

# PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM

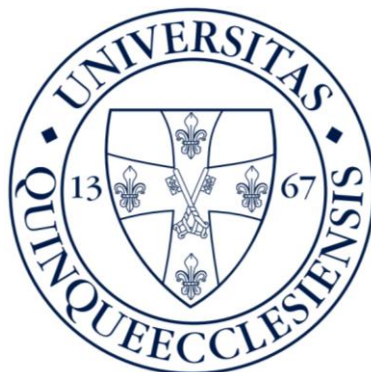
Fizika Doktori Iskola  
Nemlineáris optika és spektroszkópia program

## Extrém nagy hatásfokú félvezető anyagú terahertzes források

PhD értekezés

Polónyi Gyula

Témavezető:  
Dr. Fülöp József



Pécs, 2018.

# Tartalomjegyzék

1.	Bevezetés .....	3
2.	Előzmények .....	5
2.1.	THz-es források .....	5
2.1.1.	Fotokonduktív antenna.....	5
2.1.2.	THz-keltés gáz plazmákban .....	6
2.2.	Optikai egyenirányítás .....	8
2.2.1.	Döntött impulzusfrontú gerjesztés .....	12
2.2.2.	A THz-es energia növelésének korlátai .....	15
2.3.	THz-es impulzusok detektálási módszere .....	21
2.4.	Nagy energiájú THz-es impulzusok .....	22
2.5.	Optikai egyenirányításon alapuló THz-keltés félvezetőkristályokkal.....	25
3.	Motiváció, célkitűzés.....	29
4.	Eredmények.....	31
4.1.	Félvezető anyagának megválasztása .....	31
4.1.1.	Elméleti modell.....	36
4.1.2.	Összehasonlítás a háromfotonos abszorpciós határhullámhossznál rövidebb és hosszabb pumpálás esetén.....	39
4.2.	Kontaktrácsos félvezető THz-es forrás.....	42
4.3.	Extrém nagy hatásfokú félvezető THz-forrás.....	55
4.4.	Négyfotonos abszorpciós együttható ZnTe-ban .....	59
4.5.	További lehetőségek a félvezető anyagú THz-es források hatásfokának növelésére	63
4.5.1.	Cink-tellurid (ZnTe).....	63
4.5.2.	Gallium-foszfid (GaP).....	67
5.	Összefoglalás .....	71
5.1.	Tézispontok .....	73
6.	Summary.....	75
6.1.	New Scientific Results.....	77
7.	Köszönetnyilvánítás .....	79
8.	Saját publikációk .....	80
8.1.	Az értekezéshez kapcsolódó saját publikációk.....	80
8.2.	Egyéb publikációk .....	82
9.	Irodalomjegyzék .....	84

# 1. Bevezetés

A terahertzes (THz) sugárzás az elektromágneses spektrum 0,1 – 100 THz-es frekvenciatartományába esik. Ez a tartomány óriási érdeklődésre tart számot az olyan alkalmazási lehetőségek között, mint a képalkotás és spektroszkópia például az orvosi diagnosztikában, szélessávú kommunikáció, biztonságtechnika, nem-destruktív anyagvizsgálat, vagy éppen részecskegyorsítás [1, 2, 3, 4, 5]. A THz-es sugárzás a mikrohullámok és az infravörös sugárzás közé esik és mindkét tartomány tulajdonságai közül találhatunk benne. A THz-es sugárzásnak ez az átmeneti természete, ami hidat képez elektronika és fotonika között, tette a kutatások fontos területévé az alkalmazások széles körében.

Ma már hétköznapiak számító femtoszekundumos lézerekkel rutinszerűen állítanak elő THz-es impulzusokat példátlan impulzusenergiával és elektromos- és mágneses csúcstérerősséggel. A THz-es tartomány különböző régiói érhetők el az alacsony frekvenciáktól (~0,1 – 2 THz) a középfrekvenciákig (~2 – 20 THz) optikai egyenirányítás útján, nemlineáris optikai anyagok segítségével. A magasabb frekvenciatartományok (~20 – 100 THz) elérhetők különbségi frekvenciakeltéssel, optikai parametrikus erősítéssel és kétszínű lézerekkel keltett THz-es sugárzással, gáz plazmából.

