

Vilniaus universitetas
Fizikos fakultetas
Lazerinių tyrimų centras

Domas Kudarauskas

ŠVIESOS GIJŲ INDUKUOTOS LIUMINESCENCIJOS NELEGIRUOTUOSE IR
LEGIRUOTUOSE IAG IR SAFYRO KRISTALUOSE TYRIMAS

Magistrantūros studijų baigiamasis darbas

Lazerinė fizika ir optinės technologijos

Studentas

Domas Kudarauskas

Leisti ginti

Darbo vadovas

Prof. habil. Dr. Audrius Dubietis

LTC direktorius

Prof. Dr. Roaldas Gadonas

Vilnius 2018

Turinys

Įvadas	1
1 Teorinis įvadas	4
1.1 Šviesos pluoštų fokusavimasis	4
1.2 Fazinė savimoduliacija	5
1.3 Grupinių greičių dispersija	6
1.4 Savaiminis impulsų statėjimas	7
1.5 Daugiafotonė sugertis	8
1.6 Baltos šviesos kontinuumo generacija	10
1.7 Liuminescencija	11
2 Eksperimentas	14
2.1 Optinė schema	14
2.2 Kontinuumo spektrai	15
2.3 IAG fotoluminescencija	18
2.4 Safyro fotoluminescencija	22
Išvados	26
Literatūros sąrašas	27
Santrauka	31
Summary	32

Įvadas

Kristalo defektų tipas ir koncentracija kartu su jame esančiomis priemaišomis keičia jo mechaninį tvirtumą, elektrinį laidumą, fotolaidumą, liuminescenciją bei skaidrumą. Nuo šių savybių visumos priklauso medžiagos kokybė ir pritaikomumas, todėl svarbu defektus bei priemaišas gebėti aptikti, o galiausiai kontroliuoti jų pasireiškimą. Vienas iš plačiai naudojamų medžiagos analizės metodų yra jos liuminescencijos tyrimas, galintis parodyti elektronines defektų bei priemaišų būsenas. Liuminescencija, priklausomai nuo medžiagos žadinimo būdo, skirstoma į fotoliuminescenciją, kuomet žadinamui naudojama šviesa, katodoliuminescenciją - greiti elektronai, radioliuminescenciją - jonizuojanti spinduliuotė ir kitas. Šiame darbe pristatoma šviesos gijų indukuota fotoliuminescencija.

Intensyviai šviesai sklindant skaidria terpe, dėl netiesinių, su medžiagos trečiojo laipsnio poliarizuojamumu $\chi^{(3)}$ susijusių, reiškinių, keičiasi jos laikinės, erdvinės bei spektrinės savybės. Netiesinio sklidimo metu formuojasi šviesos gijos ir sukuriama baltos šviesos kontinuumas. Procesą inicijuoja savaiminis fokusavimasis, kuris suspaudžia pluoštą erdvėje ir padidina jo smailinį intensyvumą, kartu padidindamas kitų netiesinių reiškinių daromą poveikį. Šviesos gijose, dėl didelio intensyvumo, vyksta daugiafotonė medžiagos sugertis, indukuojanti liuminescenciją. Šis, salyginai lokalus, žadinimo būdas suteikia galimybę selektyviai analizuoti bandinio tūryje esančius defektus bei priemaišas.

Šviesos gijose netiesinį sklidimą ir energijos nuostolius patiria tik intensyvi centrinė dalis, nešanti apie 20% pluošto energijos, tuo tarpu visa likusi energija sklinda periferijoje vadinamoje rezervuare. Rezervuaras sklidimo metu atstatinėja centrinę giją nuolat ją papildydamas energija iš periferijos. Parodyta, kad visiškai užblokavus centrinę pluošto dalį, už tam tikro atstumo ji pilnai atstatoma [1]. Tai Beselio tipo pluoštams būdinga savybė. Ištyrus šviesos gijų dinamiką sklaidančioje terpėje, tai yra vandeninėje suspensijoje su $2 \mu\text{m}$ polistireno mikrosferomis, pastebėta, jog šviesos gijų formavimasis nenutrūksta ir sklidimo dinamika iš esmės nesikeičia [2]. Dėl energijos papildymo iš rezervuaro, medžiagoje esančių priemaišų sugertis nesustabdo gijų formavimosi bei gardelės žadinimo. Visa tai leidžia liuminescencijos tyrimams naudoti skirtingų bangos ilgių spinduliuotę generuojančias lazerines sistemas nepriklausomai nuo defektų ar priemaišų sugerties.

Itrio aliuminio granato (IAG) bei safyro (Al_2O_3) kristalai, pasižymintys dideliu optiniu netiesiškumu, plačia skaidrumo juosta, aukštu optinio pažeidimo slenksčiu bei dideliu mechaniniu atsparumu, yra daug dėmesio sulaukusios medžiagos, plačiai naudojamos lazerinių terpių, scintiliatorių ar didelio tvirtumo langų gamybai. Plati draustinė juosta įgalina naudoti pikosekundinių trukmių impulsus kontinuumui gauti [3, 4]. Eksperimentiškai ivertintas draustinės juostos plotis IAG kristalui yra $6,5 \text{ eV}$ [5], o safyru $9,5 \text{ eV}$ [6]. Defektų, priemaišų ir legirantų elektroninių lygmenų išsidėstymas yra gerai žinomi, todėl jos yra tinkamos norint patikrinti naujo liuminescencijos žadinimo metodo pagrįstumą.

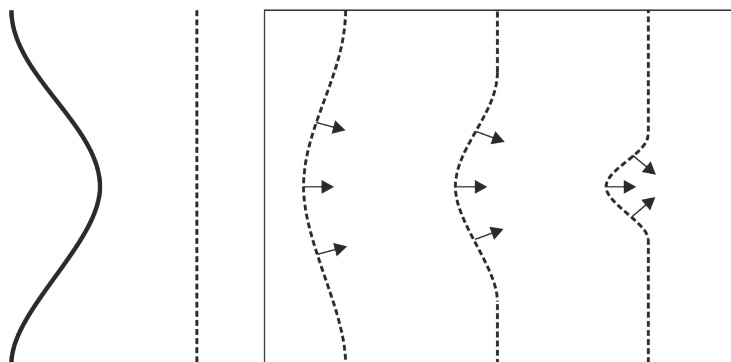
Šiame magistrantūros studijų baigiamajame darbe tiriama šviesos gijų indukuota liuminescencija nelegiruotuose ir legiruotuose IAG ir safyro kristaluose. Darbo tikslas yra užregistruoti šviesos gijų indukuotos liuminescencijos spektrus, atlikti jų analizę bei gautus rezultatus palyginti su literatūroje pateiktais rezultatais, kuomet naudojami kiti liuminescencijos žadinimo šaltiniai. Antrasis darbo tikslas yra ištirti kokią įtaką baltos šviesos kontinuumo generacijai turi medžiagos legirantų sugerties pasireiškimas.

Registruoti fotoluminescencijos spektrai, 0,2 -1,1 μm diapazone, kokybiškai atitinka katodoluminescencijos, radioluminescencijos bei ultravioletine spinduliuote ir jonų pluoštu žadinamus fotoluminescencijos spektrus nelegiruotuose ir legiruotuose IAG bei safyro kristaluose [7–12]. Rezultatai atskleidžia galimybę šviesos gijų indukuotą liuminescenciją naudoti kaip pigų, nedestruktyvų bei selektyvų tūryje spektroskopinį defektų, legirantų ir priemaišų medžiagoje analizės būdą.

1 Teorinis įvadas

1.1 Šviesos pluoštų fokusavimasis

Intensyviam šviesos pluoštui sklindant skaidria terpe, joje pasireiškia netiesinis lūžio rodiklis, priklausantis nuo šviesos intensyvumo $n = n_0 + n_2 I$. Šis reiškinys vadinamas optiniu Kero reiškiniu. Lūžio rodiklio priedas įgauna pluošto skersinių koordinačių pavidalą $\Delta n(x, y) = n_2 I(x, y)$, taip medžiagoje sukurdamas vadinamąjį Kero lęšį. Tarkime $n_2 > 0$, tuomet Gauso pavidalo pluošto frontas terpėje įgaubiamas ir pluoštas ima fokusuotis, kaip parodyta 1 paveiksle.



1 pav. Pluošto fokusavimasis. Brūkšninės linijos vaizduoja bangos frontą.

Galima apibrėžti kritinę fokusavimosi galią, kuriai esant Gauso pavidalo pluošto fazinis pasiskirstymas, $\arctan(z/\rho_0)$, atsveria netiesinio lūžio rodiklio sukeltą fazinį postūmį:

$$P_{kr} = \frac{\lambda^2}{4\pi n_0 n_2}. \quad (1)$$

Pluoštui viršijus kritinę fokusavimosi galią, jo radiusas mažėja, kol pasiekia netiesinį židinio nuotolį z_{sf} [13]:

$$z_{sf} \approx \frac{0.183 z_R}{\sqrt{[(P/P_{kr})^{1/2} - 0.852]^2 - 0.0219}}, \quad (2)$$

kur z_R yra pradinio pluošto Reilėjaus ilgis laikant, kad jo sąsmauka yra bandinio pradžioje.

Stipriai išaugus intensyvumui pradeda veikti kiti mechanizmai, stabdantys pluošto fokusavimąsi, tokie kaip fazinė savimoduliacija, netiesinė sugertis, plazmos defokusavimas. Šie ir kiti reiškiniai sumažina pluošto intensyvumą centrinėje dalyje ir tai stabdo tolimesnį pluošto spaudimąsi. Esant pakankamai didelei pluošto galiai, kelis kart didesnei nei kritinė fokusavimosi galia $P > P_{kr}$, galimi keli fokusavimosi-desifokusavimo ciklai. Plačiau apie tai bus aptarta baltos šviesos kontinuumo generacijos skyrelyje.

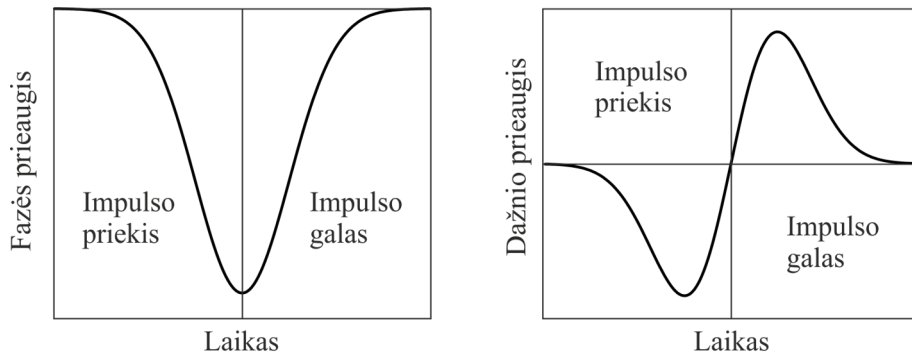
1.2 Fazinė savimoduliacija

Optinis Kero reiškinys pasireiškia ir laike sukurdamas fazinę savimoduliaciją. Netiesinis lūžio rodiklis n_2 paveikia šviesos impulsą jį iškraipydamas ir praplėsdamas jo spektrą. Fazinė savimoduliacija yra laikinis pluošto fokusavimosi atitikmuo. Gauso impulsas veikiamas netiesinio lūžio rodiklio laikinio lęšio, kaip ir erdvėje, įgauna kvadratinę fazės moduliaciją, o tai sukuria tiesinę dažnio moduliaciją kaip pavaizduota 2 paveiksle. Fazės prieaugio išraiška [14]:

$$\Delta\varphi = -2\pi n_2 \frac{L}{\lambda_0 A} P, \quad (3)$$

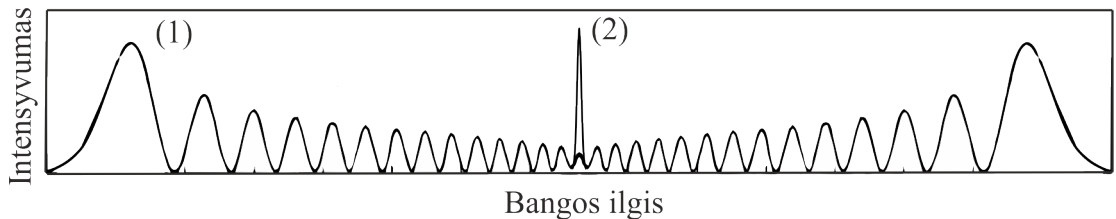
kur P yra pluošto galia, A - skerspjūvis, L - sklidimo atstumas. Dažnio moduliacija gaunama iš fazės prieaugio išvestinės pagal laiką:

$$\Delta\omega = -2\pi n_2 \frac{L}{\lambda_0 A} \frac{\delta P}{\delta t}. \quad (4)$$



2 pav. Netiesinio lūžio rodiklio sukeltas fazės prieaugis (a) ir momentinio dažnio pokytis (b) dėl fazinės savimoduliacijos.

