sukurtos metodikos, pagal kurias galima gana tiksliai išmatuoti specifinių elementų, tokių kaip planariųjų šviesolaidžių, pagamintų kvarco ant silicio (*silica-on-silicon*) technologija, lūžio rodiklio profilius [134], tačiau šios metodikos yra brangios ir ribotai pritaikomos. Todėl tenka lūžio rodiklio pokytį nustatinėti netiesiogiai.

Stiklo tūryje įrašytų fotoninių elementų veikimo efektyvumas visada daugiau ar mažiau priklauso nuo medžiagos lūžio rodiklio pokyčio. Todėl tyrinėjant šiuos elementus galima tikėtis bent kokybiškai įvertinti medžiagos lūžio rodiklio pokytį. Kokiu elementu bus remiamasi tokiuose matavimuose, paprastai priklauso nuo technologinių galimybių (tiek įrašant fotoninį elementą, tiek matuojant fotoninio elemento veikimo efektyvumą). Paprasčiausiu atveju indukuotą lūžio rodiklio pokytį galima įvertinti matuojant suformuoto šviesolaidžio skaitmeninę apertūrą NA (matuojant iš šviesolaidžio išėjusio pluošto diametrą tolimajame lauke ir taip įvertinant skėsties kampą), kuri priklauso nuo lūžio rodiklio pokyčio [68]. Kitas populiarus metodas yra lūžio rodiklio pokyčio nustatymas iš difrakcijos. Medžiagoje suformuojama plona difrakcinė gardelė ir matuojamas energijos pasiskirstymas pagal skirtingas difrakcijos eiles, kuris priklauso nuo medžiagoje indukuojamo lūžio rodiklio pokyčio [135]. Abu šie metodai yra gana grubūs: tiesioginio įrašymo metodu sukurti šviesolaidžiai retai būna simetriniai ir gaunama šviesolaidžio moda yra sunkiai apibrėžiama. Todėl tiksliai įvertinti NA yra sudėtinga. Plonų difrakcinių gardelių efektyvumas siekia vos keletą procentų, todėl tiksliai įvertinti efektyvumus irgi yra problematiška. Fotoninio elemento veikimo efektyvumas paprastai priklauso ne tik nuo lūžio rodiklio pokyčio, bet ir daugybės kitų parametrų, taip pat turinčių įtakos lazerinio įrašymo metu, todėl lūžio rodiklio pokyčio nustatymas tampa dar sudėtingesnis.

Dalies paminėtų problemų galima išvengti įrašinėjant sudėtingesnės geometrijos fotoninius elementus. Puikus tokio elemento pavyzdys – stora fazinė difrakcinė gardelė, dar kartais vadinama *Brego gardele*. Tokia gardelė skiriasi nuo įprastos tuo, kad ji turi ir trečią – storio dimensiją, itin smarkiai nulemiančią difrakcijos efektyvumą. Pagrindinis šios gardelės pranašumas – didelis difrakcinis efektyvumas. Be to, nekeičiant lazerio įrašymo parametrų galima gana lengvai varijuoti vienu iš gardelės parametru (gardelės storium) taip atskiriant vieną nepriklausomą gardelės difrakcinio efektyvumo parametru – lūžio rodiklio pokytį.

Šiuolaikinė storų gardelių difrakcijos teorija remiasi H. Kogelniko dar 1969 m. sukurta surištųjų bangų teorija [136]. Kiek detaliau aptarsime esmines šios teorijos išvadas. Tarkime, jog medžiagoje, kurios lūžio rodiklis yra  $n$ , yra sritis su periodiškai kintančiu (pagal sinuso dėsnį) lūžio rodikliu. Jo moduliacijos gylis yra  $\Delta n$ . Tokios gardelės periodą pažymėkime  $d$ , o storį



2.9 pav. Scheminis tūrinės gardelės vaizdas. Juodos linijos čia vaizduoja pagal sinuso dėsnį moduliotą lūžio rodiklį.

$t$ . Gardelė laikoma stora ir jai galioja surištuųjų bangų teorija, jei gardelės storio koeficientas  $Q$ , apibrėžiamas remiantis formule

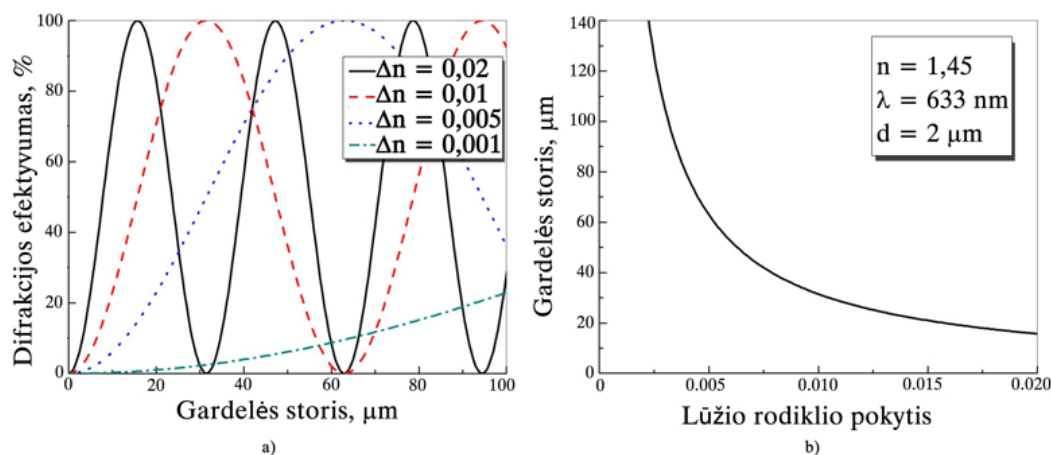
$$Q = 2\pi\lambda \frac{t}{nd^2}, \quad (2.5)$$

yra didesnis nei 10. Jei šis koeficientas yra mažesnis, atsiranda neatitikimų tarp teorijos ir eksperimento. Sakykime, jog gardelė yra įrašyta be pokrypio, t. y. kampas tarp gardelės režio normalės ( $N_{gr}$ ) ir paviršiaus normalės yra lygus nuliui (2.9 pav.). Tarkime, kad į gardelę kampu  $\alpha_{inc}$  krenta spindulys  $I_{inc}$  (ši gardelė įrašyta medžiagos tūryje, todėl reikia pastebėti, kad spindulio kritimo į bandinį ir į gardelę kampai skiriasi, o šį skirtumą galima įvertinti remiantis Snelijaus dėsnio). Krintantis spindulys difraguos pagal įprastą difrakcinėms gardelėms dėsnį:

$$\frac{m\lambda}{nd} = \sin \alpha_{inc} - \sin \alpha_{dif}, \quad (2.6)$$

čia  $m$  – difrakcijos eilė, o  $\alpha_{dif}$  – difragavusio spindulio kampas. Naudojantis šia formule, galima apskaičiuoti visų difragavusių spindulių kampus. Kadangi tokios gardelės turi papildomą storio dimensiją, tam tikrų difrakcinių eilių efektyvumas gali smarkiai išaugti. Ypatingą svarbą čia įgauna kampai, kurie tenkina vadinamąją Brego sąlygą, t. y. tada, kai  $\alpha_{inc} = \alpha_{dif}$ . Tokiu





2.10 pav. a) Difrakcijos efektyvumo priklausomybė nuo gardelės storio esant įvairiems lūžio rodiklio moduliacijos lygiams. b) Gardelės storio, kuriame difrakcijos efektyvumas pasiekia 100 %, priklausomybė nuo lūžio rodiklio moduliacijos lygio.

atveju Brego difrakcijos sąlyga bus tenkinama, kai

$$\frac{m\lambda}{n} = 2d \sin \alpha_{inc}. \quad (2.7)$$

Ši difrakcijos kampą (jis dar vadinamas Brego kampu) lemia gardelės periodas ir bangos ilgis. Difrakcijos efektyvumas Brego sąlygomis pagal surištųjų modų teoriją išreiškiamas taip:

$$\eta = \sin^2 \left( \frac{\pi \Delta n t}{\lambda \sqrt{1 - \left(\frac{m\lambda}{2nd}\right)^2}} \right). \quad (2.8)$$

Idealios gardelės atveju, kai tenkinamos Brego sąlygos, susidaro tik vienas difrakcijos maksimumas, t. y. visos aukštesnės difrakcijos eilės ( $m > 1$ ) yra nykstamai mažos ir nėra nagrinėjamos surištųjų bangų teorijoje. Todėl difrakcinėje sąveikoje dalyvauja tik du pluoštai: difragavęs ir nedifragavęs (surištųjų bangų teorija aprašo sąlygas, kada ir kaip gardelėje vyksta energijos mainai tarp šių dviejų bangų).

Iš 2.8 formulės akivaizdu, kad tinkamai parinkus gardelės parametrus, teoriškai įmanoma pasiekti efektyvumą iki 100 %. Svarbiausi parametrai, lemiantys aukštą efektyvumą, yra medžiagos lūžio rodiklio moduliacijos dydis ( $\Delta n$ ) ir gardelės storis ( $t$ ). Gardelės periodas bei bangos ilgis apsprendžia tik Brego sąlygas. Sumodeliuotos difrakcinio efektyvumo priklausomybės nuo gardelės storio, esant įvairiems lūžio rodiklio modifikacijos lygiams, pateik-

tos 2.10 pav., a). Kaip matome, difrakcijos efektyvumas periodiškai kinta. Tam tikrai  $\Delta n$  vertei egzistuoja tik tam tikras storis, kuriame yra pasiekiamas maksimalus gardelės difrakcijos efektyvumas. Minimalaus storio vertės, kuriose difrakcinis efektyvumas pasiekia maksimalias vertes, pavaizduotos 2.10 pav., b). Priklausomai nuo moduliacijos dydžio minimalus efektyvios gardelės storis gali kisti nuo kelių mikrometrų, kai moduliacija yra didelė, iki kelių šimtų mikrometrų, kai lūžio rodiklio moduliacija yra silpna. Tokia efektyvumo priklausomybė yra palanki tuo, kad, formuojant fazines gardeles, lūžio rodiklio pokytis nebėra esminis parametras, lemiantis elemento veikimo efektyvumą. Net ir tiksliai nežinant indukuoto lūžio rodiklio pokyčio, galima parinkti tokį gardelės storį, kad difrakcinis efektyvumas būtų maksimalus. Nustačius šį storį (lengvai išmatuojamas naudojant tradicinius mikroskopinius metodus) ir įvertinus difrakcijos efektyvumo kitimo nuo storio kreivę, galima nesunkiai įvertinti medžiagos lūžio rodiklio moduliacijos dydį.

Detaliau su surištuųjų bangų teorija bei tūrinių gardelių veikimo principais galima susipažinti šiuose [137–139] darbuose.

### 2.3.1. Brego gardelių formavimas lydytame kvarce

Tradiciškai tūrinės Brego gardelės yra formuojamos holografiniais metodais, perklojant du koherentinius lazerio pluošteliu ir gautą interferencijos rezultatą užrašant šviesai jautrioje medžiagoje. Šiuo metu pati populiariausia medžiaga yra dichromatinė želatina (angl. *dichromated gelatin*), kuri plataus spektro diapazone turi labai didelį lūžio rodiklio moduliacijos gylį ( $\Delta n < 0,1$ ). Po ekspozicijos želatina yra chemiškai apdorojama ir suspaudžiama tarp dviejų stiklo plokštelių, kurios veikia kaip apsauginiai sluoksniai [140]. Be želatinos, kaip šviesai jautrus elementas plačiai populiarėja specialus silikatinis stiklas (PTR), turintis fototermorefrakcinių savybių. Tokiame stikle taip pat galima įrašyti įvairius fotoninius elementus veikiant intensyvia ultravioletine spinduliuote [141].

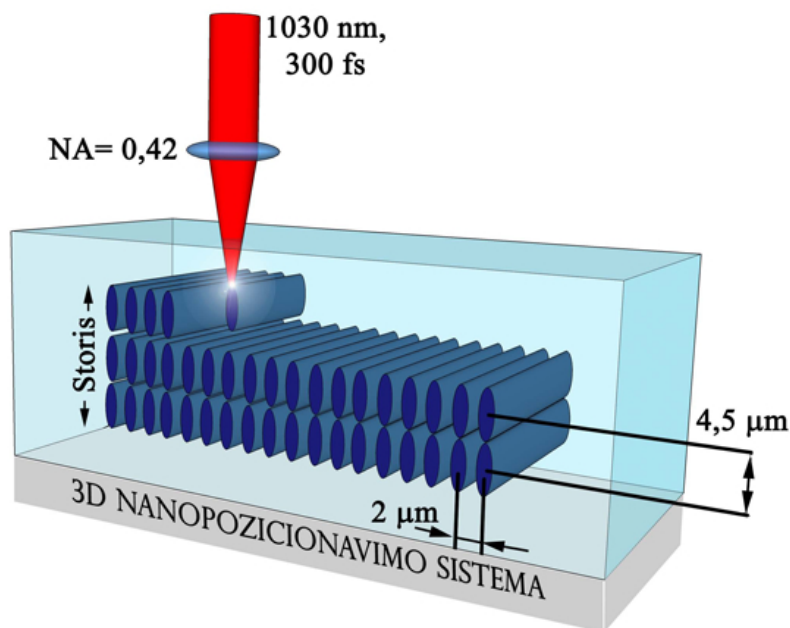
Galimybė indukuoti lūžio rodiklio pokyčius ir formuoti įvairius fotoninius elementus šviesai nejautrioje medžiagoje, tokiose kaip lydytas kvarcas, veikiant ultratrumpaisias lazerio impulsais, atveria naujas taikymo perspektyvas. Holografine metodika formuoti lūžio rodiklio variacijas kvarce ar kituose stikluose yra kiek sudėtingiau, nes reikia pasiekti pakankamai aukštus

spinduliuotės intensyvumus, kad medžiagoje vyktų struktūriniai pokyčiai. Tačiau tokie darbai jau yra atliekami ir ši technika taip pat turi perspektyvų [142]. Gerokai paprasčiau darinius formuoti pataškiui, remiantis TLĮ metodu. Toks metodas yra pranašesnis už holografinę technologiją tuo, kad labai lengvai galima įrašyti bet kokios formos fotoninius elementus, tačiau įrašymo laikas yra gerokai ilgesnis.

Tūrinės Brego gardelės, įrašytos ultratrumpaisiais lazerio impulsais įvairiuose stikluose, jau buvo pademonstruotos prieš keletą metų [143, 144]. Tačiau jų difrakcijos efektyvumai retai būna dideli ir nesiekia 30 %. Pagrindinė problema, dėl kurios nepavyksta padidinti efektyvumų, yra sunkiai nuspėjamas lūžio rodiklio pokytis, gaunamas lazerio impulsais modifikuojant medžiagą. Šis parametras yra vienas pagrindinių, lemiančių Brego gardelės difrakcijos efektyvumą. Mūsų žiniomis, efektyviausią gardelę lydyto kvarco tūryje lazeriu pagamino Yamada ir kt. mokslininkų grupė ir turėjo 74,8 % difrakcijos efektyvumą [144]. Ši gardelė buvo formuota modifikuojant storus medžiagos sluoksnius šviesos gija. Visgi toks metodas nėra palankus gardelės savybių optimizavimui, kadangi gija yra sunku tiksliai kontroliuoti modifikuojamos zonos matmenis. Ilgas įrašymo laikas taip pat yra didelis tokio metodo trūkumas. Kelių šimtų mikrometrų dydžio gardelei įrašyti tenka sugaišti iki 6 valandų ar dar ilgiau. Kaip matysime, TLĮ metodu gardelės įrašomos gerokai sparčiau.

TLĮ metodu formuojamos Brego gardelės schema parodyta 2.11 paveiksle. Įrašomų gardelių periodas buvo 2  $\mu\text{m}$ . Toks periodas buvo pasirinktas todėl, kad idealioje Brego gardelėje lūžio rodiklio moduliacija turi būti pasiskirsčiusi pagal sinuso dėsnį. Žinant, kad mūsų modifikuojamos zonos diametras siekia  $\approx 1 \mu\text{m}$ , toks periodas garantuoja, kad modifikuojamos zonos tarpusavyje nepersiklos (tai gali sukelti papildomų lūžio rodiklio variacijų dėl medžiagos įtempių). Kita vertus, jis yra palyginimas su pačios modifikacijos dydžiu, todėl šiuo atveju galima sakyti, kad atsiradusi moduliacija bus artima sinuso dėsniai. Gardelės storis buvo keičiamas varijuojant skaičių sluoksnių, kurie buvo rašomi vienas ant kito su nedideliu poslinkiu (nustatytas optimalus poslinkis šiame eksperimente buvo 4,5  $\mu\text{m}$ ; tai garantuoja, jog atskiri sluoksniai šiek tiek persiklos, kad susiformuotų kuo vienalytiškesnė plokštuma).

Gardelės buvo įrašytos parenkant impulso energijas nuo 0,15  $\mu\text{J}$  iki 0,25  $\mu\text{J}$ , impulsų pasikartojimo dažnį 300 kHz, o bandinio transliavimo greitį

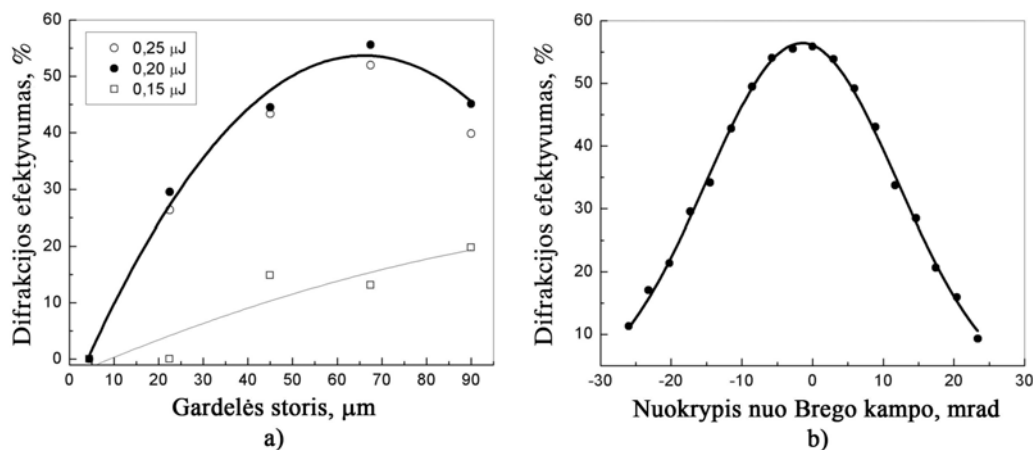


2.11 pav. Tūrinės Brego gardelės formavimas naudojant TLĮ metodiką.

– 3 mm/s. Pirmas gardelės sluoksnis buvo rašomas 400 μm po paviršiumi.

Skirtingų storių 1 mm × 1 mm dydžio gardelės buvo suformuotos lydytame kvarce. Jų difrakciniai efektyvumai parodyti 2.12 pav., a). Efektyvumas buvo matuojamas naudojant HeNe lazerio 633 nm spinduliuotę, krintančią Brego kampu. Gautas Brego kampas buvo 6,2° ir gerai atitiko teorines vertes. Absolūtus difrakcijos efektyvumas buvo įvertintas pamatavus difragavusio pluošto galią ir ją palyginus su atraminio pluošto galia. Norint išmatuoti atraminio pluošto galią, bandinys buvo pastumtas taip, kad kritęs spindulys nebepataikytų į suformuotą gardelę ir laisvai sklįstų per stiklą. Tokio perėjusio pluošto galia ir buvo laikoma atramine. Šiuo būdu skaičiuojant difrakcijos efektyvumą, automatiškai neįskaitomi nuostoliai dėl nedifrakcinių efektų: atspindžių nuo bandinio paviršiaus, stiklo sklaidos ar sugerties. Maksimalus difrakcijos efektyvumas buvo gautas esant 70 μm storio gardelei, įrašyti 0,20 μJ energijos impulsais (energijos tankis – 5,6 J/cm<sup>2</sup>), ir siekė 57 %. Iš 2.12 pav., b) matome, kad efektyvumas labai priklauso nuo pluošto kritimo kampo ir sumažėja per pusę jau 15 mrad nukrypus nuo Brego kampo.

Nuo 70 μm į abi puses varijuojant gardelės storį pastebimas difrakcinio efektyvumo mažėjimas. Tai leidžia teigti, kad 70 μm yra optimalus gardelės storis, kuriam esant gaunama didžiausia difrakcija. Todėl, remiantis suriš-



2.12 pav. Įrašytų tūrinių fazinių gardelių difrakcijos efektyvumų priklausomybė nuo: a) gardelės storio; b) nuokrypio nuo Brego kampo.

tųjų bangų teorija, galima įvertinti lūžio rodiklio pokytį, kuris šiuo atveju lygus  $0,0045 \pm 0,0007$  (žr. 2.10 pav., b)). Įrašant gardeles su didesne impulso energija ( $0,25 \mu\text{J}$ ), difrakcijos efektyvumas šiek tiek mažėja, tačiau maksimali vertė išlieka esant tokio pat storio gardelei. Tai leidžia manyti, kad didinant impulso energiją lydytame kvarce jau nebegalima indukuoti didesnio lūžio rodiklio pokyčio, o atsirandantys medžiagos pažeidimai itin didina šviesos sklaidą bei mažina efektyvumą. Kai lazerio galia pakankamai maža, sukeltas lūžio rodiklio pokytis yra aiškiai mažesnis ir neviršija  $0,003$ . Tokių gardelių fabrikavimo sparta priklauso nuo gardelės storį lemiančių sluoksnių skaičiaus: vienas  $1 \text{ mm} \times 1 \text{ mm}$  sluoksnis su  $2 \mu\text{m}$  periodu (500 režių) yra suformuojamas per  $\approx 3$  min, o  $70 \mu\text{m}$  storio gardelei reikia suformuoti 15 sluoksnių, taigi tokią gardelę galima pagaminti per  $\approx 45$  min.

Galima išskirti pagrindines dvi priežastis, kurios trukdo pasiekti didesnius gardelių efektyvumus. Pirmoji priežastis – tai mikropažeidimai, kurie neišvengiamai atsiranda formuojant modifikuotus darinius lazerio energijai esant arti pažeidimo slenksčio. Tokie pažeidimai veikia kaip sklaidomieji centrai ir mažina efektyvią difrakciją. Šią problemą lengvai galima išspręsti naudojant mažesnę lazerio galią. Tačiau tokiu būdu sukurtos lūžio rodiklio modifikacijos gylis bus taip pat mažesnis, todėl efektyvios gardelės bus gerokai storesnės. Antra problema yra ta, kad teorinių modelių efektyvumo vertės yra apskaičiuojamos gardelėms, kuriose lūžio rodiklis moduluotas griežtai harmoniškai (pagal sinuso funkciją). Realiuose eksperimentuose tokią pasiskirstymą pasiekti yra gana sunku, nes lūžio rodiklio pokyčio profilis

yra gana sudėtingas. Taigi, optimalūs įrašymo parametrai turi būti nustatomi empiriškai. Tai leidžia manyti, kad optimizavus įrašymo parametrus galima gauti dar didesnius gardelių efektyvumus.

## Lūžio rodiklio pokyčio indukavimas netiesiniuose kristaluose

Amorfinėse medžiagose lazerio indukuotų modifikacijų tyrimai vyksta jau daugiau nei dešimtmetį. Gausybė pastarojo meto darbų leido suprasti stiklo kaip terpės, kurioje galima integruoti įvairius fotoninius elementus, plusus ir minusus. Tokie stiklai, kaip lydytas kvarcas ar borosilikatinis stiklas, turi puikias optines savybes ir juose gana paprasta ultratrumpais impulsais formuoti mikrodarinius su pakitusiu lūžio rodikliu. Šiuo metu pagrindinis dėmesys yra skiriamas įrašymo algoritmų ar spinduliuotės parametrų optimizavimui. Tai pagerintų fotoninių elementų veikimo efektyvumą.

Lūžio rodiklio pokyčio indukavimui kristalinėse medžiagose iki šiol nebuvo skiriama pakankamai dėmesio. Pagrindinė priežastis – specifinis tokių kristalų pritaikomumas bei jų kaina. Kita vertus, kristalinės medžiagos turi unikalias optines savybes, kurios gali būti panaudotos kuriant platesnio funkcionalumo fotoninius elementus. Be to, skirtingi medžiagos ir elektromagnetinės spinduliuotės sąveikos mechanizmai kristale gali sąlygoti naujus būdus lūžio rodiklio modifikacijai atsirasti.

Šiame skyriuje pateikiami rezultatai gauti atliekant lūžio rodiklio pokyčio indukavimo populiariuose netiesiniuose kristaluose (ličio niobatas, kalio dvivandenilio fosfatas (KDP)) eksperimentus.

### 3.1. Ličio niobato optinių savybių modifikavimas ultratrumpaisiais šviesos impulsais

Ličio niobatas ( $\text{LiNbO}_3$ ) yra vienas iš plačiausiai optikoje taikomų kristalų, ne be pagrindo dažnai vadinamas „fotonikos siliciu“ [145].  $\text{LiNbO}_3$  yra bespalvis, chemiškai stabilus, vandenyje bei kituose organiniuose tirpaluose netirpstantis kristalas, turintis Perovskio tipo gardelės struktūrą (deguonies (O) oktaedras apsuptas ličio (Li) ir niobio (Nb) atomų). Kristalas neturi simetrijos centro, todėl išsiskiria dideliu feroelektriniu efektu (Kiuri temperatūra – 1140 °C [146]), lemiančiu puikias kristalo pjezoelektrines savybes. Dėl šių priežasčių  $\text{LiNbO}_3$  yra itin plačiai taikomas telekomunikacijoje, akustinių paviršinių bangų prietaisuose. Stiprus elektrooptinis efektas paskatino šį kristalą plačiau naudoti elektrooptiniams šviesos moduliatoriams. Periodiškai orientuoti ličio niobato kristalai sėkmingai naudojami netiesinėje optikoje.