Az alacsony frekvenciájú THz-es tartományban az optikai egyenirányítás biztosította eddig a legnagyobb impulzusenergiákat [6] és térerősségeket [7, 8] lítium-niobát ( $\text{LiNbO}_3$ , LN) kristályban, döntött-impulzusfrontú gerjesztéssel. Azonban a módszer korlátait ismerve komoly akadálynak tűnik a kinyerhető THz-es energia további növelése. A legfőbb ok a fázisillesztéshez szükséges nagy impulzusfront-döntési szög (~63°). Középes frekvenciákon az optikai egyenirányítás szerves kristályokban hozhat létre nagy térerősségeket és energiákat [9].

A félvezetők, mint cink-tellurid (ZnTe), vagy gallium-foszfid (GaP), LN-hoz hasonló módon az alacsonyabb frekvenciájú THz-es tartományban bocsátanak ki THz-es sugárzást optikai egyenirányítást alkalmazva. LN-tal ellentétben nem szükséges impulzusfront-döntés a fázisillesztéshez a hagyományos lézerhullámhosszakon, mint 800 (ZnTe) vagy 1000 (GaP) nm, viszont jóval alacsonyabb hatásfokkal működnek és jóval kisebb impulzusenergiákat szolgáltatnak.

Munkámban félvezető THz-es források kísérleti és elméleti vizsgálatán keresztül szeretném megmutatni, hogy képesek a LN-hoz hasonló hatásfokok és energiák elérésére, és megfelelő körülmények között túl is szárnyalhatják azokat az egyre bővülő alkalmazások igényeihez igazodva.

A dolgozat tartalma a nemlineáris optika témakörébe tartozik, ami az optikának az a területe, ahol az anyag válasza a külső térre, a térerősséget taylor-sorba fejtve, a másodrendű, vagy magasabbrendű tagjaival írható csak le. Számos fizikai folyamat tartozik ide az optikai egyenirányítástól az önfázismodulációig, amelyeket a felbukkanásuk helyén igyekszem megmagyarázni. Ahol ez megakasztaná a gondolatmenetet, ott a magyarázat a lábjegyzetbe került. Ahol másképpen nem jelölöm, a hatásfok alatt a THz-energia és a pumpáló energia hányadosát értem, impulzushossz alatt pedig az impulzus időbeli félértékszélességét.

## 2. Előzmények

Ebben a fejezetben áttekintünk néhányat a THz-keltés módszerei közül, ismertetem a THz-es impulzusok jelalakjának detektálási módszerét, megnézzük a nagy energiájú- és határfokú THz-keltéshez szükséges fizikai folyamatokat, majd a további fejlesztés akadályait, bemutatom az eddig publikált alacsony frekvenciájú THz-es forrásokat, végül ismertetem az eddigi tapasztalatokat optikai egyenirányításon alapuló félvezető anyagú THz-keltéssel.

### 2.1. THz-es források

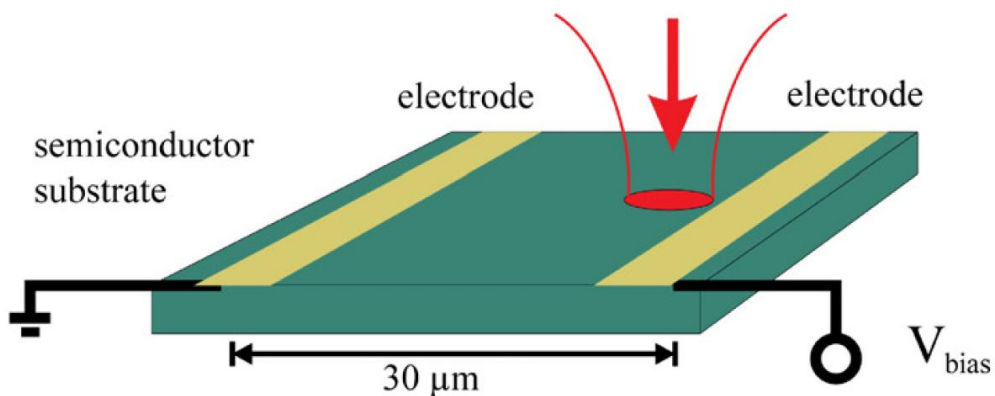
Számos különböző mechanizmust használtak már THz keltésre, emiatt csoportosíthatjuk őket aszerint, hogy elektronok gyorsításán, vagy nemlineáris anyagok felhasználásán alapulnak, de akár aszerint is, hogy impulzus- vagy folytonos üzeműek. A legelterjedtebb impulzusüzemű források a fotokonduktív kapcsolók (antennák) [10,11], a gázban keltett plazmán [12], illetve elektro-optikai kristályokban másodrendű nemlineáris effektuson [13] alapuló előállítási módok.