Iš 2 paveikslo matyti, kad dažnio prieaugis turi du tos pačios vertės taškus skirtingais laiko momentais. Tai reiškia, jog spektre šios komponentės interferuos [15]. Spektras pavaizduotas 3 paveiksle.



3 pav. Impulso spektras po fazinės savimoduliacijos (1) ir pradinio Gauso impulso normuotas spektras (2) palyginimui.

1.3 Grupinių greičių dispersija

Įvairūs šviesos impulso dažnių komponentai terpėje jaučia skirtingą lūžio rodiklį $n(\omega)$. Taurus, jog impulsas yra bangų paketas, tai yra jo spektro plotis $\Delta\Omega$ yra daug mažesnis nei nešantysis dažnis ω_0 , įvairių impulso spektro komponentų bangos vektorius $k(\omega)$ galima skleisti Teiloro eilute:

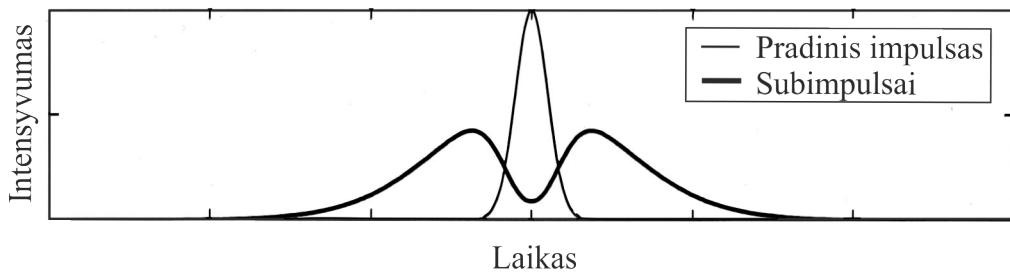
$$k(\omega) \approx k(\omega_0) + \frac{\Omega}{u(\omega_0)} + \frac{g(\omega_0)}{2}\Omega^2 + \frac{h(\omega_0)}{6}\Omega^3 + \dots, \quad (5)$$

kur dydžiai $u = \frac{d\omega}{dk}$, $g = \frac{d^2k}{d\omega^2}$ ir $h = \frac{d^3k}{d\omega^3}$ yra apskaičiuoti dažniui ω_0 . Dydis u žinomas kaip bangos grupinis greitis, g - grupinių greičių dispersijos koeficientas, o h parodo grupinių greičių dispersijos dispersiją. Tuomet bangos sklidimo lygtis dispersinėje terpėje yra tokia:

$$\frac{\partial A}{\partial z} = -\frac{1}{u_0} \frac{\partial A}{\partial t} + \frac{i}{2} g_0 \frac{\partial^2 A}{\partial t^2} + \frac{h_0}{6} \frac{\partial^3 A}{\partial t^3} + \dots \quad (6)$$

Jeigu dydis g yra teigiamas $g > 0$, grupinių greičių dispersija vadinama normaliąja, o esant $g < 0$ - anomaliąja. Plačios draustinės juostos dielektrikams normalioji grupinių greičių dispersijos sritis perkloja spektrinį diapazoną nuo ultravioletinės iki artimosios infraraudonos srities. Būtent tokia spinduliuotė yra naudojama šiame tiriamajame darbe.

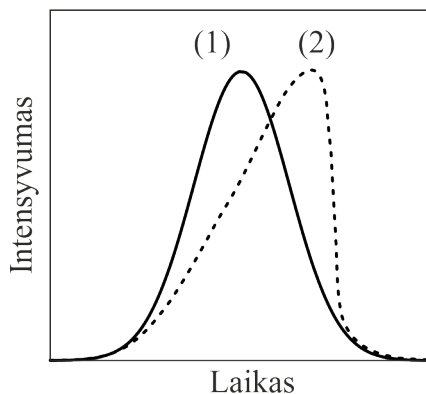
Pasireiškui fazinei savimoduliacijai impulso spektras išsiplėčia ir jį pradeda stipriau veikti grupinių greičių dispersija. Esant normaliai dispersijos sričiai raudonasis impulso kraštas juda greičiau pradinio impulso atžvilgiu, tuo tarpu mėlynasis lėčiau, ko pasekoje impulsas skyla į du subimpulsus [16, 17], kurių nešantieji dažniai yra perstumti pradinio dažnio atžvilgiu. Impulso skilimas yra vienas iš veiksnių, stabdančių tolimesnį pluošto fokusavimąsi. Jam įvykus impulso energija išsklaidoma laike [18]. Anomalios dispersijos srityje impulsas susispaudžia iki trukmių, mažesnių nei pradinis impulsas dėl skirtingo fazinės savimoduliacijos bei grupinių greičių dispersijos inėšamų čirpo ženglų [19].



4 pav. Impulso skilimas į du subimpulsus dėl grupinių greičių dispersijos.

1.4 Savaiminis impulsų statėjimas.

Norint plačiau aprašyti impulso sklidimą dispersinėje terpėje reikia atsižvelgti į medžiagos netiesinio lužio rodiklio n_2 inertškumą, o esant pakankamai trumpiems impulsams gaubtinės kvazistatinis sklidimas pradeda nebegaloti. Šių narių įskaitymas lemia grupinio greičio pokyčio, proporcingo $\frac{1}{|A|^2}$, atsiradimą. Tuomet impulso gaubtinės viršūnė ima judėti mažesniu grupiniu greičiu, tokiu būdu užbėgdama ant impulso galo. Susidaro labai staigus fazinis šuolis ir susikuria vadinamoji optinė smūginė banga.



5 pav. Optinės smūginės bangos susidarymas. Pradinė impulso gaubtinė (1) ir stataus šlaito pakrypusi gaubtinė (2).

Normalios grupinių greičių dispersijos srityje, įvykus impulso skilimui priekinis bei galinis subimpulsai patiria skirtingą savaiminį statėjimą. Tai paaiškina baltos šviesos kontinuumo spektro asimetriškumą [20]. Galinis, mėlynasis subimpulsas patiria labai staigų statėjimą galiniame sparne, impulso spektre atsiranda ilgas mėlinbangis sparnas su aiškiai išreikštu atkirtos dažniu. Priekinis, raudonasis subimpulsas statėja ne taip staigiai, todėl stebima kontinuumo raudonoji pusė išreikšta silpniau.

1.5 Daugiafotonė sugertis

Daugiafotonė sugertis tai procesas, kurio metu sugeriami du ir daugiau fotonų vienu metu. Ši sugertis vyksta per virtualius lygmenis, o sugerties eilė priklauso nuo medžiagos draustinės juostos tarpo bei fotonų energijos. Procesas yra neparimetrinis, nes paskutinysis sugertas fotonas iškelia elektroną į realų lygmenį taip pakeisdamas atomo būseną. Šviesos sklidimo metu nuostoliai dėl daugiafotonės sugerties aprašomi diferencialine lygtimi:

$$\frac{dI}{dz} = -(\alpha + \beta^{(K)} I^{K-1}) I, \quad (7)$$

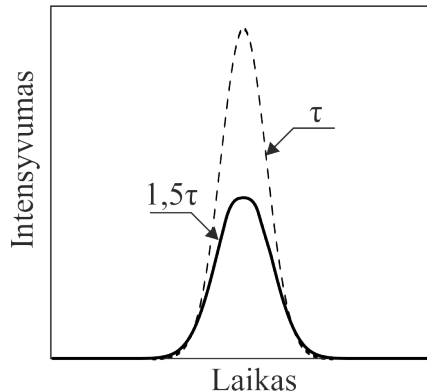
kur I yra šviesos intensyvumas, o β yra K -osios eilės sugerties koeficientas. Sugerties eilės koeficientas yra paprasčiausiai medžiagos draustinės juostos tarpo ir fotono energijos santykis $K = E_g / \hbar\omega$. Sugerties koeficientai β priklauso nuo menamos optinio jautrio dalies $Im(\chi)$. Tiesinė, vieno fotono, sugertis priklauso nuo pirmos eilės menamos optinio jautrio dalies $Im(\chi(1))$, tuo tarpu dvifotonė bei trifotonė sugertys priklauso nuo trečios $Im(\chi(3))$ bei penktos $Im(\chi(5))$ eiliės dalių atitinkamai [21]:

$$\beta^{(2)} = \frac{3\pi}{\epsilon_0 n^2 c \lambda} Im(\chi^{(3)}), \quad (8)$$

$$\beta^{(3)} = \frac{5\pi}{\epsilon_0^3 n^3 c^2 \lambda} Im(\chi^{(5)}). \quad (9)$$

Norint įvertinti aukštesnių eilių daugiafotonės sugertis reikia spręsti sudėtingesnius kvantinės mechanikos uždavinius.

Dėl virtualių lygmenų trumpos gyvavimo trukmės fotonai turi būti sugeriami tokiu dažnumu, kad elektronai nespėtų relaksuoti į pradinę būseną. Pirmą kartą daugiafotonę sugertį pavyko stebėti naudojant lazerinę spinduliuotę, nes paprastoje šviesoje fotonų tankis, tai yra šviesos intensyvumas per mažas. Šviesos impulsas patiria didžiausią daugiafotonę sugertį gaubtinės viršūnėje kur intensyvumas yra didžiausias. Tai lemia gaubtinės iškraipymą bei impulso trukmės didėjimą kaip pavaizduota 8 paveiksle.



6 pav. Impulso trukmės padidėjimas dėl daugiafotonės sugerties impulso gaubtinės viršūnėje.

Daugiafotonė sugertis, nepaisant jos sukeliamų iškreipimų bei nuostolių, turi daug pritaikymo sričių. Viena iš jų tai daugiafotonė spektroskopija galinti žadinti lygmenis, nepasiekiamus iš pagrindinio lygmens dėl atrankos taisyklių. Dvifotonė mikroskopija panaikina didelį foninį triukšmą nuo medžiagos sklaidos dėl dviejų priežasčių. Viena, medžiaga mažiau sklaido ilgabangėje srityje, o antra, dvifotonis sužadėjimas parinkus tinkamą intensyvumą vyksta tik sąsmaukos vietoje, tokiu būdu padidindamas jautrumą. Daugiafotonė sugertis ir jonizacija gali pažeisti medžiagą, o tai pakeičia jos lūžio rodiklio vertę. Tai gali būti naudojama informacijos išsaugojimui medžiagos tūryje. Daugiafotonė sugertis atlieka didelį vaidmenį generuojant baltos šviesos kontinuumą, iškreipdama impulso gaubtinės pavidalą, spektrą bei keisdama pluošto eigą.

