

VILNIAUS UNIVERSITETAS  
FIZIKOS FAKULTETAS  
KVANTINĖS ELEKTRONIKOS KATEDRA

Linus Smalakys

FEMTOSEKUNDINIAIS LAZERIO IMPULSAIS INICIJUOTOS PAŽAIDOS REIŠKINIŲ  
MODELIAVIMAS PLONASLUOKSNĖSE DIELEKTRINĖSE DANGOSE

Magistro studijų baigiamasis darbas

(studijų programa – LAZERINĖ FIZIKA IR OPTINĖS TECHNOLOGIJOS)

Studentas:	Linus Smalakys
Darbo vadovas:	doc. dr. Andrius Melninkaitis
Recenzentė:	doc. dr. Viktorija Tamulienė
Katedros vedėjas:	prof. habil. dr. Valdas Sirutkaitis

Vilnius 2016

# Turinys

Įvadas .....	2
1 Literatūros apžvalga .....	3
1.1 Netiesinė medžiagos ir spinduliuotės sąveika.....	3
1.1.1 Netiesinis poliarizuotumas .....	3
1.1.2 Netiesinė jonizacija .....	4
1.2 Optinė medžiagų pažaida ultratrumpaisiais lazerio impulsais .....	9
1.2.1 Pažaidos mechanizmas .....	9
1.2.2 Pažaidos priklausomybė nuo bangos ilgio .....	11
1.2.3 Pažaidos priklausomybė nuo impulso trukmės .....	12
1.3 Pažaidos lazerio spinduliuote tyrimas ultrasparčiąja holografija .....	13
1.4 Pažaidos ultratrumpais lazerio impulsais modeliavimas .....	15
1.4.1 Griūtinė jonizacija .....	15
1.4.2 Tarpiniai lygmenys .....	16
1.4.3 Daugelio spartos lygčių modelis .....	17
1.4.4 Interferencinis laukas dangose .....	18
2 Tyrimo metodai .....	19
2.1 Medžiagos atsako modeliavimas .....	19
2.1.1 Efektinė dielektrinė skvarba .....	19
2.1.2 Laisvųjų krūvininkų ir eksitonų generavimo spartos .....	20
2.1.3 Daugelio spartos lygčių modelis laidumo juostos elektronams.....	21
2.1.4 Pažaidos lazerio spinduliuote kriterijai.....	22
2.2 Baigtinių skirtumų laikinėje erdvėje metodas.....	23
2.3 Modeliavimo geometrija ir pagrindiniai parametrai .....	25
2.4 Santykinio pralaidumo ir fazės pokyčio įvertinimas .....	27
2.4.1 Erdvės ir laiko diskretizavimas .....	27
3 Pagrindiniai rezultatai ir jų aptarimas .....	29
3.1 Eksperimentinių duomenų aproksimacija .....	29
3.2 Pažaidos lazerio spinduliuote slenksčio prognozavimas .....	31
Išvados .....	36
Literatūros sąrašas .....	37
Santrauka .....	40
Summary .....	41

# Įvadas

Galingų lazerių patikimumą ir tolimesnį vystymą riboja jų optinių elementų kokybė [1]. Ilgą laiką viena svarbiausių kokybės problemų išlieka optinė elementų pažaida, atsirandanti juos veikiant intensyvia elektromagnetine spinduliuote. Optinis medžiagų atsparumas priklauso nuo daugelio medžiagos bei lazerio spinduliuotės savybių [2–4]. Siekdami sukurti kokybiškus optinius elementus, turime tinkamai charakterizuoti dabartinių optinių elementų pažaidą bei identifikuoti ją sukeliančius fizikinius procesus.

Šiuo metu pažaidos lazerio spinduliuote slenkstis (PLSS) nustatomas standartizuotais eksperimentiniais metodais [5], kurie reikalauja galingų ir kokybiškų lazerinių sistemų bei žmogiškųjų išteklių. Norint patikimai charakterizuoti PLSS plačiame bangos ilgių ir impulso trukmių intervale tenka atlikti daugybę matavimų. PLSS nustatymas skaitmeniniais metodais leistų palengvinti šią užduotį, tačiau vis dar trūksta kokybiškų ir patikimų modelių, ypač ultratrumpiesiems impulsams, leidžiančių atlikti šiuos skaičiavimus.

Taigi, atsižvelgiant į žinių ir rekomendacijų poreikį šioje srityje, pagrindinis šio darbo tikslas yra aproksimuojant eksperimentinius ultrasparčiosios holografijos žadinimo-zondavimo duomenis įvertinti  $Ta_2O_5$  optinės dangos fizikinius parametrus ir sukurti skaitmeninį modelį šios dangos optinio atsparumo prognozavimui plačioje femtosekundinių impulso trukmių ir bangos ilgių srityje.

Šiam tikslui pasiekti buvo keliami tokie uždaviniai:

1. Ultrasparčiosios holografijos su laikine skyra eksperimentinių duomenų aproksimacija medžiagos parametrų nustatymui.
2. Elektromagnetinio lauko modeliavimas optinėse dangose baigtinių skirtumų laikinėje erdvėje metodu.
3. Laidumo juostos elektronų aprašymas daugelio spartos lygčių modeliu teisingam griūtinės jonizacijos įvertinimui.
4. Pažaidos lazerio spinduliuote slenkščio priklausomybės nuo impulso trukmės ir bangos ilgio nustatymas femtosekundiniame režime.

# 1 Literatūros apžvalga

## 1.1 Netiesinė medžiagos ir spinduliuotės sąveika

### 1.1.1 Netiesinis poliarizuotumas

Kai šviesos elektrinis laukas yra stiprus, tačiau jo lemiamas netiesinio poliarizuotumo priedas yra mažas, galima taikyti trikdinį artinį ir poliarizuotumą skleisti elektrinio lauko stiprio laipsnių eilute [6]:

$$\mathbf{P}(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}(t) + \epsilon_0 \chi^{(2)} \mathbf{E}^2(t) + \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E}^3(t) + \dots \quad (1)$$

Antrosios eilės netiesiniai optiniai reiškiniai vyksta tik medžiagose, neturinčiose simetrijos centro, o kubinio netiesiškumo reiškiniai vyksta visose medžiagose be išimties [6]. Taigi, jeigu nagrinėjamos centrosimetrinės medžiagos, dideliu tikslumu netiesinį poliarizuotumą galima aprašyti apsiribojant trečiosios eilės nariu:

$$\mathbf{P}(t) = \epsilon_0 \chi^{(1)} \mathbf{E}(t) + \epsilon_0 \chi^{(3)} \mathbf{E}^3(t) \quad (2)$$

Lūžio rodiklio priklausomybė nuo intensyvumo šiuo atveju paprastai išreiškiama taip [6]:

$$n = n_0 + n_2 I \quad (3)$$

kur  $n_0$  yra tiesinis, o  $n_2$  – netiesinis lūžio rodikliai:

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

$$n_2 = \frac{3}{4} \frac{\chi^{(3)}}{n_0^2 \epsilon_0 c} \quad (5)$$

Nagrinėjant šviesos impulsus svarbus fazės moduliavimosi reiškinys, kylantis dėl netiesinio lūžio rodiklio. Plokščiosios intensyvumo  $I$  ir kampinio dažnio  $\omega_0$  bangos artinyje galima parodyti, jog dėl netiesiškumo atsiranda indukuotasis fazės pokytis [6]:

$$\delta\phi(z, t) = -\frac{\omega_0}{c} n_2 I(t) z \quad (6)$$

Fazės pokyčio priklausomybė nuo koordinatės  $z$  rodo, kad indukuotas fazės pokytis yra kaupiamasis efektas sklidimo koordinatės atžvilgiu ir priklauso nuo netiesinio lūžio rodiklio ženklo. Be to, žinant, kad bangos dažnis išreiškiamas kaip laikinė fazės išvestinė, impulso fazės moduliacija lems atitinkamą jo dažnio moduliaciją:

$$\delta\omega(z, t) = -\frac{\omega_0}{c} n_2 \frac{\delta I(t)}{\delta t} z \quad (7)$$

### 1.1.2 Netiesinė jonizacija

Dielektrinių medžiagų ir puslaidininkių jonizaciją galima nagrinėti dviem atskirais atvejais: kai fotono energija  $E_f$  yra didesnė arba mažesnė už draustinės juostos tarpą  $\Delta$ . Jei medžiagos draustinės juostos tarpas yra siauras ( $E_f > \Delta$ ) – vyksta tiesinė sugertis, t.y. medžiagai sugėrus vieną fotoną atsiranda skylės ir elektrono pora. Tačiau medžiagose, kurių draustinės juostos tarpas yra platus ( $E_f < \Delta$ ), tiesinė sugertis vykti negali, nes elektrono išlaisvinimui iš atomo neužtenka vieno fotono energijos. Kadangi šiame darbe bus nagrinėjamos dielektrinės plataus draustinės juostos tarpo medžiagos, todėl toliau šiame skyriuje bus plačiau aptarti netiesiniai jonizacijos mechanizmai.

### Daugiafotonė ir tunelinė jonizacija

Jei spinduliuotės elektrinis laukas yra pakankamai stiprus, elektronai gali būti jonizuojami netiesiniais daugiafotonės arba tunelinės jonizacijos mechanizmais [6]. Daugiafotonės jonizacijos metu medžiaga vienu metu sugeria du ar daugiau fotonų, kurių suminės energijos užtenka elektrono išlaisvinimui iš atomo potencialinio lauko. Jei spinduliuotės elektrinis laukas yra itin stiprus, jis taip pat iškreipia atomo potencialinį lauką, o tai sudaro galimybę elektronui lengviau pro jį tuneliuoti į laidumo juostą. Šių abiejų procesų matematiniam aprašymui dažnai yra naudojama Keldysh jonizacijos teorija [7], pagal kurią jonizacijos sparta aprašoma taip:

$$w_K = 2 \cdot \frac{2\omega}{9\pi} \left( \frac{m\omega}{\phi\hbar} \right)^{3/2} Q_K \left[ \gamma, \frac{\Delta_{ef}}{\hbar\omega} \right] \exp \left[ -\pi \left\langle \frac{\Delta_{ef}}{\hbar\omega} + 1 \right\rangle \frac{K(\phi) - E(\phi)}{E(\theta)} \right] \quad (8)$$

kur  $Q_K$  yra lėtai kintanti amplitudė:

$$Q_K(\gamma, x) = \sqrt{\frac{\pi}{2K(\theta)}} \sum_{n=0}^{\infty} \left\{ \exp \left[ -\pi n \frac{K(\phi) - E(\phi)}{E(\theta)} \right] \Phi \left[ \sqrt{\frac{\pi^2(\langle x+1 \rangle - x + n)}{2K(\theta)E(\theta)}} \right] \right\} \quad (9)$$

Čia laužtiniai skliaustai nusako sveikąją skaičiaus dalį,  $\Phi$  yra Dawson integralas,  $K$  ir  $E$  – pilnieji pirmojo ir antrojo tipo eliptiniai integralai, kurių argumentai  $\theta$  ir  $\phi$ :

$$\theta = \frac{1}{\sqrt{1 + \gamma^2}} \quad (10)$$

$$\phi = \frac{\gamma}{\sqrt{1 + \gamma^2}} \quad (11)$$

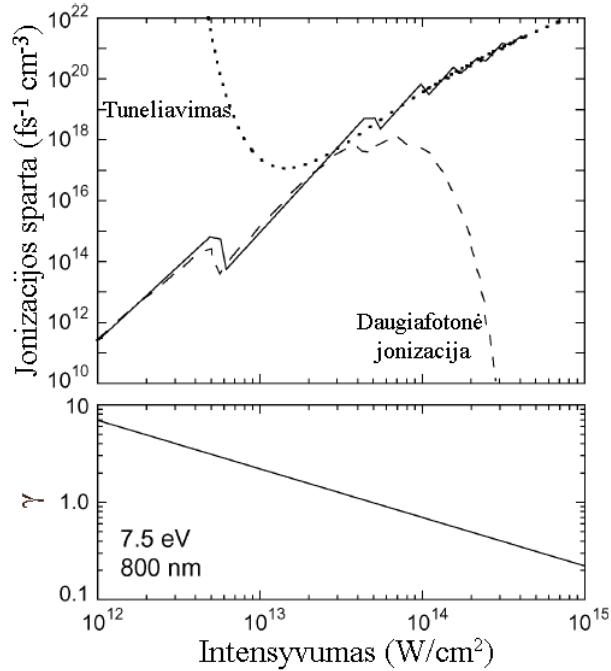
yra išreikšti Keldysh parametru  $\gamma$ :

$$\gamma = \frac{\omega}{e} \sqrt{\frac{c\epsilon_0 n m_{ef} \Delta}{2I}} \quad (12)$$

Čia  $\omega$  yra kampinis lazerio spinduliuotės dažnis,  $I$  – lazerio spinduliuotės intensyvumas,  $n$  – medžiagos lūžio rodiklis,  $m_{ef}$  – elektrono efektinė masė,  $\Delta$  – medžiagos draustinės juostos tarpo plotis,  $e$  – elektrono krūvis,  $c$  – šviesos greitis vakuume,  $\epsilon_0$  – vakuomo dielektrinė skvarba,  $\hbar$  – redukuotoji Planck konstanta.

Jonizacijos spartos lygtyje (8) taip pat yra narys  $\Delta_{ef}$ , kuris nusako elektrinio lauko modifikuotą efektinį draustinės juostos tarpo plotį:

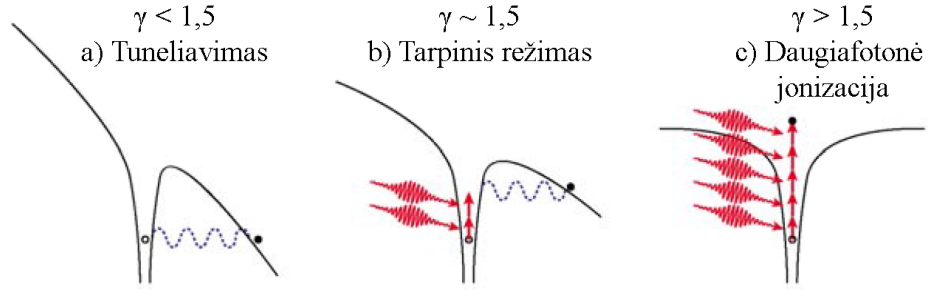
$$\Delta_{ef} = \frac{2\Delta E(\theta)}{\pi\phi} \quad (13)$$



1 pav. Jonizacijos spartos ir Keldysh parametro priklausomybė nuo intensyvumo [8].

Jonizacijos spartos lygtis (8) nuo originaliosios Keldysh lygties [7] skiriasi daugikliu 2, kuris reikalingas siekiant įskaityti elektronų sukinių išsigimimą kietuose kūnuose [9].

Taigi, Keldysh jonizacijos teorija apjungia daugiafotonės ir tunelinės jonizacijos mechanizmus (Pav. 1), o kiekvienos iš jų indėlį nusako atvirkščias intensyvumui dydis – Keldysh parametras  $\gamma$  (Pav. 2). Jei  $\gamma < 1.5$  dominuoja tunelinė jonizacija, jei  $\gamma > 1.5$  – daugiafotonė jonizacija. Jei  $\gamma \approx 1.5$  abiejų mechanizmų indėlis yra panašus.



2 pav. Jonizacijos mechanizmo priklausomybė nuo Keldysh parametro  $\gamma$  [8]: a) dominuoja tunelinė jonizacija, b) vyksta ir tunelinė ir daugiafotonė jonizacija, c) dominuoja daugiafotonė jonizacija.