#### 2.1.1. Fotokonduktív antenna

A fotokonduktív kapcsolók voltak az első eszközei a  $\mu\text{J}$ -nyi energiájú egy-ciklusú THz-es impulzusok előállításának egy femtoszekundumos lézerezősítő forrásból [14]. Ennél a technikánál egy előfeszített félvezető eszközt az ún. Auston kapcsolót elektromosan rövidre zárnak egy femtoszekundumos lézerimpulzussal. A fotokonduktív kapcsolók egy rövid töltés élettartamú félvezető anyagból (általában GaAs vagy zafír hordozón szilícium réteg) és egy arany vagy alumínium alapú elektróda struktúrából állnak, amik között egy  $10\ \mu\text{m}$  nagyságrendű rés található (1. ábra). Az elektróda tipikusan 10-50 V feszültséggel van előfeszítve, amelynek hatására egy pár kV/cm-es térerősség jön létre a kapcsolón. Amikor a

lézermimpulzus eléri az előfeszített rést a félvezetőn, szabad-töltéshordozók keletkeznek, és rögtön gyorsítódnak is az előfeszített tér hatására. Ez az ultragyors áramlökés egy pikoszekundumos, egyciklusú, koherens elektromágneses impulzust hoz létre, aminek a térerőssége  $E_{THz} \propto d^2J/dt^2$ , ahol  $J$  az áramsűrűség [15]. Ez az impulzus részben az elektróda mentén terjed, részben pedig a szabad tér felé. A polarizációs arány, nevezetesen a THz-es térnek az előfeszített tér irányába eső komponens osztva az erre a térre merőleges irányú komponenssel általában jobb, mint 100:1-hez.

A fotokonduktív kapcsolókkal elérhető THz-es sáv szélességet a THz-es abszorpció és a hordozóban lévő diszperzió korlátozza. Félvezetőkben a fonon rezonanciák, azaz a rácsrezgés saját frekvenciái dominánsak, például GaAs-nél a transzverzális optikai fonon rezonancia 8 THz-nél ( $268 \text{ cm}^{-1}$ ) van, emiatt a THz-es spektrum nem is megy afölé.



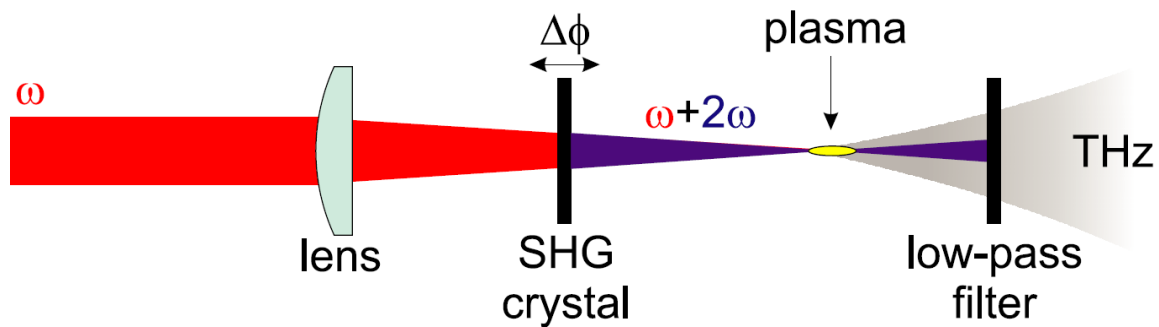
1. ábra Fotokonduktív kapcsoló sematikus rajza. A piros nyíl az optikai impulzus útját mutatja [16]

### 2.1.2. THz-keltés gáz plazmákban

Ígéretes technika nagyon rövid, egyciklusú, nagy térerősségű THz-es impulzusok előállítására a femtoszekundumos lézerekkel keltett plazmában történő THz-keltés. Előnye, hogy a sugárzónak nincs roncsolási küszöbe, mert a gáz target folyamatosan cserélődik és az elérhető THz-es sáv szélesség csak a pumpáló lézer impulzushosszától függ, mivel nem kell anyagi abszorpciót, mint például optikai fononokat figyelembe venni.