1.6 Baltos šviesos kontinuumo generacija

Susiformavus šviesos gijoms intensyvumas išauga taip stipriai, jog šviesos saviveikos reiškiniai ir jų įtaką šviesos sklidimui nagrinėti atskirai darosi sunku, tačiau galima išskirti jų pasireiškimo eigą.

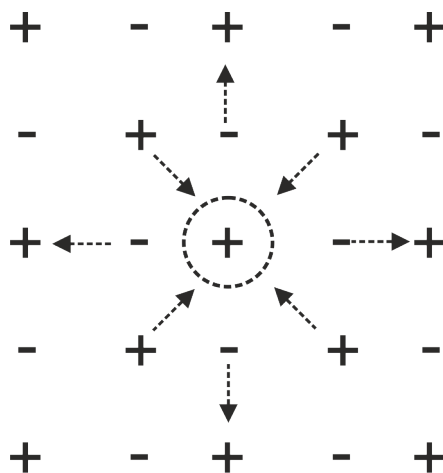
Pradžioje vyksta pluošto fokusavimasis, dėl to smarkiai išauga šviesos intensyvumas ir pradeda labiau pasireikšti kiti saviveikos reiškiniai. Vykstant fazinei savimoduliacijai impulso spektras po truputį plinta ir jį vis labiau veikia dispersiniai reiškiniai. Esant normaliai grupinių greičių dispersijos sričiai po fazinės savimoduliacijos impulsas plyšta į du subimpulsus. Šioje filamento stadijoje spektras yra išplitęs, tačiau baltos šviesos kontinuumo dar nėra. Didžiausią spektro išplitimą sukuria savaiminis impulso statėjimas, kuris akimirksniu išplėčia spektrą, taip sukurdamas superkontinuumą. Spektro asimetriškumas aiškinamas tuo, jog kiekvienas iš subimpulsų patiria skirtingą savaiminį statėjimą. Viso šio proceso metu pluoštas vis labiau fokusuojasi kol intensyvumas išauga iki verčių, kurioms esant pradeda reikštis daugiafotonė sugertis ir jonizacija. Medžiagoje sukuriama plazma, kuri defokusuoja pluoštą ir sustabdo tolimesnį fokusavimąsi. Nėgana to, pasireiškus daugiafotoniai sugerčiai impulso gaubtinė yra iškraipoma, o tai dar labiau išplėčia impulso spektrą. Tai ne vienintelis reiškinys stabdantis pluošto fokusavimąsi. Dėl grupinių greičių dispersijos impulsui skylant į subimpulsus energija centrinėje dalyje yra išsklaidoma laike, o tai taipogi sumažina fokusavimosi pasireiškimą. Šiems reiškiniams įvykus susiformuoja platus ir glotnus spektrinis pjedestalas.

Esant pakankamai didelėms energijoms, po pluošto defokusacijos, energija centrinėje dalyje yra vėl atstatoma dėl periferijoje susidariusios žiedinės pluošto struktūros difrakcijos. Prasideda antras fokusavimosi ciklas ir visi saviveikos reiškiniai pasireiškia dar kartą. Pirmojo fokusavimosi metu susidarę subimpulsai yra pastumti laike antrojo fokusavimosi metu susidariusių subimpulsų atžvilgiu. Dėl šios priežasties kontinuumo tiek laikiniame tiek erdviniam spektre atsiranda moduliacija. Didėjant pradinei šviesos energijai daugėja fokusavimosi - defokusavimosi ciklų kiekis, o kiekvienam ciklui įvykus spektruose matoma vis kitokia moduliacija.

Kontinuumo generacijos metu spektro plitimui įtaką daro ir keturbangis maišymasis, tačiau šis reiškinys yra susijęs su šiame darbe užblokuojama ir nematuojama kūgine kontinuumo dalimi, todėl apie keturbangį maišymąsi plačiau nekalbama.

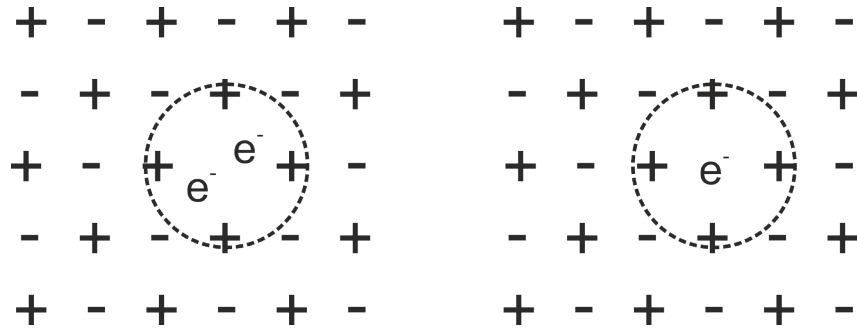
1.7 Liuminescencija

Priklausomai nuo žadinimo būdo, medžiagos spinduliavimas, dar žinomas kaip liuminescencija, gali būti skirtomas į fotoliuminescenciją, kuomet žadinama šviesa, radioluminescenciją - jonizuojančia spinduliuote, katodoluminescenciją - elektronų pluoštu bei daugelį kitų. Medžiagos žadinimas gali vykti selektyviai, parenkant reikiamą energijos kiekį pagal žadinamo spinduliavimo centro sugertį. Tokiu būdu iš liuminescencijos spektrų gaunama informacija ne tik apie lygmenis, susijusius su spinduliniais šuoliais, bet ir apie medžiagos sugertį bei energijos pernašą tarp jų. Dielektrikuose, naudojant didelės energijos spinduliuotę, viršijančią gardelės draustinės energijos tarpą, vyksta tiesioginis gardelės žadinimas - sukuriama elektrono ir skylės pora laidumo bei valentinėje juostose atitinkamai [22]. Gardelėje esančios priemaišos ar defektai, kurių energijos lygmenys patenka į draustinės energijos tarpą, gali pagauti nespėjusius rekombinuoti krūvininkus, tokiu būdu formuodami liuminescencinius centrus. Po krūvininko pagavimo, vykstant branduolių persiorientavimui, pavaizduotam 7 paveiksle, energija mažėja ir krūvininkas tampa lokalizuotas aplink minėtą defektą ar priemaišą.



7 pav. Elektrono pagavimas ties teigiamai įkrautu centru. Anijonai pavaizduoti minuso ženklų, katijonai pliuso, o elektronas apskritimu.

Plačiai žinomi kristalinės gardelės defektai yra spalviniai centrai. Tai anijonų arba katijonų vakansijose atsidūrę, krūvio neutralumą atstatantys, krūvininkai. Elektrono pagavimas anijono vietoje sukuria vadinamąjį F centrą, tuo tarpu katijono vietoje pagauta skylė vadinama V centru [23]. Vienas arba du elektronai pagauti anijono vakansijoje pavaizduoti 8 paveiksle. Spalviniai centrai būdingi tik kietiems kūnams, o jų kiekis, tipas ir liuminescencijos juostų pasireiškimas labai priklauso nuo medžiagos pagaminimo būdo, jos priešistorės bei priemaišų [24, 25]. Galimas šių defektų formavimas medžiagą švitinant greitais elektronais, neutronais ar jonais [12]. Pastebėta, jog gardelę legiruojant atitinkamais jonais, galima sukurti liuminescencinę apsaugą nuo defektų atsiradimo didelės energijos elektronų apšaudymo metu [26].



8 pav. Anijono vakansija ir joje pagauti elektronai.

Kita gardelės defektų rūšis yra pakeistinių atomų defektai, kuomet vienos rūšies atomai gardelėje patenka į kitos rūšies atomų vietą. A atomui atsidūrus B atomo vietoje, defektas žymimas A_B . Šių atomų elektroniniams lygmenims esant draustinės energijos juostoje, liuminescencijos spektre bus matomas papildomas, pakeistinių atomu, spinduliavimas. Taip pat aplink šiuos defektus galima eksitono lokalizacija, žymima $LE A_B$. Tuomet spinduliavimo spektre pasirodo dar viena juosta, tai yra lokalizuoto eksitono pakeistinio atomo defekte spinduliavimo juosta.

Ne visos gardelės sužadintos pagamina laisvus elektronus bei skyles. Esant stipriems joniniams junginiams laisvų krūvininkų saveikos energija pakankamai stipri, kad elektrono ir skylės delokalizacija nevyktų. Tokiu atveju ši pora vadinama eksitonu.

Laisvųjų jonų lygmenys yra žymimi ^{2S+1}L , kur S yra pilnutinis sukinių kvantinis skaičius, o L - pilnutinis orbitinis judesio kiekio momentas. L vertės gali įgyti reikšmes: 0 (žymima S), 1 (P), 2 (D), 3 (F), 4 (G) ir t.t. Šių lygmenų išsigimimas lygus $2L+1$ ir gali būti padidintas gardelės lauko. Gardelės lauko lygmenys žymimi ^{2S+1}X , kur X gali būti A (išsigimimo nėra), E (du kartus išsigimę), T (tris kartus išsigimę).

Vienas iš galimų medžiagos liuminescencinių centrų yra retieji žemės elementai. Jie charakterizuojami nepilnai užpildytu $4f$ apvalkalu. Jono viduje esanti orbitalė yra ekranuojama pilnai užpildytomis $5s^2$ bei $5p^6$ orbitalėmis, todėl gardelės įtaka optiniams šuoliams $4f^n$ yra maža, tačiau būtent dėl jos draustiniai šuoliai tarp šių lygmenų galimi. Matuojant sugerties bei spinduliavimo spektrus didesnių energijų srityje, stebimi dviejų tipų leistini retųjų žemės elementų šuoliai, tai yra $4f - 5d$ bei krūvio pernašos šuoliai. Pirmasis yra elektrono perėjimas iš $4f^n$ į $4f^{n-1}5d$, o antrasis, pernašos iš $4f^n$ į $4f^{n+1}L^{-1}$, kur L yra ligandas. Galimi ir krūvio pernašos iš ligando į metalą bei iš metalo į metalą šuoliai.

Pereinamųjų metalų atveju d^n apvalkalo ekranuojančios elektronų orbitalės nėra, todėl kristalo lauko įtaka jonų lygmenims yra stipriai išreikšta, o liuminescencijos spektrai platūs. Pavyzdžiui šiame darbe nagrinėjamo Ti^{3+} plačiajuostis spinduliavimas infraraudonojoje srityje vyksta dėl $^2E - ^2T_2$ šuolio.

Skirtingi medžiagos žadinimo būdai turi savo privalumų bei trūkumų. Žadinimui naudojant daleles, kurių energija iškarto viršija draustinės juostos tarpą, gaunama medžiagos liuminescencija yra paviršinė, todėl selektyvi tūryje esančių defektų ar priemaišų analizė yra neįmanoma.