### Laisvųjų krūvininkų sugertis

Kadangi laidumo juosta yra tolydi, laisvieji medžiagos elektronai, sudarantys elektronų plazmą, gali sugerti lazerio spinduliuotę. Drude dar 1900 m. pasiūlė vis dar plačiai naudojamą modelį laisvųjų elektronų ir elektrinio lauko sąveikos aprašymui [10]. Elektronų sklaidos trukmė dielektrikuose yra 1–100 fs eilės [11]. Pagal šį modelį, laisvųjų krūvininkų ir medžiagos sąveika aprašoma tik elektronų sklaidos trukme  $\tau_D$ , kuri lemia elektronų energijos praradimą. Slopinimas reikalingas, nes realiose medžiagose visuomet vyksta tam tikras energijos praradimas dėl neelastinių sąveikų. Pavyzdžiui, kietuosiuose kūnuose elektronai gali prarasti energiją dėl neelastinių susidūrimų su fononais. Pagal Drude modelį, laisvieji elektronai medžiagoje kuria tokį elektrinį poliarizuotumą  $\mathbf{P}_D$  [11]:

$$\mathbf{P}_D = -\epsilon_0 \frac{\omega_{p,D}^2}{\left(\omega^2 + \frac{i\omega}{\tau_D}\right)} \mathbf{E} = -\epsilon_0 \epsilon_{r,D} \mathbf{E} \quad (14)$$

Čia  $\epsilon_{r,D}$  yra santykinė dielektrinė skvarba,  $\omega_{p,D}$  – rezonansinis plazmos dažnis:

$$\omega_{p,D} = \sqrt{\frac{N_D e^2}{\epsilon_0 m_D}} \quad (15)$$

$N_D$  – laisvųjų elektronų tankis,  $m_D$  – jų efektinė masė,  $e$  – elektrono krūvis,  $\epsilon_0$  – vakuomo dielektrinė skvarba

Kaip matome iš (14) išraiškos, Drude modeliu aprašomos elektronų plazmos kuriama santykinė dielektrinė skvarba yra kompleksinis dydis. Atskyrę realią ir menamą dalis gauname [11]:

$$\text{Re}(\epsilon_{r,D}) = -\frac{\omega_{p,D}^2 \tau_D^2}{1 + \omega^2 \tau_D^2} \quad (16)$$

$$\text{Im}(\epsilon_{r,D}) = \frac{\omega_{p,D}^2 \tau_D}{\omega (1 + \omega^2 \tau_D^2)} \quad (17)$$

Iš realiosios dielektrinės skvarbos dalies matome, jog elektronų plazma kuria neigiamą lūžio

rodiklio pokytį, o iš menamosios – jog elektronų plazma pasižymi ypač didele sugertimi dažniams, mažesniems už plazmos dažnį ( $\omega < \omega_{p,D}$ ) ir yra praktiškai skaidri dažniams, didesniems už plazmos dažnį ( $\omega > \omega_{p,D}$ ).

### Surištųjų krūvininkų sugertis

Surištieji krūvininkai, taip pat kaip ir laisvieji, medžiagoje kuria tam tikrą elektrinį poliarizuotumą. Drude modelis medžiagos aprašymui šiuo atveju jau nebetinkamas, tad jį surištiesiems krūvininkams pritaikė Lorentz, postulodamas, jog jėga tarp surištųjų elektronų ir atomo gali būti aprašoma Hooke dėsnio, o surištieji elektronai charakterizuojami rezonansiniu dažniu  $\omega_L$  bei sklaidos trukme  $\tau_L$ . Kai ši sistema yra veikiamą elektrinio lauko, elektronai yra išvedami iš pusiausvyros padėties ir pradeda harmoniškai svyruoti. Šis krūvio svyravimas sukelia laike kintantį dipolinį momentą, kuris lemia tokią makroskopinio poliarizuotumo priklausomybę [11]:

$$\mathbf{P}_L = \epsilon_0 \frac{\omega_{p,L}^2}{\left(\omega_L^2 - \omega^2 - \frac{i\omega}{\tau_L}\right)} \mathbf{E} = \epsilon_0 \epsilon_{r,L} \mathbf{E} \quad (18)$$

Čia  $\epsilon_{r,L}$  yra santykinė dielektrinė skvarba, o  $\omega_{p,L}$  – plazmos dažnio analogas:

$$\omega_{p,L} = \sqrt{\frac{N_L e^2}{\epsilon_0 m_L}} \quad (19)$$

$N_L$  – surištųjų elektronų tankis,  $m_L$  – efektinė jų masė.

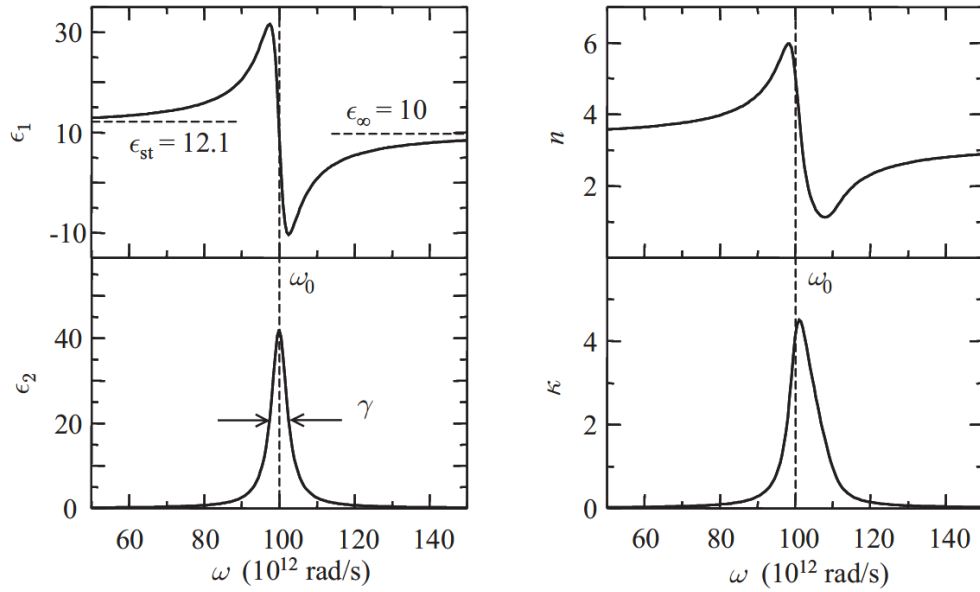
Kaip ir Drude modelio atveju, galime išskirti realią ir menamąją Lorentz modelio santykinės dielektrinės skvarbos dalis [11]:

$$\text{Re}(\epsilon_{r,L}) = \frac{\omega_{p,L}^2 (\omega_L^2 - \omega^2)}{(\omega_L^2 - \omega^2)^2 + \left(\frac{\omega}{\tau_L}\right)^2} \quad (20)$$

$$\text{Im}(\epsilon_{r,L}) = \frac{\omega_{p,L}^2 \frac{\omega}{\tau_L}}{(\omega_L^2 - \omega^2)^2 + \left(\frac{\omega}{\tau_L}\right)^2} \quad (21)$$

Šių dydžių pavyzdinė priklausomybė pateikta 3 pav. Matome, jog ties  $\omega_{p,L}$  stebima sugerties juosta, kurios plotis  $\gamma = \tau_L^{-1}$ . Ties rezonansu taip pat keičiasi realiosios dielektrinės skvarbos dalies ženklas.

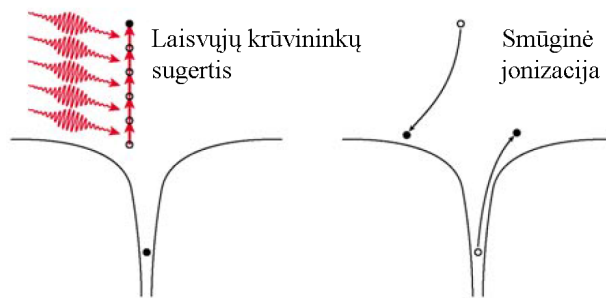




3 pav. Dielektrinės skvarbos realiosios ( $\epsilon_1$ ) ir menamosios ( $\epsilon_2$ ) dalių, bei lūžio rodiklio realiosios ( $n$ ) ir menamosios ( $\kappa$ ) dalių priklausomybė nuo dažnio pagal Lorentz modelį [11]. Čia  $\gamma = \tau_L^{-1}$  yra slopinimo parametras.

### Smūginė jonizacija

Kadangi laisvieji krūvininkai sugeria elektromagnetinę spinduliuotę, elektrono energija gali tapti didesnė už medžiagos draustinės juostos tarpą [9]. Šis elektronas smūginiu būdu gali jonizuoti dar vieną valentinės juostos elektroną – turėsime du elektronus laidumo juostos apačioje (4 pav.) [6]. Kiekvienas iš šių elektronų taip pat sugeria elektromagnetinę spinduliuotę ir gali jonizuoti dar daugiau valentinės juostos elektronų. Gausime griūtinį procesą, kuris tęsis tol, kol elektromagnetinė spinduliuotė bus pakankamai intensyvi.



4 pav. Smūginės jonizacijos mechanizmas [8].

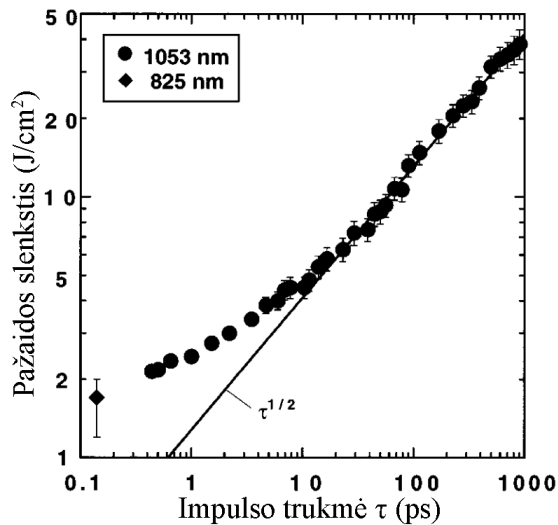
Svarbu pastebėti, jog žymiai griūtinėi jonizacijai reikalingas tam tikras pradinis elektronų tankis, kuris gali būti sukuriamas daugiafotonės ar tunelinės jonizacijos metu [2].

## 1.2 Optinė medžiagų pažeida ultratrumpaisiais lazerio impulsais

Intensyvi lazerio spinduliuotė sąveikaudama su optiniais elementais gali juos pažeisti. Optinė pažeida – tai bet koks negrįžtamas lazerio spinduliuotės sukeltas tiriamo objekto charakteristikų pokytis [12]. Šiame skyrelyje bus plačiau aptarta optinė medžiagų pažeida femtosekundiniais lazerio impulsais.

### 1.2.1 Pažeidos mechanizmas

Lazeriu sukelta skaidrių dielektrinių medžiagų pažeida išlieka aktyviu diskusijų objektu nuo pat galingų lazerinių sistemų vystymo pradžios. Šiuo metu gerai žinoma, kad eksponuojant medžiagą impulsais, kurių trukmė didesnė už 10 ps, pažeidos slenkstis yra proporcingas kvadratinei šakniai iš impulso trukmės (5 pav.), o pažeida vyksta dėl medžiagos kaitimo lazerio impulso metu [2]. Tačiau ultratrumpiesiems impulsams ( $< 10$  ps) šis dėsnis nustoja galiojės [2]. Tikrieji procesai, lemiantys femtosekundiniais impulsais sukeltą dielektrinį pramušimą ir abliaciją vis dar nėra žinomi. Tarp pasiūlytų mechanizmų yra elektronų plazmos susidarymas [13] ir Kuloninis sproginimas [14]. Šiuos fizikinius vyksmus lemia medžiagos jonizacija bei sugertos energijos kiekis.



5 pav. Lazeriu sukulto pažeidos slenkščio priklausomybė nuo impulso trukmės lydytam kvarcui [2].

Femtosekundiniame režime sugertis vyksta daug greičiau negu energijos perdavimas gardelei – elektronai kaista daug greičiau, negu atvėsta prarasdami energiją fononų sklaidos mechanizmais [9]. Todėl tradiciškai medžiagos pažeidos mechanizmas yra grindžiamas elektronų tankio augimu dėl daugiafotonės, tunelinės ir griūtinės jonizacijos, kol pasiekiami kritinė jo vertė (plazmos dažnis pasidaro lygus spinduliuotės dažniui) [8]. Kritinio tankio plazma stipriai sugeria lazerio spinduliuotę, kol pasiekia pakankamą tankį, jog pradėtų ją atspindėti. Impulsui jau praėjus, plazmos energija yra perduodama gardelei [9]. Šis smūginis energijos perdavimas (daug

trumpesnis už terminės difuzijos trukmę) lemia milžinišką lokalizuotą temperatūros padidėjimą ir sukelia struktūrinius pakitimus arba medžiagos abliaciją [8].

Tačiau klasikinis pažaidos mechanizmo modelis nepaaiškina akumuliacinių pažaidos efektų – veikiant medžiagą pasikartojančiais lazerio impulsais, jos pažaidos lazerio spinduliuote slenkstis mažėja [15]. Žadinimo-zondavimo eksperimentai parodė, jog be elektronų plazmos svarbią įtaką medžiagos pažaidai lazerio spinduliuote daro ir eksitonai, bei jų kuriami defektai [16].

## **Eksitonai**

Bendruoju atveju, kietųjų kūnų sugerta elektromagnetinė spinduliuotė yra paverčiama elementariaisiais sužadanimais – elektronų ir skylių poromis, kurios gali sudaryti Coulomb jėga susietus, elektriškai neutralius skylės ir elektrono darinius – eksitonus [9]. Eksitonai, pagal savo ryšio energiją, dažnai yra skirstomi į dvi grupes: silpnai surištus Wannier-Mott eksitonus (tipinė ryšio energija 0,001 eV) ir stipriai surištus Frenkelio eksitonus (tipinė ryšio energija 0,1–1 eV) [17]. Elektronai, skylės ir eksitonai relaksuoja ir praranda energiją nelokalizuotais ir lokalizuotais krūvininkų-gardelės sąveikos mechanizmais [17]. Kai kuriose dielektrinėse medžiagose svarbiausias relaksacijos mechanizmas yra elektronų ir skylių energijos lokalizavimas, kuris sukuria savaime pagautuosius krūvininkus, ypač savaime pagautuosius eksitonus, kurių energijos pakanka lokalizuotam gardelės persiskirstymui ir defektų generacijai [17].

## **Savaime pagautieji eksitonai**

Eksitonų rekombinacija yra nestabili: jie gali relaksuoti tiek lokalizuotais, tiek nelokalizuotais kanalais. Dielektrikuose lokalizuota relaksacija susidarant savaime pagautiems eksitonams yra daug tikėtinė [17]. Savaiminė pagava – tai lokalizacija gardelės vietoje, kurioje iki tol nebuvo jokių defektų (vakansijų ar priemaišų). Terminė fliktuacija ir maži medžiagos gardelės netobulumai gali sukurti pakankamą potencinio barjero deformaciją, kad joje būtų įkalintas krūvininkas [17]. Savaime pagautųjų eksitonų nagrinėjimas dielektrikuose yra svarbus dėl to, kad jie yra pagrindinis mechanizmas elektroniniams sužadanimams paversti energetiniais atominiais procesais, tokiais kaip defektų formavimasis. Pirmieji savaime pagautųjų eksitonų formavimąsi SiO<sub>2</sub> eksperimentiškai stebėjo Tanimura ir kt. [18].

Egzistuoja keli eksitonų pagavos mechanizmai medžiagą veikiant lazerio spinduliuote. Eksitonų pagava gali vykti arba tiesiogiai iš jonizuotos elektrono ir skylės poros, arba per savaiminę skylės pagavą, kuri tik po to pagauna laisvąjį elektroną [16]. Nuo to kaip vyksta eksitono pagava priklauso laikinė sugerties charakteristika. Jeigu eksitonai formuojasi tiesiogiai, laikinė charakteristika nepriklauso nuo intensyvumo ir eksitonų pagavos trukmė yra pastovi [16]. Jeigu eksitonų formavimasis vyksta per tarpinę skylių pagavą, eksitonų pagavos trukmė priklauso nuo intensyvumo – jam didėjant pagavos trukmė trumpėja [16]. Tiesioginė eksitonų pagava vyksta oksiduose (pavyzdžiui, SiO<sub>2</sub>), o tarpinė – šarminiuose haliduose, tokiuose kaip NaCl [16].

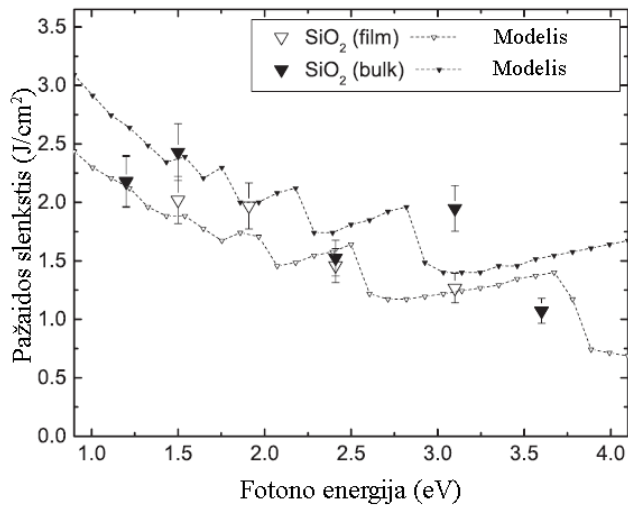
Buvo parodyta, jog  $\text{SiO}_2$  sugerties laikinė charakteristika [19] sutampa su savaime pagautų eksitonų atsiradimo laikine charakteristika, o pagavos trukmė yra apie 150 fs [16]. Savaime pagautieji eksitonai rekombinuodami liuminescuoja, o jų liuminiscencijos spektrai gali būti tiriami laikinės skyros spektroskopija. Savaime pagautųjų eksitonų liuminiscencijos spektro maksimumai  $\text{SiO}_2$  buvo stebimi ties 5,2 eV ir 4,2 eV [20], o plonasluoksnėse  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  dangose ties 2,25 eV [21].