Ha egy femtoszekundumos lézerimpulzust gázba fókuszálunk, és a küszöbintenzitás meghaladja a  $\text{TW}/\text{cm}^2$  nagyságrendjét, akkor plazma keletkezik. Ez a plazma koherens és nem koherens sugárzás széles spektrumát bocsátja ki. Lézerplazmával keltett THz-es frekvenciájú koherens távoli-infravörös sugárzást először Hamster és társai publikáltak 1993-ban TW-os lézerekkel [12]. Cook és társai [17] azáltal, hogy femtoszekundumos  $\omega$  központi frekvenciájú impulzusokat keverték a  $2\omega$  frekvenciájú másodharmonikusaikkal a gáz plazmában, több nagyságrendnyi határfok növekedést értek el. 2007-ben Kim és társai  $1 \times 10^{-4}$  határfokot és  $5 \mu\text{J}$  THz-es energiát publikáltak [18].

A legelterjedtebb elrendezésben (2. ábra), a 800 nm-es femtoszekundumos lézerimpulzus lefókuszálódik egy gáz targetbe, hogy plazmát keltsen. A fókusz előtt elhelyeznek egy másodharmonikus-keltő kristályt, hogy létrehozza a 400 nm-es fényt. A kétszínű tér miatt létrejött eredő tér aszimmetrikus áramot kelt, ami létrehozza a THz-es sugárzást. A THz-keltés érzékeny a relatív fázisra az alap és a másodharmonikus között. Ezt kétféleképpen szokták finomhangolni, vagy a másodharmonikus kristályt mozgatják a terjedési irány mentén, hogy a gáz diszperzióját hasznosítsák, vagy pedig egy retardációs lemezt használnak. A plazmát létre lehet hozni akár levegőben is, de mivel a benne lévő vízpára abszorpciója csökkenti a THz-es sugárzást, ezért nemesgázokat használnak nagy ionizációs aránnyal (Kr vagy Xe). A gáz nyomása szintén befolyással bír a THz-keltés határfokára. Egy szisztematikus tanulmány foglalkozik különböző pumpáló energiák és nyomások hatásaival a THz-keltésre [19]. Ezt a fajta THz-es forrást jellemzően nagy sávzélességű spektroszkópiai célokra használják.



2. ábra THz-keltés kétszínű lézertér által létrehozott plazmában.  $\Delta\phi$  jelzi a relatív fázist az alap és másodharmonikusa között, ami a másodharmonikus kristály mozgásával változtatható [16].

## 2.2. Optikai egyenirányítás

Egy alternatív mechanizmus az impulzusüzemű THz-keltésre az optikai egyenirányítás, ami egy másodrendű nemlineáris optikai folyamaton, a lézerimpulzus frekvencia komponensei közötti különbségifrekvencia-keltésen alapul. Femtoszekundumos lézerimpulzusok szükségesek, de a fotokondukciónál szemben, ahol az optikai nyaláb csak a trigger szerepét tölti be, az optikai egyenirányításnál a THz-es sugárzás energiája közvetlenül a gerjesztő lézerimpulzusból jön.

Az optikai egyenirányítás széles körben elterjedt módszer femtoszekundumos lézerekkel történő ultrarövid THz-es impulzusok előállítására. Optikai egyenirányítást először KDP és K\*DP kristályokkal demonstráltak 1962-ben egy 100 ns-os impulzusokat előállító 694 nm-en működő rubin lézertel [20]. 1971-ben megjósolták [21] majd megvalósították [22] az optikai egyenirányítás felhasználásával előállított távoli-infravörös sugárzást pikoszekundumos impulzusokkal LiNbO<sub>3</sub>-ban (LN).

Az optikai egyenirányítás egy másodrendű nemlineáris optikai folyamat, ami egyetlen femtoszekundumos pumpáló impulzus spektrális komponensei közötti különbségi frekvenciakeltésen alapul. A pumpáló impulzus által indukált nemlineáris polarizáció a következőképpen számolható:



$$P_{NL}(\Omega) = \epsilon_0 \chi^{(2)} \int_0^\infty E(\omega + \Omega) E^*(\omega) d\omega, \quad (1)$$

ahol  $\epsilon_0$  a permittivitás szabad térben,  $\chi^{(2)}$  az anyaghoz tartozó másodrendű nemlineáris szuszceptibilitás,  $E(\omega)$  a pumpáló impulzus  $\omega > 0$  Fourier-komponense,  $\omega$  az optikai frekvencia és  $\Omega$  a THz frekvencia. Az (1) egyenlet alapján a keskeny sáv szélességű pumpáló impulzus csak alacsony THz-es frekvenciákat kelthet, míg a széles sáv szélességű optikai impulzus széles THz-es spektrumot kelthet, ami magasabb THz-es frekvenciákat is tartalmaz.