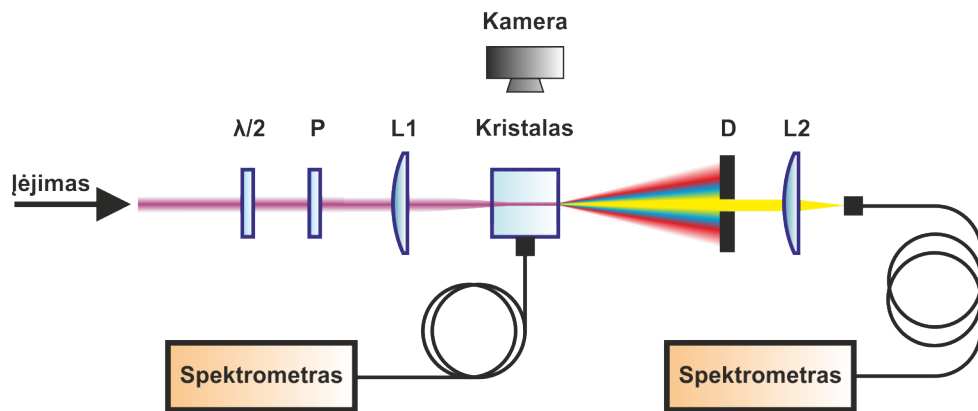
Neretai žadinimui naudojamas procesas gali būti pavojingas žmogui, todėl kuriant tokį medžiagos analizės prietaisą turi būti atsižvelgta į saugumą, o tai pareikalauja papildomų išlaidų bei kompleksškumo. Svarbu atsižvelgti į tai, ar žadinantysis mechanizmas paveikia medžiagą grįžtamai ar negrįžtamai, tai yra ar matavimas destruktivus ar ne.

Šviesos gijose vyksta daugiafotonė sugertis, kuri savo ruožtu indukuoja medžiagos fotoluminescenciją. Keičiant bandinio padėtį galima gauti informaciją apie medžiagos defektus bei priemaišas skirtingose tūrio vietose. Negana to, matavimas nepažeidžia bandinio, todėl jis yra nedestruktivus. Verta paminėti, jog darbo metu buvo pastebėta, kad gijų indukuotos fotoluminescencijos spektras kokybiškai nepriklauso nuo pradinio bangos ilgio, todėl medžiagos žadinimas gali vykti tiek į skaidrumo, tiek į priemaišų sugerties langus.

2 Eksperimentas

2.1 Optinė schema

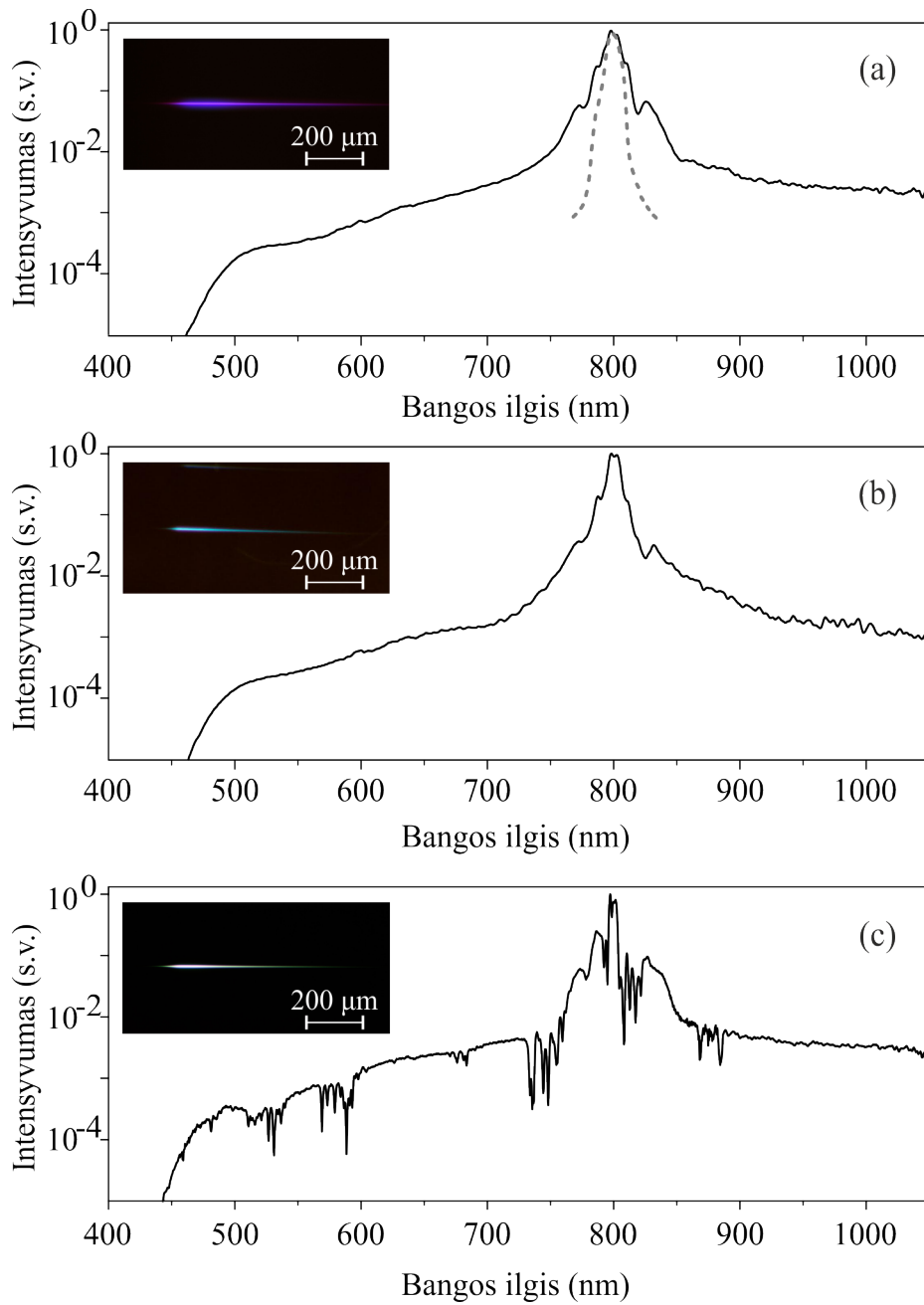
Eksperimente IAG kristalų žadinimui buvo naudojami Spitfire PRO lazerinės sistemos generuojami 800 nm bangos ilgio 110 fs trukmės impulsai 1 kHz pasikartojimo dažniu, o safyro žadinimui - 1030 nm bangos ilgio 300 fs trukmės impulsai 10 kHz pasikartojimo dažniu. Optinė schema pavaizduota 9 paveiksle. Šviesa praėjusi atenuatorių, kuris sudarytas iš $\lambda/2$ plokštelės ir poliarizatoriaus P , buvo fokusuojama į bandinio vidų 10 cm židinio nuotolio lęšiu $L1$. Bandiniai buvo 15 mm ilgio nelegiruotas IAG, 15 mm ilgio neodimio jonais legiruotas IAG, 4 mm ilgio iterbio jonais legiruotas IAG, 15 mm ilgio nelegiruotas safyro bei 15 mm ilgio titano jonais legiruotas safyro kristalai. Legiravimo laipsniai sudarė apie 5 procentus. Fotoluminescencijos registravimui šviesolaidis buvo pridedamas tiesiogiai prie bandinio nupoliruoto krašto. Baltos šviesos kontinuumo spektrams registruoti naudojami avantes Avaspec-3648 bei OceanOptics QE65000 spektrometrai. Išėjusi iš kristalo šviesa filtruojama nuo likusios kaupinimo spinduliuotės dielektrinių dangų veidrodžiu F ir kolimuojama lęšiu $L2$. Dėl keturbangio maišymo atsiradusi kūginė spinduliuotė buvo pašalinama diafragma D , o likusi ašinė spinduliuotė fokusuojama lęšiu $L3$ į spektrometro šviesolaidį.



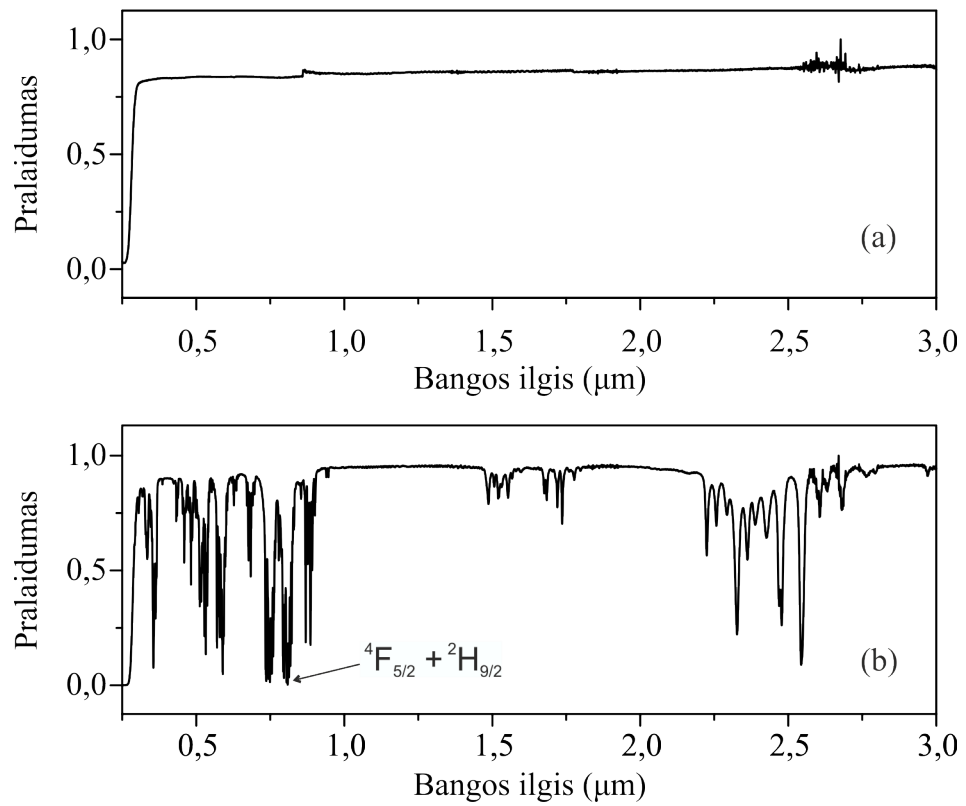
9 pav. Optinė schema

2.2 Kontinuumo spektrai

Išmatuoti kontinuumo spektrai pateikti 10 paveiksle. Kaupinimo energijos buvo parenkamos tokios, kad spektro pavidalai bei fokusavimosi gyliai skirtingiems kristalams būtų vienodi. Nelegiruoto ir iterbiu legiruoto IAG kristalų spektrai gauti naudojant tokios pačios, $0,4 \mu J$, energijos impulsus. Gauta spektrinė aprėptis identiška, o atkirtos bangos ilgis mėlynojoje pusėje 10^{-5} intensyvumo lygyje yra ties 465 nm . Kontinuumo spektrų raudonasis poslinkis tęsiasi toli už spektrometro detekcijos ribos. Tai patvirtinta naudojant infraraudonųjų bangų spektrometrą, Avantes AvaSpec-NIR256-2.5, tačiau rezultatai šiame darbe nepateikti. Neodimiu legiruoto kristalo atveju, norint kompensuoti žadinančios spinduliuotės sugertį į neodimio ${}^4F_{5/2}$ ir ${}^2H_{9/2}$ juostas ties 795 nm , 804 nm ir 808 nm [27], kontinuumas generuojamas naudojant 1,3 karto didesnės energijos impulsus. Tokiu būdu užtikrinama vienoda filamento pradžios padėtis. Spektre 10(c) matomos aiškiai išreikštos neodimio jonų sugerties linijos. Spektre 10(b), aplink $1 \mu m$ bangos ilgi, matomos iterbio jonų sugerties linijos, tačiau jos išreikštos mažiau, dėl plačiajuostės jonų sugerties bei mažesnio sugerties skerspjūvio [28]. Mėlynasis atkirtos bangos ilgis Nd:IAG kristale yra nežymiai pasislinkęs į trumpabangę stritį. Pirmame paveiksle esantys įterptukai vaizduoja šviesos filamento indukuotus fotoluminescencijos pėdsakus, užfiksuotus fotokamera pro bandynių šonus. Pralaidumo spektrai pavaizduoti 11 paveiksle.