$\text{LiNbO}_3$  kristalas taip pat išsiskiria fotorefraktiškumu – gebėjimu keisti lūžio rodiklį veikiant kristalą intensyvia elektromagnetine spinduliuote. Fotorefrakcijos privalumas yra tai, kad jos metu kristale nevyksta negrįžtami struktūriniai pokyčiai ir lūžio rodiklio pokytis nėra ilgalaikis – modifikuotus darinius galima ištrinti, vėl perrašyti ar kitaip jomis manipuliuoti. Dėl šios priežasties  $\text{LiNbO}_3$  dažnai naudojamas holografijų užrašymui [147]. Kita vertus, fotorefrakcinių modifikacijų nestabilumas neleidžia jų panaudoti taikymuose, kuriuose dalyvauja intensyvi spinduliuotė. Todėl reikia ieškoti naujų galimybių ir permanentiniams dariniams  $\text{LiNbO}_3$  kristale formuoti. Ultratrumpoji spinduliuotė yra tinkama tiek fotorefrakcinėms, tiek permanentinėms modifikacijoms  $\text{LiNbO}_3$  kristalo tūryje indukuoti.

#### 3.1.1. Fotorefrakcinės modifikacijos ličio niobate

Paveikus intensyvia šviesa  $\text{LiNbO}_3$  kristalą, jame atsiranda sritis su pakitusiu lūžio rodikliu. Tai pirmasis pastebėjo Ashkin ir kt. 1966 metais [148]. Šis efektas buvo pavadintas fotorefrakcija. Bendraja prasme terminas *fotorefrakcija* reiškia bet kurį reiškinį, kuriame dėl intensyvios spinduliuotės poveikio medžiagoje vyksta lūžio rodiklio pokytis. Tačiau kalbant apie *fotorefrakcinės medžiagos* dažniausiai turima omenyje, kad medžiagos lūžio



rodiklis keičiasi dėl Pokelso efekto (kai pokyčio priežastis yra kita, tokios medžiagos paprastai vadinamos *šviesai jautriomis medžiagomis*).

Trumpai aptarsime šio efekto atsiradimo principus. Kaip ir buvo minėta, pagrindinė fotorefrakcijos reiškinių priežastis yra Pokelso efektas. Jis atsiranda necentrosimetriniuose kristaluose, išoriniam elektriniam laukui deformuojant kristalinę gardelę ir taip iškreipiant kristalo lūžio rodiklio elipsoidą. Dėl šios priežasties paprasto ( $n_o$ ) ir nepaprasto ( $n_e$ ) lūžio rodiklio pokyčiai iš esmės skiriasi. Patį pokytį (veikiant  $E$  stiprio elektriniu lauku, nukreiptu išilgai kristalo optinės ašies) galima išreikšti taip:

$$\Delta n_{o,e} = -\frac{1}{2}n_{o,e}^3 r_{13,33} E, \quad (3.1)$$

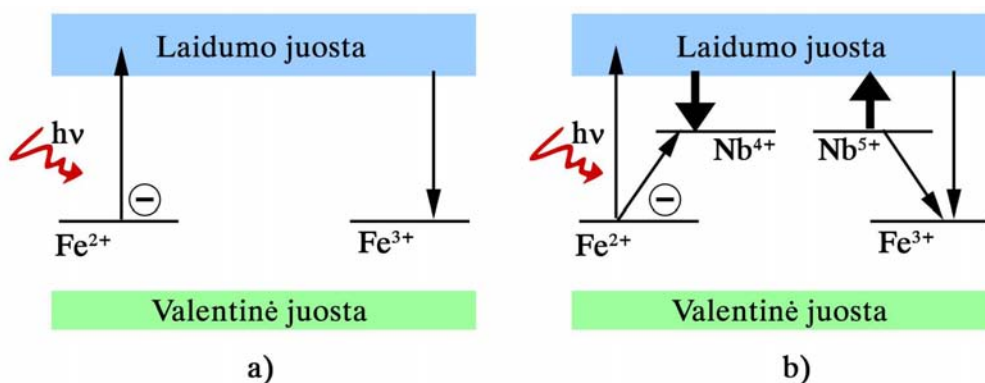
čia  $r_{13,33}$  yra elektrooptiniai koeficientai. LiNbO<sub>3</sub> kristalui jie atitinkamai yra lygūs 11 pm/V ir 34 pm/V [149].

Tačiau kodėl kristalą paveikus intensyvia spinduliuote jame atsiranda lūžio rodiklio pokytis net ir nesant išorinio elektrinio lauko? Atsakymas į šį klausimą būtų toks: intensyvi spinduliuotė kristale sukuria lokalius, vidinius elektrinius laukus, kurie paskatina Pokelso efekto atsiradimą. Vidinio elektrinio lauko atsiradimą galima supaprastintai iliustruoti tokia fizikinių procesų seka:

$$\mathbf{I}(\mathbf{r}) \xrightarrow{(1)} N_{e,h}(\mathbf{r}) \xrightarrow{(2)} \mathbf{j}(\mathbf{r}) \xrightarrow{(3)} \rho(\mathbf{r}) \xrightarrow{(4)} \mathbf{E}(\mathbf{r}) \xrightarrow{(5)} \Delta n(\mathbf{r}). \quad (3.2)$$

Tarkime, kad elektromagnetinė spinduliuotė, kurios intensyvumo pasiskirstymas ( $\mathbf{I}(\mathbf{r})$ , čia  $\mathbf{r}$  – erdvinė koordinatė) yra *nevienalytis*, krinta į kristalą. Dėl tiesinės ar daugiafotonės sugerties kristale prasidės elektronų (bei skylių) žadinimas į laidumo juostą (čia  $N_{e(h)}$  atitinka laidumo elektronų (skylių) skaičių). Laisvieji krūvininkai kristale dėl difuzijos, krūvininkų dreifo, taip pat fotogalvaninio efekto migruos ir sukurs erdviškai moduliuotą elektros srovę ( $\mathbf{j}(\mathbf{r})$ ). Pastarasis reiškinys inicijuos krūvio persiskirstymą medžiagoje. Po tam tikro laiko atsiras tokia krūvininkų tankio moduliacija ( $\rho(\mathbf{r})$ ), kad jos kuriamas elektrinis laukas ( $\mathbf{E}(\mathbf{r})$ ) sustabdys tolesnę krūvininkų migraciją ir medžiagoje susidarys dinaminė pusiausvyra. Šis elektrinis laukas ir sąlygos Pokelso efekto atsiradimą.

Taigi krūvio persiskirstymas medžiagoje lemia vidinio elektrinio lauko atsiradimą. Feroelektrinėse medžiagose krūvio persiskirstymas yra nevie-



3.1 pav. Krūvio pernašos schemas: a) vieno priemaišinio centro; b) dviejų priemaišinių centrų.  $\text{Fe}^{3+}$  ir  $\text{Fe}^{2+}$  – pilno ir tuščio priemaišinių centrų lygmenys,  $\text{Nb}^{4+}$  ir  $\text{Nb}^{5+}$  – poliarono ir defekto lygmenys.

nalytis, nes tokios medžiagos išsiskiria savaiminiu poliarizuotumu. Todėl laisvųjų krūvininkų migracija sparčiau vyks tik tam tikromis kristalo kryptimis. Krūvininkų dreifas ir tūrinis fotogalvaninis efektas yra stipresni kryptimi, kuria yra nukreiptas kristalo poliarizuotumo vektorius [150]. Ši kryptis yra vadinama *c ašimi*.  $\text{LiNbO}_3$  atveju, ji sutampa su kristalo optine ašimi. Pagrindinė krūvininkų migracija, kartu ir stipriausias elektrinis laukas formuosis būtent *c* ašies kryptimi.

Maksimalų lūžio rodiklio pokytį lems elektrinio lauko stipris, kuris savo ruožtu priklausys nuo sužadintų laisvųjų krūvininkų skaičiaus ( $N_e$ ), sąlygojančio krūvio persiskirstymo dydį. Jau seniai buvo pastebėta, kad fotorefrakcinis efektas didesnis kristaluose, kurie yra legiruoti įvairiomis priemaišomis [151]. Šiam tikslui dažniausiai naudojami pereinamieji elementai, tokie kaip Zn, Mn, Fe. Šios metalų priemaišos mažina kristalo draustinės juostos tarpą ir yra laisvųjų elektronų donoriai.

Tradiciskai krūvio pernaša fotorefrakciniame kristale yra nagrinėjama naudojant vieno priemaišinio centro modelį. Tokio modelio scheminė diagrama pavaizduota 3.1 paveiksle, a). Fotonas sužadina elektroną perkeldamas iš spalvinio centro  $\text{Fe}^{2+}$  (čia ir toliau kristalą laikysime legiruotą Fe atomais) į laidumo juostą ir sukurdamas tuščią centrą ( $\text{Fe}^{3+}$ ). Nuskrėjęs tam tikrą atstumą, elektronas yra pagaunamas tuščio  $\text{Fe}^{3+}$  centro. Modeliuojant būsenų užpildas, galima nustatyti, kaip priemaišų skaičius lemia lūžio rodiklio pokytį. Išsamią būsenos lygčių analizę galima rasti [152, 153] darbuose. Čia pateiksime tik kokybines šio modelio išvadas. Remiantis vie-

no priemaišinio centro modeliu, fotogalvaninio efekto nulemta srovė yra tiesiškai proporcinga spinduliuotės intensyvumui ( $I$ ) ir donorinių centrų tankiui ( $N_{Fe^{2+}}$ ), t. y.  $j \propto IN_{Fe^{2+}}$ . Maksimalų lūžio rodiklio pokytį lemia bendras akceptorinių centrų tankis  $\Delta n_{max} \propto N_{Fe^{3+}}$ . Taigi didinant  $LiNbO_3$  priemaišų koncentraciją iš esmės galima gauti didesnę lūžio rodiklio pokytį. Tačiau eksperimentiškai parodyta, kad toks modelis galioja tik kai  $N_{Fe^{3+}} < 20 \times 10^{24} \text{ m}^{-3}$ . Todėl maksimalus galimas lūžio rodiklio pokytis siekia  $\Delta n_{max} \approx 7 \times 10^{-4}$  (esant paprastajai poliarizacijai) [153]. Toliau didinant koncentraciją prasideda elektronų tuneliavimas tarp priemaišinių lygmenų, kuris mažina krūvio persiskirstymą.

Vieno priemaišinio centro modelis puikiai paaiškina lūžio rodiklio pokyčius tada, kai krintančios spinduliuotės intensyvumas yra mažas ( $< 1 \text{ W/cm}^2$ ). Tokios sąlygos pasiekiamos naudojant nefokusuotą nuolatinės veikos lazerio spinduliuotę, dažnai naudojamą hologramų užrašymui. Esant aukštesniems intensyvumams, fotorefrakciniuose kristaluose ima reikštis daugybė naujų reiškinų, kurių negalima paaiškinti naudojant vieno priemaišinio centro modelį. Pirmiausia  $LiNbO_3$  kristale pastebimas sugerties didėjimas ties 760 nm, be to, lūžio rodiklio pokytis būna didesnis, nei prognozuoja vieno centro modelis. Šiems efektams paaiškinti naudojamas dviejų centrų modelis, kuriame laikoma, jog be pagrindinio Fe lygmens, arti laidumo juostos kristale egzistuoja dar vienas lygmuo. Šį lygmenį sukuria dėl stipraus elektromagnetinio lauko kristale susiformavę poliaronai. Nustatyta, jog  $LiNbO_3$  kristale poliaronas formuojasi, kai elektronas yra pagaunamas kristalo defekte, o tiksliau –  $Nb^{5+}$  jone, užimančiame Li vakansijos vietą. [154]. Scheminė krūvio pernaša dviejų centrų modelyje pateikta 3.1 paveiksle, b). Intensyvus elektromagnetinis laukas sparčiai formuoja poliaronus (energetiniai lygmenys yra užpildomi per  $< 100 \text{ fs}$  [155]) pagaudamas elektronus iš gilaus centro lygmenų. Toliau pagrindinė krūvio pernaša vyksta tik tarp poliarono ir laidumo juostų elektronų, nes tiesioginio sužadavimo iš gilaus centro į laidumo juostą tikimybė yra kur kas mažesnė. Elektrono relaksacija iš poliarono lygmens į gilaus centro lygmenį yra ilga ir priklausomai nuo priemaišų skaičiaus gali siekti nuo  $1 \mu\text{s}$  iki  $10^3 \mu\text{s}$  [156].

Nustatyta, jog fotogalvaninis efektas tampa daug stipresnis, jei krūvio pernašoje dalyvauja poliaronai [154, 157]. Dėl poliaronų poveikio atsiradusi fotogalvaninė srovė tampa priklausoma nuo spinduliuotės intensyvumo kvadrato ( $j \propto IN_{Nb^{4+}} \propto I^2$ ). Didesnis krūvio persiskirstymas padidina

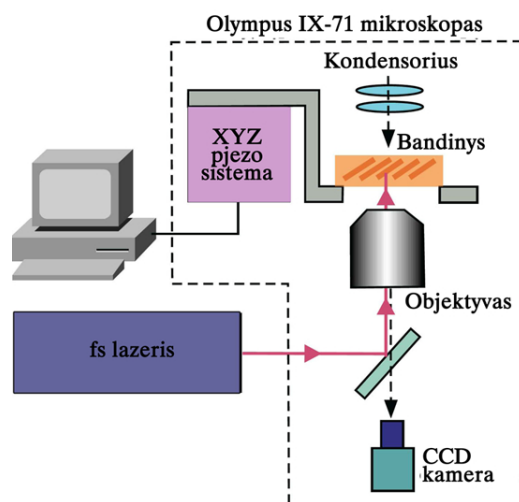
ir lūžio rodiklio pokytį, kuris esant nepaprastajai poliarizacijai gali siekti  $3 \times 10^{-3}$ , kai žadinama fokusuota nuolatinės veikos lazerio spinduliuote [158]. Medžiagoje besiformuojantys poliaronai taip pat paaiškina ir padidėjusią spinduliuotės sugertį ties 760 nm.

### 3.1.2. Fotorefrakcinių darinių indukavimas femtosekundiniais lazerio impulsais

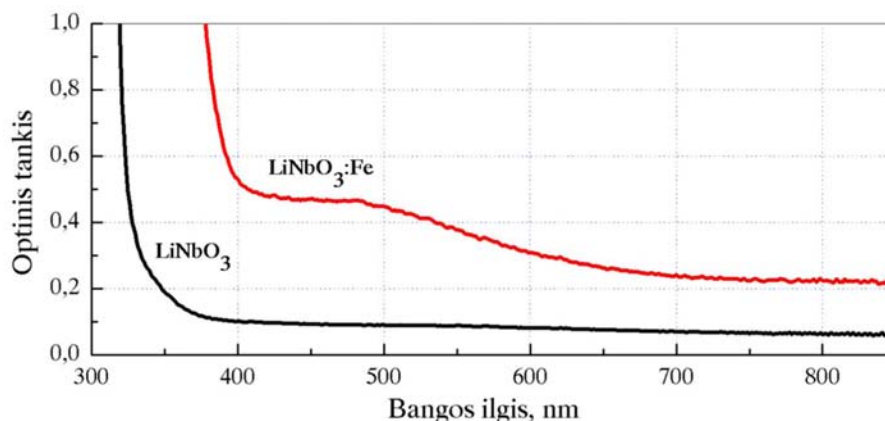
Fotorefrakcinis efektas ir šiuo efektu pagrįstų indukuotų darinių formavimas ultratrumpais lazerio impulsais yra mažai tyrinėtas. Parodyta, kad femtosekundinės spinduliuotės inicijuota daugiafotonė sugertis leidžia įrašinėti trimačius darinius, formuoti duomenų masyvus [159]. Be to, modifikacijoms formuoti galima naudoti infraraudonąją spinduliuotę, kuri yra kristalo skaidrumo srityje [160].

Fotorefrakcinės modifikacijos  $\text{LiNbO}_3$  kristale buvo indukuojamos naudojant 800 nm ir 150 fs trukmės lazerio impulsus, gaunamus iš Ti:safyro oscilatoriaus (MaiTai, *Spectra Physics*). Impulsų pasikartojimo dažnis siekė 80 MHz. Eksperimento schema pavaizduota 3.2 paveiksle. Bandinys buvo tvirtinamas ant trijų ašių pjezopozicionavimo stalų, kurių maksimalus poslinkio atstumas  $XY$  kryptimi siekė 800  $\mu\text{m}$ , o  $Z$  kryptimi – 250  $\mu\text{m}$  (P-628, *PI*). Pats stalas buvo įtvirtintas ant *Olympus IX-71* mikroskopo, per kurio objektyvą ir buvo įvestas lazerio pluoštas. Mikroskopas leido pastoviai stebėti įrašymo procesą ir vaizdo kamera (CCD) fiksuoti gautų darinių nuotraukas. Lazerio spinduliuotė, prieš patekdamą į mikroskopą, buvo silpninama automatizuotu silpnintuvu, o ekspozicijos trukmė valdoma mechanine sklende.

Modifikacijos buvo įrašinėjamos Fe legiruotame (0,05 %) ir gryname  $\text{LiNbO}_3$  kristale. Kaip matome iš kristalų sugerties



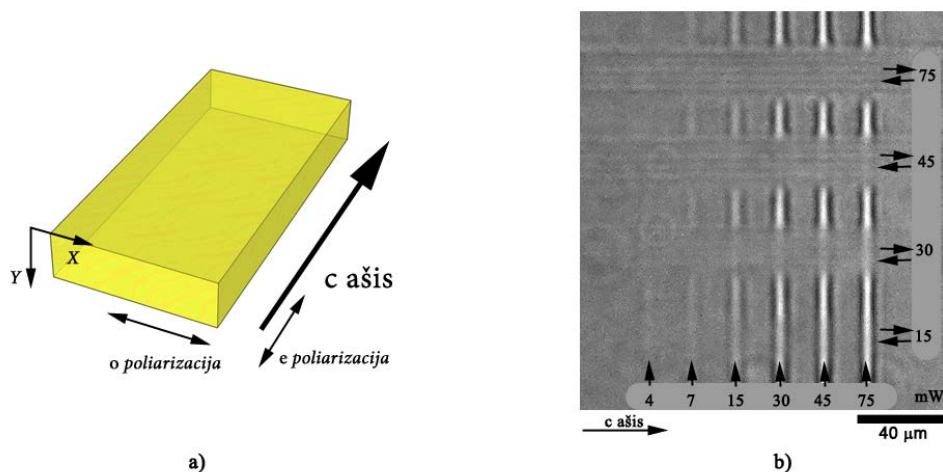
3.2 pav. Eksperimento schema.



3.3 pav. Nelegiruoto ir geležimi legiruoto ličio niobato sugerties spektrai.

kreivių (žr. 3.3 pav.), metalų priemaišos, veikiančios kaip elektronų donorai, sumažina draustinės juostos tarpą ir padidina sugertį ties 500 nm. Vadinasi sąveikos su 800 nm spinduliuote metu vyraus dvifotoniai procesai, o grynojo  $\text{LiNbO}_3$  atveju – trifotoniai. Kristalai buvo išpjauti  $Y$  kryptimi, o lazerio pluoštas krito statmenai  $c$  ašiai. Kaip jau minėta, kristalo orientacija yra labai svarbi fotorefrakcinių modifikacijų užrašymui. Ypač svarbi yra kristalo  $c$  ašis, nes pagrindinis krūvio persiskirstymas vyksta šios ašies kryptimi. Jei lazerio pluoštas yra skenuojamas statmenai  $c$  ašiai, kristale užsirašo aiški pakitusio lūžio rodiklio sritis, o transliuojant bandinį išilgai  $c$  ašies tokia sritis nesiformuoja. Šį efektą gerai iliustruoja mikroskopinė nuotrauka, pateikta 3.4 paveiksle, b). Matome, kad kai bandinio transliavimas vyksta išilgai  $c$  ašies, aiškūs dariniai ne tik nesiformuoja, bet stebimas ir nutrynimo efektas:  $c$  kryptimi judantis lazerio pluoštas išdanko prieš tai suformuotą krūvio persiskirstymą, taip pakeisdamas lūžio rodiklį. Šis reiškinys iš principo leidžia fotorefrakcinį kristalą naudoti kaip duomenų laikmeną, kurioje kiekvienas bitas gali būti įrašomas ir ištrinamas selektyviai.

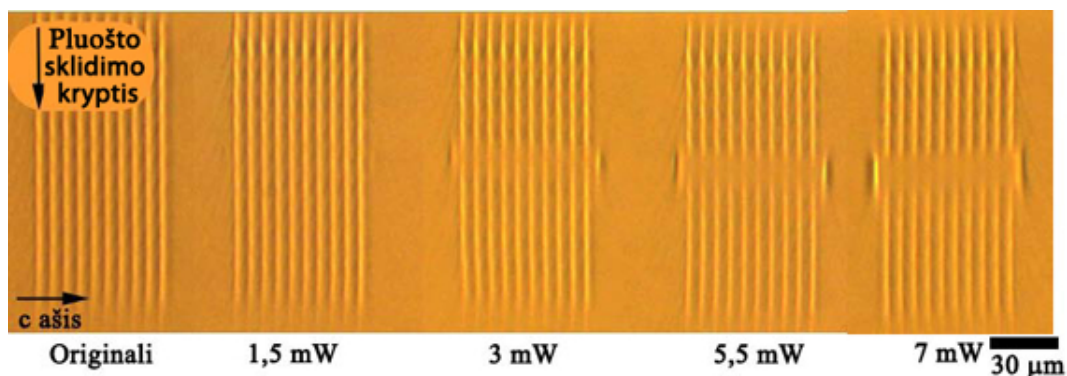
Norint pademonstruoti selektyvaus trimačio ištrynimo metodiką, geležimi legiruotame  $\text{LiNbO}_3$  kristale buvo įrašoma (transliuojant bandinį statmenai  $c$  ašiai) stora tūrinė gardelė, turinti kelis sluoksnius (analogišku principu, aprašytu 2.3.1 skirsnyje), o po to, pakeitus transliavimo kryptį, vidurinis gardelės sluoksnis buvo ištrinamas. Trynimui buvo naudojamas standartinis įrašymo algoritmas („gyvatėlė“), t. y. kai lazerio pluoštas juda bandinio atžvilgiu pirmyn ir atgal viena kryptimi, o bandinys dar palaipsniui yra transliuojamas statmena kryptimi. Tokiu būdu lazeriu paveikiamas visas



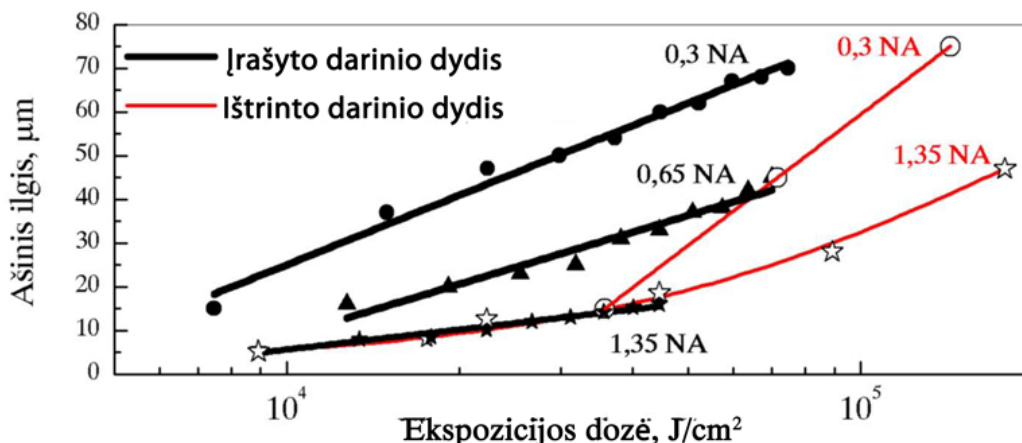
3.4 pav. a) Pagrindinės naudoto  $\text{LiNbO}_3$  kristalo ašys. b) Modifikacijų, įrašytų skirtingomis kristalo kryptimis ir skirtingos galios lazerio spinduliuote, mikroskopinė nuotrauka. Bandinio transliavimo greitis –  $20 \mu\text{m/s}$ , objektyvas –  $0,3 \text{ NA}$ , lazerio poliarizacija –  $o$ .

norimas medžiagos plotas. Gauti rezultatai parodyti 3.5 paveiksle.

Akivaizdžiai matome, kad pakeitus transliavimo kryptį galima panaikinti modifikacijas griežtai apibrėžtame sluoksnyje ir visiškai nepaveikti informacijos, įrašytos kituose sluoksniuose. Nutrinamo sluoksnio storis priklauso nuo impulso galios, bandinio transliavimo greičio, fokusavimo aštrumo. Visus šiuos kintamuosius galima susieti vartojant ekspozicijos dozės sąvoką,



3.5 pav. Selektyvus trimatis modifikacijų ištrynimasis  $\text{LiNbO}_3$  kristale. Tūrinės gardelės įrašytos kristalo tūryje statmena  $c$  ašies kryptimi (įrašymo galia –  $7 \text{ mW}$ , greitis –  $20 \mu\text{m/s}$ ), o vidurinis sluoksnis ištrintas transliuojant bandinį išilgai  $c$  ašies  $40 \mu\text{m/s}$  greičiu ir naudojant įvairias lazerio galias. Naudotas imersinis  $1,35 \text{ NA}$  objektyvas.