## Defektai

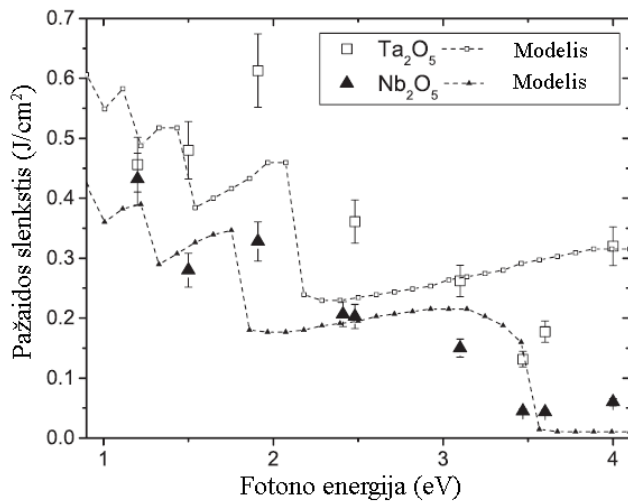
Kaip jau buvo minėta anksčiau, savaime pagautieji eksitonai yra vienas pagrindinių būdų elektroninius sužadinimus paversti energetiniais atominiais procesais, tokiais kaip defektų formavimasis [15]. Šarminiuose haliduose savaime pagautieji eksitonai izomeriškai transformuojasi į Frenkelio defektų poras, sudarytas iš F-centrų (spalvinių centrų) – halogeno vakansijų, kurias užpildo elektronas, ir H-centrų – tarpgardelinių halogenų jonų, skylėmis susietų su gardelės halogenų jonais [17]. Oksiduose iš savaime pagautųjų eksitonų taip pat formuojasi gardelės defektai, tokie kaip E'-centrai – deguonies vakansijos su pagautomis skylėmis ant vieno iš gretimų silicio atomų, ir nesijungiantieji deguonies-skylės centrai (angl. *non-bridging oxygen-hole centers* – *NBOHC*) [17]. Šie defektai toliau gali evoliucionuoti sudarydami peroksidines jungtis ar radikalus [17]. Gardelėje susidarę defektai sukuria papildomas sugerties juostas, analogiškas gardelės priemaišoms [15]. Jeigu relaksuojančių savaime pagautų eksitonų skaičius yra pakankamai didelis, formuojasi defektų klasteriai, kurie gali sukelti makroskopinę gardelės pažaidą. Dėl defektų greitai didėjantis lokalusis tūris taip pat gali sukelti smūgines bangas, kurios taip pat pažeidžia gardelę [15].

### 1.2.2 Pažaidos priklausomybė nuo bangos ilgio

Kadangi skaidrių dielektrinių medžiagų pažaida femtosekundiniame režime prasideda nuo daugiafotonės jonizacijos, natūralu tikėtis, jog pažaidos lazerio spinduliuote slenkstis priklausys nuo lazerio spinduliuotės bangos ilgio. Kintant bangos ilgiui, šuoliškai keičiasi daugiafotonės jonizacijos eilė. Kaip matome iš 1 pav., kuo mažesnė daugiafotonės jonizacijos eilė, tuo didesnė tokios jonizacijos tikimybė. Gallais ir kt. atliko išsamų dielektrinių medžiagų pažaidos lazerio spinduliuote slenkščio tyrimą 300–1000 nm bangos ilgių srityje su 100 fs trukmės lazerio impulsais [4]. Šiam darbui aktualių medžiagų ( $\text{SiO}_2$  ir  $\text{Ta}_2\text{O}_5$ ) priklausomybės pateiktos 6–7 pav.



6 pav. SiO<sub>2</sub> pažaigos lazerio spinduliuote slenkščio priklausomybė nuo fotono energijos 100 fs trukmės lazerio impulsams [4].



7 pav. Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> pažaigos lazerio spinduliuote slenkščio priklausomybė nuo fotono energijos 100 fs trukmės lazerio impulsams [4].

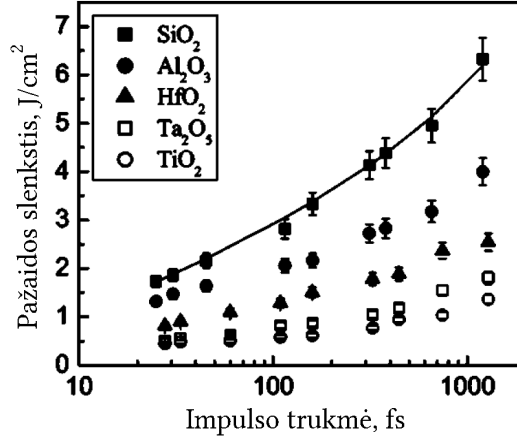
Kaip matome, abiejų medžiagų PLSS mažėja, didėjant fotono energijai, tačiau matomi šuoliai, kurie atsiranda dėl daugiafotonės jonizacijos eilės kitimo.

### 1.2.3 Pažaigos priklausomybė nuo impulso trukmės

Yra nemažai bandymų atlikti sisteminius PLSS tyrimus nuo lazerio impulso trukmės ir rasti bent empirines išraiškas PLSS nustatymui [3]. Vienas tokių tyrimų optinėms dangoms yra pateiktas 8 pav. Jo metu nustatyta empirinė PLSS priklausomybė nuo impulso trukmės (20 fs - 2 ps ribose):

$$F_{PLSS} = (-0.16 + 0.074E_{gap})\tau^\kappa \quad (22)$$

Čia  $E_{gap}$  yra medžiagos draustinės juostos tarpas (eV),  $\tau$  – impulso trukmė (fs), o  $\kappa$  – laipsninis parametras, kurio vertės įvairioms medžiagoms yra pateiktos 1 lentelėje. Matyti, jog parametras  $\kappa$  praktiškai nepriklauso nuo medžiagos draustinės juostos tarpo ir tirtoms medžiagoms yra  $\kappa = 0.33 \pm 0.03$ .



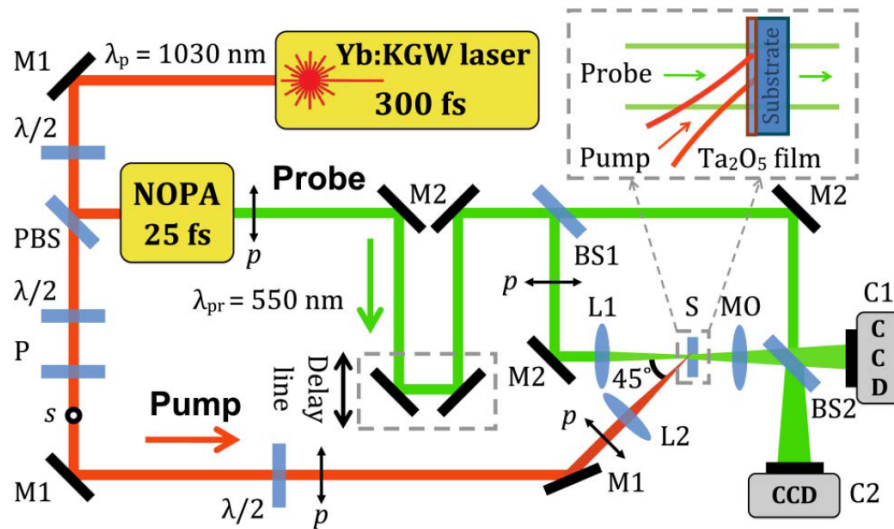
8 pav. Optinių dangų pažaidos lazerio spinduliuote slenkščio priklausomybė nuo impulso trukmės [3].

1 lentelė. Laipsninio parametro  $\kappa$  vertės įvairioms medžiagoms [3].

Medžiaga	$E_{gap}$ , eV	$\kappa$
TiO <sub>2</sub>	3.3	$0.28 \pm 0.02$
Ta <sub>2</sub> O <sub>5</sub>	3.8	$0.33 \pm 0.02$
HfO <sub>2</sub>	5.1	$0.30 \pm 0.01$
Al <sub>2</sub> O <sub>3</sub>	6.5	$0.27 \pm 0.01$
SiO <sub>2</sub>	8.3	$0.33 \pm 0.01$

### 1.3 Pažaidos lazerio spinduliuote tyrimas ultrasparčiąja holografija

Pažaidos lazerio spinduliuote tyrimams pastaruoju metu pradėta naudoti ultrasparčioji holografija [22]. Ultrasparčiosios holografijos žadinimo-zondavimo eksperimento metu gaunami santykinio pralaidumo ir faziniai vaizdai tiek su laikine, tiek su erdvine skyra. Šis metodas puikiai tinka fizikinių procesų tyrimams tiek prieš susidarant pažeidimai, tiek ir jos metu. Pavyzdinė ultrasparčiosios holografijos schema pateikta 9 pav.

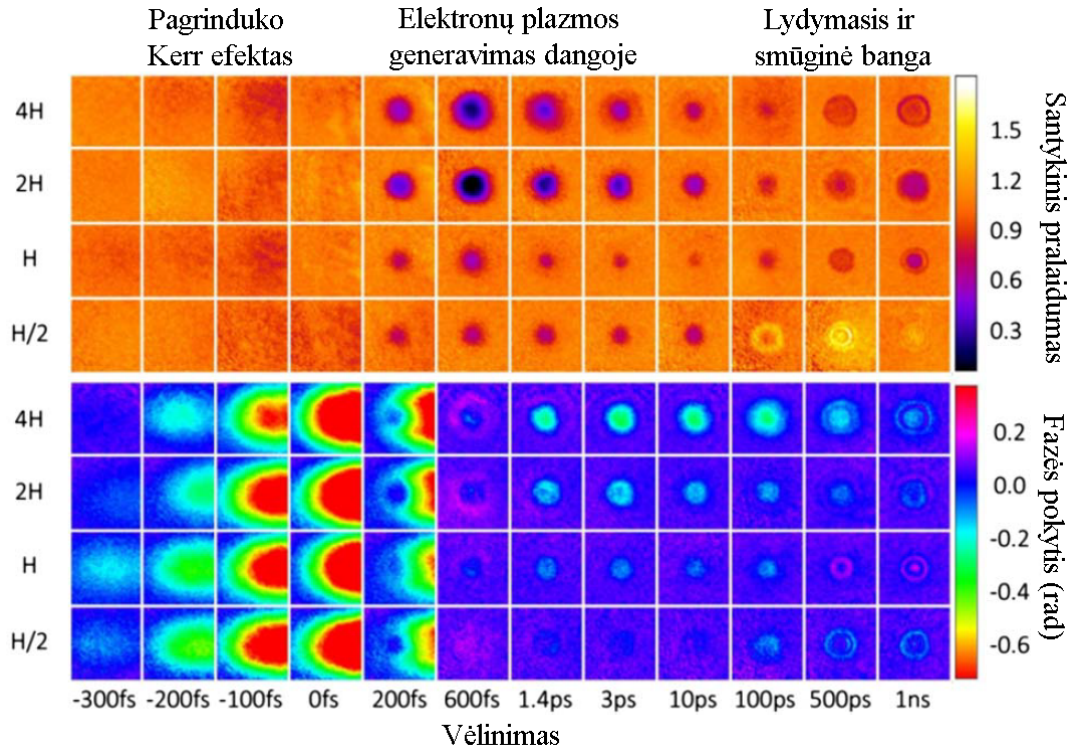


9 pav. Ultrasparčiosios holografinės mikroskopijos schema pažaidos lazerio spinduliuote tyrimui [22]

Matavimo metu lazerio impulsai (1030 nm, 300 fs) padalinami į dvi dalis. Viena dalis – žadinantysis impulsas, fokusuojamas į bandinį 45 laipsnių kampu. Kita dalis nekolinearaus optinio parametrinio stiprintuvo pagalba yra suspaudžiama iki 25 fs su 550 nm centriniu bangos ilgiu ir padalinama į atraminį ir zonduojantį impulsus. Taip gaunamas daugiau nei 10 kartų santykis tarp žadinančiojo ir zonduojančiojo impulsų trukmių.

Zonduojantis impulsas krenta statmenai į bandinį su tam tikru vėlinimu žadinančio impulso atveju, o už bandinio yra surenkamas mikroskopo objektyvu ir interferuodamas su atraminium impulsu ant CCD kameros (C1) sukuria hologramą. Taip pat naudojama papildoma CCD kamera (C2) amplitudiniam vaizdui gauti. Atstatę hologramą gauname fazinį vaizdą su erdvine skyra. Šiuo metodu gauti santykinio pralaidumo ir fazės pokyčio vaizdai skirtingo storio Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> dangoms pateikti 10 pav.

Matome, jog gali būti identifikuoti mažiausiai trys skirtingi procesai. Iki 200 fs amplitudiniame vaizde nematome jokio pokyčio, kai tuo tarpu faziniame vaizde stebimas Kerr efektas bandinio pagrindu. Ties 200 fs stebime stiprų pralaidumo sumažėjimą ir neigiamą fazės pokytį, kuriuos sukelia elektronų plazma. Ties 200 ps stebimi žiedo formos pokyčiai tiek amplitudiniame, tiek faziniame vaizduose yra sukelti smūginės bangos, kuri susidaro elektronams perdavus energiją gardelei [22].



10 pav. Ultrasparčiosios holografijos metu gauti santykinio pralaidumo ir fazės pokyčio vaizdai skirtingo storio Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> dangoms. [22]

## 1.4 Pažaidos ultratrumpais lazerio impulsais modeliavimas

### 1.4.1 Griūtinė jonizacija

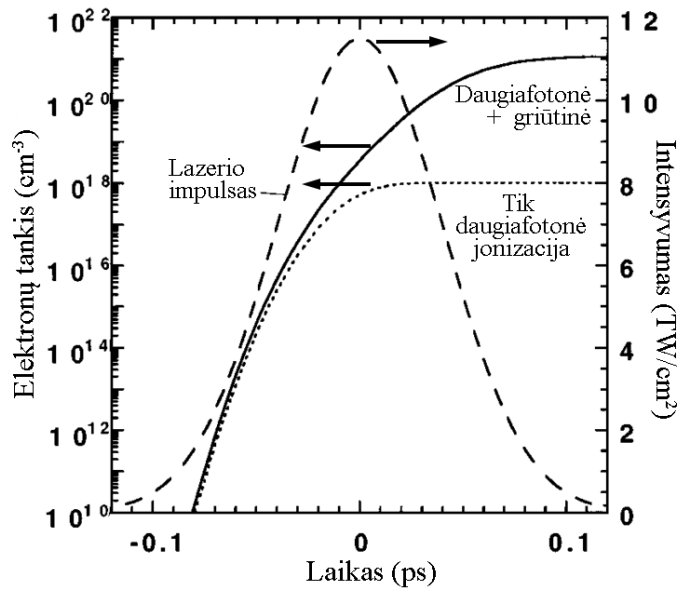
Pažaidą ultratrumpaisiais lazerio impulsais bandoma modeliuoti jau daugiau nei 40 metų. Dar 1974 m. Bloembergen pasiūlė naudoti spartos lygtis su daugiafotonės jonizacijos ir tiesiniu griūtinės jonizacijos nariu, proporcingu elektronų tankiui laidumo juostoje [13]:

$$w_{gr} = \alpha I(t)N(t) \quad (23)$$

Čia  $w_{gr}$  – smūginės jonizacijos metu generuojamų elektronų sparta,  $\alpha$  – griūtinės jonizacijos koeficientas,  $I$  – spinduliuotės intensyvumas,  $N_{CB}$  – laidumo juostos elektronų tankis.