10 pav. Nelegiruotame IAG kristale (a), Yb:IAG kristale (b) ir Nd:IAG kristale (c) sugeneruotų kontinuumų spektrai bei gijos indukuotas fotoluminescencijos pėdsakas esant vienam fokusavimosi ciklui, žadinant 110 *fs* trukmės 800 *nm* bangos ilgio impulsais. Punktyrine linija pavaizduotas normuotas pradinis kaupinimo spektras.



11 pav. IAG (a) ir Nd:IAG (b) kristalų pralaidumas, registruotas naudojantis Shimadzu UV-3101PC spektrofotometru.

2.3 IAG fotoluminescencija

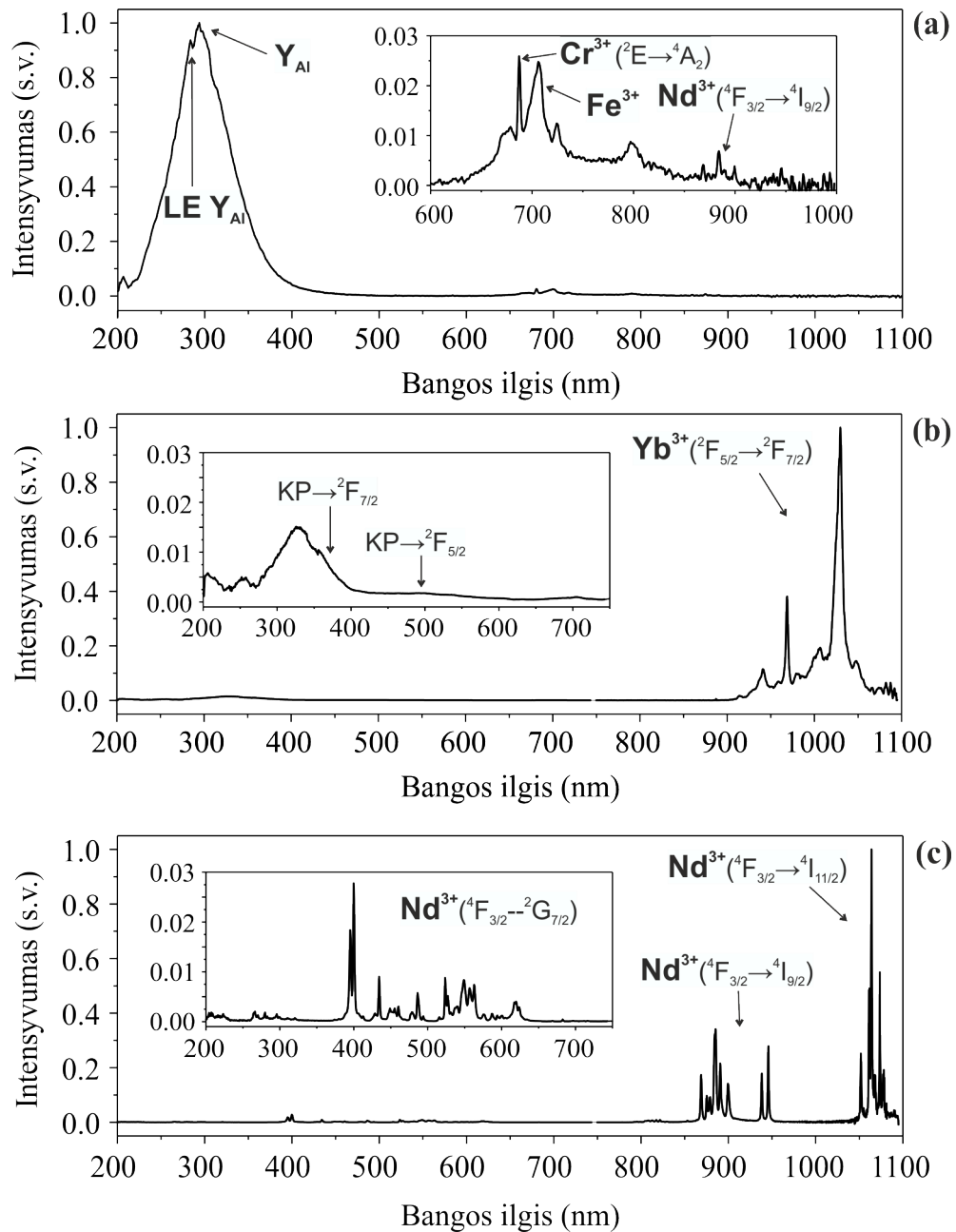
Šviesos gijomis indukuotos nelegiruoto IAG kristalo spinduliavimo spektre, pavaizduotame 12(a) paveiksle, išsiskiria dvi spinduliavimo juostos, ultravioletinėje bei infraraudonoje srityse. Intensyvus palačiajuostis spinduliavimas ultravioletinėje srityje, centruotas ties 300 nm , tęsiasi iki regimosios srities ir yra matomas plika akimi, kaip pavaizduota 10(a) paveikslo įterptuke. Jis priskiriamas aplink pakeistinių atomų defektus lokalizuotų eksitonų ($LE Y_{Al}$) bei pakeistinių atomų defektų (Y_{Al}) liuminescencijai. Aliuminio atomų pakeitimas iterbio atomais, žymimas Y_{Al} , yra energetiškai palankesnis negu Al_Y , todėl jų koncentracija yra didesnė [29]. Šis plačiajuostis spinduliavimas yra tipinis nelegiruotų IAG kristalų liuminescencijos spektrui [30]. Pakeistinių atomų pagrindinis elektroninis lygmuo susiformuoja arti laidumo juostos, drausti-niame energijos tarpe, dėl to jiems dažnas elektronų pagavimas.

Artimosios infraraudonosios spinduliuotės dalies atsiradimo priežastis galėtų būti įvairios priemaišos. Spinduliavimo juosta aplink 700 nm generuojama chromo jonų, su charakteringa siaura 688 nm smaile atsirandančiu dėl ${}^2E_2 - {}^4A_2$ šuolio [31]. Silpnas spinduliavimo smailė aplink 800 nm gali būti priskirtas geležies priemaišoms [32], tuo tarpu silpnos linijos aplink 900 nm - neodimio priemaišoms.

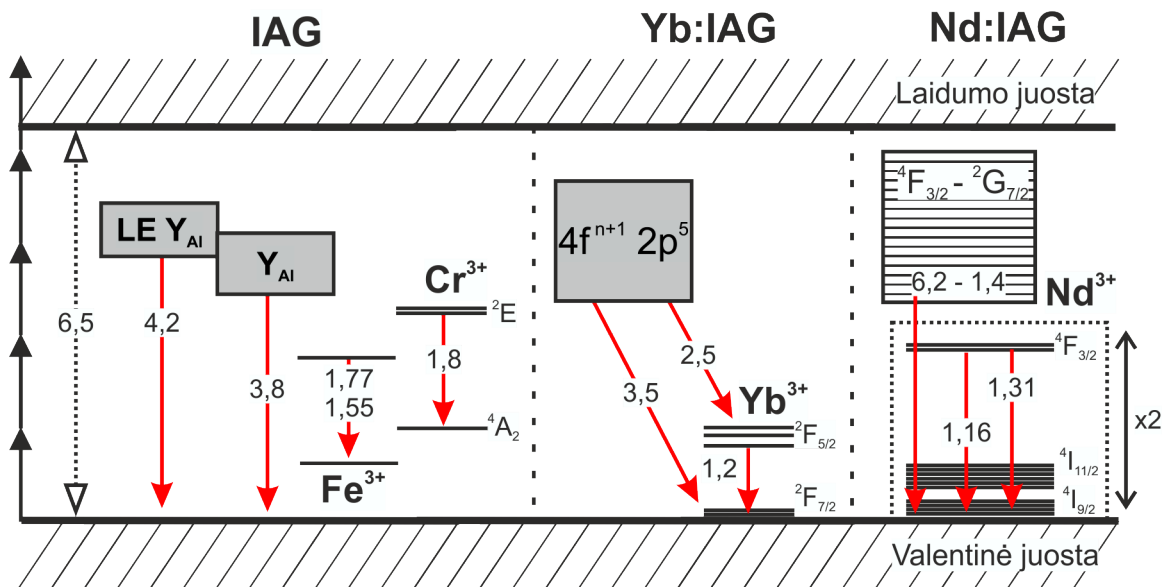
12(b) paveiksle pateiktas Yb:IAG kristalo fotoluminescencijos spektras. Matoma gerai žinoma iterbio jonų spinduliuotė ties $1,03\ \mu\text{m}$ bangos ilgiu atsirandanti dėl šuolio tarp $F_{7/2}$ ir $F_{5/2}$ iterbio lygmenų [33]. Liuminescencijos spektre pasireiškia ultravioletinės juostos ties 200 nm , 260 nm bei 350 nm . Pati intensyviausia iš jų yra 350 nm juosta, kuri tęsiasi iki regimosios srities ir dalinai persikloja su silpna spinduliuotės juosta, centruota aplink 500 nm . Pastaroji atsakinga už 10(b) paveikslo įterptuke matomą melsvą gijų švytėjimą. Šios persiklojančios spinduliavimo juostos priskiriamos iterbio krūvio pernašos (KP) liuminescencijai [34], o už jas atsakingi iš krūvio pernašos būsenos lygmens į iterbio $F_{7/2}$ ir $F_{5/2}$ lygmenis vykstantys šuoliai. Tuo tarpu kitų, 200 nm ir 260 nm , juostų prigimtis lieka neaiški. Pakeistinių atomų bei krūvio pernašos būsenos švytėjimo sunykimas gali būti aiškinamas trivalenčių retųjų žemės metalų sugertimi aplink šią spektro stritį [35] ir energijos pernaša nespinduliniais šuoliais į $F_{7/2}$ bei $F_{5/2}$ iterbio lygmenis. Išmatuotas fotoluminescencijos spektras gerai sutampa su sinchrotrono spinduliuote žadinamos liuminescencijos spektru.

Visai kitoks fotoluminescencijos spektras registruotas Nd:IAG kristale. Jis pavaizduotas 12(c) paveiksle. Švytėjimas pasireiškia žvilgia balta spalva, matoma 10(c) paveikslo įterptuke. Spektre išsiskiria intensyvios linijos ties 946 nm , dėl ${}^4F_{3/2} - {}^4I_{9/2}$ šuolio bei 1064 nm , dėl ${}^4F_{3/2} - {}^4I_{11/2}$ šuolio. Kitos liuminescencijos spektruose matomos linijos atitinkančios aukštesniu-sius neodimio elektroninius lygmenis šiame darbe detalai nenagrinėjamos, tačiau kokybiškai atitinka literatūroje pateiktas neodimio spinduliavimo linijas. Šio bandinio atveju spektrai lyginami su neodimio jonais legiruoto IAG katodoluminescencijos bei radioluminescencijos spektrais [7, 11].

Nelegiruoto bei legiruotų IAG kristalų energijos diagramos bei šuoliai tarp lygmenų pavaizduoti 13 paveiksle.