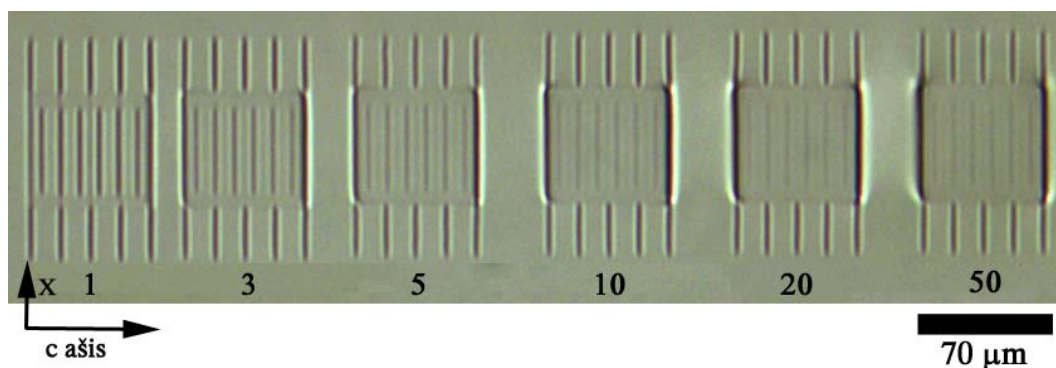
3.6 pav. Įrašytos modifikacijos ašinio ilgio ir nutrintos modifikacijos sluoksnio storio priklausomybė nuo ekspozicijos dozės naudojant įvairius mikroskopo objektyvus.

t. y. naudojantis išraiška

$$D = \frac{kP}{\pi r v}. \quad (3.3)$$

Ši formulė rodo bendrą energijos tankį, kritusį į vieną  $r$  spindulio modifikuojamos zonos plotą, transliuojant bandinį  $v$  greičiu.  $P$  yra vidutinė spinduliuotės galia, o  $k$  – skaičius, parodantis, kiek kartų toje pačioje vietoje buvo kartojamas įrašymo algoritmas (jei nepamirėta kitaip,  $k = 1$ ). Modifikuojamos zonos diametrą galima apskaičiuoti naudojantis 1.9 formule.

Kaip įrašytos modifikacijos ašinis ilgis priklauso nuo ekspozicijos dozės, parodyta 3.6 paveiksle. Logaritmiškai didinant ekspozicijos dozę, modifikacijos ilgis auga tiesiškai. Esant didžiausioms eksperimente naudotoms dozėms, šis ilgis siekė 70  $\mu\text{m}$ , o skersinis diametras buvo vos  $\sim 3 \mu\text{m}$  (skersinis diametras taip pat priklauso nuo ekspozicijos dozės, tačiau jo pokytis yra nedidelis, ir visame ekspozicijos dozės intervale nepakito daugiau kaip per 30 %, pradedant nuo 2  $\mu\text{m}$ , gautų 0,3 NA objektyvu, ar 1  $\mu\text{m}$ , naudojant 1,3 NA). Taigi susiformavusi modifikacija tampa labai ištempta pluošto kritimo kryptimi. Tokio formavimosi priežastis gali būti fronto aberacijos, atsiradusios pluoštui lūžtant į didelio lūžio rodiklio ( $n_{\text{LiNbO}_3} = 2,3$ ) medžiagą. Taip pat reikia pastebėti, kad daugiašūvio modifikavimo metu kiekvienas impulsas šiek tiek keičia lūžio rodiklį (jį mažindamas), todėl kiekvienas paskesnis impulsas patiria terpės optinių savybių pokytį ir židinytis formuojasi vis kitoje vietoje, taip sukurdamas ilgą modifikuotą darinį. Naudojant



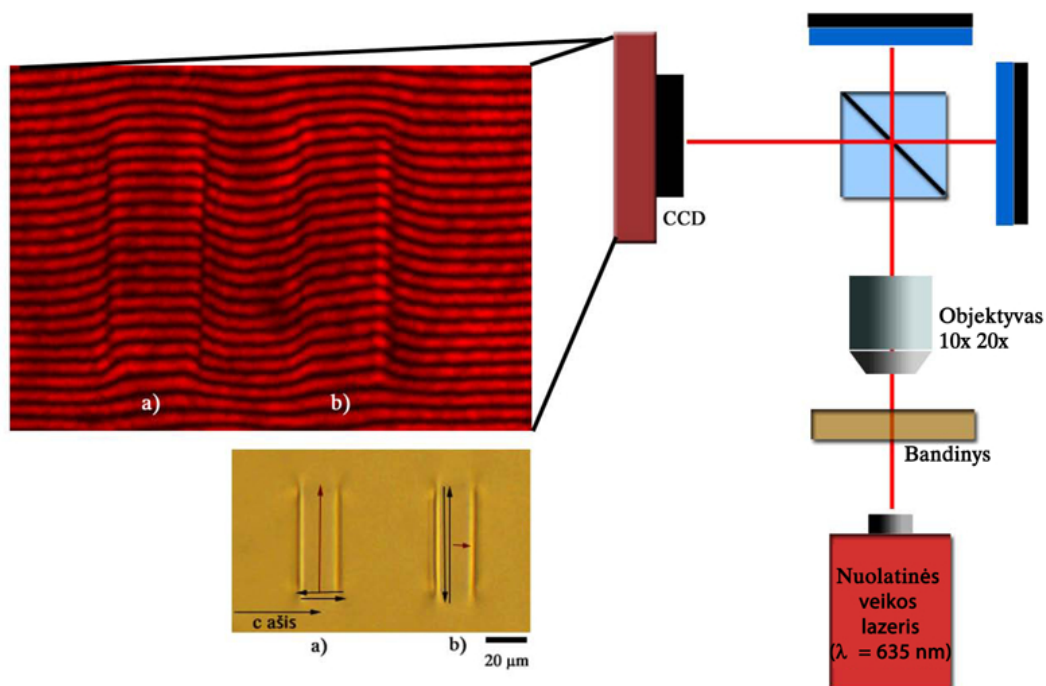
3.7 pav. Daugkartinis informacijos užrašymas  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$ . Užrašytos gardelės centrinė dalis buvo trinama transliuojant bandinį išilgai  $c$  ašies, o po to į nutrintą plotą įrašant naują gardelę. Skaičius apačioje nurodo, kiek kartų įrašymo ir trynimo procedūra buvo atlikta. Įrašymo parametrai: vid. spinduliuotės galia – 40 mW, transliavimo greitis – 20  $\mu\text{m/s}$ ; trynimo parametrai: vid. spinduliuotės galia – 75 mW, greitis – 60  $\mu\text{m/s}$ . Objektyvas – 0,3 NA.

aštriau fokusuojančius objektyvus, modifikuoto darinio ašinis ilgis gaunamas gerokai trumpesnis ir gali siekti 5  $\mu\text{m}$  (su 1,35 NA).

Taip pat 3.6 paveiksle pateikti duomenys parodo, kaip ištrintos modifikacijos storis priklauso nuo ekspozicijos dozės. Naudojant 0,3 NA objektyvą visame tirtame ekspozicijos dozių intervale, esant tokiai pat įrašymo ir trynimo dozei, ištrinto sluoksnio storis visada buvo mažesnis už modifikacijos ilgį, o gauti 1,35 NA objektyvu tiek modifikacijos ilgis, tiek ištrinto storio gyliai buvo panašūs. Šie rezultatai rodo, kad kompaktiškesnio informacijos bitų talpinimo pagrindinis ribojantis parametras yra paties įrašomo bito dydis, kurį sumažinti yra sudėtingiau nei ištrinamo bito dydį.

Trynimo metu lazerio pluoštas pakeičia pirminį krūvio pasiskirstymą taip sugriaudamas pirminę esamos modifikacijos formą. Tačiau ar šis krūvio persiskirstymas yra visiškai sugriaunamas ir toje pat vietoje galima užrašyti naują informaciją? Norint tai išsiaiškinti, buvo atlikti daugkartinio informacijos įrašymo ir nutrynimo tyrimai. 3.7 paveiksle pavaizduotos modifikacijos, kurios buvo perrašytos daugelį kartų toje pačioje medžiagos vietoje. Matome, kad užrašyta informacija detektuojama mikroskopiniais metodais net ir perrašant iki 50 kartų, tačiau pačių modifikacijų kontrastas mažėja didėjant perrašymų skaičiui. Pastebėta, kad, padidinus nutrinamos zonos plotą, daug kartų perrašytos modifikacijos kontrastas yra kiek didesnis. Šis kontrastas taip pat priklauso nuo kristalo priemaišų skaičiaus. Naudojant  $\text{LiNbO}_3$  kristalą su 0,04 % Fe priemaišomis, kontrastas buvo didesnis, tačiau





3.8 pav. Interferometro, skirto lūžio rodiklio pokyčiams stebėti, principinė schema. CCD kamera fiksuoja interferencines linijas, kurios dėl pakitusio lūžio rodiklio yra iškreipiamos (įklijoje taip pat pateikiami interferencinių juostų pavyzdžiai, kai „gyvatėlės“ algoritmu modifikacijos trinamos: a) transliuojant bandinį išilgai  $c$  ašies; b) transliuojant bandinį statmenai  $c$  ašiai).

nelegiruotame kristale jau po 10 perrašymų įrašyti dariniai buvo neryškūs. Taigi visuose kristaluose stebimas įsisotinimo efektas.

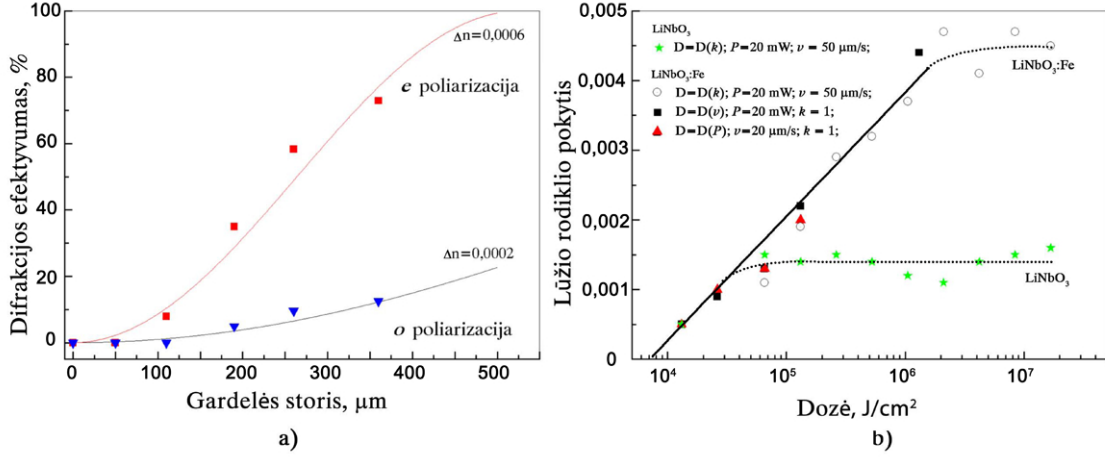
Norint suprasti šio įsisotinimo priežastis, reikia analizuoti, kaip topografiškai kinta medžiagos lūžio rodiklis, pakartotinai nutrynus įrašytus darinius. Tam tikslui buvo sukonstruotas interferometras, gebantis fiksuoti medžiagos lūžio rodiklio pokyčius ir jo pasiskirstymą medžiagoje. Principinė šio interferometro schema pateikta 3.8 paveiksle. Interferometrą sudaro nuolatinės veikos diodinis lazeris ( $\lambda = 635$  nm), kuris, prieš tai išvalius pluošto profilį erdvinio filtru, vienalytiškai apšviečia bandinį su įrašytais lūžio rodiklio modifikacijomis. Už bandinio buvo pastatytas objektyvas (10x, 20x). Jis išdidino modifikuotos srities vaizdą, kuris toliau pateko į Maikelsono interferometrą. Jį sudaro pluošto daliklis ir du veidrodžiai, įstatyti kiekvieno interferometro petyje. Vienas interferometro veidrodžių buvo silpnai išderintas, kad interferometro išėjime susiformuotų du persikloję vaizdai, o viename jų matytųsi modifikuota zona. Toks išderinimas

leidžia susiformuoti interferencinėms linijoms, kurios yra fiksuojamos CCD matrica. Tokiu būdu stebint interferencinių linijų išlinkimą ( $\Phi$  – linijos poslinkio vertė, normuota į  $2\pi$ ) galima spręsti apie medžiagos lūžio rodiklio pokytį, o žinant modifikuotos zonos storį ( $\Delta z$ ), jei modifikacija yra vienalytė, galima įvertinti ir pokyčio dydį:  $\Delta n = \lambda\Phi/\Delta z$ .

Nagrinėjant interferencinius vaizdus, paaiškėja, kad naudojant trynimo algoritmą, kai bandinys yra skenuojamas išilgai  $c$  ašies, krūvio persiskirstymas nėra atstatomas į pradinę padėtį, t. y. nėra panaikinamas lūžio rodiklio pokytis, bet vyksta tolesnis krūvio persiskirstymas, kurio metu lazerio pluoštas „išstumdo“ krūvį į trinamo ploto periferiją. Šie krūvininkai kuria elektrinį lauką, kuris pakeičia viso apdirbamo ploto lūžio rodiklį. Interferencinis vaizdas srities, kurioje buvo ištrinta įrašyta modifikacija, t. y. lazerio pluoštas, judėdamas išilgai  $c$  ašies, „gyvatėlės“ algoritmu nuskenavo pasirinktą plotą, pateiktas 3.8 paveiksle, a). Matome, kad visoje apdirbtoje srityje stebimas vienalytiškai pakitęs lūžio rodiklis. Panašų efektą galima gauti ir „gyvatėlė“ skenuojant pluoštą statmenai  $c$  ašiai, t. y. ta pačia kryptimi, kuria yra įrašinėjamos modifikacijos. Tačiau šiuo atveju „gyvatėlės“ poslinkio žingsnį reikia parinkti kuo mažesnę, kad pluošto formuojamos modifikacijos persiklotų viena su kita. Tokiu algoritmu įrašinėjant krūvio persiskirstymas bus nevienalytis ir medžiagoje susiformuos gradientinis lūžio rodiklio pokytis, kaip pavaizduota 3.8 pav., b).

Po daugelio perrašymų, lūžio rodiklio pokytis medžiagoje įsisotina, taip užkirsdamas kelią tolesniam informacijos įrašymui. Taigi šiame eksperimente naudoti įrašymo ir nutrynimo algoritmai nėra visiškai optimalūs daugkartiniam informacijos užrašymui. Tačiau tai, kad krūvio persiskirstymas priklauso nuo naudojamo algoritmo, leidžia manyti, jog egzistuoja toks trynimo algoritmas, kuris galėtų selektyviai ir visiškai panaikinti indukuotas lūžio rodiklio modifikacijas. Kita vertus, šis įsisotinimo reiškinys leidžia kurti didelio ploto vienalyčius modifikuoto lūžio rodiklio darinius.

Norint įvertinti fotorefrakcinį lūžio rodiklio pokytį, buvo taikomas tiek interferometrinis metodas, tiek 2.3.1 skirsnyje aprašytas pokyčio nustatymo būdas naudojant tūrines Brego gardeles. Kaip Brego gardelės, suformuotos  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  kristale, difrakcinis efektyvumas priklauso nuo gardelės storio pavaizduota 3.9 paveiksle, a). Didžiausias difrakcinis efektyvumas, siekiantis 72 %, buvo 350  $\mu\text{m}$  storio gardelės. Difrakcinio efektyvumo kitimą nuo storio galima aprašyti naudojantis 2.8 formule, tarus, kad lūžio rodiklio



3.9 pav. a) Brego gardelės difrakcinio efektyvumo priklausomybė nuo gardelės storio esant skirtingoms šviesos poliarizacijoms. Rašymui pasirinkta ekspozicijos dozė siekė  $2 \times 10^2 \text{ J}/\text{cm}^2$ , gardelės periodas –  $6 \mu\text{m}$ . Kreivės vaizduoja teorinius efektyvumo kitimus pagal surištųjų bangų teoriją. b) Lūžio rodiklio pokyčio priklausomybė nuo ekspozicijos dozės grynajame bei Fe legiruotame  $\text{LiNbO}_3$  kristaluose. Dozė buvo varijuojama tiek keičiant spinduliuotės galią ( $P$ ), tiek transliavimo greitį ( $v$ ) ir algoritmo kartojimų skaičių ( $k$ ).

pokytis siekia 0,0006. Svarbu pastebėti, kad toks pokytis gaunamas tik difraguojant šviesai, turinčiai  $e$  poliarizaciją. Difrakcinis efektyvumas esant  $o$  poliarizacijos šviesai yra gerokai mažesnis, kaip ir pats lūžio rodiklio pokytis, kuris siekia 0,0002. Toks rezultatas, t. y.  $\Delta n_e = 3\Delta n_o$ , patvirtina, kad lūžio rodiklio pokytis iš tiesų yra fotorefrakcinio pobūdžio, nes  $\text{LiNbO}_3$  kristalo elektrooptiniai koeficientai, esant skirtingoms poliarizacijoms, taip pat skiriasi tris kartus (žr. 3.1 formulę).

Kaip lūžio rodiklio pokytis priklauso nuo ekspozicijos dozės, pavaizduota 3.9 paveiksle, b). Šie rezultatai gauti matuojant lūžio rodiklio pokytį iš interferencinių linijų poslinkio, atsiradusio modifikavus vieną atskirą giją. Pati dozė buvo varijuojama įvairiais metodais: keičiant lazerio spinduliuotės galią, bandinio transliavimo greitį ir algoritmo kartojimų skaičių. Kaip matome, lūžio rodiklio pokytis, neatsižvelgiant į tai koku būdu didinama ekspozicija, logaritmiškai auga iki tam tikros vertės, kuriai esant pasireiškia sotis. Įsisotinusio lūžio rodiklio pokyčio vertė  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  kristale siekė 0,0045. Šie rezultatai rodo, kad femtosekundiniais impulsais indukuoto lūžio rodiklio pokyčio maksimali vertė yra bent 40 % didesnė nei maksimalus pokytis, indukuojamas intensyvia nuolatinės veikos (ultravioletine) spinduliuote [158]. Gryname  $\text{LiNbO}_3$  kristale lūžio rodiklio sotis ima reikštis esant

mažesnei ekspozicijos dozei ir siekia 0,0015. Panaši vertė yra gaunama veikiant tokį kristalą ir nuolatinės veikos spinduliuote [158].

Kas sąlygoja tokį soties vertės padidėjimą, nėra iki galo aišku. Didesnis lūžio rodiklis byloja apie medžiagoje esantį aukštą elektrinį lauką bei didesnį krūvio persiskirstymą. Kaip jau minėta, poliaronai gerokai sustiprina fotogalvaninį efektą, sukurdami intensyvias sroves, reikalingas erdvinei krūvio moduliacijai sukelti. Susiformavusių poliaronų skaičius priklauso nuo intensyvumo kvadrato, todėl ši sąlyga gali paaiškinti, kodėl esant intensyviai femtosekundinei spinduliuotei (mūsų eksperimente  $I \approx 100 \text{ GW/cm}^2$ ) taip išauga lūžio rodiklis. Kita vertus, žinoma, kad kaitinant lazeriu, fotorefrakciniame kristale atsiranda piroelektrinis efektas, t. y. dėl medžiagoje susiformavusio temperatūros gradiento atsiranda papildomas elektrinis laukas, kuris taip pat keičia medžiagos lūžio rodiklį. Be to, sukuria sroves taip prisidėdamas prie didesnio krūvio persiskirstymo. Modeliavimai rodo, kad nuolatinės veikos spinduliuotei ir nanosekundinės trukmės impulsams piroelektrinis efektas  $\text{LiNbO}_3$  kristale yra labai silpnas [161]. Tačiau itin didelio impulsų pasikartojimo dažnio femtosekundinė spinduliuotė, kaip kad žinome iš stiklo apdirbimo eksperimentų, medžiagoje sukelia stiprią terminę akumuliaciją, kuri didina temperatūros gradientą ir kartu piroelektrines sroves. Impulsų pasikartojimo dažnis taip pat lemia nelegiruoto  $\text{LiNbO}_3$  fotorefrakcinių efektų atsiradimą, nes kristalą veikiant 1 kHz dažnio impulsais fotorefrakcinės modifikacijos nesiformavo. Šį efektą galima paaiškinti tuo, kad kai impulsų pasikartojimų dažnis yra mažas, po kiekvieno impulso poveikio poliaronai spėja visiškai relaksuoti, o krūvio pernaša nėra efektyvi, nes laidumo elektronus tenka žadinti iš kristalo valentinės juostos ar nedidelio skaičiaus defektų. Tačiau padidinus dažnį iki MHz poliaronų lygmuo jau nėra nuskurdinamas, todėl susidaro sąlygos ir krūvio pernašai.

Lūžio rodiklio pokytį galima dar padidinti, lazerio pluoštu paveikus didesnio ploto zoną. Pavyzdžiui,  $\text{LiNbO}_3:\text{Fe}$  kristale „gyvatėlės“ algoritmu modifikavus 20  $\mu\text{m}$  storio sritį (kai spinduliuotės galia yra 75 mW, transliavimo greitis – 50  $\mu\text{m/s}$ , tai atitinka  $\sim 10^5 \text{ J/cm}^2$  dozę) lūžio rodiklio pokytis gaunamas iki 0,0085 (panašios vertės gautos ir medžiagos srityse, kuriose buvo atliekamas daugkartinio informacijos perrašymo eksperimentas). Šie rezultatai rodo, kad TLĮ metodu galima efektyviai pakeisti erdvinio krūvio pasiskirstymą, „išstumiant“ krūvininkus į modifikuotos zonos kraštus (kaip kad matome, pvz., iš 3.7 pav.) ir sukuriant sritis su itin dideliu lūžio

rodiklio pokyčiu.

Fotorefrakcinės modifikacijos yra nestabilios, todėl jos savaime nyksta. Modifikacijos  $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$  kristale (0,05 %) savaime išnyko per 40 dienų (kristalas buvo laikomas tamsoje), o  $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$  kristale (0,04 %) išsityrė per 5 dienas. Ištrynimo procesą galima paspartinti vienalytiškai apšvietus bandinius UV ar didelio intensyvumo lazerio spinduliuote. Eksponuojant standartine 4 W UV lempa, modifikacijos  $\text{LiNbO}_3\text{:Fe}$  (0,05 %) bandinyje išnyko per 4 h, o apšvietus  $30 \text{ mW/cm}^2$ , 532 nm bangos ilgio pikosekundine lazerio spinduliuote (STA-01, *UAB Standa*) – per 50 min. Nelegiruotam  $\text{LiNbO}_3$  užteko 50 min ekspozicijos po UV lempa, kad visos modifikacijos išnyktų. Po ištrynimo jokių liekamųjų efektų kristaluose nebuvo pastebėta ir kristalus buvo galima naudoti naujos informacijos įrašymui.

Taigi nestabilios fotorefrakcinės modifikacijos, inicijuojamos ultratrumpųjų lazerio impulsų tiek gryname, tiek metalais legiruotame  $\text{LiNbO}_3$  kristale, išsiskiria dideliu lūžio rodiklio pokyčiu. Be to, tokie kristalai gali būti naudojami kaip perrašomos informacijos įrašymo terpės.

### 3.1.3. Stabiliųjų modifikacijų įrašymas ličio niobate

Kaip ir minėta, taikymuose, susijusiuose su intensyvia spinduliuote, fotorefrakcinės modifikacijos tampa bevertės. Įrašyti fotoniniai elementai, tokie kaip hologramos, yra lengvai ištrinami nuskaitymo metu juos apšvietus lazerio pluoštu. Šiai problemai spręsti buvo sukurtos tam tikros įrašymo metodikos, kurios apsunkina modifikacijų išnykimą: tai ir dvibangis lazerinis įrašymas [162] ar terminė fotorefrakcinės modifikacijos fiksacija [163], leidžianti sukurti stabilius darinius. Tačiau TLĮ metodu naudojant femtosekundinius impulsus kristale galima iš karto indukuoti stabilius darinius, turinčius pakitusį lūžio rodiklį. Tokie dariniai nėra fotorefrakcinio efekto pasekmė. Juos sukelia medžiagos struktūriniai pokyčiai.

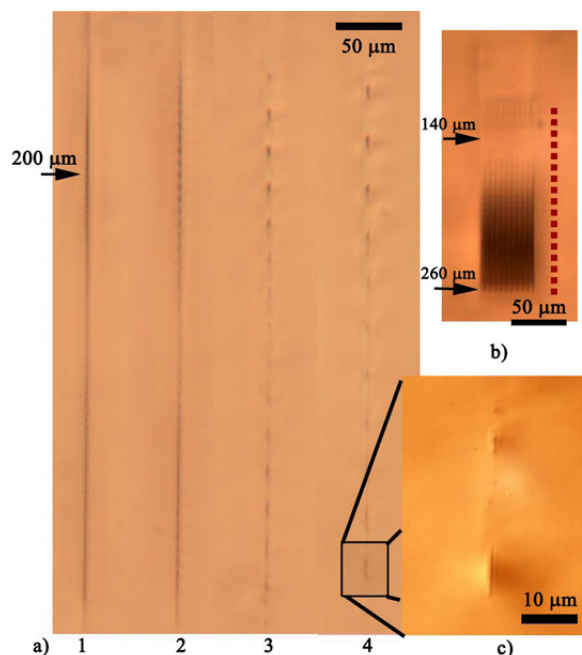
Stabilių, pakitusio lūžio rodiklio modifikacijų ir fotoninių elementų įrašymu  $\text{LiNbO}_3$  kristale domimasi jau keletą dešimtmečių. Veikiantys bangolaidžiai šiame kristale yra įrašinėjami taikant įvairias metodikas: tai ir selektyvus metalo jonų difundavimas į medžiagą [164], protonų mainai [165], lazerinis nusodinimas [166], skystos fazės epitaksija [167], apšaudymas jonų pluoštu [168] ir kt. Pastaruoju metu buvo parodyta, kad tokie bangolaidžiai gali būti įrašinėjami ir intensyviais ultratrumpaisiais impulsais. Burghoff ir

kt. parodė, kad kristale galima indukuoti dviejų tipų modifikacijas, kurių viena išlieka stabili net ir termiškai atkaitinus [169, 170]. Kol kas tiksliai nėra aišku, kokios priežastys lemia lūžio rodiklio pokytį, tačiau manoma, kad amorfizacija, kristalinės sandaros suirimas ir dėl to atsiradę medžiagos įtempimai [171] lemia tokį stabilų medžiagos optinių savybių pakitimą.