Bloembergen teigė, jog daugiafotonės jonizacijos metu sugeneruotų elektronų neužtenka medžiagai pažeisti, tačiau jie yra tarsi užkratas smūginei jonizacijai, kuri veda prie pažaidos. Vėliau šį modelį praplėtė Stuart ir kt. (11 pav.), jį papildydami Fokker-Planck lygtimi elektronų pasiskirstymo aprašymui [2]. Jiems pavyko parodyti, jog šis modelis gerai aprašo abliacijos slenkščio priklausomybę nuo impulso trukmės iki 10 ps. Spartos lygtį pilnu Keldysh formalizmu ne tik daugiafotonės bet ir tunelinės jonizacijos aprašymui papildė Tien ir kt. [23].

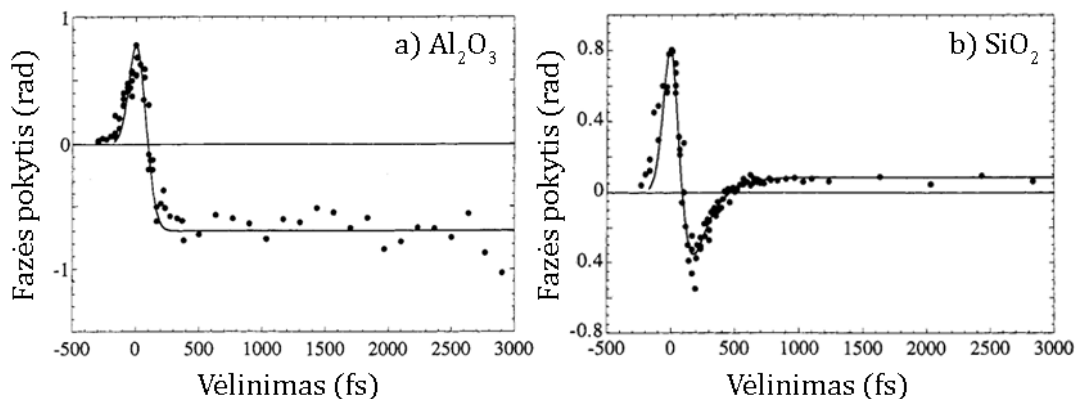




11 pav. Daugiafotonės ir griūtinės jonizacijos indėlis į elektronų tankį laidumo juostoje, veikiant medžiagą Gauso formos impulsu [2].

#### 1.4.2 Tarpiniai lygmenys

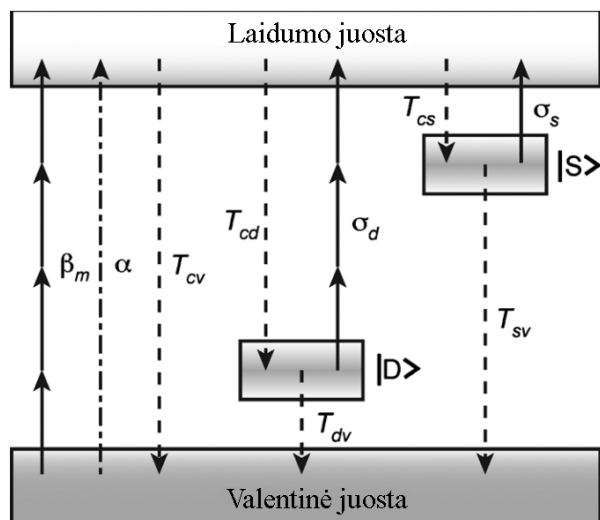
Spektrinės interferometrijos matavimai su laikine skyra leido pamatyti skirtumus tarp krūvininkų dinamikos  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ir  $\text{SiO}_2$  [24].  $\text{Al}_2\text{O}_3$  buvo stebimas fazės pokytis dėl momentinio Kerr efekto ir priešingas fazės pokytis dėl sugeneruotos elektronų plazmos (12 pav. a). Tačiau  $\text{SiO}_2$  buvo stebima greita krūvininkų relaksacija į tarpinius lygmenis (12 pav. b). Šių duomenų paaiškinimui spartos lygtys buvo papildytos pagavos nariu.



12 pav. Zonduojančiojo impulso fazės pokytis  $\text{Al}_2\text{O}_3$  ir  $\text{SiO}_2$  medžiagoms gautas spektrinės interferometrijos būdu [24].

Vėlesni bandymai rėmėsi eksperimentais, kuriais nustatyta, jog lazerio sukeltas pažaidos slenkstis nekinta gana plačiame impulsų pasikartojimo dažnių intervale (1-1000 Hz) [21], tačiau mažėja daugelio impulsų atveju, kol pasiekia tam tikrą pastovią vertę [21, 25]. Šie faktai

leido daryti prielaidą, jog egzistuoja akumuliacinę medžiagų pažaidą lemiantys tarpiniai lygmenys [25]. Modeliai su tarpiniais lygmenimis, kurie vaizduoja savaime pagautuosius eksitonus ar jų sukurtus medžiagos defektus, gana tiksliai paaškina lazeriu sukeltą pažaidą daugelio impulsų atveju [16, 21, 25, 26], nes šie lygmenys ne tik tampa pradiniu elektronų šaltiniu tolimesnių impulsų griūtinei jonizacijai, bet ir patys įvairiais reklasacijos mechanizmais gali kurti gardelės defektus [17]. Pavyzdinė lygmenų diagrama pažaidos lazerio spinduliuote modeliavimui pateikta 13 pav. Jos pagrindą sudaro laidumo juosta bei lygmenys draustinėje juostoje, kurie skirstomi į sekliuosius bei giliuosius pagal jonizacijos mechanizmą (seklieji jonizuojami tiesiškai, o giliai – daugiafotonės jonizacijos būdu). Pasirinktam kiekiui lygmenų yra užrašoma spartos lygčių sistema, įskaitanti daugiafotonę ir tunelinę valentinės juostos elektronų jonizaciją, laidumo juostos elektronų relaksaciją į tarpinius lygmenis, šių lygmenų pakartotinę jonizaciją, ar relaksaciją į valentinę juostą. Šios lygtys dažniausiai sprendžiamos skaitmeniškai.



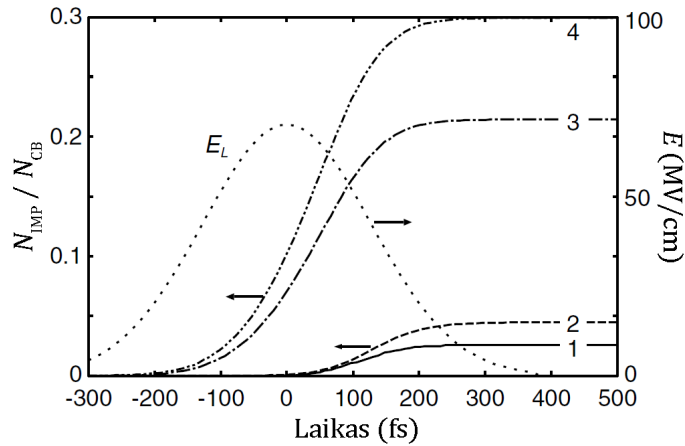
13 pav. Apibendrinta energinių lygmenų diagrama krūvininkų dinamikos modeliavimui [25].

### 1.4.3 Daugelio spartos lygčių modelis

Svarbų indėlį į pažaidos ultratrumpais lazerio impulsais modeliavimą inėšė Kaiser ir kt. [27]. Jie pasiūlė daug fundamentalesnį metodą krūvininkų dinamikos aprašymui, parentą Boltzmann lygtimis. Jie pademonstravo, jog griūtinės jonizacijos priklausomybė nuo elektronų tankio laidumo juostoje nėra tiesinė ir kad griūtinė jonizacija  $\text{SiO}_2$  tampa svarbi medžiagos pažaidos kontekste tik eksponuojant ilgesniais nei 100 fs trukmės lazerio impulsais.

Taikant standartinę aproksimaciją nėra atsižvelgiama į tai, jog smūginio būdu kitus elektronus gali jonizuoti tik didelės energijos laidumo juostos elektronai. Siekdama įskaityti šį netiesiškumą ir atkartoti [27] rezultatus skaitmeniškai paprastesniu modeliu, Rethfeld pasiūlė naudoti daugelio spartos lygčių (angl. *multiple rate equations* – MRE) modelį laidumo juostos elektronų modeliavimui [28]. Kaip matome 14 pav., MRE modelis (1 kreivė) gana tiksliai atkartoja ki-

netinėmis lygtimis gautą sprendinį (2 kreivė), kai tuo tarpu standartiniai vienos spartos lygties modeliai (3-4 kreivės) pervertina smūginės jonizacijos indėlį.



14 pav. Smūginės jonizacijos metu sukurtų elektronų  $N_{IMP}$  santykis su visais laidumo juostos elektronais  $N_{CB}$  300 fs trukmės lazerio impulsui, kurio maksimalus elektrinio lauko stipris  $E = 70$  MV/cm [28]. 1 - daugelio spartos lygčių MRE modelis [28], 2 - kinetinis Boltzmann lygtimis paremtas modelis [27], 3 - vienos spartos lygties modelis su asimptotiniu griūties koeficientu gautu iš MRE modelio, 4 - vienos spartos lygties modelis su standartiniu griūties koeficientu.

#### 1.4.4 Interferencinis laukas dangose

Literatūroje pasigendama korektiško optinių dangų pažaidos fizikinio modeliavimo. Dažniausiai modeliuojama neatsižvelgiant į erdvinę dangų struktūrą ir interferencinius efektus tiesiog modeliuojant intensyvumo gaubtinę [21]. Taip pat yra bandymų naudoti analitinį pralaidumo matricių metodą [29] stovinčiosios bangos laukui nustatyti, tačiau jis negali būti taikomas itin trumpų impulsų atveju, bei modeliuojant itin dinamiškus pažaidos mechanizmus.

## 2 Tyrimo metodai

### 2.1 Medžiagos atsako modeliavimas

#### 2.1.1 Efektinė dielektrinė skvarba

Medžiagos atsako modelyje įskaitysime netiesinį Kerr efektą bei laidumo juostos elektronų plazmos ir savaime pagautųjų eksitonų kuriamus poliarizuotumus. Tuomet elektrinę slinktį  $\mathbf{D}$  galima užrašyti taip:

$$\mathbf{D} = \epsilon_0 \epsilon_r^{(1)} \mathbf{E} + \mathbf{P} \quad (24)$$

kur  $\epsilon_r^{(1)}$  yra santykinė tiesinė dielektrinė skvarba:

$$\epsilon_r^{(1)} = 1 + \chi^{(1)} \quad (25)$$

o  $\mathbf{P}$  – elektrinis poliarizuotumas, sudarytas iš netiesinio Kerr atsako, laidumo juostos elektronų plazmos atsako pagal Drude modelį (14) ir savaime pagautųjų eksitonų atsako pagal Lorentz modelį (18):

$$\mathbf{P} = \mathbf{P}_K + \mathbf{P}_{CB} + \mathbf{P}_{STE} \quad (26)$$

Tuomet elektrinę slinktį galime perrašyti taip:

$$\begin{aligned} \mathbf{D} &= \epsilon_0 \epsilon_r^{(1)} \mathbf{E} + \mathbf{P}_K + \mathbf{P}_{CB} + \mathbf{P}_{STE} \\ &= \epsilon_0 \left( \epsilon_r^{(1)} + \chi^{(3)} |\mathbf{E}|^2 - \frac{\omega_{p,CB}^2}{\omega^2 + \frac{i\omega}{\tau_{CB}}} + \frac{\omega_{p,STE}^2}{\omega_{STE}^2 - \omega^2 - \frac{i\omega}{\tau_{STE}}} \right) \mathbf{E} \\ &= \epsilon_0 \epsilon_r \mathbf{E} \end{aligned} \quad (27)$$

Taigi, santykinė dielektrinė skvarba:

$$\epsilon_r = \epsilon_r^{(1)} + \chi^{(3)} |\mathbf{E}|^2 - \frac{\omega_{p,CB}^2}{\omega^2 + \frac{i\omega}{\tau_{CB}}} + \frac{\omega_{p,STE}^2}{\omega_{STE}^2 - \omega^2 - \frac{i\omega}{\tau_{STE}}} \quad (28)$$

Galime išreikšti dielektrinės skvarbos realią ir menamąją dalis:

$$\epsilon_r = \text{Re}(\epsilon_r) + i\text{Im}(\epsilon_r) = \text{Re}(\epsilon_r) + i \frac{\sigma}{\epsilon_0 \omega} \quad (29)$$

$$\text{Re}(\epsilon_r) = \epsilon_r^{(1)} + \chi^{(3)} |\mathbf{E}|^2 - \frac{\omega_{p,CB}^2 \tau_{CB}^2}{1 + \omega^2 \tau_{CB}^2} + \frac{\omega_{p,STE}^2 (\omega_{STE}^2 - \omega^2)}{(\omega_{STE}^2 - \omega^2)^2 + \left(\frac{\omega}{\tau_{STE}}\right)^2} \quad (30)$$

$$\text{Im}(\epsilon_r) = \frac{\omega_p^2 \tau_{CB}}{\omega(1 + \omega^2 \tau_{CB}^2)} + \frac{f_{osc} \omega_p^2 \tau_{STE} \frac{\omega}{\tau_{STE}}}{(\omega_{STE}^2 - \omega^2)^2 + \left(\frac{\omega}{\tau_{STE}}\right)^2} \quad (31)$$

### 2.1.2 Laisvųjų krūvininkų ir eksitonų generavimo spartos

Pažymėję elektronų tankį –  $N_{CB}$ , savaime pagautųjų eksitonų tankį –  $N_{STE}$ , galime užrašyti krūvininkų dinamikos spartos lygčių sistemą:

$$\frac{\partial N_{CB}}{\partial t} = w_K(I) + w_{gr}(I, N_{CB}) - w_{CB \rightarrow STE}(N_{CB}) - w_{CB \rightarrow VB}(N_{CB}) \quad (32)$$

$$\frac{\partial N_{STE}}{\partial t} = w_{CB \rightarrow STE}(N_{CB}, N_{STE}) - w_{STE \rightarrow VB}(N_{STE}) \quad (33)$$

čia  $w_K$  – Keldysho jonizacijos sparta (8),  $w_{gr}$  – griūtinės jonizacijos sparta (23), o  $w_{CB \rightarrow STE}$ ,  $w_{CB \rightarrow VB}$  ir  $w_{STE \rightarrow VB}$  – relaksaciniai nariai:

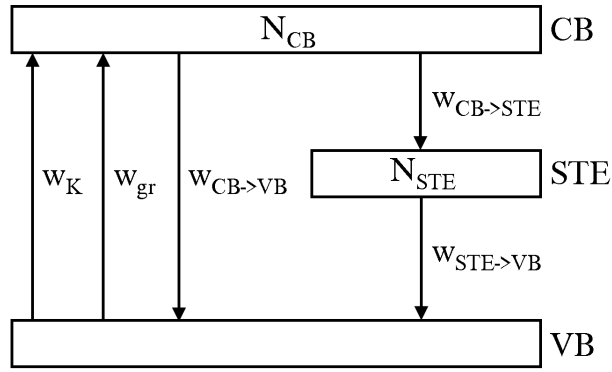
$$w_{CB \rightarrow STE}(N_{CB}) = \frac{N_{CB}}{\tau_{CB \rightarrow STE}} \left(1 - \frac{N_{STE}}{N_{STE, max}}\right) \quad (34)$$

$$w_{CB \rightarrow VB}(N_{CB}) = \frac{N_{CB}}{\tau_{CB \rightarrow VB}} \quad (35)$$

$$w_{STE \rightarrow VB}(N_{STE}) = \frac{N_{STE}}{\tau_{STE \rightarrow VB}} \quad (36)$$

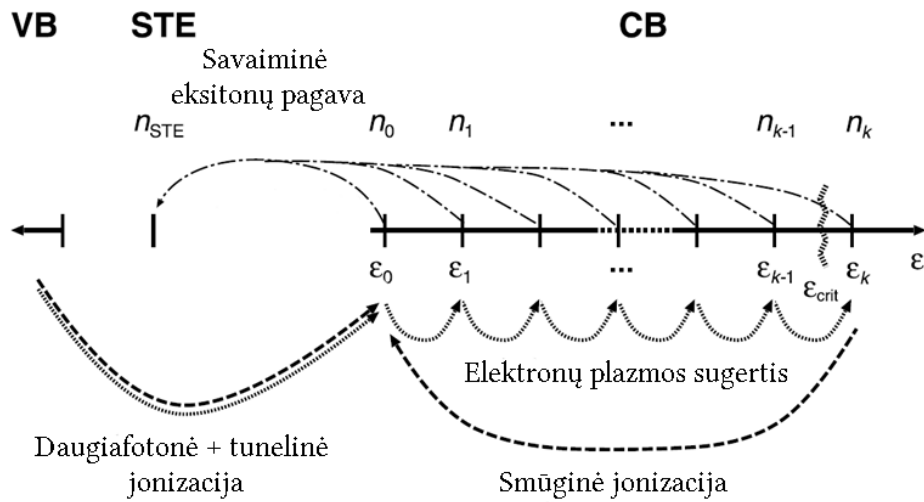
Relaksacinių procesų charakteringosios trukmės pažymėtos  $\tau_{CB \rightarrow STE}$ ,  $\tau_{CB \rightarrow VB}$  ir  $\tau_{STE \rightarrow VB}$ , o maksimalus savaime pagautųjų eksitonų tankis –  $N_{STE, max}$ . Maksimali pagautųjų eksitonų tankio vertė reikalinga norint įskaityti pagavos sotį. Grafinė spartos lygčių schema pateikta 15 pav.