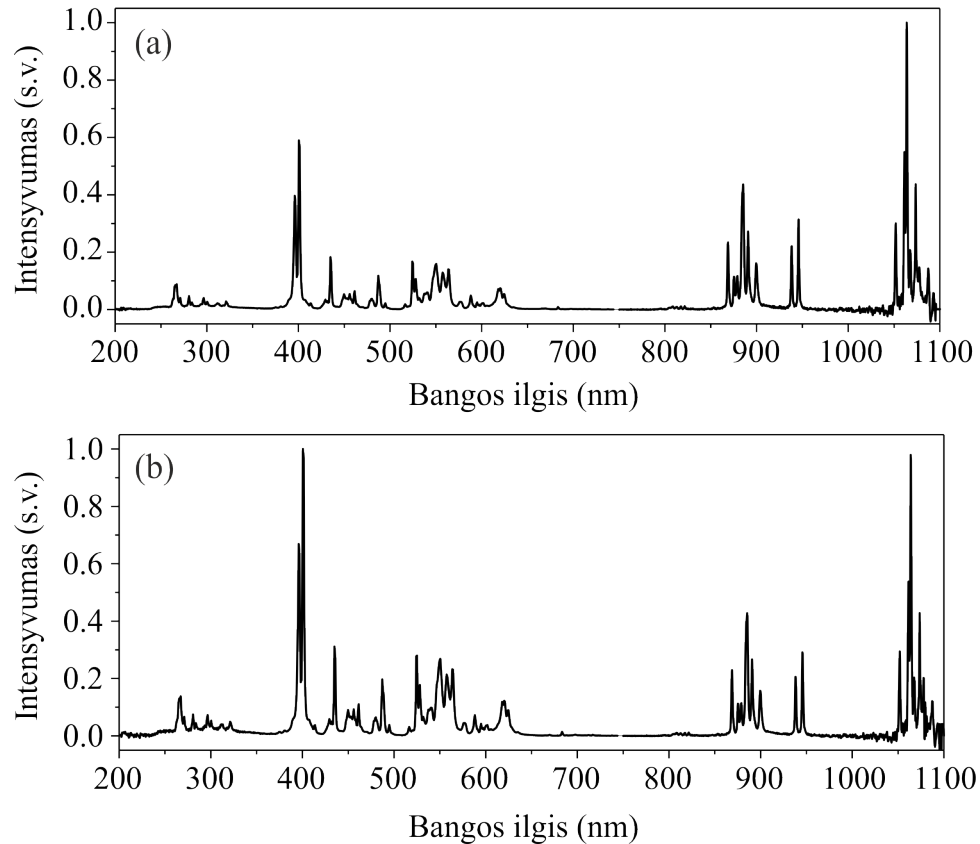


12 pav. IAG (a), Yb:IAG (b) ir Nd:IAG (c) kristalų fotoluminescencijos spektrai, gauti šviesos gijas formuojant 110 fs trukmės 800 nm bangos ilgio impulsais. Y_{Al} - pakeistinio atomo defektas, $LE Y_{Al}$ - lokalizuotas eksitonas pakeistinio atomo defekte, KP - krūvio pernašos būseną.



13 pav. IAG, Yb:IAG ir Nd:IAG energijos lygmenų diagrama. Raudonos rodyklės žymi fotoluminescencijos spektruose registruotus spindulinius šuolius, punktyrinės linijos - nespindulinius šuolius, skaičiais pažymėti energijų tarpai elektronvoltais.

Žadinimui šviesos gijomis neodimio jonų skaidrumo languose buvo pasirinkti bangos ilgiai ties 650 nm ir 1300 nm . Sugerties spektras pavaizduotas 11(b) paveiksle. Gauti Nd:IAG fotoluminescencijos spektrai, pavaizduoti 14 paveiksle struktūriškai tapatūs. Tai rodo, jog žadinimo mechanizmas yra identiškas ir nepriklauso nuo bangos ilgio, tuo tarpu žadinant 800 nm spinduliuote, kuomet pataikoma į sugerties linijos kraštą, spektre matoma sustiprinta artimoji infraraudonoji spektro dalis. Tai gali būti aiškinama neodimio jonų spinduliavimu dėl tiesinės sugerties.



14 pav. Nd:IAG kristalo normuoti fotoluminescencijos spektrai, gauti šviesos gijas formuojant 110 fs trukmės 650 nm (a) ir 1300 nm (b) bangos ilgių impulsais.

Nors žadinimo bei relaksacijos mechanizmai IAG kristaluose nėra iki galo suprasti [36], manoma, jog pradžioje, vykstant daugiafotonei sugerčiai, sukuriama laisvųjų elektronų plazma. Laisvi elektronai yra toliau greitunami impulso galinio fronto, o įgavę pakankamai kinetinės energijos žadina legirantus, priemaišas bei pačią kristalinę gardelę. Sužaditimai galiausiai relaksuoja liuminescencijos pavidalu.

2.4 Safyro fotoluminescencija

Literatūroje dažniausiai minimos nelegiruoto safyro kristalo liuminescencijos spektruose matomos spalvinių centrų spinduliavimo linijos [25, 37, 38]. Deguonies vakansijoje pagautų dviejų elektronų spalvinis centras, vadinamas F centru, charakterizuojamas mėlynu švytėjimu ties 420 nm , tuo tarpu vieno elektrono spalvinis centras, vadinamas F^+ centru, pasižymi 325 nm spinduliavimo juosta ultravioletinėje srityje. Jų sugerties bei spinduliavimo spektrai gali būti apibūdinami helio bei vandenilio atomų modeliais [39]. F centro pagrindinė būseną charakterizuoja 1S lygmeniu, o sužadintos būsenos - singletiniu 1P bei tripletiniu 3P lygmenimis. Šio defekto žadinimas pasireiškia šuoliu iš 1S į 1P , o dažniausiai registruojamas švytėjimas atsiranda dėl tripletinio - singletinio šuolio [40].

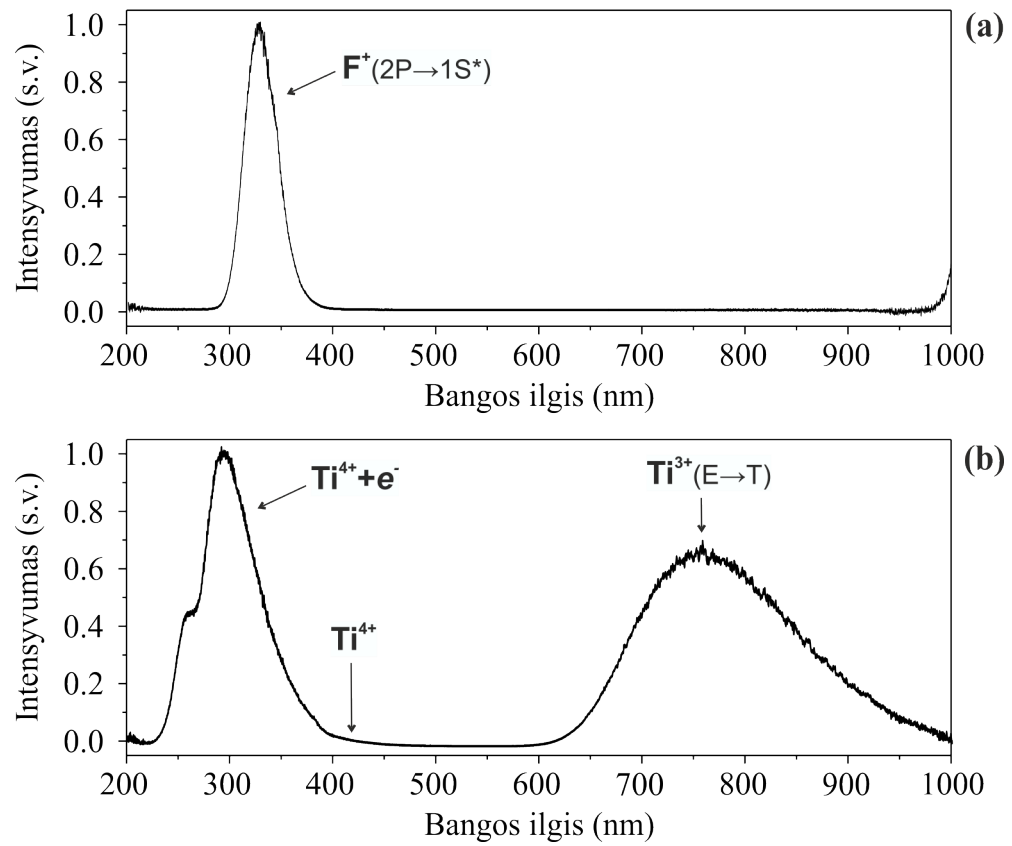
Šviesos gija indukuotos safyro kristalo liuminescencijos spektre, pateiktame 15(a) paveiksle, matoma juosta gerai atitinka F^+ centro kuriamos spinduliuotės smailės padėtį ties 325 nm , tačiau F centro spinduliuotė neregistruojama. Tai gali būti aiškinama keliais būdais. Literatūroje minima [41], jog spinduliuotės ties 325 nm ($3,8\text{ eV}$) prigimtis yra nevienareikšmė. Autoriaus teigimu, liuminescencinė juosta ties $3,8\text{ eV}$ atsiranda ne tik dėl F^+ centro, bet ir dėl galimai pagautos skylės Al_2O_3 kristale. Šį švytėjimą, autorius siūlo vadinti E - liuminescencija. Pagrindiniai skiriamieji bruožai yra daugiau nei penkis kartus ilgesnė trukmė $\tau = 20\text{ ns}$ bei platesnė juosta $\delta = 0,35\text{ eV}$, tuo tarpu F^+ centro $\tau = 4\text{ ns}$, o $\delta = 0,26\text{ eV}$. Šiame darbe pasireiškiosios spinduliavimo juostos plotis atitinka E - liuminescencijos juostos plotį. Taigi, vienas iš galimų švytėjimo nebuvimo mėlynojoje srityje paaiškinimų yra spalvinių centrų nebūvimas nagrinėtame bandinyje. Atsižvelgiant į tai, jog safyro kristaluose spalviniai centrai yra dažnai pasitaikantis defektas, o bandinys nebuvo specialiai ruošiamas jų koncentracijos mažinimui, teiginys, jog tirtame bandinyje F centrų nebuvo yra abejotinas. Tačiau galimi ir kitokie F centro liuminescencijos nebūvimo paaiškinimai.