Stabilių darinių įrašymui gryname  $\text{LiNbO}_3$  kristale buvo naudojama lazerinė sistema, identiška 2.1 skirsnyje aprašytai sistemai (žr. 2.1 pav.), t. y. kaip femtosekundinių impulsų šaltinis buvo naudojamas Yb:KGV lazeris, spinduliuojantis 1030 nm bangos ilgio impulsus, kurių trukmė siekė 300 fs ir pasikartojimo dažnis 100 kHz. Pluoštas buvo fokusuojamas 0,42 NA lęšiu. Darinių įrašymui naudotas  $z$  ( $c$ ) kryptimi pjautas kristalas (lazerio pluoštas į kristalą krenta išilgai optinės ašies, t. y. kritimo kampas  $\theta = 0$ ).

Kaip matėme, fotorefrakcinėms modifikacijoms indukuoti užtenka mažos (nanodžaulių eilės) energijos impulsų, tačiau stabilų modifikacijų atsiradimo slenkstis yra gerokai aukštesnis. Tarus, kad į kristalą krintantis pluoštas nėra aberuotas, tada, remiantis samprotavimais apie pažeidimo formavimąsi 2.2 skirsnyje (žr. 2.1 – 2.3 formules), galima teoriškai įvertinti minimalų pažeidimui sukelti reikalingą impulsų energijos tankį, kuris siekia  $0,6 \text{ J/cm}^2$  (intensyvumas –  $2 \text{ TW/cm}^2$ ). Tačiau eksperimentų rezultatai rodo, kad šis slenkstis yra gerokai aukštesnis. Paviršinio pažeidimo slenkstis paprastai gaunamas tarp  $2\text{--}3 \text{ J/cm}^2$  [172]. Toks nesutapimas galimas dėl to, kad nėra tiksliai įvertinti  $\text{LiNbO}_3$  kristalo parametrai (elektrono ir fonono susidūrimų dažnis ir kt.), reikalingi jonizacijos tikimybėms apskaičiuoti. Reikia pastebėti, kad kritinė fokusavimosi galia  $\text{LiNbO}_3$  kristale yra  $\approx 0.5 \text{ MW}$  (tai atitinka 300 nJ impulso energiją, kai impulso trukmė yra 300 fs ir bangos ilgis – 1030 nm). Taigi esant didesnėms impulso energijoms, šis reiškinys jau veikia fokusavimo parametrus.  $\text{LiNbO}_3$  kristalo lūžio rodiklis yra pakankamai aukštas ( $n = 2,3$ ), todėl net fokusavimui naudojant asferinius lęšius į kristalą įėjęs pluoštas tampa sferiškai aberuotas [173]. Šios dvi priežastys trukdo kompaktiškai sufokusuoti visą lazerio energiją į vieną, difrakcijos apribotą, tašką.

Formuojant modifikuotus darinius kristalo tūryje yra svarbu parinkti reikiamą fokusavimo gylį, kadangi tai yra vienas esminių parametru, lemiančių modifikuotos zonos kokybę. Lydytame kvarce fokusavimo gylis nėra svarbus, nes pluošto aberacijos yra minimalios, tačiau  $\text{LiNbO}_3$  modifikuotos zonos vizuali kokybė netiesiškai priklausė nuo fokusavimo gylio.



3.10 pav. a) Skersinis pjūvis modifikacijų, įrašytų  $\text{LiNbO}_3$  kristale klojant lygia-grečias gijas viena ant kitos ir vis mažinant fokusavimo gylį skirtingu žingsniu (1 – 7  $\mu\text{m}$ , 2 – 12  $\mu\text{m}$ , 3 – 23  $\mu\text{m}$ , 4 – 46  $\mu\text{m}$ ). b) Tūrinė Brego gardelė, įrašyta gylyje, kuriame modifikacijos nesiformuoja (raudona punktyrinė linija rodo planuotos gardelės storį). c) Židinio padėties suskilimas dėl netiesinių procesų ir pluošto aberacijų fokusuojant giliai po kristalo paviršiumi. Visi dariniai įrašyti naudojant 3  $\mu\text{J}$  energijos impulsus; lazerio pluoštas sklinda iš viršaus;  $\mu\text{m}$  nurodo gylį po bandinio paviršiumi.

Skersinis vaizdas plokštumų, formuotų pastovia impulso energija, pavaizduotas 3.10 paveiksle. Atskiros gijos buvo rašomos viena ant kitos vis mažinant fokusavimo gylį. Kai viena gija persikloja su kita, gaunama ištisinė plokštuma, o kai židinio postūmis yra per didelis, stebimos atskiros gijos. Matome, kad egzistuoja tam tikras fokusavimo gylis, kuriame gaunamos ryškiausios modifikacijos: pirmoji sritis yra 200–260  $\mu\text{m}$  gylyje po paviršiumi, o antroji prasideda esant gyliams didesniems nei 400  $\mu\text{m}$ . Įdomu tai, kad modifikacijų nepavyksta indukuoti arti paviršiaus esančiuose sluoksniuose ( $< 140 \mu\text{m}$ ), kuriuose pluošto sferinės aberacijos turėtų būti minimalios. Nei paviršinis pažeidimas, nei tūrinės modifikacijos nesiformuoja net naudojant itin dideles impulso energijas ( $> 3 \mu\text{J}$ ). Dar daugiau padidinus impulso energiją, jau vyksta kristalo paviršinis pažeidimas. Tokia situacija apsunkina storų Brego gardelių formavimą, nes tenka tiksliai parinkti storį, kuriame visa gardelė gali būti sėkmingai įrašyta. Pavyzdžiui, 3.10 paveiksle, b) pavaizduota gardelė, kurios įrašymo gylis nebuvo teisingai parinktas, todėl

susiformavo tik ta gardelės dalis, kuri pataikė į modifikacijai tinkamą gyli.

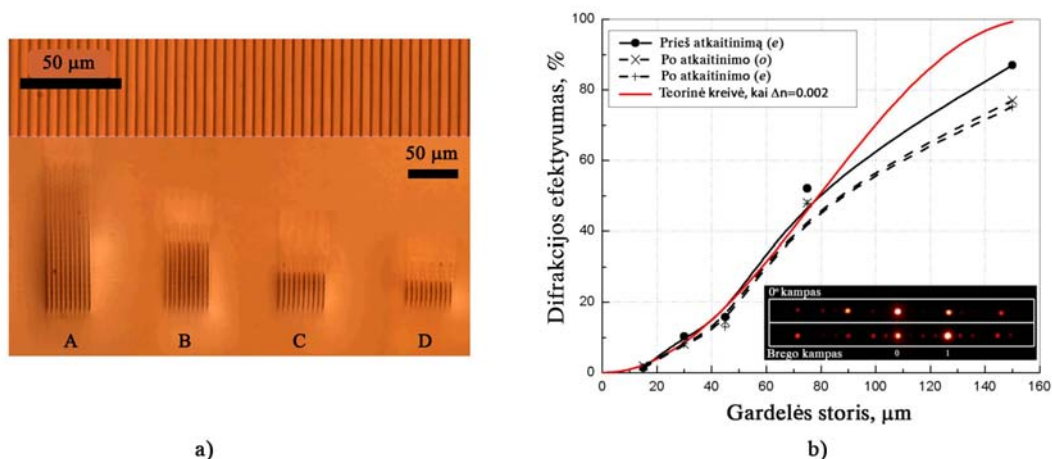
Kokie fizikiniai procesai lemia tai, kad modifikacijos formuojasi tik tam tikrame gylyje, nėra iki galo aišku. Panašus reiškinys yra stebėtas ir ZnSe kristale, kuriame net su itin didelės energijos impulsais ir aštriu fokusavimu nepavyko suformuoti jokių liekamųjų medžiagos modifikacijų [174]. Šis efektas grindžiamas tuo, kad ZnSe kristalo netiesinis lūžio rodiklis yra itin didelis (kaip ir LiNbO<sub>3</sub> – iki 5 kartų didesnis nei lydyto kvarco) ir netiesiniai reiškiniai, tokie kaip šviesos gijų formavimasis, neleidžia formotis lūžio rodiklio modifikacijoms [175]. Vis dėlto šie teiginiai nėra iki galo įrodyti.

Taigi norint įvertinti kristalo tūryje lazerio indukuotos modifikacijos atsiradimo slenkstį, tenka papildomai atkreipti dėmesį į gylį, kuriame yra kuriamos modifikacijos. Slenksčio įvertinimui buvo formuojamos atskiros gijos, esančios 200 μm gylyje po kristalo paviršiumi. Optiniais metodais detektuojamos gijos atsirado, kai impulso energija siekė 200 nJ, tačiau modifikacijos, kurios išsilaikė po terminio apdorojimo (laikant kristalą 1 h 150 °C temperatūroje), formavosi tik tada, kai impulso energija viršijo 1,2 μJ (tai atitinka 33 J/cm<sup>2</sup>). Matome, kad fokusuojant į tūrį modifikacijos slenkstis padidėja visa eile. Nepaisant pluošto aberacijų, suformuotos gijos diametras buvo 1,5 μm, o ašinis ilgis priklausė nuo fokusavimo gylio ir siekė nuo 8 μm arti paviršiaus iki 20 μm gylyje, siekiančiame 500 μm. Makroskopiniai įtūrimai kristale buvo stebimi, kai impulso energija viršijo 5 μJ (> 140 J/cm<sup>2</sup>).

Kuriant stabilias modifikacijas optimalus bandinio transliavimo greitis buvo 5 mm/s, kuris ir buvo naudotas gardelių įrašymo metu. Akumuliacinis efektas, stebėtas lydytame kvarce, LiNbO<sub>3</sub> kristale nepasireiškė; didinant skenavimo greitį mažėjo gautų modifikacijų kontrastas, bet jų vienalytiškumas liko. Kai transliavimo greitis buvo mažesnis už 1 mm/s, modifikacijų morfologija prastėjo dėl per didelės ekspozicijos.

Lūžio rodiklio pokytis buvo įvertintas iš Brego gardelių difrakcijos. Tūrinės įvairių storių Brego gardelės buvo suformuotos LiNbO<sub>3</sub> kristale identišku metodu, aprašytu 2.3.1 skirsnyje. Gardelės periodas buvo 5 μm, o atstumas tarp atskirų gardelės sluoksnių siekė 7 μm (kaip pavyzdį žr. 2.11 pav.). Pirmas gardelės sluoksnis buvo formuojamas 320 μm po paviršiumi. Gardelių storiai siekė nuo 15 μm (vienas sluoksnis) iki 150 μm (20 sluoksnių). Storis buvo vertinamas mikroskopiniais metodais, formuojant gardeles arti kristalo krašto ir analizuojant skersinę gardelės struktūrą (žr. 3.11 pav., a). Tokiu būdu buvo įsitikinama, kad įrašymo gylis teisingai parinktas ir visi



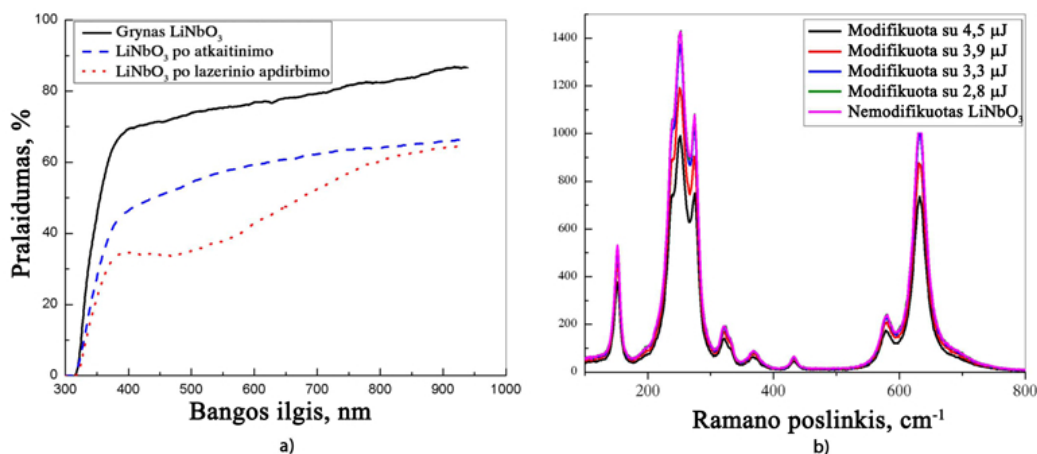


3.11 pav. a) Suformuota tūrinė Brego gardelė (*viršuje*), *apačioje* – skersinis pjūvis gardelių (10 režių), formuotų iš skirtingo skaičiaus sluoksnių (A – 20, B – 10, C – 5, D – 3). b) Difrakcinio efektyvumo priklausomybė nuo gardelės storio. Įklija rodo difrakcijos vaizdą, kai HeNe spindulys krinta statmenai į gardelę ir Brego kampu. Gardelė įrašyta 3 μJ energijos impulsais.

gardelės sluoksniai užrašyti.

Gautų gardelių difrakcinio efektyvumo priklausomybė nuo gardelės storio pavaizduota 3.11 paveiksle, b). Matavimai buvo atliekami su HeNe lazeriu (633 nm), krintančiu į gardelę Brego kampu ( $\alpha_{inc} = 2,5^\circ$ ), ir poliarizacija, tiek statmena režiams (*e*), tiek lygiagrečia su režiais (*o*). 150 μm storio gardelė, įrašyta naudojant 3 μJ energijos impulsus (energijos tankis – 85 J/cm<sup>2</sup>), turėjo didžiausią efektyvumą, kuris siekė 87 % (absoliutinė vertė pirmame maksimume). Nedifragavusiam pluošte liko 2,5 % energijos, 3 % šviesos buvo išsklaidyta, o likę 7,5 % energijos buvo susitelkę aukštesnės eilės difrakciniuose maksimumuose. Tokiomis sąlygomis įrašinėjant, gaunamas lūžio rodiklio pokytis lygus 0,002. Mažinant rašančiojo impulso energiją iki 1,5 μJ, 150 μm storio gardelės efektyvumas nukrito iki 56 %. Tai leidžia teigti apie mažėjantį lūžio rodiklio pokyčio moduliacijos dydį bent iki 0,001. Panašius lūžio rodiklio pokyčius gavo Burghoff ir kt. [169], naudodami palyginamus intensyvumus, gaunamus iš Ti:safyro, 800 nm bangos ilgio femtosekundinės lazerinės sistemos.

Modifikacijos stabilumui patikrinti bandiniai buvo laikomi 1 h 150 °C temperatūroje. Po atkaitinimo gardelių difrakcinis efektyvumas kiek sumažėjo, bet ne daugiau kaip 10 % (iki 78 % *o* poliarizacijai). Difrakcinis efektyvumas išliko toks pat ir po 3 mėnesių nuo gardelės pagaminimo. Tai



3.12 pav. a)  $\text{LiNbO}_3$  kristale įrašytos gardelės, kurios storis –  $15 \mu\text{m}$ , įtaka kristalo pralaidumui ir pralaidumo pokytis po kristalo atkaitinimo (gardelė įrašyta  $3 \mu\text{J}$  energijos impulsais, transliuojant bandinį  $5 \text{ mm/s}$  greičiu, lazerio impulsų pasikartojimo dažnis –  $100 \text{ kHz}$ ). b) Lazerio modifikuotų sričių Ramano spektrai.

leidžia teigti, jog modifikacijos yra pakankamai stabilios.

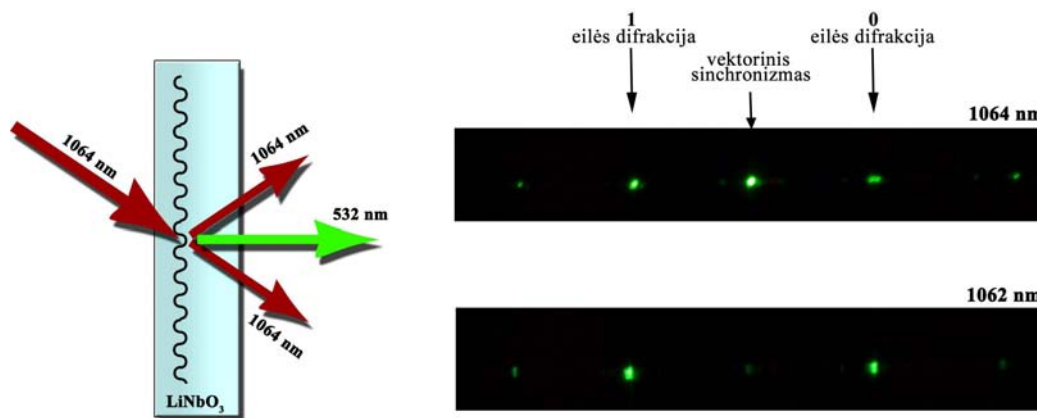
Kaip matėme, fotorefrakcinių modifikacijų paprastojo ir nepaprastojo lūžio rodiklio pokyčiai skiriasi bent tris kartus, tačiau matuojant difrakcinius efektyvumus tiek esant  $o$ , tiek  $e$  poliarizacijai gaunami identiški rezultatai. Tai rodo, kad sukurtos modifikacijos nėra fotorefrakcinio pobūdžio.

Gardelės poveikis kristalo pralaidumui yra parodytas 3.12 paveiksle, a). Natūralu, kad įrašyta gardelė sukelia difrakcinius ir sklaidos nuostolius, todėl pažvelgus į pralaidumo kreivę, matome, kad visoje srityje pralaidumas yra sumažėjęs. Pakankamas sugerties padidėjimas registruojamas regimojoje srityje ties  $490 \text{ nm}$ , tačiau po atkaitinimo ši sugerties juosta išnyko. Šios juostos kilmė nėra iki galo išaiškinta, tačiau labiausiai tikėtina, kad ją suformuoja į deguonies vakanciją patekęs elektronas. Tokia sugerties juosta dažnai stebima redukuotuose kristaluose (vakuume ar inertinių dujų atmosferoje atkaitintuose iki  $700 \text{ }^\circ\text{C}$  kristaluose, kuriuose tokiu būdu yra sumažinama deguonies koncentracija) [176, 177] ar kristaluose, kurie buvo apšaudyti didelės energijos jonų [178]. Pastarajame darbe taip pat stebėtas šios sugerties linijos išnykimas po atkaitinimo, nors jonų indukuotas lūžio rodiklio pokytis po terminio apdirbimo praktiškai nepakito. Šie rezultatai leidžia teigti, kad ultratrumpojo lazerio impulso ir didelės energijos jonų indukuoti lūžio rodiklio pokyčiai turi bendrą fizikinį pagrindą – tai amorfinės ličio niobato fazės formavimasis ir defektų inicijuotos kristalinės gardelės

deformacijos, kurių lūžio rodiklis yra mažesnis [168].

Modifikuotų zonų (po atkaitinimo) Ramano spektrai pateikti 3.12 paveiksle, b). Ramano spinduliavimas buvo žadinamas HeNe lazeriu, 633 nm spinduliuote (20 mW), o signalas surenkamas 50x didinimo objektyvu ir nukreipiamas į *RamanFlex 400* spektrometrą. Spektre matome aštuonias Ramano juostas. Kadangi  $\text{LiNbO}_3$  molekulėje yra 5 elementai, todėl, remiantis Ramano spektroskopijos teorija, galima tikėtis 9 stiprių Ramano linijų [171]. 9-oji linija, kurios Ramano poslinkis yra ties  $876 \text{ cm}^{-1}$ , į registruojamą spektrą nepateko. Iš spektrų matome, kad visos linijos, stebimos nemodifikuotame kristale, yra registruojamos ir lazerio paveiktose zonose. Modifikuotose srityse smailių poslinkiai nėra stebimi. Vadinasi kristalo gardelė nepersiformuoja. Pagrindinis rezultatas yra tai, kad kuo intensyvesniu lazerio impulsu medžiaga yra veikiamą, tuo labiau silpnėja Ramano linijos intensyvumas. Linijos intensyvumas yra susijęs su molekulių poliarizovamumo kitimu molekulių virpesių metu. Kuo lengviau elektrinis laukas gali keisti molekulių poliarizovamumą, tuo intensyvesnės yra Ramano linijos. Taigi linijų susilpnėjimas leidžia spręsti, kad paveikus lazeriu medžiagoje atsiranda molekulės virpesinių laisvės laipsnių suvaržymai. Šitokia situacija gali susidaryti, kai yra pažeidžiama gardelės struktūra, formuojasi amorfinė būseną ar įvairūs defektai. Panašūs rezultatai stebimi ir kristalo paviršiuje Ti:safyro lazerio sukeltuose pažeidimuose [171].

Galimybė Brego gardeles įrašyti netiesinėse terpėse atveria naujas taikymo perspektyvas. Kaip pavyzdį galima panagrinėti paprasčiausią atvejį – tai antrosios harmonikos generavimas naudojant vektorinį fazinį sinchronizmą tik vienu fundamentinės spinduliuotės pluoštu. Brego kampu į gardelę paleidus fundamentinę spinduliuotę, pluoštas suskyla į dvi komponentes, tarp kurių kampas lygus  $2\alpha_{Brego}$ . Kaip matėme, fazinės gardelės efektyvumas yra labai aukštas, todėl nesunkiai galima sukurti sąlygas, kuriose gardelė pradinį pluoštą padalintų į dvi lygias dalis (50 % difrakcinis efektyvumas). Abu pluoštai kristale sąveikaus tarpusavyje ir jei bus tenkinamos vektorinio sinchronizmo sąlygos, kristale galima antrosios harmonikos generacija. Toks procesas pavaizduotas 3.13 paveiksle. Kristale buvo suformuota efektyvi Brego gardelė, gebanti padalyti pluoštą į dvi lygias dalis (efektyvumas buvo derinamas varijuojant pluošto kritimo kampą). Difrakcijos kampą riboja gardelės parametrai, todėl norint pasiekti vektorinio fazinio sinchronizmo sąlygas, parametriniu generatoriumi („TO-



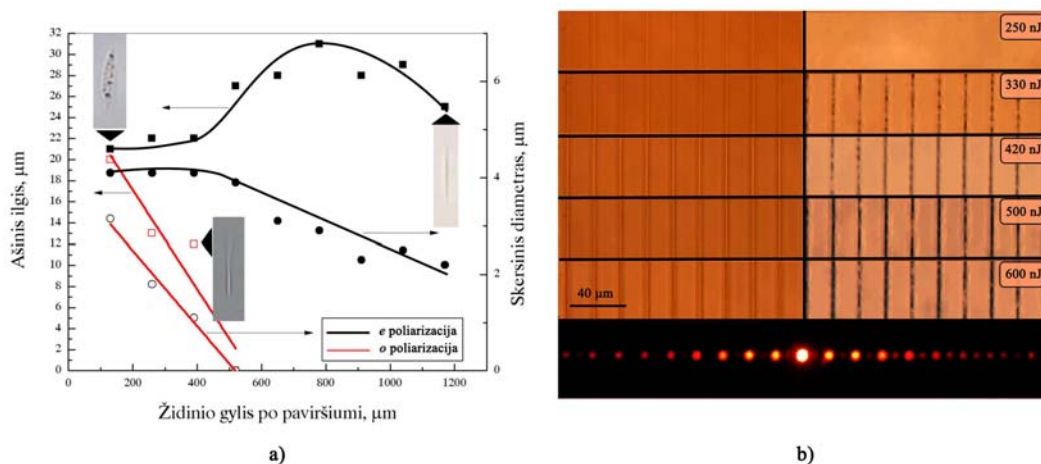
3.13 pav. Antrosios harmonikos spinduliuotės generavimas kristale vektorinio fazinio sinchronizmo būdu naudojant tik vieną fundamentinės spinduliuotės pluoštą.

PAS”, UAB Šviesos konversija) buvo keičiamas krintančios spinduliuotės bangos ilgis. Iš pateiktų difrakcinių vaizdų matyti, kad kai fundamentinės spinduliuotės bangos ilgis buvo 1064 nm, statmenai gardelės normaliai generavosi antrosios harmonikos spinduliuotė (532 nm). Pakeitus bangos ilgį vos per 2 nm, antrosios harmonikos generavimas išnyko. Taigi šis eksperimentas demonstruoja, kad vektorinio sinchronizmo sąlygas galima pasiekti ir tik vienu kaupinančiu pluoštu, naudojantis kristalo tūryje įrašytu fotoniiniu elementu. Vadovaujantis šiais principais galima projektuoti įvairius funkcinis prietaisus.

## 3.2. Modifikacijos KDP kristale

Galimybė indukuoti lūžio rodiklio pokyčius ultratrumpaisias šviesos impulsais taip pat buvo tyrinėta KDP kristale. Kalio dvivandenilio fosfatas yra vienas iš seniausiai netiesinės optikos taikymams naudojamų kristalų. Jo draustinės juostos tarpas yra panašus į lydyto kvarco ir siekia 7 eV. Tai užtikrina kristalo skaidrumą regimoje ir ultravioletinėje srityse (KDP pralaidumas yra 0,176-1,4  $\mu\text{m}$ ) [179]. Kristalas taip pat išsiskiria aukštu pažeidimo slenksčiu, kuris siekia 10  $\text{J}/\text{cm}^2$  (esant 10 ns trukmės impulsams) ir 3,7  $\text{J}/\text{cm}^2$  (55 fs trukmės impulsams) [180]. Be to, juos galima išauginti iki didelių matmenų, todėl jie idealiai tinka itin didelės galios lazerinėms sistemoms konstruoti.

KDP kristalo sąveika su ultratrumpaisiais impulsais, ypač kai intensy-



3.14 pav. a) KDP kristale suformuotų darinių ašinio ilgio ir skersinio diametro priklausomybė nuo židinio padėties po bandinio paviršiumi (viena sritis paveikiama  $10^6$  impulsų, vieno impulso energija – 340 nJ). b) Modifikacijos, indukuotos KDP kristale esant skirtingomis impulso energijomis, 150 μm po bandinio paviršiumi, transliuojant 5 mm/s greičiu (impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz); apačioje pateikiamas vaizdas nuo difrakcinės gardelės, įrašytos 600 nJ energijos impulsais.

vumai artimi pažeidimo slenksčiui, yra labai mažai tyrinėta. Yra vos keletas darbų [180,181], kuriuose daugiausiai analizuojama laisvųjų elektronų ir impulso sukeltų kristalo defektų kinematika. Visas mokslinis dėmesys buvo skiriamas nanosekundiniais impulsais sukeltų optinių pažeidimų tyrimui, ieškant sąlygų, kaip dar padidinti lazerio indukuoto pažeidimo slenkstį. Todėl svarbu išsiaiškinti, ar femtosekundiniais impulsais galima šiame kristale indukuoti liekamuosius lūžio rodiklio pokyčius.