Kadangi šis modelis bus naudojamas tik vieno impulso atveju, į savaime pagautųjų eksitonų jonizaciją nebus atsižvelgiama, nes didžioji jų dauguma susidaro impulsui jau praėjus pro medžiagą.



15 pav. Krūvininkų dinamikos modelio spartos lygčių grafinė schema.

### 2.1.3 Daugelio spartos lygčių modelis laidumo juostos elektronams



16 pav. Daugelio spartos lygčių laidumo juostos elektronams modelio schema.

Daugelio spartos lygčių modelis laidumo juostos elektronams yra įvedamas laidumo juostos spartos lygtį (32) pakeičiant  $k$  surištųjų spartos lygčių [28] bei įvedant griūties koeficientą  $\alpha$ :

$$\begin{aligned}
 \frac{\partial N_0}{\partial t} &= w_K(I) + 2\alpha N_k - w_{pht}N_0 - w_{CB \rightarrow STE}(N_{CB}) \\
 \frac{\partial N_1}{\partial t} &= w_{pht}N_0 - w_{pht}N_1 - w_{CB \rightarrow STE}(N_{CB}) \\
 &\dots \\
 \frac{\partial N_{k-1}}{\partial t} &= w_{pht}N_{k-2} - w_{pht}N_{k-1} - w_{CB \rightarrow STE}(N_{CB}) \\
 \frac{\partial N_k}{\partial t} &= w_{pht}N_{k-1} - \alpha N_k - w_{CB \rightarrow STE}(N_{CB})
 \end{aligned} \tag{37}$$

Lygčių skaičių galima apskaičiuoti įvertinus kritinę energiją, kurią viršijęs laidumo juostos elektronas gali smūginiu būdu jonizuoti valentinės juostos elektroną. Ji susideda iš draustinės

juostos tarpo  $E_{gap}$  bei valentinės juostos elektrono osciliacijos energijos  $\langle \epsilon_{osc} \rangle$ , kurią jis įgyja elektriniame lauke [28]:

$$\epsilon_{crit} = \left( 1 + \frac{\mu}{m_{VB}} \right) (E_{gap} + \langle \epsilon_{osc} \rangle) \quad (38)$$

Čia  $\mu$  yra redukuota elektrono masė, o  $m_{VB}$  valentinės juostos elektrono masė. Vidutinė osciliavimo energija išreiškiama taip:

$$\langle \epsilon_{osc} \rangle = \frac{e^2 E^2}{4\mu\omega^2} \quad (39)$$

Tuomet MRE lygčių skaičių gauname kritinę energiją padalinę iš fotono energijos:

$$k = \left\lceil \frac{\epsilon_{crit}}{\hbar\omega} \right\rceil \quad (40)$$

Vieno fotono sugerties tikimybė  $w_{pht}$  apskaičiuojama naudojant asimptotinę griūties parametro vertę [30] ir priklauso vieno elektrono laidumo  $\sigma_e$ , kuris gaunamas iš Drude modelio [4]:

$$w_{pht} = \frac{\sigma_e}{\ln(2)\epsilon_{crit}} \frac{1}{\sqrt[k]{2} - 1} I \quad (41)$$

Pagrindinis skirtumas tarp vienos spartos lygties ir MRE sistemos yra tas, jog griūtinė jonizacija MRE atveju priklauso tik nuo aukščiausiojo lygmens užpildos, o ne nuo viso elektronų tankio. Tai lemia mažesnę griūtinės jonizacijos santykį su netiesine jonizacija, kuris, kaip buvo pademonstruota [28], tiksliau aprašo elektronų plazmos kūrimąsi.

#### 2.1.4 Pažaidos lazerio spinduliuote kriterijai

Tiriant lazerinę pažaidą spartos lygčių metodais ir modeliuojant laidumo juostos elektronų tankius, dažnai nesutariama, ką laikyti pažaidos kriterijumi. Istoriskai juo laikomas kritinis elektronų tankis, ties kuriuo elektronų plazmos dažnis sutampa su lazerio dažniu [2], tačiau vis dažniau kalbama, jog sugertos energijos kiekis, o ne kritinis elektronų tankis yra tinkamesnis kriterijus [31].

#### Kritinis elektronų tankis

Kaip jau buvo minėta anksčiau, ties kritiniu elektronų tankiu elektronų plazmos dažnis (15) sutampa su lazerio dažniu. Jį galime išsireikšti taip:

$$N_c = \frac{\omega^2 \epsilon_0 m}{e^2} \quad (42)$$

Infraraudonajai spinduliuotei ši vertė yra apie:

$$N_c \approx 10^{21} \text{cm}^{-3} \quad (43)$$

### Sugertos energijos kiekis

Sugertos energijos kiekis tūryje gali būti laikomas pažaidos lazerio spinduliuote kriterijumi laikant, jog koks nors fizikinis mechanizmas lemia pažaidą. Dažniausiai šiuo fizikiniu mechanizmu yra laikomas medžiagos lydymasis [31]. Medžiagos išlydymui tūryje turi būti sugertas toks energijos kiekis:

$$\Delta Q = C \Delta T \quad (44)$$

Čia  $C$  yra specifinė tūrinė šiluminė talpa, o  $\Delta T$  medžiagos lydymosi temperatūros ir aplinkos temperatūros skirtumas. Pagal literatūroje pateikiamas  $C$  ir  $\Delta T$  vertes dielektrinėms dangoms [31],  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  kritinis tūrinis sugertos energijos kiekis yra:

$$Q_c \approx 3 \cdot 10^9 \frac{\text{J}}{\text{m}^3} \quad (45)$$

Kadangi optinio elemento pažaidos kriterijus turėtų priklausyti nuo jo medžiagos parametrų, o ne lazerio spinduliuotės parametrų [31], šiame darbe pažaidos slenksčio nustatymui bus naudojamas tik kritinės sugertosios tūrinės energijos kriterijus.

## 2.2 Baigtinių skirtumų laikinėje erdvėje metodas

Siekiant teisingai įvertinti interferencinį lauką optinėje dangoje lazerinės pažaidos susidarymo metu, elektromagnetinio lauko aprašymui bus naudojamas baigtinių skirtumų laikinėje erdvėje metodas.

Elektromagnetinį lauką medžiagoje galime aprašyti Maxwell lygtimis [32]:

$$\nabla \times \mathbf{H} = \frac{\partial \mathbf{D}}{\partial t} + \sigma \mathbf{E} \quad (46)$$

$$\nabla \times \mathbf{E} = -\frac{\partial \mathbf{B}}{\partial t} \quad (47)$$

bei medžiagos lygtimis:

$$\mathbf{D} = \epsilon \mathbf{E} = \epsilon_0 \epsilon_r \mathbf{E} \quad (48)$$

$$\mathbf{B} = \mu \mathbf{H} = \mu_0 \mu_r \mathbf{H} \quad (49)$$

Čia  $\mathbf{E}$  – elektrinio lauko stipris,  $\mathbf{D}$  – elektrinė slinktis,  $\mathbf{B}$  – magnetinio lauko indukcija,  $\mathbf{H}$  –



magnetinio lauko stipris,  $\epsilon_0$  – vakuumo dielektrinė skvarba,  $\epsilon_r$  – santykinė dielektrinė skvarba,  $\mu_0$  – vakuumo magnetinė skvarba,  $\mu_r$  – santykinė magnetinė skvarba,  $\sigma$  – medžiagos laidumas. Vienmačiu atveju (sklidimo kryptis  $z$ ) (46) ir (47) lygtis galime perrašyti taip:

$$\frac{\partial H_y}{\partial z} = \epsilon \frac{\partial E_x}{\partial t} + \sigma E_x \quad (50)$$

$$\frac{\partial E_x}{\partial z} = \mu \frac{\partial H_y}{\partial t} \quad (51)$$

Vienmatis baigtinių skirtumų laikinėje erdvėje metodas yra paremtas (50) ir (51) lygčių diskretizavimu. Jeigu  $\Delta_z$  – erdvinis žingsnis, o  $\Delta_t$  – laikinis žingsnis, diskretizavę antros eilės centrinių skirtumų Yee metodu [33], gausime:

$$E_x^{q+1}[m] = \frac{1 - \frac{\sigma \Delta_t}{2\epsilon}}{1 + \frac{\sigma \Delta_t}{2\epsilon}} E_x^q[m] + \frac{\frac{\Delta_t}{\epsilon \Delta_z}}{1 + \frac{\sigma \Delta_t}{2\epsilon}} \left( H_y^{q+\frac{1}{2}} \left[ m + \frac{1}{2} \right] - H_y^{q+\frac{1}{2}} \left[ m - \frac{1}{2} \right] \right) \quad (52)$$

$$H_y^{q+\frac{1}{2}} \left[ m + \frac{1}{2} \right] = H_y^{q-\frac{1}{2}} \left[ m + \frac{1}{2} \right] + \frac{\Delta_t}{\mu \Delta_z} (E_x^q[m+1] - E_x^q[m]) \quad (53)$$

Čia  $m$  žymi diskretizaciją pagal erdvę, o  $q$  – pagal laiką. Matome, jog  $E_x$  ir  $H_y$  yra atskirti tiek laike, tiek erdvėje. Vienmačiu atveju įmanoma modeliuoti tik impulsus, krentančius stačiu kampu į medžiagų paviršių.

Modelyje sugertis yra įskaitoma per laidumo narį  $\sigma$ . Ji yra išskiriama į tiesinę dedamąją  $\sigma_L$  (elektronų ir eksitonų sugertis) bei netiesinę dedamąją  $\sigma_{NL}$  (daugiafotonė ir tunelinė jonizacija):

$$\sigma = \sigma_L + \sigma_{NL} \quad (54)$$

Tiesinės sugerties įskaitymui medžiagos laidumą galima išreikšti per dielektrinės skvarbos menamąją dalį (31) [11]:

$$\sigma_L = \epsilon_0 \omega \text{Im}(\epsilon_r) \quad (55)$$

Netiesinės jonizacijos įskaitymui patogiu pirma išsivesti srovės tankį  $J_{NL}$ . Jį galime gauti lazerio energijos kitimo spartą  $J_{NL}E$  prilyginę laidumo juostos elektronų įgytos energijos pokyčiui dėl netiesinės jonizacijos  $E_{gap}w_K$  [34]:

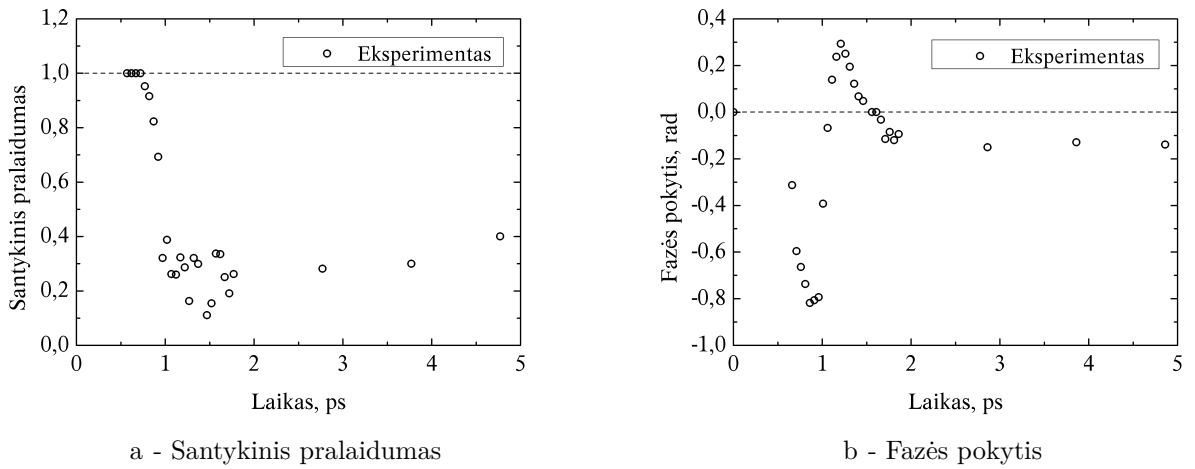
$$J_{NL}E = \sigma_{NL}E^2 = E_{gap}w_K \quad (56)$$

Taigi:

$$\sigma_{NL} = \frac{E_{gap}w_K}{E^2} \quad (57)$$

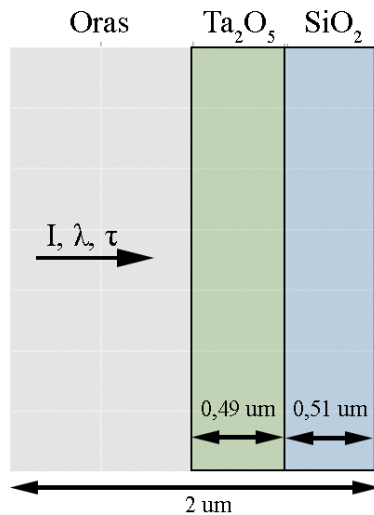
## 2.3 Modeliavimo geometrija ir pagrindiniai parametrai

Aproximavimui bus naudojami Šiaulys ir kt. [22] 490 nm storio  $Ta_2O_5$  optinės dangos eksperimentiniai fazės ir santykinio pralaidumo duomenys, gauti skaitmeninės holografijos su laikine skyra metodu (17 pav.). Eksperimento metu žadinantieji 1030 nm bangos ilgio, 300 fs trukmės ir 40 uJ energijos impulsiniai pluoštai buvo fokusuojami į bandinį 45 laipsnių kampų į  $39 \mu m$  ( $1/e$ ) dėmę. Zonduojama buvo 550 nm bangos ilgio, 25 fs trukmės impulsais, kurių energija buvo apie 500 kartų mažesnė, o diametras bent 10 kartų didesnis už žadinančiojo impulso [22].



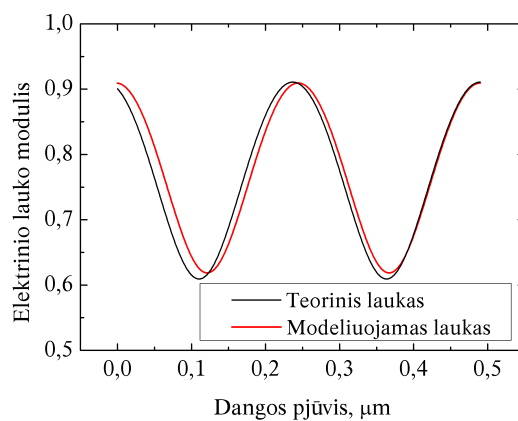
17 pav. Ultrasparčiosios holografijos eksperimento duomenys aproksimacijai: a) santykinis pralaidumas, b) fazės pokytis [22].

Modeliavimui pasirinkta  $2 \mu m$  erdvė, kurią sudaro  $1 \mu m$  oro,  $0,49 \mu m$   $Ta_2O_5$  dangos sluoksnis ir  $0,51 \mu m$   $SiO_2$  pagrindukas (18 pav.). Dangos lūžio rodiklis yra 2,10 ties 1030 nm bangos ilgiu ir 2,16 ties 550 nm bangos ilgiu, o pagrinduko atitinkamai 1,45 ir 1,46 [22].  $Ta_2O_5$  draustinės juostos tarpas yra 3,8 eV, o  $SiO_2$  8.3 eV [21].



18 pav. Modeliavimo geometrija. Modeliavimo erdvę sudaro oras,  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  danga ir  $\text{SiO}_2$  pagrindukas. Šis virtualus bandinys gali būti eksponuojamas pasirinkto intensyvumo  $I$ , bangos ilgio  $\lambda$  ir trukmės  $\tau$  lazerio impulsais.