A nemlineáris polarizáción túl az anyagban felépülő THz-es térre az anyag diszperziója is hatással van. Az optikai egyenirányítás hatásfoka akkor maximális, ha a

$$\Delta k(\Omega) = k(\Omega) + k(\omega) - k(\omega + \Omega) = 0 \quad (2)$$

fázisillesztési feltétel teljesül [23]. Mivel optikai egyenirányításnál  $\Omega \ll \omega$ , ezért a  $k(\omega + \Omega) - k(\omega)$  közelíthető  $\partial k / \partial \omega|_{\omega_0} \cdot \Omega$ -val, ami  $\Delta k = [n(\Omega) - n_g(\omega_0)] \Omega / c$ -t ad kollineáris THz-keltés esetén. Itt  $\omega_0$  a pumpáló impulzus központi frekvenciája,  $c$  a fénysebesség vákuumban,  $n$  és  $n_g$  pedig a törésmutató és a csoport-törésmutató. Emiatt a fázisillesztés felírható úgy is, hogy a keltett THz-es sugárzás fázissebessége  $v(\Omega)$  legyen egyenlő az optikai pumpáló impulzus csoportsebességével  $v_g(\omega_0)$ :

$$v(\Omega) = v_g(\omega_0). \quad (3)$$

Amennyiben a sebességillesztés teljesül és a THz-es tartományban elhanyagolható a diszperzió, az eredmény egy THz-es impulzus, aminek az elektromos terét az optikai pumpáló impulzus burkolójának időbeli deriváltja határozza meg [24]. Gauss-alakú pumpáló impulzusok burkolója esetén ezáltal egyciklusú THz-es impulzusok kelthetők.

Ha a fázisillesztési feltétel teljesül, és elhanyagoljuk a pumpáló impulzus abszorpcióját és gyengülését, de figyelembe vesszük a THz-es abszorpciót, akkor a hatásfok felírható az alábbi képlettel [23]:

$$\eta_{\text{THz}} = \frac{2\Omega^2 d_{\text{eff}}^2 L^2 I}{\epsilon_0 n_{\text{NIR}}^2 n_{\text{THz}} c^3} \cdot \exp\left[-\frac{\alpha_{\text{THz}} L}{2}\right] \cdot \frac{\sinh^2\left[\frac{\alpha_{\text{THz}} L}{4}\right]}{\left[\frac{\alpha_{\text{THz}} L}{4}\right]^2}, \quad (4)$$

$d_{\text{eff}}$  az effektív nemlineáris koefficiens,  $L$  az anyag hossza,  $I$  a pumpáló impulzus intenzitása,  $\alpha_{\text{THz}}$  az anyag THz-es frekvenciákon vett abszorpciója,  $n_{\text{NIR}}$  és  $n_{\text{THz}}$  a pumpáló hullámhosszon és a THz-es frekvenciákon vett törésmutatók. A (4)-es egyenlet felhasználható különböző nemlineáris anyagok összehasonlítására az optikai egyenirányítás hatásossága szempontjából. Ehhez célszerű a jósági tényezőt (JT) (Figure Of Merit) az alábbi módon definiálni [25]:

$$JT = \frac{4d_{\text{eff}}^2}{n_{\text{NIR}}^2 n_{\text{THz}} \alpha_{\text{THz}}^2}. \quad (5)$$

Az 1. táblázat tartalmazza néhány optikai egyenirányításra gyakran használt kristály legjelentősebb paramétereit. Az optikai egyenirányításra legelterjedtebben használt anyag a ZnTe, aminek az elektro-optikai koefficiensét csak a CdTe (81,8 pm V<sup>-1</sup>) a LN (168 pm V<sup>-1</sup>) és néhány organikus kristály, pl.: a DAST-nak nevezett, (490 pm V<sup>-1</sup>) haladja meg. Legnagyobb előnye, hogy a sebességillesztési feltétel jó közelítéssel teljesül kollineáris elrendezésben, titán-zafir lézerek hullámhosszán pumpálva, és kiválóan alkalmas alacsony frekvenciájú THz-es sugárzás keltésére. Hátránya, hogy erős kétfotonos abszorpcióval rendelkezik 800 nm-en, ami szabad töltéshordozók keltéséhez vezet, ez pedig a THz-es abszorpciót növeli. Emiatt a használható pumpáló intenzitás limitált, ami komoly megszorítás nagy energiájú THz-es impulzusok előállításában [26].