Safyrą žadinant skirtingų energijų jonų pluoštais [12], pastebėta, jog keičiasi F bei F^+ centrų radioluminescencinio spinduliavimo pasireiškimo santykis. Didinat energiją F centro liuminescencija mažėja, o žadinant $2,4\text{ MeV Ar}^+$ pluoštu, visai pranyksta. Literatūroje minima tai, jog iš pirmo žvilgsnio patrauklus ir paprastas būdas paaiškinti F centro liuminescencijos nebūvimą teigiant, jog jonizuotas F centras virsta F^+ centru ir žadinamas emituoja ties $3,8\text{ eV}$, yra neteisingas. Šiam procesui reikalingos dvi, viena paskui kitą sekančios, energijos įnašos į deguonies vakansiją per laiką, trumpesnę nei vakansijos jonizacijos bei elektrono, esančio laidumo juostoje, lokalizacijos defekte laikus. Siūlomas kitas mechanizmas: gardelėje sužadinus elektrono bei skylės porą, šie migruodami sąveikauja su defektais. Skylės pagavimas F centre nulemia F^+ centro susikūrimą. Pastarasis sparčiai ($<10^{-12}\text{ s}$) pagauna elektroną ir tampa sužadintu F^* centru, tačiau šios būsenos trukmė ilga, dėl tripletinio - singletinio šuolio prigimties. Ilga gyvavimo trukmė padidina tikimybę skylei rekombinuoti per F^* centrą. Galiausiai lieka sužadintas F^{+*} centras. Tokio centro šuolis į pagrindinį lygmenį yra leistinas, todėl neužilgo išspinduliuojamas

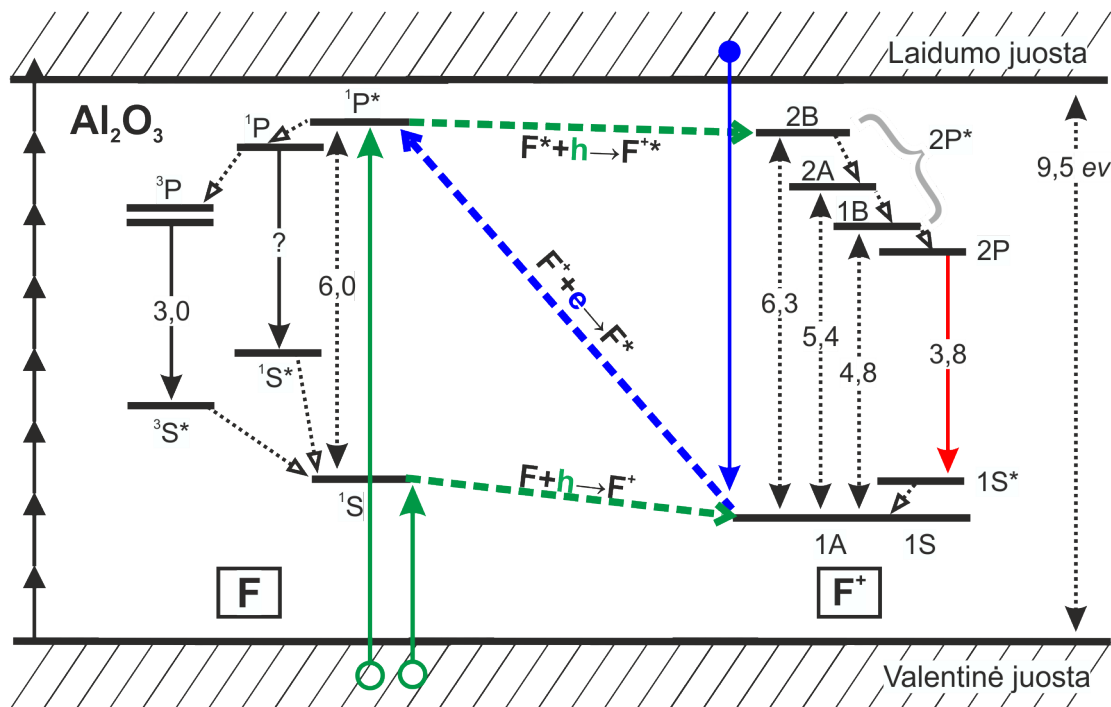
3,8 eV fotonas [10].

Titano jonais legiruoto kristalo švytėjimas, pateiktas 15(b) paveiksle, pasižymi dviem juostomis. Infraraudojoji, centruota ties 760 nm, juosta yra gerai atpažįstama titano jonų spinduliuotė, kuriama ${}^2E - {}^2T_2$ šuolio [42]. Ultravioletinės juostos prigimtis nėra tapati nelegiruotame kristale matomos juostos prigimčiai. Titanu legiruoto bandinio liuminescencijos spektre ji turi mėlynąjį poslinkį ir yra centruota ties 290 nm. Nėgana to, šios juostos spektro plotis ($\delta = 1,1$ eV) yra daugiau nei dvigubai didesnis nei nelegiruotame safyre ($\delta = 0,4$ eV). Ti^{3+} jonai Al_2O_3 gardelėje turi polinkį atiduoti elektroną, tokiu būdu būdami skylių gaudyklėmis. Didelės energijos žadinimas iškelia Ti^{3+} elektroną į laidumo juostą, o pastarojo pagavimas kokioje nors priemaišoje gali būti interpretuojamas kaip priemaišos centre pagauto eksitono ($Ti^{4+} + e^-$ (lokalizuotas)) būseną [8]. Taigi, 290 nm juosta yra Ti^{4+} jone ir defekte lokalizuoto eksitono rekombinacijos pasekmė. Titano infraraudonosios spinduliavimo srities žadinimo spektro pavidalas sutampa su 290 nm švytėjimo juostos žadinimo spektru, todėl galima spėti, jog eksitonas turi galimybę perduoti energiją Ti^{3+} spinduliniais d lygmenims. Spalvinių centrų kuriama liuminescencija titanu legiruotame safyre irgi nevienareikšmė. Manoma, jog mėlyną švytėjimą gali kurti ir Ti^{4+} krūvio pernašos centrai [43]. Abi šios spinduliuotės sritys pataiko į Ti^{3+} sugerties juostą, todėl galimai jos yra sugeriamos, o liuminescencijos spektre matomas tik nežymus jų kuriamas pjedestalas ties 420 nm.

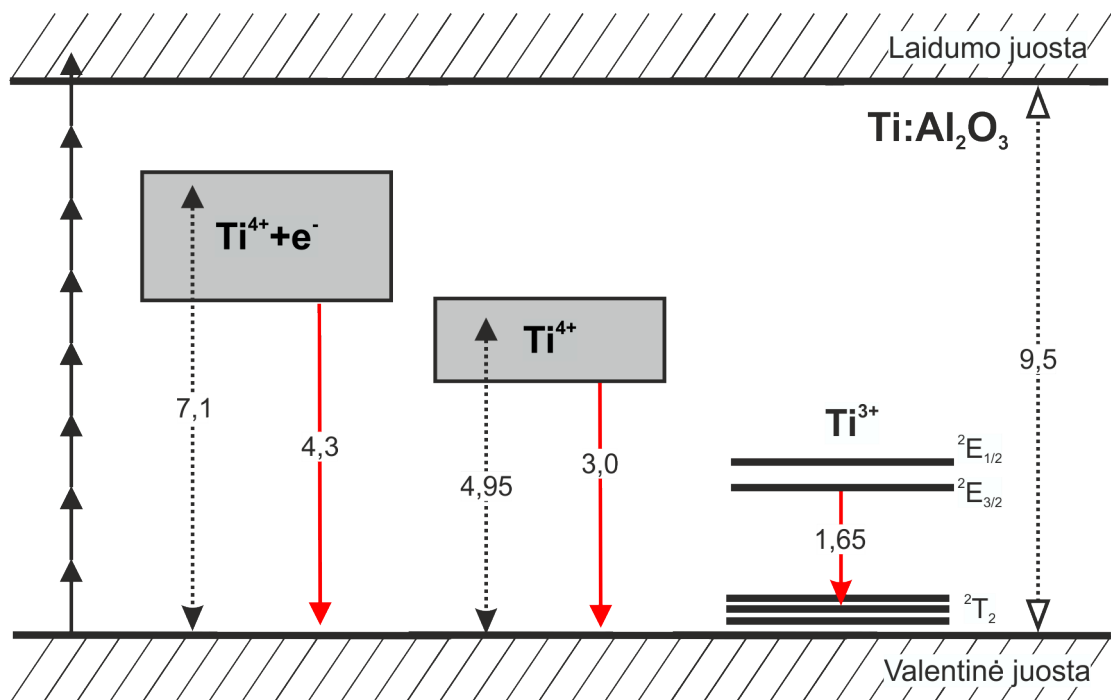
Nelegiruoto bei legiruoto safyro kristalų energijos diagramos bei šuoliai tarp lygmenų pa-vaizduoti 16 ir 17 paveiksluose atitinkamai.



15 pav. Al_2O_3 (a) ir $\text{Ti}:\text{Al}_2\text{O}_3$ (b) kristalų fotoluminescencijos spektrai, gauti šviesos gijas formuojant 300 fs trukmės 1030 nm bangos ilgio impulsais.



16 pav. Al_2O_3 energijos lygmenų diagrama. Juodos rodyklės žymi spindulinius šuolius nepasireiškusius fotoluminescencijos spektre, vienakryptės punktyrinės linijos - nespindulinius šuolius, dvikryptės punktyrinės linijos - energijų tarpus tarp lygmenų, raudona rodyklė - registruotą spinduliavimą, o mėlynos ir žalios rodyklės žymi elektronus bei skyles atitinkamai, skaičiais pažymėti energijų tarpai elektronvoltais.



17 pav. $\text{Ti:Al}_2\text{O}_3$ energijos lygmenų diagrama. Juodos rodyklės žymi sugerties šuolius, raudonos rodyklės - registruotas spinduliavimo juostas, skaičiais pažymėti energijų tarpai elektronvoltais.

Išvados

1. Kontinuumo, generuojamo nelegiruotame, neodimiu legiruotame bei iterbiu legiruotame IAG kristaluose, spektro plotis ir pavidalas yra vienodi, o neodimio jonų sugertis žadinančiai spinduliuotei tik padidina energiją, reikalingą kontinuumo generacijai.
2. Formuojant šviesos gijas skirtingų bangos ilgių impulsais, gaunami fotoluminescencijos spektrai struktūriškai identiški, todėl žadinimas galimai vyksta dėl daugiafotonės sugerties sukuriamų laisvųjų krūvininkų, kurie savo ruožtu sužadina medžiagos defektų bei priemaišų lygmenų struktūras.
3. Šviesos gijų indukuotos fotoluminescencijos spektras, tirtuose bandiniuose, atitinka energingų dalelių bei gilios ultravioletinės spinduliuotės žadinamus liuminescencijos spektrus, todėl galėtų būti naudojamas kaip pigus, efektyvus ir nedestrukcinis medžiagų analizės metodas.

Literatūros sąrašas

- [1] A. Dubietis, E. Gaižauskas, G. Tamošauskas, P. Di Trapani, Light Filaments without Self-Channeling, *Phys. Rev. Lett.* **92**, 253903 (2004).
- [2] V. Jukna, G. Tamošauskas, G. Valiulis, M. Aputis, M. Puida, F. Ivanauskas, A. Dubietis, Filamentation of ultrashort light pulses in a liquid scattering medium, *Appl. Phys. B* **94**(1), 175–179 (2009).
- [3] I. Gražulevičiūtė, M. Skeivytė, E. Keblytė, J. Galinis, G. Tamošauskas, A. Dubietis., Supercontinuum generation in YAG and sapphire with picosecond laser pulses, *Lith. J. Phys.* **55**(2), 110–116 (2015).
- [4] J. Galinis, G. Tamošauskas, I. Gražulevičiūtė, E. Keblytė, V. Jukna, A. Dubietis, Filamentation and supercontinuum generation in solid-state dielectric media with picosecond laser pulses, *Phys. Rev. A* **92**, 033857 (2015).
- [5] G. A. Slack, D. W. Oliver, R. M. Chrenko, S. Roberts, Optical absorption of $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ from 10- to 55 000- cm^{-1} wave numbers, *Phys. Rev.* **177**, 1308–1314 (1969).
- [6] J. Guo, D. E. Ellis, D. J. Lam, Electronic structure and energetics of sapphire (00-01) and (1102) surfaces, *Phys. Rev. B* **45**, 13647–13656 (1992).
- [7] A. Borghesani, C. Braggio, G. Carugno, F. Chiossi, M. Guarise, Cathodo- and radioluminescence of Tm^{3+} :YAG and Nd^{3+} :YAG in an extended wavelength range , *J. Lumin.* **190**, 29 – 36 (2017).
- [8] V. B. Mikhailik, H. Kraus, D. Wahl, M. S. Mykhaylyk, Luminescence studies of Ti-doped Al_2O_3 using vacuum ultraviolet synchrotron radiation, *Appl. Phys. Lett.* **86**(10), 101909 (2005).
- [9] T. Yanagida, Y. Fujimoto, M. Miyamoto, H. Sekiwa, Optical and scintillation properties of Cd-doped ZnO film, *Jpn. J. Appl. Phys.* **53**(2S), 02BC13 (2014).
- [10] A. Moroño, E. Hodgson, On the origin of the F+ centre radioluminescence in sapphire, *J. Nucl. Mat.* **249**(2), 128 – 132 (1997).
- [11] E. Aleksanyan, M. Kirm, S. Vielhauer, V. Harutyunyan, Investigation of luminescence processes in YAG single crystals irradiated by 50 MeV electron beam, *Radiat. Meas.* **56**, 54 – 57 (2013).
- [12] A. A. Ghamdi, P. Townsend, Ion beam excited luminescence of sapphire, *Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B* **46**(1), 133 – 136 (1990).