Modeliavimo metu matomas fazės pokyčio fonas dėl pagrinduko Kerr efekto buvo laikomas pastovia dedamąja. Jis buvo įvertintas laikant, jog lūžio rodiklio pokytis  $\delta n(z)$  atkartojo žadinančiojo impulso gaubtinės formą, kai netiesinis pagrinduko lūžio rodiklis yra  $4 \cdot 10^{-16} \text{cm}^2/\text{W}$  [22]. Eksperimentas buvo atliktas 45 laipsnių kampu (p poliarizacija), todėl buvo įvertinta, jog modeliavimui 0 laipsnių kampu reikia naudoti 13 % didesnę intensyvumą norint kompensuoti didesnę atspindžio koeficientą (19 pav.).



19 pav. Teorinis elektrinio lauko modulio skirstinys eksperimento metu (45 laipsnių kampas, p poliarizacija) ir modeliuojamas laukas (0 laipsnių kampas, 13% didesnis intensyvumas atspindžio koeficiento kompensavimui.)

## 2.4 Santykinio pralaidumo ir fazės pokyčio įvertinimas

Norint aproksimuoti žadinimo-zondavimo eksperimento duomenis, reikia surasti dangos pralaidumą ir fazės pokytį, kurį patiria zonduojantysis impulsas.

Pralaidumo nustatymui buvo panaudota plačiai taikoma atvirojo kodo biblioteka, leidžianti optinėse dangose apskaičiuoti stovinčiosios bangos elektrinio lauko skirstinį bei įvertinti pralaidumo ir atspindžio koeficientus [35]. Pralaidumas buvo skaičiuojamas laikant kiekvieną diskretizuotą erdvės vietą atskira danga, turinčia kompleksinį lūžio rodiklį.

Fazės pokyčio įvertinimui buvo naudojamas B-integralas lūžio rodiklio pokyčiui  $\delta n(z)$  [6]:

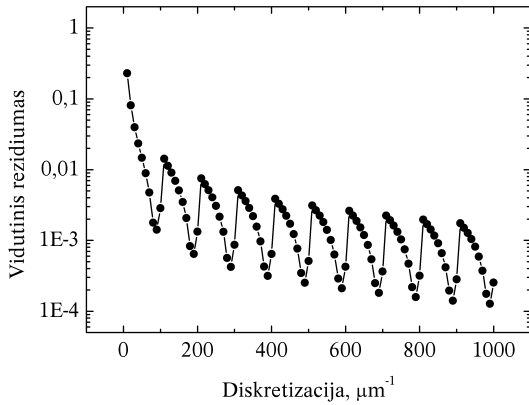
$$\delta\phi = \frac{2\pi}{\lambda} \int_{z_1}^{z_2} \delta n(z) dz \quad (58)$$

### 2.4.1 Erdvės ir laiko diskretizavimas

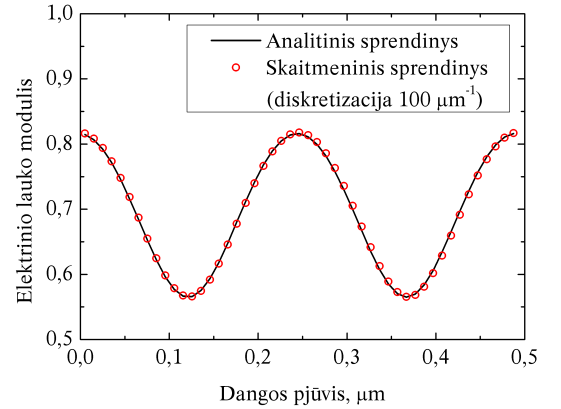
Erdvinis ( $\Delta_z$ ) ir laikinis ( $\Delta_t$ ) žingsniai nėra nepriklausomi dydžiai. Tam, kad sprendinys būtų stabilus, turi galioti Courant sąlyga [32]:

$$S_c = \frac{c\Delta_t}{\Delta_z} \leq 1 \quad (59)$$

kur  $S_c$  yra Courant faktorius. Taigi, jeigu norime padvigubinti erdvinę skyrą, tenka imti ir dvigubai mažesnę laikinę žingsnį.



a - Tikslumo priklausomybė nuo diskretizacijos laipsnio



b - Elektrinio lauko skirstinys ties  $100 \mu\text{m}^{-1}$

20 pav. a) Baigtinių skirtumų laikinėje erdvėje sprendinio tikslumo priklausomybė nuo diskretizacijos laipsnio. b) Skaitmeninio (diskretizacija  $100 \mu\text{m}^{-1}$ ) ir analitinio elektrinio lauko modulio sprendinių dielektrinėje 490 nm storio dangoje palyginimas.

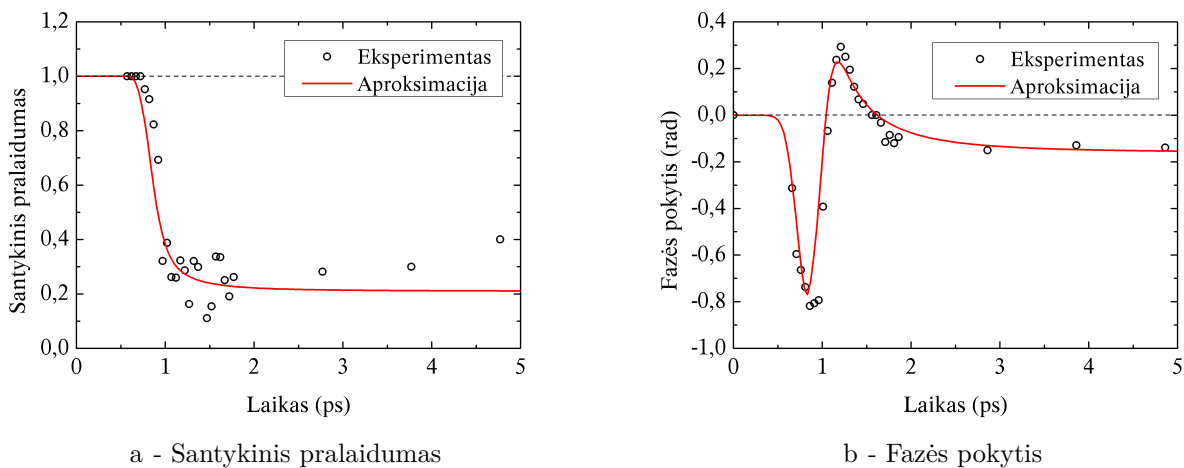
Vidutinio reziduumo (lyginant su analitiniu sprendiniu) priklausomybė nuo erdvės diskretizacijos laipsnio pateikta 20 pav (a). Matyti jog sprendinys konverguoja ir tikslumas didėja didinant diskretizacijos laipsnį, tačiau atsiranda tam tikros osciliacijos dėl elektrinio lauko po-

slinkio išilgai dangai. Atsižvelgiant į skaičiavimų atminties ir laiko ribojimus, tolimesniam modeliavimui buvo pasirinktas  $100 \mu\text{m}^{-1}$  diskretizacijos laipsnis ( $\Delta_z = 10 \text{ nm}$ ,  $\Delta_t = 33 \text{ as}$ ). Elektrinio lauko modulis šiam diskretizacijos laipsniui pateiktas 20 pav (b).

### 3 Pagrindiniai rezultatai ir jų aptarimas

#### 3.1 Eksperimentinių duomenų aproksimacija

Aukštos laikinės skyros skaitmeninės holografijos žadinimo–zondavimo eksperimento santykinio pralaidumo ir fazės pokyčio priklausomybių aproksimacijos pateiktos 21 pav. Jos buvo gautos minimizuojant klaidos funkciją nuosekliuju mažiausių kvadratų programavimo (angl. *sequential least squares programming – SLSQP*) metodu [36] programavimo kalbos Python aplinkoje ir reikalaujant jog vienas modelis tenkintų abi kreives. Relaksaciniai nariai  $\tau_{CB \rightarrow VB}$  ir  $\tau_{STE \rightarrow VB}$  buvo ignoruojami, nes literatūroje sutinkamos jų vertės yra daug ilgesnės už modeliavimo laiką [24]. Aproksimacijos parametrai pateikti 1 lentelėje.



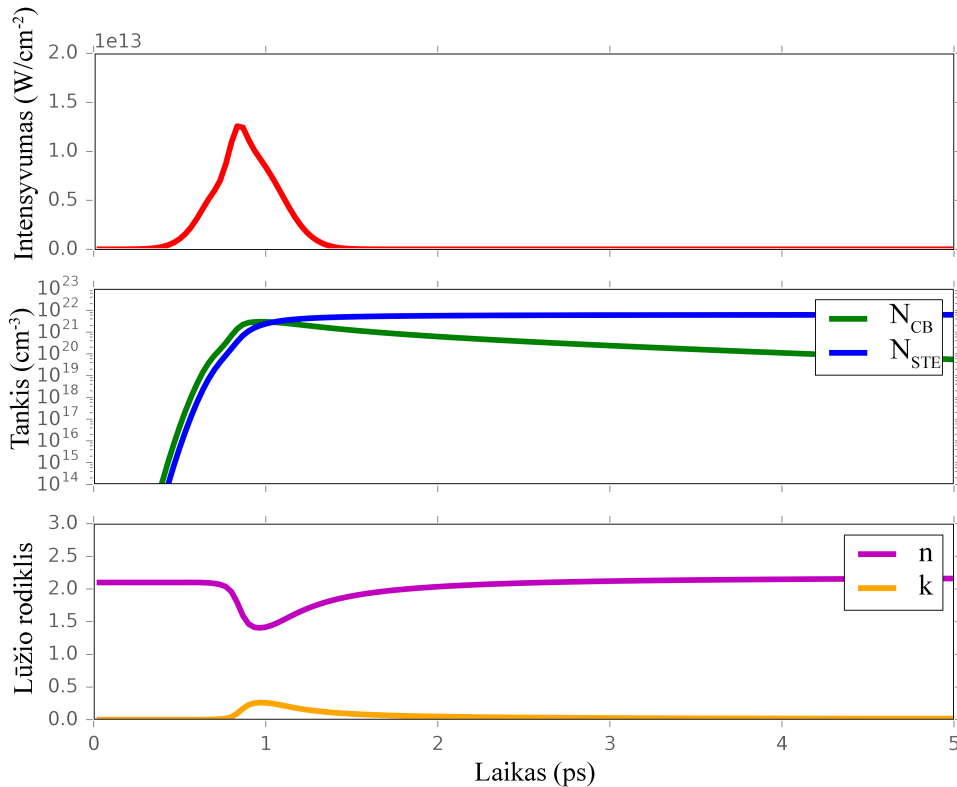
21 pav. Eksperimentinių duomenų aproksimacija: a) santykinis pralaidumas, b) fazės pokytis.

Medžiagos parametras	Simbolis	Vertė
Efektinė elektronų masė laidumo juostoje (kg)	$m_{CB}$	$1m_e$
Efektinė savaime pagautųjų eksitonų masė (kg)	$m_{STE}$	$7m_e$
Griūtinės jonizacijos koeficientas	$\alpha$	$10^{15}$
Elektronų judesio kiekio sklaidos trukmė (fs)	$\tau_{CB}$	2
Elektronų relaksacijos į eksitonus trukmė (fs)	$\tau_{CB \rightarrow STE}$	170
Eksitoninio lygmens energija $\hbar\omega_{STE}$ (eV)	$E_{STE}$	2,3
Eksitoninio lygmens plotis $\frac{\hbar}{2\tau_{STE}}$ (eV)	$\Delta E_{STE}$	0,3
Eksitoninio lygmens maksimali užpilda ( $m^{-3}$ )	$N_{STE,max}$	$10^{28}$

1 lentelė. Aproksimacijos parametrai.

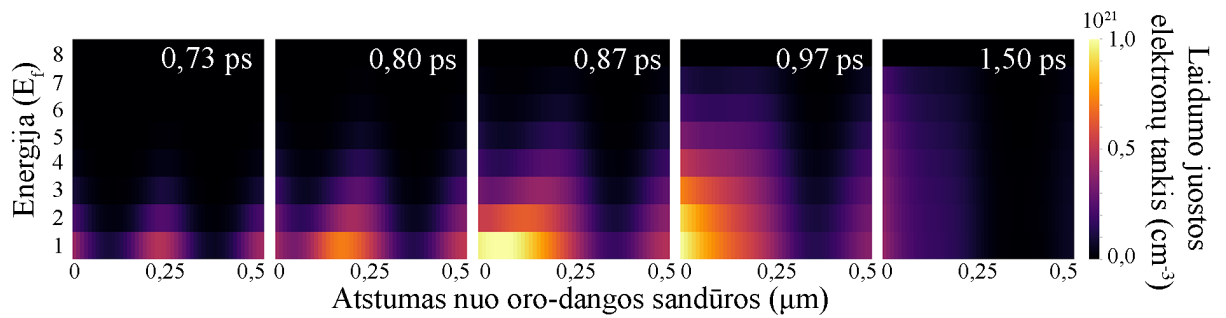
Spinduliuotės intensyvumo, krūvininkų tankio ir lūžio rodiklio dinamika 80 nm gylyje nuo dangos paviršiaus pavaizduota 22 pav. Matome, jog laidumo juostos elektronai greitai relaksuoja į tarpines savaime pagautųjų eksitonų būsenas. Nustatyta savaime pagautųjų eksitonų lygmens energija (2,3 eV) yra artima literatūroje pateikiamai liuminiscencijos tyrimais gautai

vertei (2,25 eV) [21]. Nustatyta relaksacijos trukmė  $\text{Ta}_2\text{O}_5$  (170 fs) yra artima literatūroje pateikiamai relaksacijos trukmei  $\text{SiO}_2$  (150 fs) [16]), taigi krūvininkų pagavos procesai yra panašūs.



22 pav. Spinduliuotės intensyvumo, krūvininkų tankio ( $N_{CB}$  – laidumo juostos elektronai,  $N_{STE}$  – savaimė pagautieji eksitonai) ir lūžio rodiklio ( $n$  – realioji dalis,  $k$  – menamoji dalis) dinamika interferencinio lauko pirmajame maksimume (80 nm gylyje).

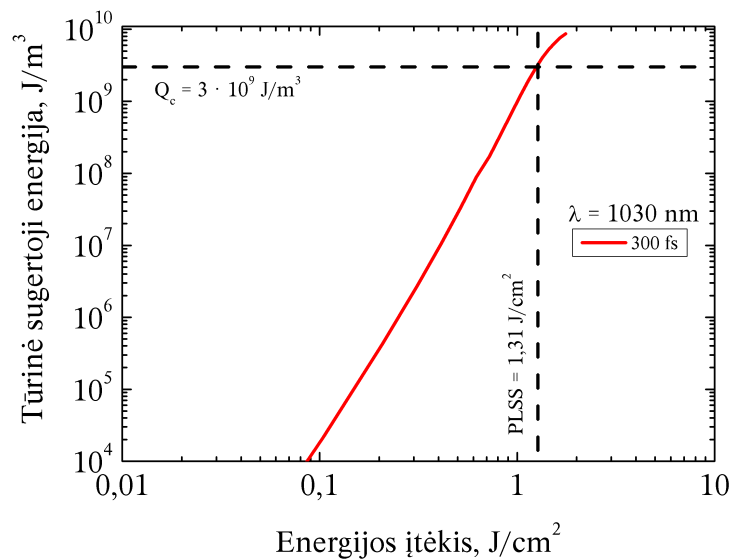
Daugelio spartos lygčių modelio evoliucija pavaizduota 23 pav. Matome, jog impulso pradžioje (0,73 ps) elektronų skirstinys atkartoja stovinčiosios bangos intensyvumo skirstinį (20 pav. (b)). Didėjant intensyvumui, jonizuojama vis daugiau atomų, o laidumo juostos elektronų energija didėja dėl tiesinės sugerties. Medžiaga pradeda vis labiau sugerti lazerio spinduliuotę, todėl didėja elektronų tankis dangos pradžioje, o skirstinys pradeda deformuotis (0,80 ps). Ties didžiausiu smailiniu intensyvumu, dalis elektronų viršija kritinę smūginės jonizacijos energiją ir įvyksta griūtinė jonizacija – vienas elektronas iš aukščiausios energijos lygmens sukuria du žemiausio lygmens elektronus (0,87-0,97 ps). Dėl žymiai padidėjusio laidumo juostos elektronų tankio šiuo momentu stebimas didžiausias lūžio rodiklio pokytis medžiagoje (22 pav.). Impulso pabaigoje didžiausias elektronų tankis yra dangos pradžioje, nes likusi dangos dalis buvo ekranuota elektronų plazmos (1,5 ps).