Tyrimams buvo naudojamas KDP kristalas, išpjautas  $58^\circ$  kampu į optinę ašį, o modifikacijos buvo įrašinėjamos 2.3.1 skirsnyje aprašyta lazerine pozicionavimo sistema.

Vizualios modifikacijos KDP kristalo tūryje buvo pradėtos stebėti, kai impulsų energija pasiekė 150 nJ ( $4 \text{ J/cm}^2$ ). Tai gana gerai atitinka teoriškai įvertintą vertę, kuri siekia  $3,5 \text{ J/cm}^2$  (žr. 2.1-2.3 formules). Gautas modifikacijos slenkstis yra didesnis dėl to, kad KDP kristalo sugertis esant 1030 nm spinduliuotei jau nėra nykstamai maža. Reikia pastebėti, kad o poliarizacijos spinduliuotę kristalas sugeria beveik visa eile efektyviau nei e poliarizacijos šviesą [182]. Grafikas, rodantis, kaip kinta modifikacijos ašinis ilgis ir skersinis diametras keičiant fokusavimo gylį po bandinio paviršiumi, pateiktas 3.14 paveiksle, a). Matome, kad didinant fokusavimo gylį modifikuotos zonos diametras tiek vienai, tiek kitai poliarizacijai mažėja. Esant

$e$  poliarizacijai, ašinis ilgis iš pradžių didėja, sąlygotas didėjančios pluošto fronto sferinės aberacijos, o po to ima mažėti, nes dėl sugerties impulso energijos nebeužtenka modifikacijai susiformuoti. Tačiau  $o$  poliarizacijos spinduliuotė yra efektyviau sugerama ir maksimalus gylys, kuriame dar galima modifikuoti kristalą esant identiškai impulso energijai, yra tris kartus mažesnis. Netiesinių efektų poveikio keičiant fokusavimo gylį, kaip  $\text{LiNbO}_3$  atveju, KDP kristale nepastebėta. Šitai galima pagrįsti tuo, jog KDP kristalo kritinė fokusavimosi galia yra 1,7 MW (tai atitinka 550 nJ impulso energiją), taigi didesnė, nei naudojama šiame eksperimente.

Kristalo tūryje suformavus atskiras gijas su skirtingos energijos impulsais, gautos modifikacijos vizualiai atrodė vienalytės, tačiau, atkaitinus bandinį  $150^\circ\text{C}$  temperatūroje (1 h), modifikacijų morfologija gerokai supras-tėjo, o dalis modifikacijų, kurios buvo įrašomos, kai impulsų energijos siekė 330 nJ, išnyko (žr. 3.14 pav., b). Suformuoti Brego gardelės iš tokių modifikacijų nepavyko. Tai leidžia teigti, jog po atkaitinimo likusios modifikacijos nesukuria vienalyčio lūžio rodiklio pokyčio, o yra susijusios su kristalo mikroskopiniais pažeidimais, kurie veikia tik kaip sklaidos centrai. Todėl kristale galima realizuoti tik amplitudines gardeles.

Padidinus impulso energiją iki 700 nJ ( $20\text{ J/cm}^2$ ), kristale formuojasi įtrūkimai, kurių dydis siekia milimetrus ir daugiau. Taigi naudojant intensyvumą, 5 kartus viršijančius pažeidimo slenkstį, kristale jau vyksta makrostruktūriniai pažeidimai.  $\text{LiNbO}_3$  kristale tokie makrostruktūriniai pažeidimai atsiranda tik tada, kai energijos tankis dviem eilėmis viršija pažeidimo slenkstį, nors paties kristalo pažeidimo slenkstis yra gerokai mažesnis už KDP kristalo pažeidimo slenkstį. Toks ryškus skirtumas tarp ultratrumpaisiais impulsais sukeliamų kristalo modifikacijų atsiranda dėl skirtingų kristalų fizikinių savybių. Vienas esminių skirtumų – KDP kristalas turi vandenilinę jungtį, kuri yra nutraukiama pasiekus  $250^\circ\text{C}$  temperatūrą. Viršijus šią temperatūrą, kristalas ima skaidytis į vandens garus ir  $\text{KPO}_3$  druską [183]. Jei tartume, kad susiformavusios plazmos sugertis siekia 60 % (teoriškai įvertinta naudojant supaprastintą Drudės modelį, žr. [130]), tada tokia medžiaga židinio aplinkoje sugertų iki  $E = 330\text{ nJ}$  energijos (iš pradinių 700 nJ atėmus 150 nJ reikalingų plazmai suformuoti ir įskaičius plazmos sugerties koeficientą). Žinant kristalo savitąją talpą  $c_{sv}$ , tankį  $\rho$  ir židinio tūrį  $V$ , galima įvertinti temperatūros pokytį:  $\Delta T = E/c_{sv}\rho V$ . Temperatūros pokytis gaunamas iki  $17\,000^\circ\text{C}$  (kristalo parametrai paimti iš [179]).

Taigi net jei plazmos sugertis yra gerokai mažesnė, židinio aplinkoje lengvai pasiekiami 250 °C temperatūra, kuri inicijuoja kristalo irimą.  $\text{LiNbO}_3$  kristale vandens garų formavimasis nevyksta ir kristalas gali pasiekti lydymosi fazę, esančią ties 1796°C. Kita vertus, iš lydalo fazės  $\text{LiNbO}_3$  kristalas gali pereiti į kietą fazę (amorfine), tačiau KDP kristale toks procesas jau nėra galimas. Taigi tokie fizikiniai procesai, kaip lydymasis ar kristalo irimas, neišvengiamai sukelia deformacijas kristalo tūryje. Jei deformacija bus plastiška, kristalo skilimas nevyks ir galima tikėtis gauti vienalytes, pakitusio lūžio rodiklio zonas. Įvertinti sąlygas, reikalingas plastinei deformacijai sukelti, yra gana sudėtinga, nes reikia įskaičiuoti ir vidinį slėgį, kurį sukelia lazerio impulso įkaitinta medžiaga bei pats gardelės transformavimasis. Be to, skiriasi ir pačių medžiagų elastingumas bei tvirtumas. Medžiagos tvirtumas dažnai nustatomas naudojant Vikerio testą [184], deimantiniu rėžtuku įspaudžiant įspaudą medžiagos paviršiuje ir matuojant šio įspaudo diametrą priklausomai nuo jėgos, su kuria buvo įspaudžiama. Tvirtumo matavimai rodo, kad  $\text{LiNbO}_3$  kristalo Vikerio koeficientas yra keturis kartus didesnis nei KDP [179]. Vadinasi, norint sukelti tik plastines deformacijas  $\text{LiNbO}_3$  kristalą galima paveikti bent keturis kartus didesne jėga. Kita vertus, dėl besiformuojančių vandens garų (kurie lazerio impulso bus kaitinami), KDP kristale jau esant mažoms energijoms susidarys papildomas vidinis slėgis, kuris gali lemti kristalo mikro ir makroįtrūkimus.

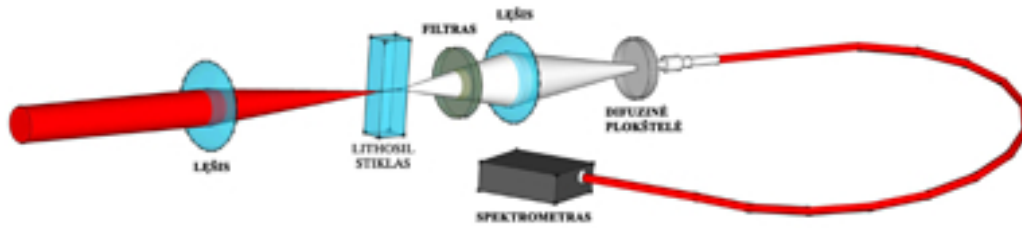
Taigi ne visuose kristaluose galima realizuoti sąlygas, kuriose formuojasi vienalytis ir kontroliuojamas lūžio rodiklio pokytis.  $\text{LiNbO}_3$  modifikacijas galima pakankamai lengvai formuoti, tačiau KDP tokių modifikacijų gauti nepavyksta. Remiantis anksčiau aprašytais samprotavimais, galima tikėtis, kad daliai kristalų, kurių savybės artimos  $\text{LiNbO}_3$ , taip pat būtų įmanoma ultratrumpaisiais impulsais sukurti integruotus fotoninius elementus. Iš tokių kristalų galima išskirti šiuos: BBO, LBO, KTP, ZnSe, ZGP. Kristalai, turintys vandenilinę jungtį, tokie kaip DKDP, ADP, elgsis panašiai kaip KDP, todėl yra sunku tikėtis juose užrašyti tvarkingus vienalyčius darinius. Akivaizdu, jog norint tikrai įsitikinti tokių darinių užrašymo galimybėmis, išsiaiškinti tinkamus spinduliuotės parametrus ir įrašymo algoritmus, kiekvieną kristalą reikia tirti individualiai.





## Šviesos gija modifikuojami dariniai ir jų įtaka lydyto kvarco netiesiškumui

Aštriai fokusuojantys objektyvai leidžia indukuoti modifikuotus darinius itin griežtai apibrėžtoje erdvėje, kurios matmenys siekia mikrometrines ar net submikrometrines vertes. Kita vertus, norint TLĮ metodu įrašinėti gerokai didesnių matmenų fotoninius elementus, toks metodas įrašymo laiko atžvilgiu nėra efektyvus. Vienas galimų sprendimo būdų – mažinti fokusavimo aštrumą. Tai leidžia vienu impulsu modifikuoti didesnio tūrio zoną. Kita vertus, švelnesnis fokusavimas reikalauja didesnės femtosekundinio impulso galios, nes kitaip modifikacijos atsiradimo slenkstinis intensyvumas nebus pasiekiamas. Didelės impulso galios jau geba inicijuoti medžiagos ir spinduliuotės saviveikos reiškinius: gijos formavimąsi, spektro plitimą, superkontinuumo atsiradimą ir kt. Jų pasireiškimo pobūdis priklauso ne tik nuo spinduliuotės galios, bet ir nuo pačios medžiagos savybių, kurios, kaip žinome, lazerinio modifikavimo metu kinta. Todėl saviveikos efektų tyrimas, ypač jų kitimo stebėjimas, vykstant medžiagos modifikacijai, atskleidžia naujas modifikavimo proceso ypatybes, įdomias ir praktiniu pobūdžiu (ar galima efektyviai padidinti lazerio modifikuojamos zonos tūrį), ir fizikiniu aspektu (kokią įtaką modifikacijos daro saviveikos reiškiniams). Šiame skyriuje pateikiami rezultatai, gauti modifikuojant lydytą kvarcą (LITHO-SIL) naudojant silpnai fokusuojantį lęšį ir stebint sukurtų darinių įtaką medžiagos ir spinduliuotės saviveikos reiškiniams.



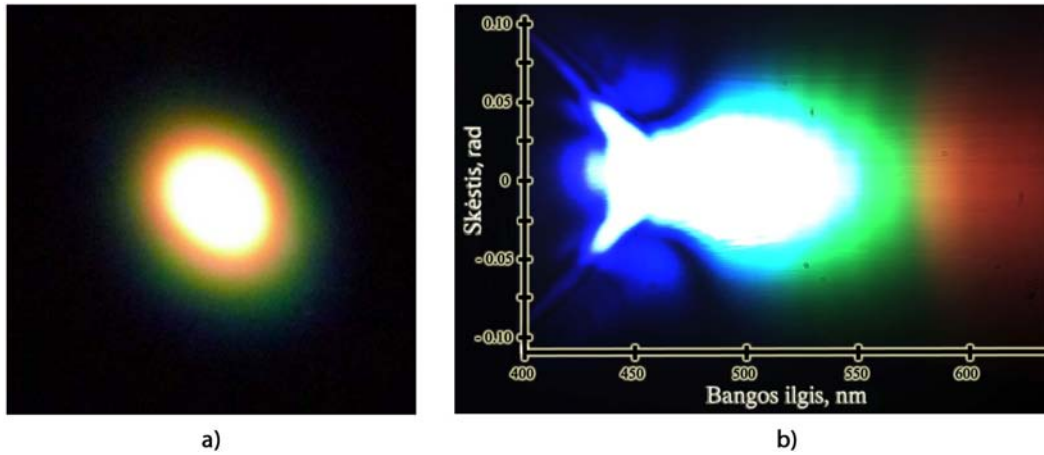
4.1 pav. Gijos formavimo ir superkontinuumo generavimo eksperimentas kaupinant *Pharos* lazerine sistema.

## 4.1. Eksperimento schema

Medžiagos modifikuojamos ir netiesiniai procesai registruojami pagal 4.1 paveiksle pateiktą schemą. Naudojamo lazerio impulso bangos ilgis buvo 1030 nm, o trukmė siekė 300 fs. Pluošto diametras prieš fokusuojantį lęšį buvo 3,9 mm, o pats lęšio židinio nuotolis – 200 mm. Naudoto LITHOSIL stiklo storis siekė 5 mm. Tokio lęšio konfokalus parametras yra ilgas ir siekia apie 8 mm, todėl jį galima lyginti su paties bandinio storiu. Taigi visas bandinys patenka į lęšio židinio zoną. Pats bandinys buvo įstatytas toje vietoje, kurioje formuojasi ilgiausia šviesos gija. Tokia gija atsiranda, kai geometrinis židinis yra 4 mm gylyje po stiklo paviršiumi (neįskaičius fokusavimo reiškinių, bet įskaičius židinio poslinkį dėl stiklo lūžio rodiklio).

Stikle susiformuoja gija ir plinta kaupinamojo impulso spektras – formuojasi šviesos superkontinuumas. Superkontinuumas buvo registruojamas šviesolaidiniu spektrometru („AvaSpec2048”, *Avantes*), prieš tai infraraudonoju filtru susilpninus 1030 nm bangos ilgio spinduliuotę ir naudojant papildomą lęšį bei difuzinę plokštelę, suintegruojant erdvinį superkontinuumo spektrą. Tais atvejais, kai erdvinis spektro integravimas buvo nereikalingas (erdvinio spektro matavimo eksperimentuose), filtras, integruojantis lęšis ir difuzinė plokštelė buvo pašalinami, o spinduliuotė tiesiai iš gijos patekdavo į atvaizduojantį erdvinį spektrometrą („Positive light”, *Spectra Physics*, gardelė – 142 režiai/mm). Taip pat gijos formavimasis medžiagoje realiu laiku stebėtas mikroskopu.

Gijų susidarymas buvo tirtas esant įvairiems impulsų pasikartojimo dažniams ir skirtingoms impulso energijoms. Slenkstinė gijos (kartu ir superkontinuumo) atsiradimo energija, esant 100 kHz impulsų pasikartojimo dažniui, buvo 3,5  $\mu$ J. Kritinė fokusavimo galia lydytame kvarce yra 4,1 MW,



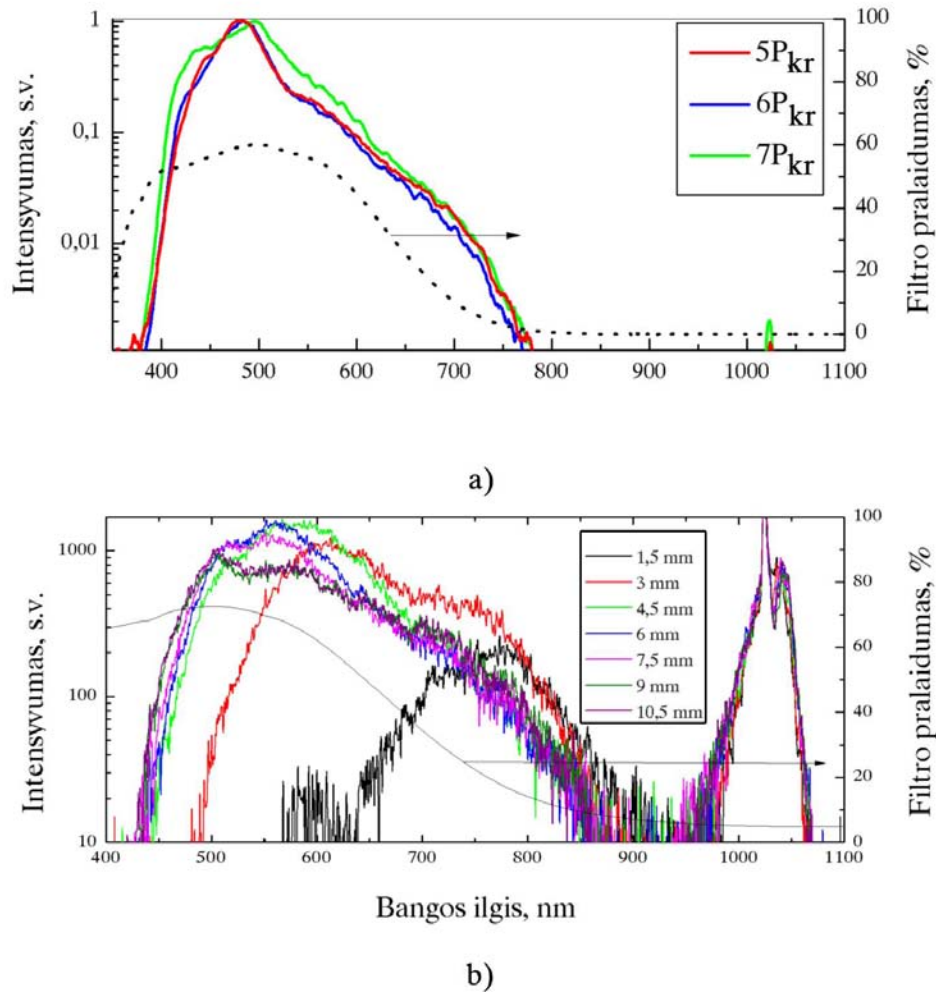
4.2 pav. a) Superkontinuumo, generuoto lydytame kvarce naudojant *Pharos* lazerį, vaizdas. b) Erdvinis spektras. Spinduliuotės galia –  $7P_{kr}$ , impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz.

o tai atitinka  $1,2 \mu\text{J}$  impulso energiją. Panaši vertė buvo stebima ir esant kitokiems impulsų pasikartojimo dažniams. Taigi superkontinuumas pradeda atsirasti, kai  $P = 2,9P_{kr}$ . Kai impulso galia  $P = 7P_{kr}$ , vienalytis superkontinuumo vaizdas išnyksta ir pluoštas yra sudarkomas interferencinių reiškinių. Šie reiškiniai byloja apie daugiafilamentį pluošto suskilimą. Stabiliausias vaizdas buvo gaunamas, kai impulso galia 5-6 kartus viršijo fokusavimosi galią.

## 4.2. Superkontinuumas

### 4.2.1. Superkontinuumo spektras

Vienas šviesos gijų lydinčių reiškinių yra superkontinuumo atsiradimas, kurio metu kaupinamosios spinduliuotės spektras išplinta net per kelias oktavas – taip infraraudonoji spinduliuotė geba transformuotis į koherentinį baltos šviesos šaltinį. Superkontinuumo vaizdas stebimas ekrane, pavaizduotas 4.2 paveiksle, a), greta (b) matome erdvinį spektrą. Šviesos gijos atsiradimo metu generuojasi ne tik naujos ašinės spektro dedamosios (sklindančios lygiagrečiai su kaupinamosios spinduliuotės kryptimi), bet atsiranda ir nuo ašies nukrypusios, vadinamosios kūginės spinduliuotės, dedamosios. Superkontinuumo skėstis, jei matuotume pagal energijos pasiskirstymą  $1/e^2$  lygyje, siekia 30 mrad, tačiau tam tikros erdvinės komponentės matomos ir kai skėstis  $> 50$  mrad, ypač trumpesniųjų bangų pusėje. Įdomus



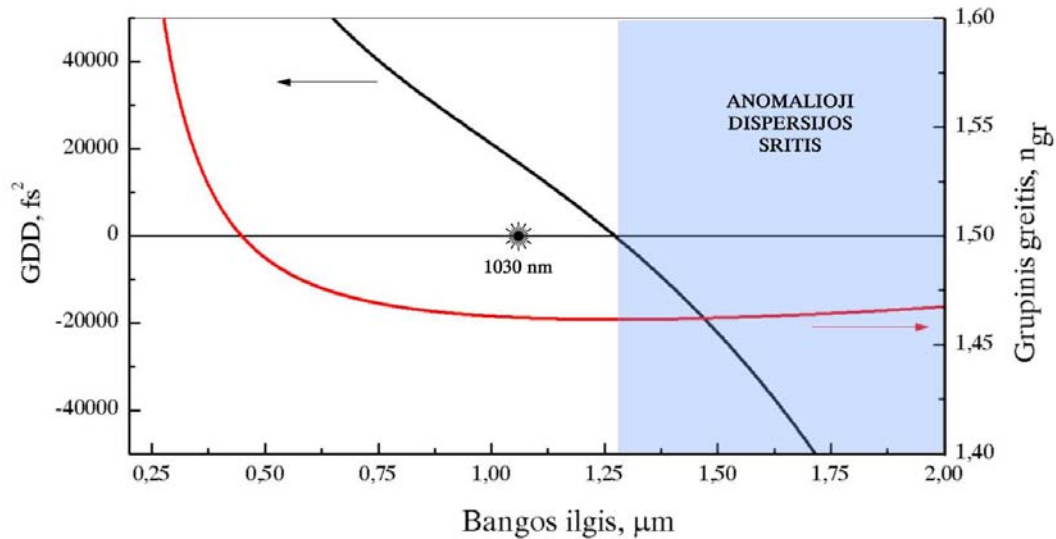
4.3 pav. Superkontinuumo spektrai, gauti kaupinant 1030 nm bangos ilgio spinduliuote: a) 5 mm storio lydyto kvarco stikle, esant įvairioms impulso galioms (impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz); b) 35 mm storio plokštelėje, esant skirtingiems fokusavimo gyliams ( $P = 4P_{kr}$ , dažnis – 25 kHz). Taip pat pateikiamas naudoto filtro pralaidumo spektras.

gaunamo superkontinuumo aspektas yra tai, kad spektro plitimas vyksta gana toli nuo kaupinamosios spinduliuotės (1030 nm) ir daugiausia apima tik regimąją spektro dalį, o artimojoje infraraudonoje srityje naujos komponentės nėra registruojamos. Tuo galima įsitikinti pažvelgus į erdviškai integruotą spektrą, pateiktą 4.3 paveiksle. Matome, jog 5 mm storio stikle atsiradęs superkontinuumas apima tik spektro sritį nuo 400 iki 800 nm (primename, kad spektro registravimo metu buvo naudojamas SZS filtras, skirtas silpninti fundamentinę spinduliuotę; stebint superkontinuumo spektrą, gali susidaryti iliuzija, jog spektro silpimas ties 800 nm yra filtro įtaka, tačiau išėmus filtrą, spektras pakinta mažai, t. y.  $> 800$  nm srityje naujos spektro dedamosios neatsiranda). Didinant impulso galią, spektras mažai

kinta. Kiek platesnis spektras gaunamas, jei superkontinuumas yra generuojamas storesniame stikle (superkontinuumo spektrai 35 mm storio stikle pateikti 4.3 pav., b). Šiuo atveju superkontinuumas apima sritį nuo 420 iki 900 nm, be to, spektras priklauso nuo židinio padėties stikle. Fokusuojant arti stiklo paviršiaus, intensyviausioji superkontinuumo dalis yra sutelkta ties 750-800 nm, o trumpabangė superkontinuumo riba siekia tik 600 nm. Didinant fokusavimo gyli, superkontinuumo spektras plečiasi ir trumpabangė riba ima slinkti link 400 nm vertės. Visais atvejais energijos konversijos iš kaupinamosios spinduliuotės į superkontinuumą koeficientas nėra didelis ir nesiekia daugiau nei 0,5 %.

Tokio superkontinuumo kilmė nėra iki galo aiški. Paprastai fazinio moduliavimosi sąlygotas spektro plėtimasis yra simetrinis ir vyksta į abi spektro puses nuo kaupinamosios spinduliuotės. Kero efektas lemia impulso galinio fronto statėjimą, kuris savo ruožtu gerokai padidina fazinio moduliavimosi reiškinį ir asimetriškai išplečia spektrą į trumpesniųjų bangų pusę [14]. Trumpabangė superkontinuumo spektro riba priklauso nuo medžiaga sklandančio impulso intensyvumo. Jo maksimalią vertę riboja medžiagos netiesinė sugertis, kurią galima išreikšti panaudojant netiesinį lūžio rodiklį [13]. Šie reiškiniai formuoja platų superkontinuumo spektrą, besitęsiantį nuo pat kaupinamosios spinduliuotės bangos ilgio iki UV srities. Taigi mūsų eksperimente gautas superkontinuumas turi netipinį poslinkį link mėlynosios spektro dalies, kuris negali būti aiškinamas vien aptartais fizikiniais reiškiniais.