- [13] 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, L. Wöste, Infrared extension of the supercontinuum generated by femtosecond terawatt laser pulses propagating in the atmosphere, *Opt. Lett.* **25**(18), 1397–1399 (2000).
- [14] A. P. Stabinis, G. Valiulis, *Ultratrumpų šviesos impulsų netiesinė optika* (TEV, 2008).
- [15] F. Shimizu, Frequency Broadening in Liquids by a Short Light Pulse, *Phys. Rev. Lett.* **19**, 1097–1100 (1967).
- [16] P. Chernev, V. Petrov, Self-focusing of light pulses in the presence of normal group-velocity dispersion, *Opt. Lett.* **17**(3), 172–174 (1992).
- [17] J. K. Ranka, R. W. Schirmer, A. L. Gaeta, Observation of Pulse Splitting in Nonlinear Dispersive Media, *Phys. Rev. Lett.* **77**, 3783–3786 (1996).
- [18] A. Jarnac, G. Tamosauskas, D. Majus, A. Houard, A. Mysyrowicz, A. Couairon, A. Dubietis, Whole life cycle of femtosecond ultraviolet filaments in water, *Phys. Rev. A* **89**, 033809 (2014).
- [19] T. K. Gustafson, J. P. Taran, H. A. Haus, J. R. Lifshitz, P. L. Kelley, Self-Modulation, Self-Steepening, and Spectral Development of Light in Small-Scale Trapped Filaments, *Phys. Rev.* **177**, 306–313 (1969).
- [20] A. L. Gaeta, *Spatial and Temporal Dynamics of Collapsing Ultrashort Laser Pulses* (Springer New York, New York, NY, 2009), 399–411.
- [21] R. W. Boyd, Chapter 12 - Optically Induced Damage and Multiphoton Absorption, in R. W. Boyd (ed.), *Nonlinear Optics* (Academic Press, Burlington, 2008), 543 – 560, Third edition.
- [22] G. F. Knoll, *Radiation detection and measurement; 4th ed.* (Wiley, New York, NY, 2010).
- [23] A. M. Stoneham, Theory of solid-state defects, *MRS Bulletin* **16**(12), 22–26 (1991).
- [24] A. Hakanen, E. Laine, M. Latva, T. Ala-Kleme, K. Haapakka, Quenching of cathodic electrogenerated f-center luminescence of aluminium oxide by lanthanide cations at the electrode/electrolyte interface, *J. Alloy. Compd.* **275-277**, 476 – 479 (1998).
- [25] N. A. Kulagin, Radiative color centers in doped sapphire crystals, *Opt. Spectrosc.* **101**(3), 402–409 (2006).

- [26] V. Makhov, A. Lushchik, C. Lushchik, M. Kirm, E. Vasil'chenko, S. Vielhauer, V. Harutunyan, E. Aleksanyan, Luminescence and radiation defects in electron-irradiated Al_2O_3 and $\text{Al}_2\text{O}_3:\text{Cr}$, Nucl. Instrum. Methods Phys. Res., Sect. B **266**(12), 2949 – 2952, radiation Effects in Insulators (2008).
- [27] L. X. Li, W. C. Wang, C. F. Zhang, J. Yuan, B. Zhou, Q. Y. Zhang, 2.0 μm $\text{Nd}^{3+}/\text{Ho}^{3+}$ -doped tungsten tellurite fiber laser, Opt. Mater. Express **6**(9), 2904–2914 (2016).
- [28] F. Trager, *Springer Handbook of Lasers and Optics* (Springer, 2008).
- [29] Y. Zorenko, A. Voloshinovskii, V. Savchyn, T. Voznyak, M. Nikl, K. Nejezchleb, V. Mikhailin, V. Kolobanov, D. Spassky, Exciton and antisite defect-related luminescence in $\text{Lu}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ and $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ garnets, Phys. Status Solidii (b) **244**(6), 2180–2189 (2007).
- [30] V. Murk, N. Yaroshevich, Exciton and recombination processes in YAG crystals, J. Phys. **7**(29), 5857 (1995).
- [31] H. Yagi, T. Yanagitani, H. Yoshida, M. Nakatsuka, K. Ueda, The optical properties and laser characteristics of Cr^{3+} and Nd^{3+} co-doped $\text{Y}_3\text{Al}_5\text{O}_{12}$ ceramics, Opt. Laser Technol. **39**(6), 1295 – 1300 (2007).
- [32] C. R. Varney, S. M. Reda, D. T. Mackay, M. C. Rowe, F. A. Selim, Strong visible and near infrared luminescence in undoped YAG single crystals, AIP Adv. **1**(4), 042170 (2011).
- [33] L. D. DeLoach, S. A. Payne, L. L. Chase, L. K. Smith, W. L. Kway, W. F. Krupke, Evaluation of absorption and emission properties of Yb^{3+} doped crystals for laser applications, IEEE J. Quantum Electron. **29**(4), 1179–1191 (1993).
- [34] L. van Pieterse, M. Heeroma, E. de Heer, A. Meijerink, Charge transfer luminescence of Yb^{3+} , J. Lumin. **91**(3), 177 – 193 (2000).
- [35] G. Blasse, B. C. Grabmaier, *A General Introduction to Luminescent Materials* (Springer Berlin Heidelberg, Berlin, Heidelberg, 1994), 1–9.
- [36] A. G. Okhrimchuk, V. K. Mezentsev, H. Schmitz, M. Dubov, I. Bennion, Cascaded non-linear absorption of femtosecond laser pulses in dielectrics, Laser Phys. **19**(7), 1415–1422 (2009).
- [37] S. A. Mikhnov, V. É. Grinkevich, Thermal transformation of color centers in neutron-irradiated sapphire, J. Appl. Spectrosc. **56**(2), 177–181 (1992).
- [38] S. Kulmala, T. Ala-Kleme, A. Hakanen, K. Haapakka, F-Centre luminescence from oxide-covered aluminium cathode induced by two-step reduction of peroxydisulfate anions, J. Chem. Soc., Faraday Trans. **93**, 165–168 (1997).

- [39] B. D. Evans, A review of the optical properties of anion lattice vacancies, and electrical conduction in α -Al₂O₃: their relation to radiation-induced electrical degradation, *J. Nucl. Mat.* **219**, 202 – 223 (1995).
- [40] S. La, R. Bartram, R. Cox, The F⁺ center in reactor-irradiated aluminum oxide, *J. Phys. Chem. Solids* **34**(6), 1079 – 1086 (1973).
- [41] P. Kulis, Z. Rachko, M. Springis, I. Tale, J. Jansons, Defect assisted intrinsic luminescence in Al₂O₃ crystals, *Radiat. Eff. Defect. S.* **119-121**(2), 963–968 (1991).
- [42] L. E. Bausa, I. Vergara, F. Jaque, J. G. Sole, Ultraviolet laser excited luminescence of Ti-sapphire, *J. Phys. Condens. Matter* **2**(49), 9919 (1990).
- [43] P. Page, B. Dhabekar, B. Bhatt, A. Dhoble, S. Godbole, Role of Ti⁴⁺ in the luminescence process of Al₂O₃:Si,Ti, *J. Lumin.* **130**(5), 882 – 887 (2010).

ŠVIESOS GIJŲ INDUKUOTOS LIUMINESCENCIJOS NELEGIRUOTUOSE IR
LEGIRUOTUOSE IAG IR SAFYRO KRISTALUOSE TYRIMAS

Santrauka

Intensyviai šviesai sklindant skaidria terpe, dėl netiesinių reiškinių, susijusių su medžiagos trečiojo laipsnio poliarizuojamumu $\chi^{(3)}$, stipriai pakeičiamos jos laikinės bei erdvinės savybės. Šis netiesinis vyksmas praplėčia impulso spektrą iki baltos šviesos kontinuumo ir suformuoja šviesos giją, kuri savo kelyje dėl daugiafotonės sugerties indukuoja medžiagos liuminescenciją.

Darbe pademonstruota, jog žadinimo spinduliuotės sugertis neodimiu legiruotame IAG kristale baltos šviesos kontinuumo generacijos nesustabdo, o gautas spektro pavidalas struktūriškai identiškas nelegiruotame IAG kristale generuojamo kontinuumo spektrui.

Šviesos gijos indukuotos liuminescencijos tyrimas nelegiruotuose ir legiruotuose IAG bei safyro kristaluose parodė, kad žadinamos medžiagos spinduliavimo spektras identiškas katodo-, radio- bei jonų pluoštu žadinamos liuminescencijos spektrams ir teikia informaciją apie energijos perdavimą įterptiems legirantams, priemaišoms bei pačiai kristalinei gardelei ir joje esantiems defektams. Negana to, liuminescencinis spinduliavimas kokybiškai nepriklauso nuo žadinimo bangos ilgio, o keičiant tiriamo bandinio padėčių pluošto atžvilgiu galima žadinti selektyviai ir nustatyti legirantų, priemaišų bei defektų padėtį. Darbo rezultatai rodo, jog šviesos gijų indukuota liuminescencija gali pasitarnauti kaip greitas, paprastas ir nedestruktyvus skaidrių dielektrikų analizės metodas.

Domas Kudarauskas

FILAMENT-INDUCED LUMINESCENCE IN DOPED AND UNDOPED YAG AND SAPPHIRE CRYSTALS

Summary

High intensity light propagating in transparent medium forms light filaments which result in strong spatial, temporal and spectral reshaping of the pulse, generates supercontinuum and induces luminescence in its path via multiphoton absorption.

It is shown that supercontinuum generation in doped crystals is not suppressed by absorption of dopants. Spectrum contains absorption lines of ions, but in general it appears similar as in undoped crystal.

On the other hand, analysis of filament-induced luminescence in doped and undoped YAG and sapphire crystals revealed that the emission spectrum is identical to radio-, cathodo- and ion beam luminescence spectra and can provide information on the energy deposition to embedded dopants, impurities and the crystal lattice itself. Furthermore, it is shown that the qualitative features of emission are independent of the excitation wavelength. By moving specimen relatively to filament, it is possible to selectively excite and locate defects, dopant or impurities. The results suggest that filament-induced luminescence can serve as a fast, simple, non-destructive spectroscopic analysis technique for transparent dielectrics.

Results of this work are published by American Institute of Physics. Citation: "D. Kudarauskas, G. Tamošauskas, M. Vengris, and A. Dubietis, Filament-induced luminescence and supercontinuum generation in undoped, Yb-doped, and Nd-doped YAG crystals, *Appl. Phys. Lett.* 112, 041103 (2018);".