23 pav. Daugelio spartos lygčių modelio evoliucija Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> dangoje.

### 3.2 Pažaidos lazerio spinduliuote slenkščio prognozavimas

Panaudojant aproksimacijos metu gautus Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> dangos fizikinius parametrus (1 lentelė) buvo atlikti skaičiavimai pažaidos slenkščio įvertinimui 1030 nm bangos ilgio, 300 fs trukmės lazerio impulsui (24 pav.). Pažaidos lazerio spinduliuote slenkstis buvo nustatytas pagal darbe minimą kritinio sugertosios tūrinės energijos kriterijų ( $Q_c \approx 3 \cdot 10^9 \frac{\text{J}}{\text{m}^3}$ ). Siekiant didesnio tikslumo, modeliavimo rezultatai buvo papildomai tiesiškai interpoliuojami. Apskaičiuotoji vertė (1,31 J/cm<sup>2</sup>) nuo eksperimentinės vertės tai pačiai dangai (1,51 J/cm<sup>2</sup> [22]) skiriasi 15%.

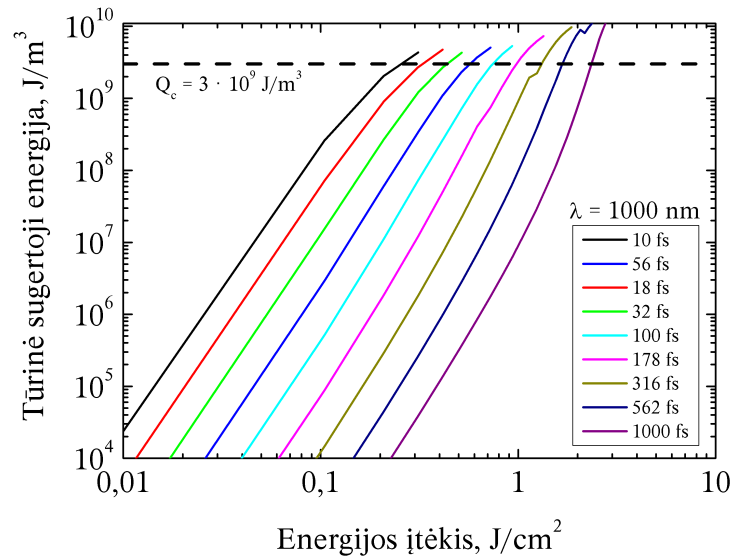


24 pav. Pažaidos lazerio spinduliuote slenkščio nustatymas pagal sugertos tūrinės energijos kriterijų 1030 nm bangos ilgio, 300 fs trukmės lazerio impulsui.

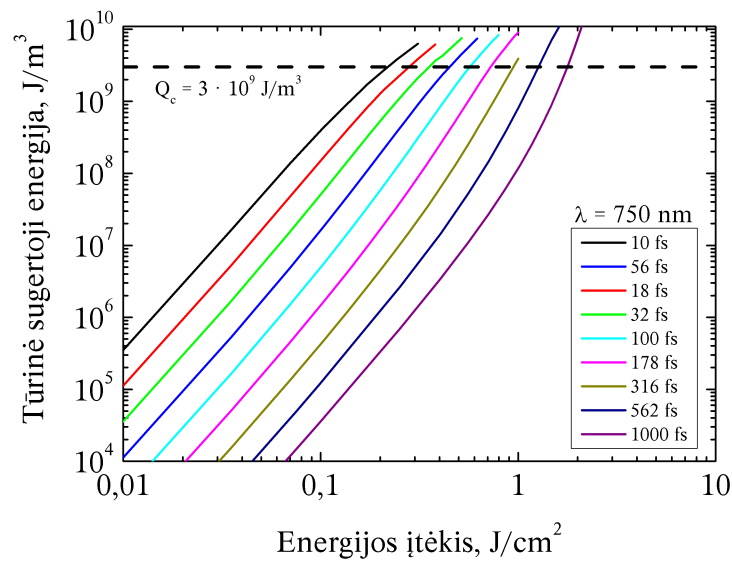
Taip pat buvo atliktas pažaidos lazerio spinduliuote slenkščio įvertinimas ir kitiems bangos ilgiams bei lazerio impulso trukmėms. Modeliavimui pasirinktos 9 skirtingos lazerio impulso trukmės logaritminiame mastelyje nuo 10 fs iki 1 ps, bei bangos ilgiai nuo 400 nm iki 1200 nm kas 50 nm. Kiekvienai impulso trukmės ir bangos ilgio kombinacijai buvo atlikti skaičiavimai su 30 energijos įtėkio verčių tiesiniame mastelyje nuo 0.001 J/cm<sup>2</sup> iki 3 J/cm<sup>2</sup>. Pažaidos slenkščio



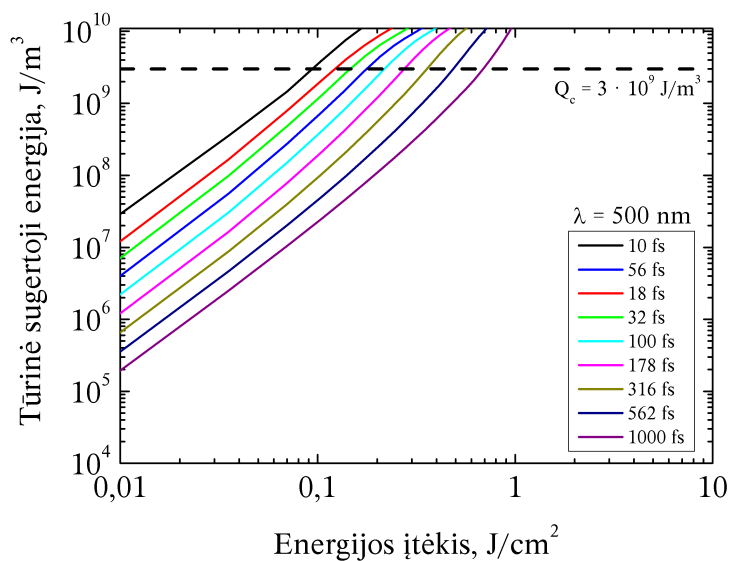
įvertinimo metodika keliems bangos ilgiams pateikta 25 – 27 pav. Stebima tiesinė dalis log-log mastelyje atitinka daugiafotonę jonizaciją, o linkis, atsirandantis didesnių energijos įtėkio verčių dalyje – griūtinę jonizaciją. Pastebime, jog trumpų impulsų srityje kritinės vertės pasiekiamos praktiškai tik daugiafotonės jonizacijos mechanizmu. Ilgesniųjų impulsų srityje matoma ir nemenka griūtinės jonizacijos įtaka.



25 pav. Pažaidos lazerio spinduliuote slenksčio nustatymas pagal sugertos tūrinės energijos kriterijų 1000 nm bangos ilgio spinduliuotei.



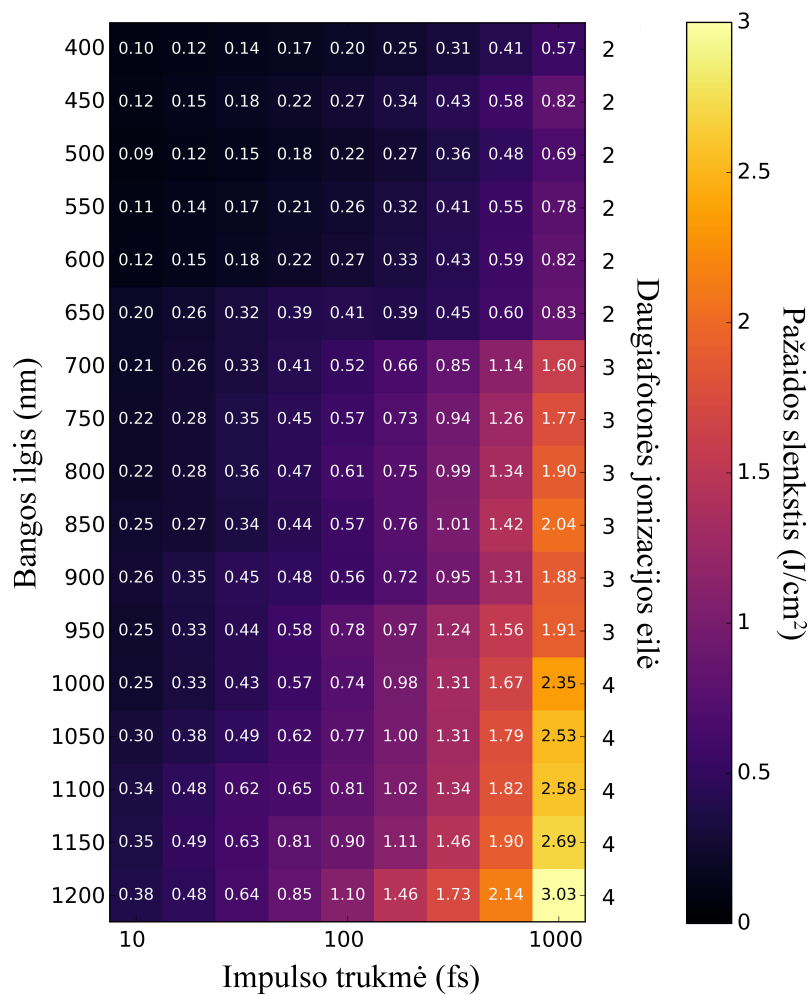
26 pav. Pažaidos lazerio spinduliuote slenksčio nustatymas pagal sugertos tūrinės energijos kriterijų 750 nm bangos ilgio spinduliuotei.



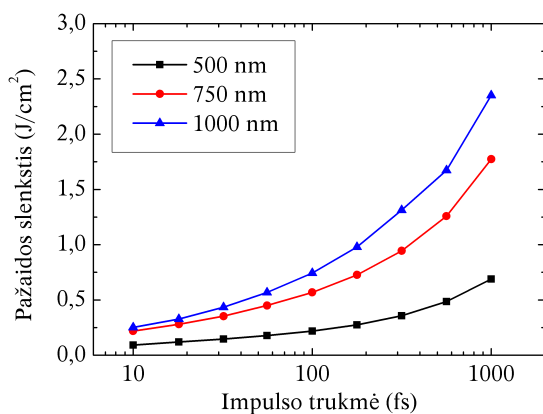
27 pav. Pažaidos lazerio spinduliuote slenksčio nustatymas pagal sugertos tūrinės energijos kriterijų 500 nm bangos ilgio spinduliuotei.

Pažaidos lazerio spinduliuote slenksčiai visoms tirtoms impulso trukmių ir bangos ilgių kombinacijoms pateikti 28 pav., o pjūviai pasirinktomis ašimis 29 pav. Matyti, jog pažaidos slenkstis didėja didinant impulso trukmę visiems tirtiems bangos ilgiams. Pažaidos slenksčio priklausomybė nuo bangos ilgio kinta šuoliškai, o šuoliai sutampa su daugiafotonės jonizacijos eilės kitimu.

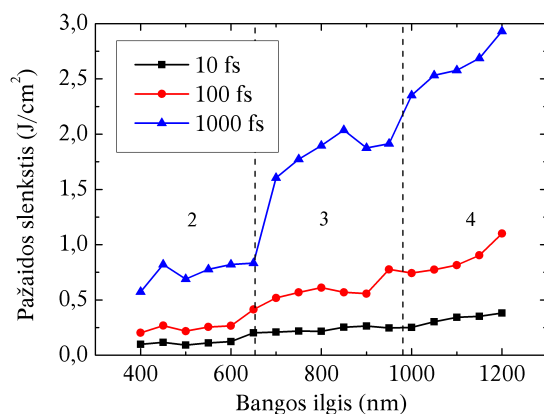
Griūtinės jonizacijos metu sukurtų elektronų dalis visoms tirtoms impulso trukmių ir bangos ilgių kombinacijoms pateikta 30 pav., o pjūviai pasirinktomis ašimis 31 pav. Priklausomybėse nuo bangos ilgio taip pat matyti šuoliškumas ties daugiafotonės jonizacijos eilės kitimu, tačiau ar griūtinės jonizacijos indėlis didėja, ar mažėja, priklauso nuo impulso trukmės (31 pav (b)). Taip pat įdomu pastebėti, jog kai kurių bangos ilgių priklausomybė nuo impulso trukmės turi maksimumus (pvz.: 31 pav (a): 500 nm).



28 pav. Pažaidos lazerio spinduliuote slenksčiai tirtoms impulso trukmių ir bangos ilgių kombinacijoms.

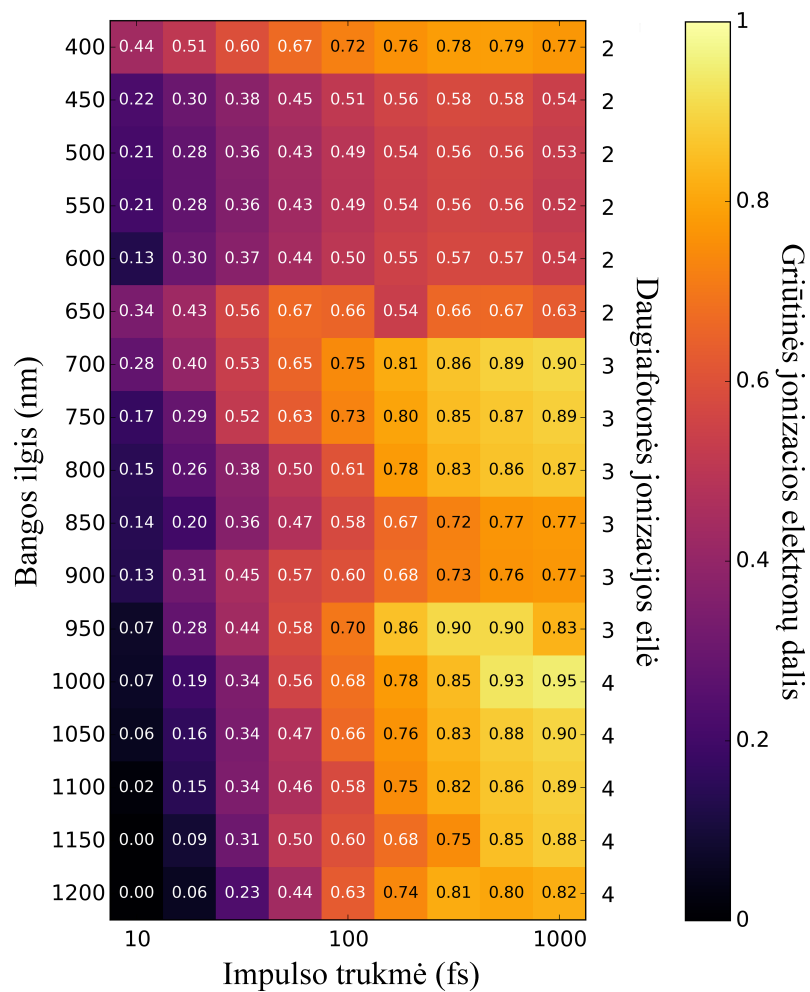


a - Bangos ilgio ašis

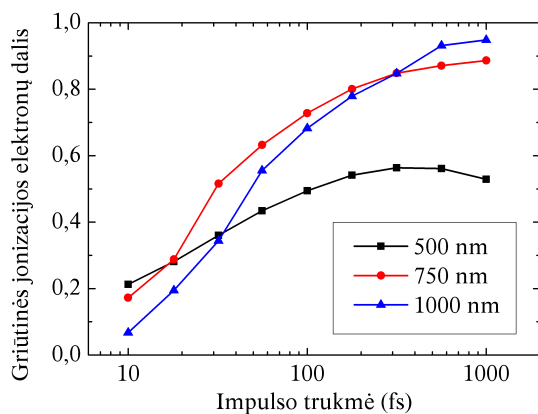


b - Impulso trukmės ašis

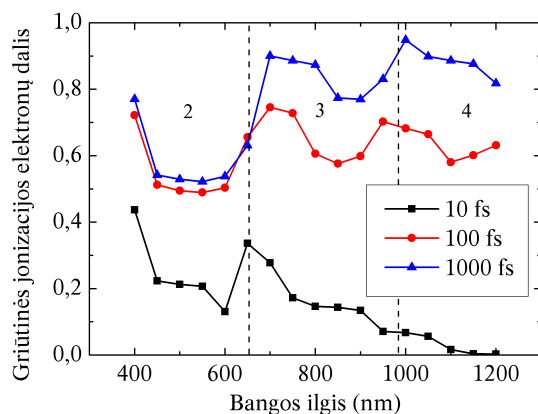
29 pav. Pažaidos lazerio spinduliuote slenksčio pjūviai pasirinktomis bangos ilgio ir impulso trukmės ašimis. Paveiksle b punktyrinės linijos atskiria skirtingas daugiafotonės jonizacijos eiles.