Panašiai išaugusį ties mėlynąja spektro sritimi superkontinuumo spektrą dažnai galima stebėti fotoniniuose kristaluose ar šviesolaidžiuose. Tai grindžiama solitonų sąveikos metu atsirandančia dispersine spinduliuote (dar vadinama Čerenkovo pobūdžio spinduliuote) [185]. Remiantis šia teorija, susiformavęs stabilus solitonas pamažu atiduoda energiją aukštesnių dažnių spektro dedamosioms, kurių grupinis greitis yra lygus solitono grupiniam greičiui (tenkina sinchronizmo sąlygas). Tačiau norint formuoti stabilius solitonus, reikia medžiagą kaupinti tokiu bangos ilgiu, kuris patenka į medžiagos anomaliosios dispersijos sritį. LITHOSIL stiklo grupinių greičių dispersijos kreivė yra pavaizduota 4.4 paveiksle (kreivės skaičiavimo algoritmą galima rasti [186], stiklo Sellmeier koeficientai paimti iš [128]). Kaip matome, anomaliosios dispersijos sritis prasideda nuo 1,27  $\mu\text{m}$ . Taigi mūsų atveju kaupinimas pataiko į normaliosios dispersijos sritį, kurioje solitonų



4.4 pav. LITHOSIL stiklo grupinių greičių dispersijos kreivė.

formavimasis nėra galimas. Kita vertus, jei kaupintume spinduliuote, kurios bangos ilgis pataiko į anomaliosios dispersijos sritį, tai, kaip matome iš grupinių greičių kreivės, dispersinis spinduliavimas būtų galimas, nes plačioje srityje (0,75–2  $\mu\text{m}$ ) egzistuoja spektro dedamosios, turinčios vienodus grupinius greičius. Fotoniniuose šviesolaidžiuose anomali dispersija prasideda esant mažesniems bangos ilgiams ( $\approx 800$  nm), todėl gana nesunku įprastomis lazerinėmis sistemomis pasiekti solitoninį sklidimą ir gauti platų superkontinuumo spektrą [187].

Intensyvių spektro dedamųjų, esančių toliau nuo kaupinamosios spinduliuotės bangos ilgio, atsiradimas gali būti siejamas ir su keturbangės sąveikos reiškiniais. Kero efektas inicijuoja dinaminę medžiagos dispersijos kitimą, dėl kurio lazerio pluošto sklidimo kryptimi susidaro fazinio sinchronizmo sąlygos, palankios keturbangei sąveikai [188]. Du kaupinamojo pluošto fotonai dėl kryžminės fazinės moduliacijos generuoja signalinį fotoną (mėlynojoje spektro dalyje) ir šalutinį fotoną (raudonojoje spektro dalyje). Vis dėlto mūsų eksperimento atveju ši teorija nėra tinkama norint pagrįsti mėlynosios spektrinės komponentės atsiradimą, nes ši komponentė yra per toli nuo kaupinamojo pluošto spektro. Taigi iš dviejų 1030 nm bangos ilgio fotonų gauti 500 nm ilgio spektro dedamąją teoriškai neįmanoma.

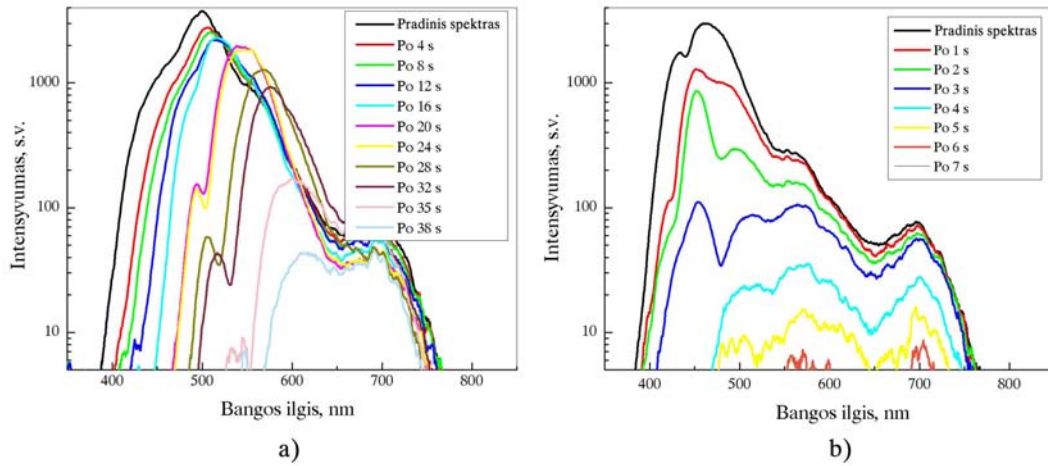
Tikimiausias tokio superkontinuumo paaiškinimas – tai saviveikos efektai, atsiradę dėl lazerio impulso skilimo. Panašų ir nuo kaupinamo impulso izoliuotą superkontinuumą, turintį didelį poslinkį link mėlynujų spektro de-

damųjų, užfiksavo Faccio ir kt. normaliojoje dispersijos srityje, kaupindami lydytą kvarcą 1 ps trukmės impulsais [189]. Autoriai taip pat registravo superkontinuumo spektro kitimą keisdami fokusavimo sąlygas. Jų modeliai rodo, kad suskilęs impulsas gali sukelti medžiagoje netiesinio poliarizuojamumo bangą, kuri savo ruožtu sklaidytų pirminį impulsą. Impulsų laikinis skilimas šviesos gijoje yra seniai žinomas reiškinys. Jį sukelia galinio fronto statėjimas, grupinių greičių dispersija ir daugiafotonė medžiagos jonizacija [13]. Taigi ilgas pikosekundinės trukmės impulsas gali transformotis į keletą femtosekundinės trukmės impulsų, sklindančių skirtingais grupiniais greičiais. Be to, Faccio ir kt. parodė, kad skilęs impulsas turi X-bangų savybių, o tokio bangų paketo sklidimo grupinis greitis yra mažesnis už grupinį greitį, kurį lemia tik medžiagos dispersija. Dėl šio grupinio greičio nederinimo ir atsiranda fazinio sinchronizmo sąlygos, kuriomis kaupinamo dažnio konversija į aukštesnes dedamąsias tampa įmanoma. Keičiant fokusavimo sąlygas, keičiasi į medžiagą krentančio pluošto diametras, kuris daro įtaką X-bangos grupiniam greičiui ir lemia superkontinuumo spektrą.

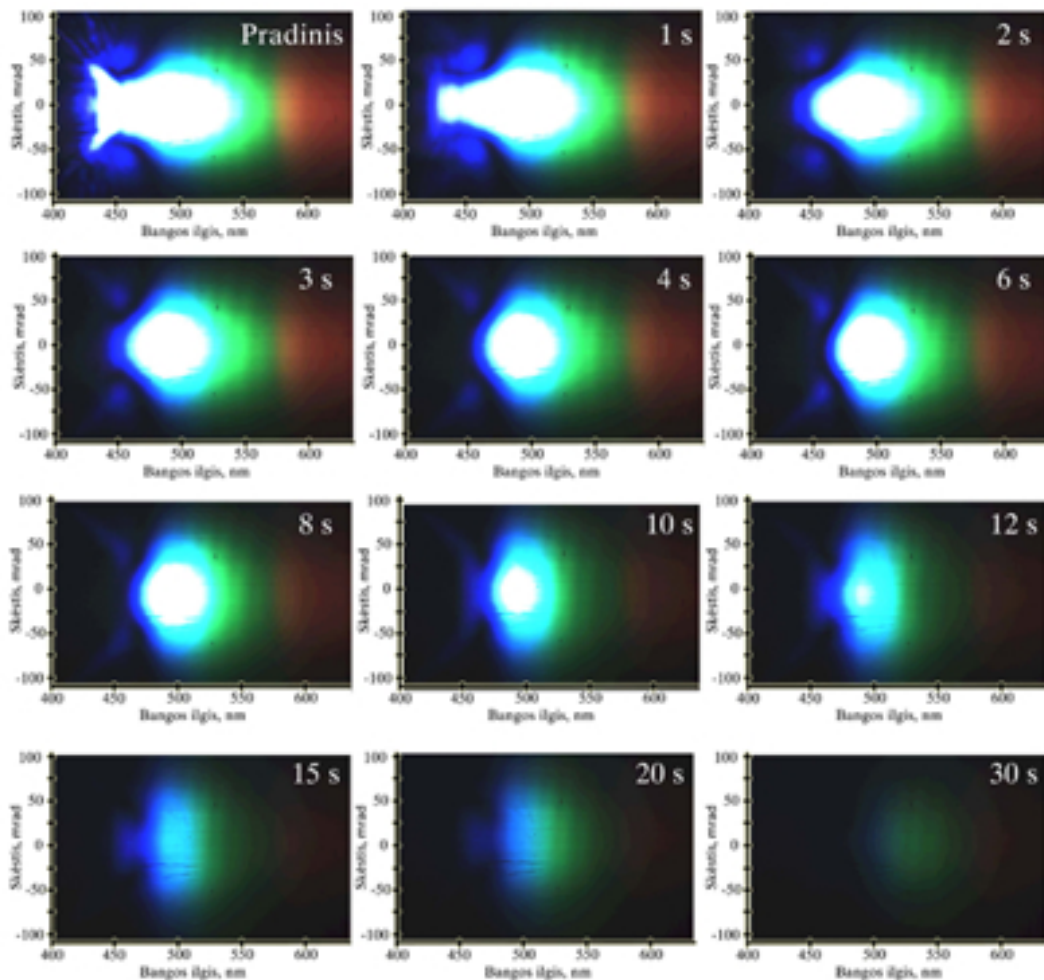
#### 4.2.2. Modifikacijų įtaka superkontinuumo spektrui

Pakankamai ilgai eksponuojant vieną pasirinktą medžiagos vietą lazerio impulsais, joje atsiranda medžiagos modifikacijos, darančios įtaką superkontinuumo spektrui. Pastebima, jog ilgėjant ekspozicijos laikui spektro intensyvumas ima silpnėti, be to, vyksta tendencingas superkontinuumo spektro trumpabangės ribos slinkimas link ilgesniųjų bangų. Tipiniai spektrai, gauti kaupinant  $4P_{kr}$  bei  $5P_{kr}$  galios impulsais, pateikti 4.5 paveiksle. Matome, jog veikiant impulsais, kurių pasikartojimo dažnis yra 100 kHz, užtenka 40 s, kad modifikacijos „nustumtų“ superkontinuumo mėlynąjį kraštą nuo 400 nm ribos iki 550 nm. Ši trukmė yra mažesnė, jei impulsų galia yra arti superkontinuumo generavimo slenksčio. Dar ilgiau eksponuojant, superkontinuumas tiek vienu, tiek kitu atveju iš viso nustoja generuotis. Šie rezultatai rodo, kad modifikuotų darinių įtaka medžiagoje vykstantiems netiesiniams procesams yra svarbi.

Kodėl vyksta toks procesas ir kodėl modifikacijos lemia netiesinius procesus? Vienareikšmiškai atsakyti į šį klausimą yra sudėtinga, nes, kaip jau matėme, paties superkontinuumo generavimo fizika yra sudėtinga ir iki galo nesuprasta. Tačiau apsiribojant anksčiau aptartais superkontinuumo



4.5 pav. Superkontinuumo spektro kitimas eksponavimo metu. Impulso galia: a)  $5P_{kr}$ ; b)  $4P_{kr}$ . Impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz.



4.6 pav. Superkontinuumo erdvinio spektro kitimas eksponavimo metu (skaičius rodo laiko trukmę nuo ekspozicijos pradžios). Impulso galia –  $7P_{kr}$ , impulsų pasikartojimo dažnis – 100 kHz.

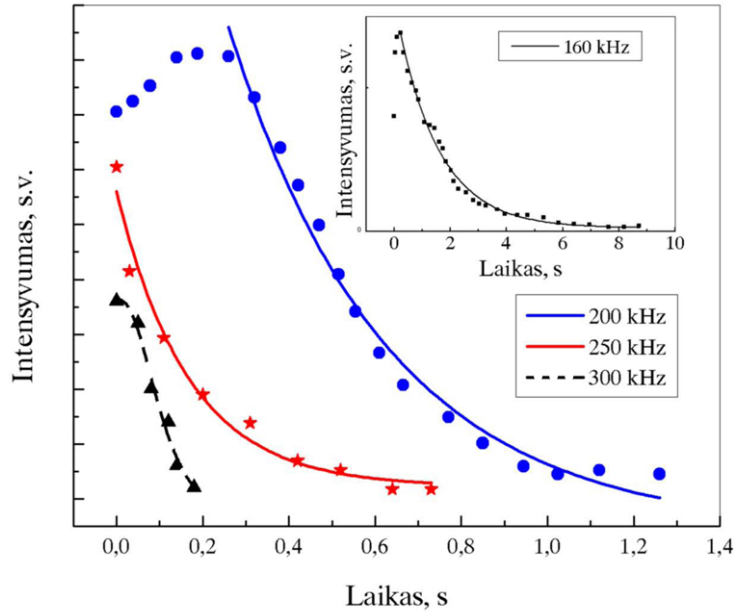


generacijos modeliais, galima suprasti, kodėl modifikacijos lemia tokius superkontinuumo spektro kitimus.

Priminsime, kad pagal Faccio ir kt. iškeltą teoriją superkontinuumas, izoliuotas nuo kaupinamo impulso bangos ilgio, generuojasi dėl besiformuojančios X-bangos, kurios grupinis greitis yra mažesnis nei dispersijos nulemtas greitis. Jei pažvelgtume į superkontinuumo erdvinio spektro kitimą eksponavimo metu (žr. 4.6 pav.), pamatytume, kad kūginė spinduliuotė pamažu silpsta ir jau po 15 s ekspozicijos nebėra detektuojama. Ypač šis procesas ryškus 400-450 nm srityje, kurioje ekspozicijos pradžioje formuojasi X tipo darinys, rodantis, jog toks pluoštas turi X-bangos savybių. Svarbu pastebėti, kad čia pateiktuose erdviniuose spektruose matomas tik išsklaidytos pirminės X-bangos, susiformavusios ties 1030 nm, vaizdas. Naudotos CCD kameros registravimo spektrinis diapazonas buvo per mažas, todėl užfiksuoti erdvinį spektrą ties 1030 nm bangos ilgiu nepavyko. Lazerio modifikuojamos srities lūžio rodiklis lydytame kvarce paprastai padidėja, todėl gijos paveiktoje vietoje pamažu formuojasi bangolaidis, kuriame kūginė spinduliuotė yra vis smarkiau apribojama. Toks bangolaidžio formavimasis paaiškina X-bangos nykimą, matomą erdviniuose spektruose. Nykstančios X-bangos grupinis greitis pamažu susilygina su greičiu, kurį lemia medžiagos dispersijos reiškinys, o dėl to vyksta paties spektro slinkimas link ilgujų bangų, kaip ir numato Faccio ir kt. modelis [189].

Superkontinuumo spektro trumpabangės ribos slinkimą link ilgesniųjų bangų galima aiškinti ir kitu aspektu. Kaip jau minėjome, daugelyje superkontinuumo generavimo modelių svarbiausias parametras, lemiantis superkontinuumo spektro plotį ir jo trumpabangę ribą, yra maksimalus spinduliuotės intensyvumas, sutelktas gijoje (angl. *intensity clamping*), t. y.  $\Delta\omega \propto I_{max}^k$  (čia  $k$  – netiesinei sugerčiai sukelti reikalingas fotonų skaičius). Tačiau šis intensyvumas daugiausia priklauso nuo medžiagos parametrų, tarp jų – netiesinio lūžio rodiklio. Blömer ir kt. parodė, kad lazerio modifikuotas lydytas kvarcas turi iki penkių kartų mažesnę netiesinį lūžio rodiklį nei grynas kvarcas [190]. Taigi maksimaliai galimas gijoje sklindančios spinduliuotės intensyvumas mažėja besiformuojant modifikuotos medžiagos dariniams. Tai lemia ir spektro kitimą.

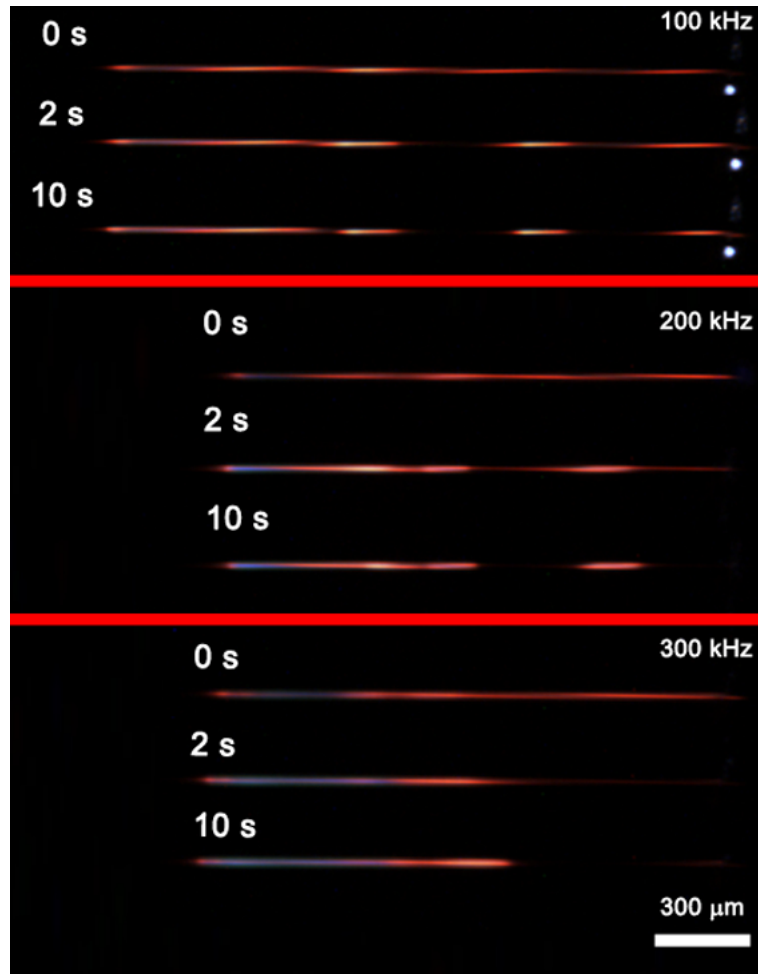
Be spektro slinkimo, visais atvejais pastebimas ir paties superkontinuumo intensyvumo silpimas, pastoviai eksponuojant tą pačią medžiagos vietą. Ši silpimo sparta smarkiai priklauso nuo spinduliuotės impulsų pasikartoji-



4.7 pav. Superkontinuumo intensyvumo silpimas esant skirtingiems impulsų pasikartojimo dažniams. Impulso galia –  $5P_{kr}$ .

mo dažnio. Kai dažnis nėra didelis (mažesnis nei 150 kHz), silpimo sparta smarkiai varijuoja – gali siekti nuo 5 s iki 30 s ar dar ilgiau. Ji galimai priklauso nuo fokusavimo, energetinių spinduliuotės parametrų fluktuacijų ir medžiagos parametrų, tokių kaip lokalių defektų skaičius ar stiklo paviršiaus kokybė. Tačiau esant didesniems dažniams, silpimas atsikartoja gana gerai. Tai pavaizduota 4.7 paveiksle.

Iš grafikų matyti, kad superkontinuumas generuotis pradeda akimirksniu (kai dažniai mažesni, pastebimas nedidelis superkontinuumo augimas, vykstantis  $\approx 200$  ms), o toliau eksponentiškai silpsta (išskyrus 300 kHz, kur silpimas vyksta gerokai sparčiau). Kai dažnis buvo 160 kHz, superkontinuumas nustojo generuotis per 3,5 s (matuota  $1/e^2$  lygyje), tačiau kai pasiekė 200 kHz, – per 850 ms, 250 kHz – 250 ms, o 300 kHz – 150 ms. Iš šių skaičių matome, kad impulsų pasikartojimo dažnis labai smarkiai lemia superkontinuumo silpimą. Didėjant dažniui, kiekis impulsų, po kurių poveikio medžiaga nebegali generuoti superkontinuumo, eksponentiškai mažėja. Tokie duomenys byloja apie akumuliacinių reiškinių, kuriuos lemia trumpai gyvuojantys defektai, egzistavimą. Norint tiksliai įvertinti, kokie defektai formuojasi medžiagoje ją veikiant šviesos gija, reikia papildomų tyrimų. Tačiau žinant, kad lydynam kvarcui būdingas efektyvus surišusių eksitonų,



4.8 pav. Šviesos gijos suskilimo dinamika. Galia –  $5P_{kr}$ . Lazero spinduliuotė sklinda iš kairės.

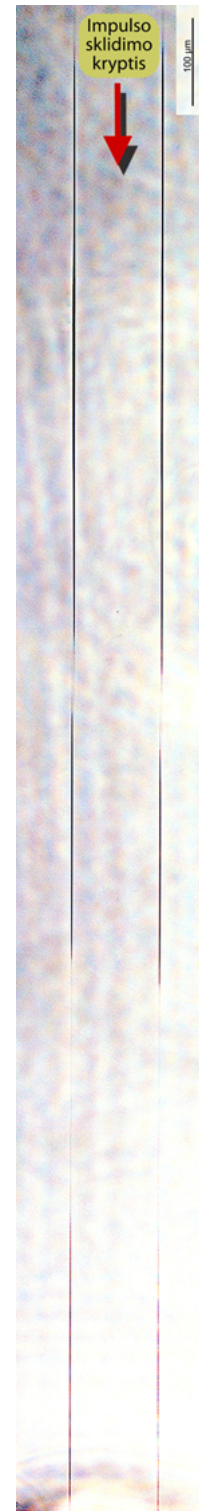
kurių relaksacijos trukmė  $< 1$  ms, formavimasis [59,60], galima tikėtis, kad būtent šie defektai lems tokią akumuliacijos įtaką. Eksitonų buvimas mažina stiklo draustinės juostos tarpą ir paspartina medžiagos modifikavimo ar pažeidimo formavimąsi.

### 4.2.3. Šviesos gijos ir medžiagos modifikavimas

Laikui bėgant, lydytame kvarce susiformavusi šviesos gija išilgai sklidimo krypties suskyla į keletą dalių - tampa moduluota. Tai matome iš 4.8 paveikslo. Kaip ir superkontinuumo generavimo atveju, suskilimas ne visada atsikartoja identišškai, tačiau pagrindinės tendencijos išlieka: vizualiai stebima rausvai švytinti gija, kuri suskyla į dvi, tris ar keturias dalis priklausomai nuo spinduliuotės pasikartojimo dažnio ar fokusavimo sąlygų. Laiko

tarpas, per kurį susiformuoja gijos suskilimas, siekia apie 2 s, tačiau tai galioja tik mažos galios (mažesnės nei  $9P_{kr}$ ) impulsams. Esant didesnėms galioms, prasideda daugiafilamentis režimas, kurio metu stabilus skilimas nevyksta. Svarbu pastebėti, kad gijos suskilimas išlieka ilgą laiko tarpą ir yra stebimas net ir tada, kai superkontinuumo generavimas yra seniai užgesęs. Taigi rausvas gijos švytėjimas nepriklauso nuo medžiagoje vykstančios superkontinuumo sklaidos, o daugiau siejasi su kvarco liuminescencijos reiškiniumi, atsirandančiu dėl NBOHC defektų sukulto švytėjimo, registruojamo ties 650 nm.

Kodėl vyksta toks gijos skilimas? Jau seniai pastebėta, kad giją, kuria sklinda didelio intensyvumo spinduliuotė, supa didelė mažesnio intensyvumo sritis, veikianti kaip energijos rezervuaras, palaikantis gijos egzistavimą [191]. Dubietis ir kt. parodė, kad dirbtinai užblokavus intensyviausią gijos dalį, ji sugeba iš naujo atsikurti. Tačiau užblokavus išorinį gijos „energijos rezervuarą“, išnyksta ir pati gija [192]. Taigi gijos išilginį suskilimą gali sukelti medžiagoje besiformuojantys modifikuoti dariniai ar pažeidimai, kurie blokuoja šviesos sklidimą. Modifikuoti dariniai, indukuoti  $5P_{kr}$  galios ir 100 kHz pasikartojimo dažnio impulsais, pateikti 4.9 paveiksle (fotografuota mikroskopu, fazinio kontrasto režimu). Kaip matome, modifikuota medžiaga gerai atkartoja stebimą gijos suskilimą. Atidžiau pažvelgus į šias nuotraukas, galima pastebėti, jog modifikuoti dariniai nėra susiformavę tiksliai vienoje ašyje, kuria sklinda impulsas. Vadinasi, medžiagoje vyko pakartotinis gijos persiformavimas už tam tikros kliūties. Vizualiai kliūtis (aiškiai detektuojamo medžiagos pažeidimo) nuotraukose nematyti, tačiau buvo pastebėta, kad esant didesnėms spinduliuotės galioms, toks pažeidimas formuojasi kaip tik toje vietoje, kurioje gija nutrūksta (tokius gijos sukeltus pažeidimus registravo ir Kudriašov [193]). Kita vertus, pats medžiagos modifikavimas, t. y. tiesinio bei netiesinio lūžio rodiklio pakitimas, gali turėti pakankamai



4.9 pav. Šviesos gija įrašytos modifikacijos kvarco stikle.

įtakos gijos suirimui ir tolesniam jos atsistatymui.

Taip pat pažvelgę į šviesos gija indukuotus darinius matome, kad suskilimas nebūna visiškai identiškas, net ir esant vienodoms įrašymo sąlygoms. Taigi tampa problematiška kontroliuoti gijomis įrašomų darinių matmenis, todėl toks metodas nėra tinkamas fotoninių elementų, kuriems reikalingas didelis tikslumas, įrašymui. Vis dėlto šis metodas turi privalumų, nes gija galima kurti įvairių tipų modifikuotus darinius [194], be to, medžiagos modifikavimas gijomis gali paspartinti įrašymo procesą ar supaprastinti įrašymo procedūrą tam tikruose taikymuose [195].

Apibendrinant galima teigti, jog didelio impulsų pasikartojimo dažnio lazerio impulsais formuojama šviesos gija, geba modifikuoti lydytą kvarcą, o tokie dariniai, savo ruožtu, keičia medžiagos netiesinį atsaką į intensyvią spinduliuotę. Kartu kinta superkontinuumo spektras. Be to, pati gija tampa fragmentinė ir sukuria nevienalytiškai modifikuotas medžiagos sritis.



## Išvados

1. Lydytą kvarcą veikiant didelio impulsų pasikartojimo dažnio (100-300 kHz), 300 fs trukmės lazerio impulsais, kurių centrinis bangos ilgis yra 1030 nm, energijos tankiui pasiekus  $3 \text{ J/cm}^2$ , jame pradeda formuotis II tipo modifikuoti dariniai, susidedantys iš periodiškai išsidėsčiusių nanogardelių, turinčių periodą  $\approx 260 \text{ nm}$ , ir lemiančių dvejetainę modifikuotos zonos lūžimą. Esant mažesniai energijos tankiui jokie liekamieji modifikuotos medžiagos dariniai nesiformuoja.
2. Gautų modifikacijų vienalytiškumą lemia kaupiamieji efektai – nanogardelių atsikartojamumas priklauso nuo į vieną medžiagos sritį kritusių impulsų skaičiaus, sąlygojamo lazerio impulsų pasikartojimo dažnio ir bandinio transliavimo greičio. Norint sukurti vienalytiškai modifikuotą darinį, reikia, kad atskira modifikuojama sritis būtų paveikiama impulsų skaičiumi, didesniu nei 100 (spinduliuotės energijos tankiui esant ribose tarp  $3 \text{ J/cm}^2$  ir  $5,6 \text{ J/cm}^2$ ). Dar labiau didinant energijos tankį medžiagoje jau formuojasi neregularus optinis pažeidimas, didinantis šviesos sklaidą. Efektyvus lūžio rodiklio pokytis, sąlygojamas šių nanodarinių, suformuotų Yb:KGV lazerio impulsais, yra lygus  $0,0045 \pm 0,0007$  (633 nm bangos ilgiui).
3. Ličio niobato kristalą veikiant femtosekundiniais Yb:KGV lazerine sistema generuojamais impulsais, energijos tankių intervale nuo  $33 \text{ J/cm}^2$  iki  $140 \text{ J/cm}^2$  galima indukuoti vienalytiškai pakitusio lūžio rodiklio sritis kristalo tūryje. Modifikacijos atsiradimo slenkstis šiame kristale yra visa eile didesnis negu lydyto kvarco stiklo dėl 5 kartus didesnio netiesinio lūžio rodiklio, kuris atsakingas už efektyvų filamentacijos

procesą, trukdantį aštriai sufokusuoti lazerio pluoštą. Pats lūžio rodiklio pokytis yra sąlygotas kristalo amorfizacijos proceso ir gali siekti iki 0,002.

4. KDP kristale vienalytis lūžio rodiklio pokytis nesiformuoja, nes vos viršijus kristalo pažeidimo slenkstį, kuris yra lygus  $4 \text{ J/cm}^2$ , prasideda kristalinės gardelės irimas. Šiame kristale galima formuoti tik amplitudines difrakcines gardeles.
5. Pirmą kartą pademonstruota, kad ličio niobato kristale galima tiesioginio lazerinio įrašymo metodu, naudojant Yb:KGV generuojamus impulsus, kurių energijos tankis –  $85 \text{ J/cm}^2$ , suformuoti stabilias, nefotorefrakcinio pobūdžio tūrinės Brego gardeles, turinčias rekordiškai didelį difrakcinį efektyvumą, siekiantį 78 %. Lydytame kvarce gautos gardelės maksimalus efektyvumas siekė 57 %, įrašinėjant su  $5,6 \text{ J/cm}^2$  energijos tankiu.
6. Darbe pasiūlyta metodika, kurią galima naudoti lazerio impulso indukuoto lūžio rodiklio pokyčiui įvertinti. Ši technika remiasi tuo faktu, jog Brego gardelių difrakcinis efektyvumas priklauso nuo gardelės storio. Identiškomis sąlygomis įrašant gardeles, turinčias skirtingus storius, išmatuojama kaip tokiu atveju kinta difrakcinio efektyvumo priklausomybė, kuri tampa priklausoma tik nuo lūžio rodiklio pokyčio dydžio. Šis metodas leidžia tiksliau įvertinti lūžio rodiklio pokytį nei naudojant įprastus metodus, tokius kaip difrakcija nuo plonų gardelių ar suformuoto bangolaidžio skaitmeninės apertūros matavimas.
7. Geležimi legiruotame ir gryname ličio niobato kristale, veikiant ultrarumpaisiais impulsais, generuojamais Ti:safyro osciliatoriumi (spinduliuotės bangos ilgis – 800 nm, dažnis – 80 MHz, impulsų trukmė – 150 fs), galima indukuoti fotorefrakcines lūžio rodiklio modifikacijas kristalo tūryje. Tokios nestabilios modifikacijos atsiranda energijos tankiui viršijant  $1 \text{ mJ/cm}^2$  ir gali būti formuojamos iki energijos tankio vertės, kuri jau sukelia amorfizacijos procesą ( $33 \text{ J/cm}^2$ ). Šiuose kristaluose pirmą kartą pademonstruotas selektyvus trimatis duomenų įrašymo ir ištrynimo būdas, sąlygotas medžiagos netiesinės sugerties efektų, naudojant tą patį spinduliuotės šaltinį. Nutrinamo bei įrašomo bito dydis priklauso nuo ekspozicijos dozės: informacijos bito ašinis



ilgis gali siekti nuo 5  $\mu\text{m}$ , naudojant  $10^4 \text{ J/cm}^2$  dozę ir aštrų fokusavimą ( $\text{NA}=1.35$ ), iki 70  $\mu\text{m}$ , su  $10^5 \text{ J/cm}^2$  doze ir silpnu fokusavimu ( $\text{NA}=0.3$ ). Informacijos nutrynimasis yra įgyvendinamas lazerio pluoštu keičiant terpės lūžio rodiklį iki maksimalios vertės, kuri, geležimi legiruotame ličio niobato kristale, veikiant ultratrumpaisiais impulsais, yra iki 40 % didesnė už vertę, indukuojamą ilgesniais lazerio impulsais.

8. Yb:KGV lazerio impulsais generuojamas superkontinuumas lydytame kvarce pasižymi nuo kaupinamosios spinduliuotės izoliuotu spektru, paslinktu link trumpesniųjų bangų: superkontinuumo spektras apima sritį nuo 400-850 nm, generuojant 35 mm storio stiklę bei naudojant spinduliuotės galias, 4-7 kartus viršijančias kritinę fokusavimosi galią. Dėl besiformuojančių modifikacijų, superkontinuumo spektro dedamųjų intensyvumas silpsta, o kartu vyksta ir trumpabangės spektro ribos slinkimas link ilgesniųjų bangų pusės (nuo 400 nm iki 750 nm), sąlygojantis spektro siaurėjimą. Užfiksuotas erdvinių spektrų kitimas gali būti patvirtina teorija, kad superkontinuumo spektro kitimas yra nulemiamas susiformavusios X-bangos nykimo kūginei spinduliuotei patekus į medžiagoje susiformavusį šviesolaidį, kurio formavimosi sparta priklauso nuo lazerio impulsų pasikartojimo dažnio (esant pastoviai impulso smailinei galiai). Superkontinuumas nustoja generuotis per 150 ms nuo eksponavimo pradžios kai dažnis siekia 300 kHz ir 3,5 s kai dažnis – 160 kHz.
9. Šviesos gija suformuotos liekamosios medžiagos modifikacijos yra netolydžiai pasiskirsčiusios gijos sklidimo kelyje, kadangi pati šviesos gija tampa moduluota. Modifikuota medžiaga pakeičia impulso sklidimo sąlygas gijoje, dėl kurių gija nutrūksta ir vėl persiformuoja tam tikrame atstume už modifikuotos zonos. Gijos moduliavimasis yra nulemtas spinduliuotės parametru, tokių kaip impulsų pasikartojimo dažnis ar impulso galia.



## Literatūra

- [1] K. M. Davis, K. Miura, N. Sugimoto, and K. Hirao, Writing waveguides in glass with a femtosecond laser, *Opt. Lett.*, **21**(21), 1729–1731 (1996).
- [2] R. Gattass and E. Mazur, Femtosecond laser micromachining in transparent materials, *Nat. Photonics*, **2**(4), 219–225 (2008).
- [3] G. D. Valle, R. Osellame, and P. Laporta, Micromachining of photonic devices by femtosecond laser pulses, *J. Opt. A. Pure Appl. Opt.*, **11**(1), 013001(1–18) (2009).
- [4] A. Schaap, Y. Bellouard, and T. Rohrlack, Optofluidic lab-on-a-chip for rapid algae population screening, *Biomed. Opt. Express*, **2**(3), 658–664 (2011).
- [5] A. Baltuška, Z. Wei, M. Pshenichnikov, D. Wiersma, and R. Szipocs, All-solid-state cavity-dumped sub-5-fs laser, *Appl. Phys. B*, **65**, 175–188 (1997).
- [6] INTEGRAL lazerinēs sistemos komercinē brošiūra, <http://www.femtolasers.com/INTEGRAL-TM.115.0.html> (tikrinta 2011 09 21).
- [7] H. Liu, J. Nees, and G. Mourou, Diode-pumped kerr-lens mode-locked Yb:KY(WO<sub>4</sub>)<sub>2</sub> laser, *Opt. Lett.*, **26**(21), 1723–1725 (2001).
- [8] R. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, 2008).
- [9] N. B. Angert, V. M. Garmash, N. I. Pavlova, and A. V. Tarasov, Influence of color centers on the optical properties of KTP crystals and on the efficiency of the laser radiation frequency conversion in these crystals, *Sov. J. Quant. Electron.*, **21**(4), 426–428 (1991).
- [10] M. D. Feit and J. J. A. Fleck, Beam nonparaxiality, filament formation, and beam breakup in the self-focusing of optical beams, *J. Opt. Soc. Am. B*, **5**(3), 633–640 (1988).
- [11] A. Braun, G. Korn, X. Liu, D. Du, J. Squier, and G. Mourou, Self-channeling of high-peak-power femtosecond laser pulses in air, *Opt. Lett.*, **20**(1), 73–75 (1995).

- 
- [12] G. Machein, A. Couairon, Y.-B. Andre, C. D'Amico, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, and R. Sauerbrey, Long-range self-channeling of infrared laser pulses in air: a new propagation regime without ionization, *Appl. Phys. B*, **79**, 379–382 (2004).
- [13] A. Couairon and A. Mysyrowicz, Femtosecond filamentation in transparent media, *Phys. Rep.-Rev. Sec. Phys. Lett.*, **441**(2–4), 47–189 (2007).
- [14] J. E. Rothenberg, Space-time focusing: breakdown of the slowly varying envelope approximation in the self-focusing of femtosecond pulses, *Opt. Lett.*, **17**(19), 1340–1342 (1992).
- [15] W. Werncke, A. Lau, M. Pfeiffer, K. Lenz, H. J. Weigmann, and C. D. Thuy, An anomalous frequency broadening in water, *Opt. Commun.*, **4**(6), 413–415 (1972).
- [16] A. L. Gaeta, Catastrophic collapse of ultrashort pulses, *Phys. Rev. Lett.*, **84**(16), 3582–3585 (2000).
- [17] J. Kasparian, R. Sauerbrey, D. Mondelain, S. Niedermeier, J. Yu, J.-P. Wolf, Y.-B. André, M. Franco, B. Prade, S. Tzortzakis, A. Mysyrowicz, M. Rodriguez, H. Wille, and L. Wöste, Infrared extension of the super continuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere, *Opt. Lett.*, **25**(18), 1397–1399 (2000).
- [18] F. Shimizu, Frequency broadening in liquids by a short light pulse, *Phys. Rev. Lett.*, **19**(19), 1097–1100 (1967).
- [19] R. R. Alfano and S. L. Shapiro, Emission in the region 4000 to 7000 Å via four-photon coupling in glass, *Phys. Rev. Lett.*, **24**(11), 584–587 (1970).
- [20] W. L. Smith, P. Liu, and N. Bloembergen, Superbroadening in H<sub>2</sub>O and D<sub>2</sub>O by self-focused picosecond pulses from a YAlG: Nd laser, *Phys. Rev. A*, **15**(6), 2396–2403 (1977).
- [21] N. Bloembergen, The influence of electron plasma formation on superbroadening in light filaments, *Opt. Commun.*, **8**(4), 285–288 (1973).
- [22] L. Keldysh, Ionization in the field of a strong electromagnetic wave, *Sov. Phys. JEPT*, **20**(5), 1307–1314 (1965).
- [23] S. Jones, P. Braunlich, R. Casper, X.-A. Shen, and P. Kelly, Recent progress on laser-induced modifications and intrinsic bulk damage of wide-gap optical materials, *Opt. Eng.*, **28**, 1039–1068 (1989).
- [24] C. B. Schaffer, A. Brodeur, and E. Mazur, Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses, *Meas. Sci. Technol.*, **12**(11), 1784–1794 (2001).
- [25] P. Yu and M. Cardona, *Fundamentals of Semiconductors: Physics and Materials Properties (Graduate Texts in Physics)* (Springer, 2010).
- [26] A. Molchanov, Development of avalanche ionization in transparent dielectrics under the action of light pulse, *Sov. Phys. Solid State*, **12**, 749–750 (1970).

- 
- [27] D. Arnold and E. Cartier, Theory of laser-induced free-electron heating and impact ionization in wide-band-gap solids, *Phys. Rev. B*, **46**(23), 15102–15115 (1992).
- [28] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics, *Phys. Rev. B*, **53**(4), 1749–1761 (1996).
- [29] M. Fox, *Optical Properties of Solids* (Oxford university press, 2001).
- [30] A. Vaidyanathan, T. Walker, and A. Guenther, The relative roles of avalanche multiplication and multiphoton absorption in laser-induced damage of dielectrics, *IEEE J. Quantum Electron.*, **16**(1), 89–93 (1980).
- [31] B. C. Stuart, M. D. Feit, S. Herman, A. M. Rubenchik, B. W. Shore, and M. D. Perry, Optical ablation by high-power short-pulse lasers, *J. Opt. Soc. Am. B*, **13**(2), 459–468 (1996).
- [32] W. Smith, Laser induced gas-breakdown in optical materials, *Opt. Eng.*, **17**, 489–503 (1978).
- [33] M. Lenzner, J. Kruger, S. Sartania, Z. Cheng, C. Spielmann, G. Mourou, W. Kautek, and F. Krausz, Femtosecond optical breakdown in dielectrics, *Phys. Rev. Lett.*, **80**(18), 4076–4079 (1998).
- [34] D. Du, X. Liu, G. Korn, J. Squier, and G. Mourou, Laser-induced breakdown by impact ionization in SiO<sub>2</sub> with pulse widths from 7 ns to 150 fs, *Appl. Phys. Lett.*, **64**(23), 3071–3073 (1994).
- [35] A.-C. Tien, S. Backus, H. Kapteyn, M. Murnane, and G. Mourou, Short-pulse laser damage in transparent materials as a function of pulse duration, *Phys. Rev. Lett.*, **82**(19), 3883–3886 (1999).
- [36] K. Yeom, H. Jiang, and J. Singh, High power laser semiconductor interactions: A monte carlo study for silicon, *J. Appl. Phys.*, **81**(4), 279–290 (1997).
- [37] K. K. Thornber, Applications of scaling problems in high-field electronic transport, *J. Appl. Phys.*, **17**, 279–290 (1981).
- [38] B. Rethfeld, Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics, *Phys. Rev. B*, **73**(3), 035101(1–6) (2006).
- [39] B. Rethfeld, Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics, *Phys. Rev. Lett.*, **92**(18), 187401(1–4) (2004).
- [40] R. Wood, *Laser-Induced Damage of Optical Materials* (Institute of Physics Publishing IOP, 2003).
- [41] N. Bloembergen, Laser-induced electric breakdown in solids, *IEEE J. Quantum Electron.*, **10**(3), 375–386 (1974).
- [42] D. Ashkenasi, M. Lorenz, R. Stoian, and A. Rosenfeld, Surface damage threshold and structuring of dielectrics using femtosecond laser pulses: the role of incubation, *Appl. Surf. Sci.*, **150**(1), 101–106 (1999).
- [43] E. Eva and K. Mann, Calorimetric measurement of two-photon absorption and color-center formation in ultraviolet-window materials,

- Appl. Phys. A-Mater. Sci. Process., **62**(2), 143–149 (1996).
- [44] K. Hata, M. Watanabe, and S. Watanabe, Nonlinear processes in UV optical materials at 248 nm, Appl. Phys. B, **50**(1), 55–59 (1990).
- [45] N. Itoh and K. Tanimura, Effects of photoexcitation of self-trapped excitons in insulators, Opt. Eng., **28**(10), 1034–1038 (1989).
- [46] P. Schaaf, *Laser Processing of Materials* (Springer, 2010).
- [47] E. G. Gamaly, S. Juodkazis, K. Nishimura, H. Misawa, B. Luther-Davies, L. Hallo, P. Nicolai, and V. T. Tikhonchuk, Laser-matter interaction in the bulk of a transparent solid: Confined microexplosion and void formation, Phys. Rev. B, **73**(21), 214101(1–15) (2006).
- [48] M. Born and E. Wolf, *Principles of Optics* (Cambridge University Press, 2003).
- [49] B. Saleh and M. Teich, *Fundamentals of Photonics* (John Wiley & Sons, Inc., 1991).
- [50] M. Malinauskas, A. Žukauskas, G. Bičkauskaitė, R. Gadonas, and S. Juodkazis, Mechanisms of three-dimensional structuring of photopolymers by tightly focussed femtosecond laser pulses, Opt. Express, **18**(10), 10209–10221 (2010).
- [51] F. Liang, Q. Sun, D. Gingras, R. Vallee, and S. L. Chin, The transition from smooth modification to nanograting in fused silica, Appl. Phys. Lett., **96**(10), 101903(1–3) (2010).
- [52] V. V. Kononenko, V. P. Pashinin, M. S. Komlenok, and V. I. Konov, Laser-induced modification of bulk fused silica by femtosecond pulses, Laser Phys., **19**(6), 1294–1299 (2009).
- [53] M. Ams, G. Marshall, D. Spence, and M. Withford, Slit beam shaping method for femtosecond laser direct-write fabrication of symmetric waveguides in bulk glasses, Opt. Express, **13**(15), 5676–5681 (2005).
- [54] Y. Shimotsuma, P. G. Kazansky, J. Qiu, and K. Hirao, Self-organized nanogratings in glass irradiated by ultrashort light pulses, Phys. Rev. Lett., **91**(24), 247405(1–4) (2003).
- [55] T. Hashimoto, S. Juodkazis, and H. Misawa, Void recording in silica, Appl. Phys. A, **83**, 337–340 (2006).
- [56] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, Study of damage in fused silica induced by ultra-short laser pulses, Opt. Commun., **191**(3-6), 333–339 (2001).
- [57] E. N. Glezer, M. Milosavljevic, L. Huang, R. J. Finlay, T.-H. Her, J. P. Callan, and E. Mazur, Three-dimensional optical storage inside transparent materials, Opt. Lett., **21**(24), 2023–2025 (1996).
- [58] S. Guizard, P. Martin, P. Daguzan, G. Petite, P. Audebert, J. P. Geindre, A. D. Santos, and A. Antonetti, Contrasted behaviour of an electron gas in MgO, Al<sub>2</sub>O<sub>3</sub> and SiO<sub>2</sub>, Europhys. Lett., **29**(5), 401–406 (1995).
- [59] P. Martin, S. Guizard, P. Daguzan, G. Petite, P. D’Oliveira, P. Meynadier, and M. Perdrix, Subpicosecond study of carrier trapping dy-

- namics in wide-band-gap crystals, *Phys. Rev. B*, **55**(9), 5799–5810 (1997).
- [60] C. Itoh, K. Tanimura, and N. Itoh, Optical studies of self-trapped excitons in  $\text{SiO}_2$ , *J. Phys. C: Solid State Phys.*, **21**(26), 4693–4702 (1988).
- [61] K. Hirao and K. Miura, Writing waveguides and gratings in silica and related materials by a femtosecond laser, *J. Non-Cryst. Solids*, **239**(1–3), 91–95 (1998).
- [62] A. M. Streltsov and N. F. Borrelli, Study of femtosecond-laser-written waveguides in glasses, *J. Opt. Soc. Am. B*, **19**(10), 2496–2504 (2002).
- [63] M. Sakakura and M. Terazima, Initial temporal and spatial changes of the refractive index induced by focused femtosecond pulsed laser irradiation inside a glass, *Phys. Rev. B*, **71**(2), 024113(1–12) (2005).
- [64] G. Paltauf and P. Dyer, Photomechanical processes and effects in ablation, *Chem. Rev.*, **103**(2), 487–518 (2003).
- [65] R. Bruckner, Properties and structure of vitreous silica I, *J. Non-Cryst. Solids*, **5**(1), 123–175 (1970).
- [66] A. Pasquarello and R. Car, Identification of raman defect lines as signatures of ring structures in vitreous silica, *Phys. Rev. Lett.*, **80**(23), 5145–5147 (1998).
- [67] J. Chan, T. Huser, S. Risbud, and D. Krol, Modification of the fused silica glass network associated with waveguide fabrication using femtosecond laser pulses, *Appl. Phys. A-Mater. Sci. Process.*, **76**(3), 367–372 (2003).
- [68] D. Homoelle, S. Wielandy, A. L. Gaeta, N. F. Borrelli, and C. Smith, Infrared photosensitivity in silica glasses exposed to femtosecond laser pulses, *Opt. Lett.*, **24**(18), 1311–1313 (1999).
- [69] M. Will, S. Nolte, B. N. Chichkov, and A. Tünnermann, Optical properties of waveguides fabricated in fused silica by femtosecond laser pulses, *Appl. Opt.*, **41**(21), 4360–4364 (2002).
- [70] J. W. Chan, T. R. Huser, S. H. Risbud, J. S. Hayden, and D. M. Krol, Waveguide fabrication in phosphate glasses using femtosecond laser pulses, *Appl. Phys. Lett.*, **82**(15), 2371–2373 (2003).
- [71] V. Bhardwaj, E. Simova, P. Corkum, D. Rayner, C. Hnatovsky, R. Taylor, B. Schreder, M. Kluge, and J. Zimmer, Femtosecond laser-induced refractive index modification in multicomponent glasses, *J. Appl. Phys.*, **97**(8), 083102(1–9) (2005).
- [72] S. Kanehira, K. Miura, and K. Hirao, Ion exchange in glass using femtosecond laser irradiation, *Appl. Phys. Lett.*, **93**(2), 023112(1–3) (2008).
- [73] A. Mermillod-Blondin, I. M. Burakov, R. Stoian, A. Rosenfeld, E. Audouard, N. Bulgakova, and I. V. Hertel, Direct observation of femtosecond laser induced modifications in the bulk of fused silica by phase contrast microscopy, *J. Laser Micro Nanoeng.*, **1**(3), 155–160 (2006).

- [74] A. Mermillod-Blondin, I. M. Burakov, Y. P. Meshcheryakov, N. M. Bulgakova, E. Audouard, A. Rosenfeld, A. Husakou, I. V. Hertel, and R. Stoian, Flipping the sign of refractive index changes in ultrafast and temporally shaped laser-irradiated borosilicate crown optical glass at high repetition rates, *Phys. Rev. B*, **77**(10), 104205(1–8) (2008).
- [75] K. Kawamura, N. Sarukura, M. Hirano, and H. Hosono, Holographic encoding of fine-pitched micrograting structures in amorphous SiO<sub>2</sub> thin films on silicon by a single femtosecond laser pulse, *Appl. Phys. Lett.*, **78**(8), 1038–1040 (2001).
- [76] A. Royon, C. Rivero-Baleine, A. Zoubir, L. Canioni, M. Couzi, T. Cardinal, E. Fargin, M. Richardson, and K. Richardson, Evolution of the linear and nonlinear optical properties of femtosecond laser exposed fused silica, *J. Opt. Soc. Am. B*, **26**(11), 2077–2083 (2009).
- [77] B. Pommellec, L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrowicz, Femtosecond laser irradiation stress induced in pure silica, *Opt. Express*, **11**(9), 1070–1079 (2003).
- [78] K. Hill and G. Meltz, Fiber bragg grating technology fundamentals and overview, *J. Lightwave Technol.*, **15**(8), 1263–1276 (1997).
- [79] D. Griscom, Optical properties and structure of defects in silica glass, *J. Ceram. Soc. Jpn*, **99**(10), 923–942 (1991).
- [80] L. Skuja, M. Hirano, H. Hosono, and K. Kajihara, Defects in oxide glasses, *Phys. Status Solidi C*, **1**, 15–24 (2005).
- [81] A. Zoubir, C. Rivero, R. Grodsky, K. Richardson, M. Richardson, T. Cardinal, and M. Couzi, Laser-induced defects in fused silica by femtosecond IR irradiation, *Phys. Rev. B*, **73**(22), 224117(1–5) (2006).
- [82] M. A. Stevens-Kalceff, A. Stesmans, and J. Wong, Defects induced in fused silica by high fluence ultraviolet laser pulses at 355 nm, *Appl. Phys. Lett.*, **80**(5), 758–760 (2002).
- [83] H. Sun, S. Juodkazis, M. Watanabe, S. Matsuo, H. Misawa, and J. Nishii, Generation and recombination of defects in vitreous silica induced by irradiation with a near-infrared femtosecond laser, *J. Phys. Chem. B*, **104**(15), 3450–3455 (2000).
- [84] S. O. Kucheyev and S. G. Demos, Optical defects produced in fused silica during laser-induced breakdown, *Appl. Phys. Lett.*, **82**(19), 3230–3232 (2003).
- [85] B. Potter and K. Simmons-Potter, Photosensitive point defects in optical glasses: Science and applications, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res. Sect. B-Beam Interact. Mater. Atoms*, **166**, 771–781 (2000).
- [86] D. L. Griscom, J. G. H. Sigel, and R. J. Ginther, Defect centers in a pure-silica-core borosilicate-clad optical fiber: ESR studies, *J. Appl. Phys.*, **47**(3), 960–967 (1976).
- [87] L. Corrales, R. Van Ginhoven, and H. Jonsson, Characterization of exciton self-trapping in amorphous silica, *J. Non-Cryst. Solids*, **352**(23–25), 2589–2595 (2006).