30 pav. Griūtinės jonizacijos metu sukurtų elektronų dalis tirtoms impulso trukmių ir bangos ilgių kombinacijoms.



a - Bangos ilgio ašis



b - Impulso trukmės ašis

31 pav. Griūtinės jonizacijos metu sukurtų elektronų dalies pjūviai pasirinktomis bangos ilgio ir impulso trukmės ašimis. Paveiksle b punktyrinės linijos atskiria skirtingas daugiafotonės jonizacijos eiles.

## Išvados

1. Aukštos laikinės skyros skaitmeninės holografijos žadinimo–zondavimo eksperimentas kartu su šiame darbe pasiūlytu skaitmeniniu modeliu, paremtu baigtinių skirtumų laikinėje erdvėje metodu elektromagnetinio lauko modeliavimui ir daugeliu spartos lygčių laidumo juostos elektronų aprašymui, yra pakankamai jautri metodika eksitoninių būsenų apibūdinimui dielektrinėse dangose, nes nustatyta Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> savaimė pagautųjų eksitonų lygmens energija (2,30 eV) nuo literatūroje randamos vertės (2,25 eV [21]) skiriasi tik 2%
2. Baigtinių skirtumų laikinėje erdvėje metodu elektromagnetinio lauko modeliavimui ir daugeliu spartos lygčių laidumo juostos elektronų aprašymui paremtas skaitmeninis modelis leidžia aukštos laikinės skyros skaitmeninės holografijos eksperimentais nustatytus dielektrinės dangos parametrus panaudoti vieno impulso pažaidos lazerio spinduliuote slenkščio prognozavimui dideliu tikslumu, nes šiame darbe pagal sugertosios tūrinės energijos kriterijų įvertintas 490 nm storio Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> dangos pažaidos 1030 nm bangos ilgio, 300 fs trukmės lazerio impulsu slenkstis (1,31 J/cm<sup>2</sup>) nuo eksperimentinės vertės (1,51 J/cm<sup>2</sup> [22]) skiriasi tik 15%.

## Literatūros sąrašas

- [1] F. Rainer, L. J. Atherton, J. J. D. Yoreo, M. R. Kozlowski, J. E. Marion, L. M. Sheehan, and C. J. Stolz, Addressing laser-induced-damage issues at the National Ignition Facility, in *Conference on Lasers and Electro-Optics*, page CFI1 (Optical Society of America, 1995).
- [2] B. Stuart, M. Feit, S. Herman, a. Rubenchik, B. Shore, and M. Perry, Nanosecond-to-femtosecond laser-induced breakdown in dielectrics, *Physical Review B*, **53**(4), 1749–1761 (1996), doi:10.1103/PhysRevB.53.1749.
- [3] M. Mero, J. Liu, W. Rudolph, D. Ristau, and K. Starke, Scaling laws of femtosecond laser pulse induced breakdown in oxide films, *Phys. Rev. B*, **71**, 115109 (2005), doi:10.1103/PhysRevB.71.115109.
- [4] L. Gallais, D.-B. Douti, M. Commandré, G. Batavičiūtė, E. Pupka, M. Ščiuka, L. Smalakys, V. Sirutkaitis, and A. Melninkaitis, Wavelength dependence of femtosecond laser-induced damage threshold of optical materials, *Journal of Applied Physics*, **117**(22), 223103 (2015), doi:http://dx.doi.org/10.1063/1.4922353.
- [5] ISO 21254-2:2011 Lasers and laser-related equipment – Test methods for laser-induced damage threshold – Part 2: Threshold determination, Standard, International Organization for Standardization, Geneva, Switzerland (2011).
- [6] R. W. Boyd, *Nonlinear Optics* (Academic Press, Waltham, USA, 2008), 3rd edition.
- [7] L. V. Keldysh, Ionization in the field of a strong electromagnetic wave, *Journal of Experimental and Theoretical Physics*, **20**(5), 1307–1314 (1965), doi:10.1234/12345678.
- [8] C. B. Schaffer, A. Brodeur, and E. Mazur, Laser-induced breakdown and damage in bulk transparent materials induced by tightly focused femtosecond laser pulses, *Measurement Science and Technology*, **12**(11), 1784 (2001).
- [9] D. Ristau, *Laser-Induced Damage in Optical Materials* (CRC Press, Boca Raton, USA, 2014).
- [10] P. Drude, Zur elektronentheorie der metalle, *Annalen der Physik*, **306**(3), 566–613 (1900), doi:10.1002/andp.19003060312.
- [11] M. Fox, *Optical Properties of Solids* (Oxford University Press, New York, USA, 2010), 2nd edition.
- [12] ISO 21254-1:2011 Lasers and laser-related equipment – Test methods for laser-induced damage threshold – Part 1: Definitions and general principles, Standard, International Organization for Standardization, Geneva, Switzerland (2011).

- [13] N. Bloembergen, Laser-induced electric breakdown in solids, *IEEE Journal of Quantum Electronics*, **10**(3), 375–386 (1974), ISSN 0018-9197, doi:10.1109/JQE.1974.1068132.
- [14] R. Stoian, D. Ashkenasi, A. Rosenfeld, and E. E. B. Campbell, Coulomb explosion in ultrashort pulsed laser ablation of  $\text{Al}_2\text{O}_3$ , *Phys. Rev. B*, **62**, 13167–13173 (2000), doi:10.1103/PhysRevB.62.13167.
- [15] S. S. Mao, F. Quéré, S. Guizard, X. Mao, R. E. Russo, G. Petite, and P. Martin, Dynamics of femtosecond laser interactions with dielectrics, *Applied Physics A: Materials Science and Processing*, **79**, 1695–1709 (2004), ISSN 09478396, doi:10.1007/s00339-004-2684-0.
- [16] P. Martin, S. Guizard, P. Daguzan, G. Petite, P. D’Oliveira, P. Meynadier, and M. Perdrix, Subpicosecond study of carrier trapping dynamics in wide-band-gap crystals, *Phys. Rev. B*, **55**, 5799–5810 (1997), doi:10.1103/PhysRevB.55.5799.
- [17] K. S. Song and R. T. Williams, *Self-Trapped Excitons* (Springer-Verlag, Berlin, Germany, 1996), 2nd edition.
- [18] K. Tanimura, T. Tanaka, and N. Itoh, Creation of quasistable lattice defects by electronic excitation in  $\text{SiO}_2$ , *Phys. Rev. Lett.*, **51**, 423–426 (1983), doi:10.1103/PhysRevLett.51.423.
- [19] S. Guizard, P. Martin, G. Petite, P. D’Oliveira, and P. Meynadier, Time-resolved study of laser-induced colour centres in  $\text{SiO}_2$ , *Journal of Physics: Condensed Matter*, **8**(9), 1281 (1996), doi:10.1088/0953-8984/8/9/018.
- [20] C. Itoh, K. Tanimura, and N. Itoh, Optical studies of self-trapped excitons in  $\text{SiO}_2$ , *Journal of Physics C: Solid State Physics*, **21**(26), 4693 (1988).
- [21] M. Mero, B. Clapp, J. C. Jasapara, W. Rudolph, D. Ristau, K. Starke, J. Kruger, S. Martin, and W. Kautek, On the damage behavior of dielectric films when illuminated with multiple femtosecond laser pulses, *Optical Engineering*, **44**(5), 051107 (2005), doi:10.1117/1.1905343.
- [22] N. Šiaulyš, L. Gallais, and A. Melninkaitis, Direct holographic imaging of ultrafast laser damage process in thin films., *Optics letters*, **39**(7), 2164–7 (2014), doi:10.1364/OL.39.002164.
- [23] 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**, 3883–3886 (1999), doi:10.1103/PhysRevLett.82.3883.
- [24] 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  $\text{MgO}$ ,  $\text{Al}_2\text{O}_3$  and  $\text{SiO}_2$ , *EPL (Europhysics Letters)*, **29**(5), 401 (1995).

- [25] L. A. Emmert, M. Mero, and W. Rudolph, Modeling the effect of native and laser-induced states on the dielectric breakdown of wide band gap optical materials by multiple subpicosecond laser pulses, *Journal of Applied Physics*, **108**, 1–7 (2010), doi:10.1063/1.3457791.
- [26] D. N. Nguyen, L. a. Emmert, D. Patel, C. S. Menoni, and W. Rudolph, Transient phenomena in the dielectric breakdown of HfO<sub>2</sub> optical films probed by ultrafast laser pulse pairs, *Applied Physics Letters*, **97**, 191909 (2010), doi:10.1063/1.3511286.
- [27] A. Kaiser, B. Rethfeld, M. Vicanek, and G. Simon, Microscopic processes in dielectrics under irradiation by subpicosecond laser pulses, *Phys. Rev. B*, **61**, 11437–11450 (2000), doi:10.1103/PhysRevB.61.11437.
- [28] B. Rethfeld, Unified model for the free-electron avalanche in laser-irradiated dielectrics, *Phys. Rev. Lett.*, **92**, 187401 (2004), doi:10.1103/PhysRevLett.92.187401.
- [29] L. Gallais, B. Mangote, M. Commandó, A. Melninkaitis, J. Mirauskas, M. Jeskevic, and V. Sirutkaitis, Transient interference implications on the subpicosecond laser damage of multielectrics, *Applied Physics Letters*, **97**, 3–5 (2010), doi:10.1063/1.3477961.
- [30] B. Rethfeld, Free-electron generation in laser-irradiated dielectrics, *Phys. Rev. B*, **73**, 035101 (2006), doi:10.1103/PhysRevB.73.035101.
- [31] B. Chimier, O. Utéza, N. Sanner, M. Sentis, T. Itina, P. Lassonde, F. Légaré, F. Vidal, and J. C. Kieffer, Damage and ablation thresholds of fused-silica in femtosecond regime, *Phys. Rev. B*, **84**, 094104 (2011), doi:10.1103/PhysRevB.84.094104.
- [32] A. Taflove, *Computational Electrodynamics: The Finite-Difference Time-Domain Methods* (Artech House, Norwood, USA, 1995).
- [33] K. Yee, Numerical solution of initial boundary value problems involving maxwell's equations in isotropic media, *Antennas and Propagation, IEEE Transactions on*, **14**(3), 302–307 (1966), doi:10.1109/TAP.1966.1138693.
- [34] J. R. Peñano, P. Sprangle, B. Hafizi, W. Manheimer, and A. Zigler, Transmission of intense femtosecond laser pulses into dielectrics, *Phys. Rev. E*, **72**, 036412 (2005), doi:10.1103/PhysRevE.72.036412.
- [35] A. Yuffa and J. Scales, Object-oriented electrodynamic S-matrix code with modern applications, *Journal of Computational Physics*, **231**, 4823–4835 (2012), doi:10.1016/j.jcp.2012.03.018.
- [36] D. Kraft, *A software package for sequential quadratic programming*, Deutsche Forschungs- und Versuchsanstalt für Luft- und Raumfahrt Köln: Forschungsbericht (Wiss. Berichtswesen d. DFVLR, 1988).



# FEMTOSEKUNDINIAIS LAZERIO IMPULSAIS INICIJUOTOS PAŽAIDOS REIŠKINIŲ MODELIAVIMAS PLONASLUOKSNĖSE DIELEKTRINĖSE DANGOSE

Linus Smalakys

Santrauka

Galingų lazerių patikimumą ir tolimesnį vystymą riboja jų optinių elementų kokybė. Ilgą laiką viena svarbiausių kokybės problemų išlieka optinė elementų pažaida, atsirandanti juos veikiant intensyvia elektromagnetine spinduliuote. Optinis medžiagų atsparumas priklauso nuo daugelio medžiagos bei lazerio spinduliuotės savybių.

Šiuo metu pažaidos lazerio spinduliuote slenkstis (PLSS) nustatomas standartizuotais eksperimentiniais metodais. PLSS nustatymas skaitmeniniais metodais leistų palengvinti šią užduotį, tačiau vis dar trūksta kokybiškų ir patikimų modelių ultratrumpiesiems impulsams, leidžiančių atlikti šiuos skaičiavimus optinėms dangoms. Atsižvelgiant į žinių ir rekomendacijų poreikį šioje srityje, pagrindinis šio darbo tikslas buvo aproksimuojant eksperimentinius skaitmeninės holografijos žadinimo-zondavimo duomenis įvertinti Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> optinės dangos fizikinius parametrus ir juos panaudoti PLSS priklausomybės nuo impulso trukmės ir bangos ilgio prognozavimui femtosekundinių impulsų srityje.

Šiam tikslui pasiekti buvo atliktas elektromagnetinio lauko modeliavimas optinėse dangose baigtinių skirtumų laikinėje erdvėje metodu. Taip pat buvo panaudotas laidumo juostos elektronų daugelio spartos lygčių modelis standartinių spartos lygčių papildymui. Buvo iširta pažaidos lazerio spinduliuote slenkščio priklausomybė 490 nm storio Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> optinėje dangoje 10 – 1000 fs impulso trukmių ir 400 – 1200 nm bangos ilgių intervaluose panaudojant kritinės sugertosios tūrinės energijos pažaidos kriterijų.

Darbe pademonstruota, kad laikinės skyros skaitmeninės holografijos žadinimo-zondavimo eksperimentas kartu su šiame darbe pasiūlytu skaitmeniniu modeliu yra pakankamai jautri metodika savaime pagautųjų eksitoninių būsenų apibūdinimui dielektrinėse dangose, nes nustatyta lygmens energija (2,30 eV) nuo literatūroje pateikiamos vertės skiriasi tik 2%. Taip pat nustatyta, jog šis skaitmeninis modelis leidžia aukštos laikinės skyros skaitmeninės holografijos eksperimentais nustatytus dielektrinės dangos parametrus panaudoti vieno impulso pažaidos lazerio spinduliuote slenkščio prognozavimui dideliu tikslumu, nes apskaičiuotas PLSS 1030 nm bangos ilgio, 300 fs trukmės lazerio impulsams (1,31 J/cm<sup>2</sup>) nuo eksperimentinės vertės skiriasi tik 15%.

Darbo pabaigoje suformuluotos išvados, turėsiančios įtakos ultrasparčių lazerio pažaidos procesų sampratai bei skaitmeniniam PLSS įvertinimui.

# SIMULATION OF LASER INDUCED DAMAGE BY FEMTOSECOND LASER PULSES IN THIN FILM DIELECTRIC COATINGS

Linus Smalakys

## Summary

The development and output power of ultrashort pulse lasers is limited by the the quality of optical elements. Laser induced damage is usually the limiting quality factor. Resistance to electromagnetic radiation usually depends on many material and irradiation parameters. Characterization of optical elements and identification of damage causing physical processes leads to a creation of next generation optics.

Laser induced damage threshold (LIDT) is now usually evaluated using standardized experimental methods. Computational LIDT evaluation would speed up and reduce the cost of this process, however, there are no reliable and accurate models for calculating LIDT in ultrashort pulse regime for optical coatings. Therefore, the main goal of this work was to fit experimental time-resolved digital-holography pump-probe data to evaluate physical properties of Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> coating and use those properties to calculate laser induced damage threshold dependence on pulse duration and laser wavelength in the femtosecond regime.

The electromagnetic field in dielectric coatings was simulated using finite-difference time-domain method. Standard rate equation model was improved by adding multiple rate equations model for conduction band electrons. Laser induced damage threshold was computationally investigated in 490 nm Ta<sub>2</sub>O<sub>5</sub> optical coating in 10 – 1000 fs pulse duration and 400 – 1200 nm wavelength regimes, using absorbed volumetric energy as damage criteria.

It was shown that time-resolved digital-holography pump-probe experiment combined with the developed model is a sensitive technique that allows accurate description of physical parameters for self-trapped excitonic levels, because the determined energy of excitonic level (2,30 eV) is within 2% of that found in literature. It was also demonstrated that the proposed model allows using these material parameters to evaluate laser induced damage threshold by a single laser pulse with high accuracy, because the LIDT evaluated for 1030 nm, 300 fs pulse is within 15% of the experimentally measured value.

The findings of this work will aid in further development of ultrafast laser damage analysis and computational evaluation of LIDT.