- 
- [88] C. W. Ponader, J. F. Schroeder, and A. M. Streltsov, Origin of the refractive-index increase in laser-written waveguides in glasses, *J. Appl. Phys.*, **103**(6), 063516(1–5) (2008).
- [89] M. Birnbaum, Semiconductor surface damage produced by ruby lasers, *J. Appl. Phys.*, **36**(1), 3688–3689 (1965).
- [90] A. K. Jain, V. N. Kulkarni, D. K. Sood, and J. S. Uppal, Periodic surface ripples in laser-treated aluminum and their use to determine absorbed power, *J. Appl. Phys.*, **52**(7), 4882–4884 (1981).
- [91] A. Borowiec and H. K. Haugen, Subwavelength ripple formation on the surfaces of compound semiconductors irradiated with femtosecond laser pulses, *Appl. Phys. Lett.*, **82**(25), 4462–4464 (2003).
- [92] T. Q. Jia, H. X. Chen, M. Huang, F. L. Zhao, J. R. Qiu, R. X. Li, Z. Z. Xu, X. K. He, J. Zhang, and H. Kuroda, Formation of nanogratings on the surface of a ZnSe crystal irradiated by femtosecond laser pulses, *Phys. Rev. B*, **72**(12), 125429(1–4) (2005).
- [93] A. Siegman and P. Fauchet, Stimulated wood’s anomalies on laser-illuminated surfaces, *IEEE J. Quantum Electron.*, **22**(8), 1384–1403 (1986).
- [94] V. R. Bhardwaj, E. Simova, P. P. Rajeev, C. Hnatovsky, R. S. Taylor, D. M. Rayner, and P. B. Corkum, Optically produced arrays of planar nanostructures inside fused silica, *Phys. Rev. Lett.*, **96**(5), 057404(1–4) (2006).
- [95] C. Hnatovsky, R. Taylor, E. Simova, P. Rajeev, D. Rayner, V. Bhardwaj, and P. Corkum, Fabrication of microchannels in glass using focused femtosecond laser radiation and selective chemical etching, *Appl. Phys. A*, **84**(1–2), 47–61 (2006).
- [96] Y. Shimotsuma, K. Hirao, J. Qiu, and P. G. Kazansky, Nanomodification inside transparent materials by femtosecond laser single beam, *Mod. Phys. Lett. B*, **19**(5), 225–238 (2005).
- [97] S. Richter, M. Heinrich, S. Döring, A. Tünnermann, and S. Nolte, Formation of femtosecond laser-induced nanogratings at high repetition rates, *Appl. Phys. A*, **104**, 503–507 (2011).
- [98] E. Bricchi, B. G. Klappauf, and P. G. Kazansky, Form birefringence and negative index change created by femtosecond direct writing in transparent materials, *Opt. Lett.*, **29**(1), 119–121 (2004).
- [99] L. P. R. Ramirez, M. Heinrich, S. Richter, F. Dreisow, R. Keil, A. V. Korovin, U. Peschel, S. Nolte, and A. Tuennermann, Tuning the structural properties of femtosecond-laser-induced nanogratings, *Appl. Phys. A-Mater. Sci. Process.*, **100**(1), 1–6 (2010).
- [100] S. Juodkazis, K. Nishimura, S. Tanaka, H. Misawa, E. G. Gamaly, B. Luther-Davies, L. Hallo, P. Nicolai, and V. T. Tikhonchuk, Laser-induced microexplosion confined in the bulk of a sapphire crystal: Evidence of multimegabar pressures, *Phys. Rev. Lett.*, **96**(16), 166101(1–4) (2006).

- 
- [101] V. Mizeikis, S. Kimura, N. V. Surovtsev, V. Jarutis, A. Saito, H. Misawa, and S. Juodkazis, Formation of amorphous sapphire by a femtosecond laser pulse induced micro-explosion, *Appl. Surf. Sci.*, **255**(24), 9745–9749 (2009).
- [102] W. Watanabe, T. Toma, K. Yamada, J. Nishii, K. Hayashi, and K. Itoh, Optical seizing and merging of voids in silica glass with infrared femtosecond laser pulses, *Opt. Lett.*, **25**(22), 1669–1671 (2000).
- [103] K. Itoh, W. Watanabe, S. Nolte, and C. B. Schaffer, Ultrafast processes for bulk modification of transparent materials, *MRS Bull.*, **31**(8), 620–625 (2006).
- [104] S. Onda, W. Watanabe, K. Yamada, K. Itoh, and J. Nishii, Study of filamentary damage in synthesized silica induced by chirped femtosecond laser pulses, *J. Opt. Soc. Am. B*, **22**(11), 2437–2443 (2005).
- [105] C. B. Schaffer, A. O. Jamison, and E. Mazur, Morphology of femtosecond laser-induced structural changes in bulk transparent materials, *Appl. Phys. Lett.*, **84**(9), 1441–1443 (2004).
- [106] C. Schaffer, J. Garcia, and E. Mazur, Bulk heating of transparent materials using a high-repetition-rate femtosecond laser, *Appl. Phys. A*, **76**(3), 351–354 (2003).
- [107] S. Eaton, H. Zhang, P. Herman, F. Yoshino, L. Shah, J. Bovatsek, and A. Arai, Heat accumulation effects in femtosecond laser-written waveguides with variable repetition rate, *Opt. Express*, **13**(12), 4708–4716 (2005).
- [108] S. M. Eaton, H. Zhang, M. L. Ng, J. Li, W.-J. Chen, S. Ho, and P. R. Herman, Transition from thermal diffusion to heat accumulation in high repetition rate femtosecond laser writing of buried optical waveguides, *Opt. Express*, **16**(13), 9443–9458 (2008).
- [109] C. B. Schaffer, A. Brodeur, J. F. García, and E. Mazur, Micromachining bulk glass by use of femtosecond laser pulses with nanojoule energy, *Opt. Lett.*, **26**(2), 93–95 (2001).
- [110] I. Miyamoto, A. Horn, and J. Gottmann, Local melting of glass material and its application to direct fusion welding by ps-laser pulses, *J. Laser Micro Nanoeng.*, **2**(1), 7–14 (2007).
- [111] M. Sakakura, M. Shimizu, Y. Shimotsuma, K. Miura, and K. Hirao, Temperature distribution and modification mechanism inside glass with heat accumulation during 250 kHz irradiation of femtosecond laser pulses, *Appl. Phys. Lett.*, **93**(23), 231112(1–3) (2008).
- [112] M. Shimizu, M. Sakakura, M. Ohnishi, Y. Shimotsuma, T. Nakaya, K. Miura, and K. Hirao, Mechanism of heat-modification inside a glass after irradiation with high-repetition rate femtosecond laser pulses, *J. Appl. Phys.*, **108**(7), 073533(1–10) (2010).
- [113] H. Guo, H. Jiang, Y. Fang, C. Peng, H. Yang, Y. Li, and Q. Gong, The pulse duration dependence of femtosecond laser induced refractive index modulation in fused silica, *J. Opt. A. Pure Appl. Opt.*, **6**(8),

- 787–790 (2004).
- [114] C. Hnatovsky, R. S. Taylor, P. P. Rajeev, E. Simova, V. R. Bhardwaj, D. M. Rayner, and P. B. Corkum, Pulse duration dependence of femtosecond-laser-fabricated nanogratings in fused silica, *Appl. Phys. Lett.*, **87**(1), 014104(1–3) (2005).
- [115] G. Cheng, K. Mishchik, C. Mauclair, E. Audouard, and R. Stoian, Ultrafast laser photoinscription of polarization sensitive devices in bulk silica glass, *Opt. Express*, **17**(12), 9515–9525 (2009).
- [116] R. Adar, M. Serbin, and V. Mizrahi, Less than 1 dB per meter propagation loss of silica waveguides measured using a ring resonator, *J. Lightwave Tech.*, **12**(8), 1369–1372 (1994).
- [117] G. D. Marshall, M. Ams, and M. J. Withford, Direct laser written waveguide-bragg gratings in bulk fused silica, *Opt. Lett.*, **31**(18), 2690–2691 (2006).
- [118] L. Sudrie, M. Franco, B. Prade, and A. Mysyrewicz, Writing of permanent birefringent microlayers in bulk fused silica with femtosecond laser pulses, *Opt. Commun.*, **171**(4–6), 279–284 (1999).
- [119] T. Toma, Y. Furuya, W. Watanabe, K. Itoh, J. Nishii, and K. Hayashi, Estimation of the refractive index change in glass induced by femtosecond laser pulses, *Opt. Rev.*, **7**(1), 14–17 (2000).
- [120] Y. Li, W. Watanabe, T. Tamaki, J. Nishii, and K. Itoh, Fabrication of dammann gratings in silica glass using a filament of femtosecond laser, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **44**(7A), 5014–5016 (2005).
- [121] W. Watanabe, D. Kuroda, K. Itoh, and J. Nishii, Fabrication of fresnel zone plate embedded in silica glass by femtosecond laser pulses, *Opt. Express*, **10**(19), 978–983 (2002).
- [122] Y. Li, W. Watanabe, K. Yamada, T. Shinagawa, K. Itoh, J. Nishii, and Y. Jiang, Holographic fabrication of multiple layers of grating inside soda-lime glass with femtosecond laser pulses, *Appl. Phys. Lett.*, **80**(9), 1508–1510 (2002).
- [123] M. Watanabe, H. Sun, S. Juodkazis, T. Takahashi, S. Matsuo, Y. Suzuki, J. Nishii, and H. Misawa, Three-dimensional optical data storage in vitreous silica, *Jpn. J. Appl. Phys. Part 2 - Lett.*, **37**(12B), 1527–1530 (1998).
- [124] M. Beresna and P. G. Kazansky, Polarization diffraction grating produced by femtosecond laser nanostructuring in glass, *Opt. Lett.*, **35**(10), 1662–1664 (2010).
- [125] Y. Bellouard, A. Said, M. Dugan, and P. Bado, Fabrication of high-aspect ratio, micro-fluidic channels and tunnels using femtosecond laser pulses and chemical etching, *Opt. Express*, **12**(10), 2120–2129 (2004).
- [126] Y. Bellouard, A. Said, and P. Bado, Integrating optics and micro-mechanics in a single substrate: a step toward monolithic integration in fused silica, *Opt. Express*, **13**(17), 6635–6644 (2005).

- 
- [127] N. Huot, R. Stoian, A. Mermillod-Blondin, C. Mauclair, and E. Audouard, Analysis of the effects of spherical aberration on ultrafast laser-induced refractive index variation in glass, *Opt. Express*, **15**(19), 12395–12408 (2007).
- [128] LITHOSIL stiklo parametrai, <http://www.schott.com> (tikrinta 2011 09 21).
- [129] KV stiklo parametrai, <http://www.sciner.com/Opticsland/FS.htm> (tikrinta 2011 09 21).
- [130] H. Misawa and S. Juodkazis, *3D Laser Microfabrication: Principles and Applications* (WILEY-VCH, Weinheim, 2006).
- [131] E. G. Gamaly, S. Juodkazis, V. Mizeikis, H. Misawa, A. V. Rode, and W. Krolikowski, Modification of refractive index by a single femtosecond pulse confined inside a bulk of a photorefractive crystal, *Phys. Rev. B*, **81**(5), 054113(1–10) (2010).
- [132] L. Sudrie, A. Couairon, M. Franco, B. Lamouroux, B. Prade, S. Tzortzakis, and A. Mysyrowicz, Femtosecond laser-induced damage and filamentary propagation in fused silica, *Phys. Rev. Lett.*, **89**(18), 186601(1–4) (2002).
- [133] M. Weber, *Handbook of optical materials* (CRC Press, New York, 2003).
- [134] P. Oberson, B. Gisin, B. Huttner, and N. Gisin, Refracted near-field measurements of refractive index and geometry of silica-on-silicon integrated optical waveguides, *Appl. Opt.*, **37**(31), 7268–7272 (1998).
- [135] Q.-Z. Zhao, J.-R. Qiu, X.-W. Jiang, C.-J. Zhao, and C.-S. Zhu, Fabrication of internal diffraction gratings in calcium fluoride crystals by a focused femtosecond laser, *Opt. Express*, **12**(5), 742–746 (2004).
- [136] H. Kogelnik, Coupled wave theory for thick hologram grating, *Bell Syst. Tech. J.*, **48**, 2909–2947 (1969).
- [137] H. Kogelnik, On the propagation of gaussian beams of light through lenslike media including those with a loss or gain variation, *Appl. Opt.*, **4**(12), 1562–1569 (1965).
- [138] T. Gaylord and M. Moharam, Analysis and applications of optical diffraction by gratings, *Proc. of the IEEE*, **73**(5), 894–937 (1985).
- [139] I. V. Ciapurin, L. B. Glebov, and V. I. Smirnov, Modeling of phase volume diffractive gratings, part 1: transmitting sinusoidal uniform gratings, *Opt. Eng.*, **45**(1), 015802(1–9) (2006).
- [140] J. Arns, W. Colburn, and S. Barden, Volume phase gratings for spectroscopy, ultrafast laser compressors, and wavelength division multiplexing, *Proc. of SPIE*, **3779**, 313–323 (1999).
- [141] O. M. Efimov, L. B. Glebov, and V. I. Smirnov, High-frequency Bragg gratings in a photothermorefractive glass, *Opt. Lett.*, **25**(23), 1693–1695 (2000).
- [142] K. Kawamura, N. Sarukura, M. Hirano, and H. Hosono, Holographic encoding of fine-pitched micrograting structures in amorphous SiO<sub>2</sub>

- thin films on silicon by a single femtosecond laser pulse, *Appl. Phys. Lett.*, **78**(8), 1038–1040 (2001).
- [143] T. Tamaki, W. Watanabe, H. Nagai, M. Yoshida, J. Nishii, and K. Itoh, Structural modification in fused silica by a femtosecond fiber laser at 1558 nm, *Opt. Express*, **14**(15), 6971–6980 (2006).
- [144] K. Yamada, W. Watanabe, K. Kintaka, J. Nishii, and K. Itoh, Volume grating induced by a self-trapped long filament of femtosecond laser pulses in silica glass, *Jpn. J. Appl. Phys.*, **42**(11), 6916–6919 (2003).
- [145] M. Koesters, B. Sturman, P. Werheit, D. Haertle, and K. Buse, Optical cleaning of congruent lithium niobate crystals, *Nat. Photonics*, **3**(9), 510–513 (2009).
- [146] T. Volk and M. Wohlecke, *Lithium Niobate: Defects, Photorefraction and Ferroelectric Switching* (Springer, 2008).
- [147] D. L. Staebler, W. J. Burke, W. Phillips, and J. J. Amodei, Multiple storage and erasure of fixed holograms in Fe doped LiNbO<sub>3</sub>, *Appl. Phys. Lett.*, **26**(4), 182–184 (1975).
- [148] A. Ashkin, G. D. Boyd, J. M. Dziedzic, R. G. Smith, A. A. Ballman, J. J. Levinstein, and K. Nassau, Optically-induced refractive index inhomogeneities in LiNbO<sub>3</sub> and LiTaO<sub>3</sub>, *Appl. Phys. Lett.*, **9**(1), 72–74 (1966).
- [149] K. Onuki, N. Uchida, and T. Saku, Interferometric method for measuring electro-optic coefficients in crystals, *J. Opt. Soc. Am.*, **62**(9), 1030–1032 (1972).
- [150] A. M. Glass, D. von der Linde, and T. J. Negran, High-voltage bulk photovoltaic effect and the photorefractive process in LiNbO<sub>3</sub>, *Appl. Phys. Lett.*, **25**(4), 233–235 (1974).
- [151] G. E. Peterson, A. M. Glass, and T. J. Negran, Control of the susceptibility of lithium niobate to laser-induced refractive index changes, *Appl. Phys. Lett.*, **19**(5), 130–132 (1971).
- [152] P. Günter and J. P. Huignard, *Photorefractive Materials and Their Applications 2* (Springer, 2007).
- [153] K. Peithmann, A. Wiebrock, and K. Buse, Photorefractive properties of highly-doped lithium niobate crystals in the visible and near-infrared, *Appl. Phys. B*, **68**, 777–784 (1999).
- [154] F. Jermann and J. Otten, Light-induced charge transport in LiNbO<sub>3</sub>:Fe at high light intensities, *J. Opt. Soc. Am. B*, **10**(11), 2085–2092 (1993).
- [155] S. Sasamoto, J. Hirohashi, and S. Ashihara, Polaron dynamics in lithium niobate upon femtosecond pulse irradiation: Influence of magnesium doping and stoichiometry control, *J. Appl. Phys.*, **105**(8), 083102(1–6) (2009).
- [156] B. Sturman, M. Carrascosa, and F. Agullo-Lopez, Light-induced charge transport in LiNbO<sub>3</sub> crystals, *Phys. Rev. B*, **78**(24), 245114(1–8) (2008).

- 
- [157] M. Simon, S. Wevering, K. Buse, and E. Krätzig, The bulk photovoltaic effect of photorefractive LiNbO<sub>3</sub>:Fe crystals at high light intensities, *J. Phys. D*, **30**(1), 144–149 (1997).
- [158] O. Althoff, A. Erdmann, L. Wiskott, and P. Hertel, The photorefractive effect in LiNbO<sub>3</sub> at high light intensity, *Phys. Stat. Sol.(a)*, **128**(1), K41–K46 (1991).
- [159] S. Juodkazis, M. Sudzius, V. Mizeikis, H. Misawa, E. G. Gamaly, Y. Liu, O. A. Louchev, and K. Kitamura, Three-dimensional recording by tightly focused femtosecond pulses in LiNbO<sub>3</sub>, *Appl. Phys. Lett.*, **89**(6), 062903 (2006).
- [160] O. Beyer, I. Breunig, F. Kalkum, and K. Buse, Photorefractive effect in iron-doped lithium niobate crystals induced by femtosecond pulses of 1.5  $\mu\text{m}$  wavelength, *Appl. Phys. Lett.*, **88**(5), 051120(1–5) (2006).
- [161] K. Buse and K. H. Ringhofer, Pyroelectric drive for light-induced charge transport in the photorefractive process, *Appl. Phys. A*, **57**, 161–165 (1993).
- [162] K. Buse, F. Jermann, and E. Krätzig, Infrared holographic recording in LiNbO<sub>3</sub>:Cu, *Appl. Phys. A*, **58**, 191–195 (1994).
- [163] K. Buse, S. Breer, K. Peithmann, S. Kapphan, M. Gao, and E. Krätzig, Origin of thermal fixing in photorefractive lithium niobate crystals, *Phys. Rev. B*, **56**(3), 1225–1235 (1997).
- [164] D. Jaque, E. Cantelar, and G. Lifante, Lattice micro-modifications induced by Zn diffusion in Nd:LiNbO<sub>3</sub> channel waveguides probed by Nd<sup>3+</sup> confocal micro-luminescence, *Appl. Phys. B.*, **88**, 201–204 (2007).
- [165] M. L. Bortz and M. M. Fejer, Annealed proton-exchanged LiNbO<sub>3</sub> waveguides, *Opt. Lett.*, **16**(23), 1844–1846 (1991).
- [166] D. Kim, S. Lee, and T. Noh, Structural and nonlinear optical properties of epitaxial LiNbO<sub>3</sub> films grown by pulsed laser deposition, *Mater. Sci. Eng. B*, **56**(2–3), 251–255 (1998).
- [167] T. Kawaguchi, K. Mizuuchi, T. Yoshino, M. Imaeda, K. Yamamoto, and T. Fukuda, Liquid-phase epitaxial growth of Zn-doped LiNbO<sub>3</sub> thin films and optical damage resistance for second-harmonic generation, *J. Cryst. Growth*, **203**(1–2), 173–178 (1999).
- [168] F. Chen, Photonic guiding structures in lithium niobate crystals produced by energetic ion beams, *J. Appl. Phys.*, **106**(8), 081101(1–29) (2009).
- [169] J. Burghoff, H. Hartung, S. Nolte, and A. Tuennermann, Structural properties of femtosecond laser-induced modifications in LiNbO<sub>3</sub>, *Appl. Phys. A*, **86**(2), 165–170 (2007).
- [170] R. Thomson, S. Campbell, I. Blewett, A. Kar, and D. Reid, Optical waveguide fabrication in z-cut lithium niobate (LiNbO<sub>3</sub>) using femtosecond pulses in the low repetition rate regime, *Appl. Phys. Lett.*, **88**, 111109(1–3) (2006).

- [171] D. Deshpande, A. Malshe, E. Stach, V. Radmilovic, D. Alexander, D. Doerr, and D. Hirt, Investigation of femtosecond laser assisted nano and microscale modifications in lithium niobate, *J. Appl. Phys.*, **97**(7), 074316(1–9) (2005).
- [172] A. García-Navarro, F. Agulló-López, J. Olivares, J. Lamela, and F. Jaque, Femtosecond laser and swift-ion damage in lithium niobate: A comparative analysis, *J. Appl. Phys.*, **103**(9), 093540(1–9) (2008).
- [173] A. Marcinkevičius, V. Mizeikis, S. Juodkazis, S. Matsuo, and H. Misawa, Effect of refractive index-mismatch on laser microfabrication in silica glass, *Appl. Phys. A*, **76**, 257–260 (2003).
- [174] A. Okhrimchuk, V. Mezentsev, H. Schmitz, M. Dubov, and I. Benion, Cascaded nonlinear absorption of femtosecond laser pulses in dielectrics, *Laser Phys.*, **19**, 1415–1422 (2009).
- [175] J. R. Macdonald, R. R. Thomson, S. J. Beecher, N. D. Psaila, H. T. Bookey, and A. K. Kar, Ultrafast laser inscription of near-infrared waveguides in polycrystalline ZnSe, *Opt. Lett.*, **35**(23), 4036–4038 (2010).
- [176] L. E. Halliburton, K. L. Sweeney, and C. Y. Chen, Electron spin resonance and optical studies of point defects in lithium niobate, *Nucl. Instrum. Meth. B*, **1**(2-3), 344 – 347 (1984).
- [177] P. F. Bordui, D. H. Jundt, E. M. Standifer, R. G. Norwood, R. L. Sawin, and J. D. Galipeau, Chemically reduced lithium niobate single crystals: Processing, properties and improved surface acoustic wave device fabrication and performance, *J. Appl. Phys.*, **85**(7), 3766–3769 (1999).
- [178] B. Andreas, K. Peithmann, K. Buse, and K. Maier, Modification of the refractive index of lithium niobate crystals by transmission of high-energy  $^4\text{He}^{2+}$  and  $\text{D}^+$  particles, *Appl. Phys. Lett.*, **84**(19), 3813–3815 (2004).
- [179] D. N. Nikogosyan, *Nonlinear Optical Crystals: A Complete Survey* (Springer, 2005).
- [180] G. Duchateau, G. Geoffroy, A. Dyan, H. Piombini, and S. Guizard, Electron-hole dynamics in normal and deuterated  $\text{KH}_2\text{PO}_4$  illuminated by intense femtosecond laser pulses, *Phys. Rev. B*, **83**(7), 075114(1–11) (2011).
- [181] V. M. Gordienko, I. A. Makarov, P. M. Mikheev, V. S. Syrtsov, and A. A. Shashkov, Formation of micromodifications in a KDP crystal irradiated by tightly focused femtosecond visible laser pulses, *Quantum Electron.*, **35**(7), 627–362 (2005).
- [182] V. S. Averbakh, I. A. Batyreva, and V. O. Bespalov, Magnitude of light absorption in KDP single crystals, *Radiophys. Quantum Electron.*, **13**, 240–241 (1970).
- [183] K. Lee, Hidden nature of the high-temperature phase transitions in

- crystals of  $\text{KH}_2\text{PO}_4$ -type: Is it a physical change?, *J. Phys. Chem. Solids*, **57**(3), 333–342 (1996).
- [184] ISO, ISO 6507-1, *Metallic Materials - Vickers Hardness Test - Part 1: Test Method* (Geneva, 2005).
- [185] D. V. Skryabin and A. V. Gorbach, Colloquium: Looking at a soliton through the prism of optical supercontinuum, *Rev. Mod. Phys.*, **82**(2), 1287–1299 (2010).
- [186] A. P. Stabinis and G. Valiulis, *Ultratrumpų šviesos impulsų netiesinė optika* (Vilniaus Universitetas, Lietuva, 2008).
- [187] J. K. Ranka, R. S. Windeler, and A. J. Stentz, Visible continuum generation in air-silica microstructure optical fibers with anomalous dispersion at 800 nm, *Opt. Lett.*, **25**(1), 25–27 (2000).
- [188] D. Faccio, A. Couairon, and P. Di Trapani, *Conical Waves, Filaments and Nonlinear Filamentation Optics* (Aracne, 2007).
- [189] D. Faccio, A. Averchi, A. Lotti, M. Kolesik, J. V. Moloney, A. Couairon, and P. Di Trapani, Generation and control of extreme blueshifted continuum peaks in optical Kerr media, *Phys. Rev. A*, **78**(3), 033825(1–6) (2008).
- [190] D. Blömer, A. Szameit, F. Dreisow, T. Schreiber, S. Nolte, and A. Tünnermann, Nonlinear refractive index of fs-laser-written waveguides in fused silica, *Opt. Express*, **14**(6), 2151–2157 (2006).
- [191] S. Chin, A. Brodeur, S. Petit, O. Kosareva, and V. Kandidov, Filamentation and supercontinuum generation during the propagation of powerful ultrashort laser pulses in optical media (white light laser), *J. Nonlinear Opt. Phys. Mat.*, **8**(1), 121–146 (1999).
- [192] A. Dubietis, E. Kucinskas, G. Tamosauskas, E. Gaizauskas, M. A. Porras, and P. D. Trapani, Self-reconstruction of light filaments, *Opt. Lett.*, **29**(24), 2893–2895 (2004).
- [193] V. Kudriašov, *Nonlinear propagation of femtosecond pulses and induced modifications in optical glasses, PhD Thesis* (Vilniaus Universitetas, Lietuva, 2007).
- [194] I. Zergioti, K. D. Kyrkis, D. G. Papazoglou, and S. Tzortzakis, Structural modifications in fused silica induced by ultraviolet fs laser filaments, *Appl. Surf. Sci.*, **253**(19), 7865–7868 (2007).
- [195] M. Bernier, S. Gagnon, and R. Vallée, Role of the 1D optical filamentation process in the writing of first order fiber bragg gratings with femtosecond pulses at 800nm, *Opt. Mater. Express*, **1**(5), 832–844 (2011).