Nagyon hasonló a helyzet GaP esetén is, ami egy szintén gyakori félvezető kristály a THz-keltés területén, valamennyivel kisebb elektro-optikai koefficienssel. A sebességillesztés kollineáris elrendezésben teljesül körülbelül 1  $\mu\text{m}$  pumpáló hullámhossz esetén, azaz Yb alapú szilárdtest lézerek jellemző hullámhosszán, azonban ebben az esetben is a kétfotonos abszorpció limitálja a hasznos pumpáló intenzitást.

Anyag	$d_{\text{eff}}(\text{pm V}^{-1})$	$n_{1.7 \mu\text{m}}^{\text{g}}$	$n_{\text{THz}}$	$\alpha_{\text{THz}}(\text{cm}^{-1})$	JT ( $\text{pm}^2 \text{cm}^2 \text{V}^{-2}$ )
GaP	24,8	3,12	3,34	0,2	0,72
GaAs	65,6	3,53	3,61	0,5	4,21
ZnTe	68,5	2,79	3,16	2	7,27
LN	168	2,18	4,94	17	16,6
DAST	490	2,1	2,48	50	35

1. Táblázat – Néhány optikai egyenirányításra alkalmas anyag paramétereit. A THz-es törésmutató  $n_{\text{THz}}$  és az abszorpciós koefficiens  $\alpha_{\text{THz}}$  1 THz-es fázisillesztés esetén értendő [25].

Manapság a sztöchiometrikus  $\text{LiNbO}_3$  (sLN) kristály vált széles körben elterjedté nagyenergiájú THz-es impulzusok előállítására az optikai egyenirányítás segítségével. Amellett, hogy nagy effektív nemlinearitással rendelkezik, ami a második legnagyobb jósági tényezővel rendelkező anyaggá teszi a DAST után, a LN tiltott sáv szélessége sokkal nagyobb, mint a félvezetőké, emiatt 800 nm-es pumpálás esetén csak a háromfotonos vagy magasabb rendű abszorpció érvényesül. Ez teszi lehetővé, hogy nagy intenzitású impulzusokkal lehessen pumpálni, ami esszenciális a nagyenergiájú THz-es impulzusok előállítására. Ahogy az a táblázatból látható, LN THz-es törésmutatója jóval nagyobb, mint az optikai csoport-törésmutatója, emiatt a kollineáris sebességillesztés nem lehetséges. Periodikusan polarizált LN-okkal kvázi-fázisillesztéssel növelhető a konverziós hatások. Ezzel a módszerrel többciklusú THz-es impulzusok állíthatók elő [27, 28] adott ciklusszámmal. Vastag LN-ban nagy konverziós hatásfokú, egyciklusú THz-es impulzusok keltése döntött impulzusfrontú gerjesztés technikájával érhető el nem-kollineáris sebességillesztéssel, ami a következő szakaszban kerül kifejtésre.

### 2.2.1. Döntött impulzusfrontú gerjesztés

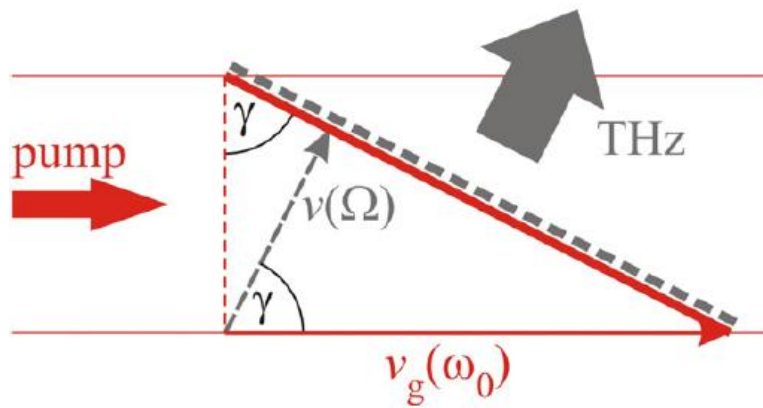
Az optikai egyenirányítással előállított THz-keltéshez tartozik a döntött impulzusfrontú gerjesztés, amelynek ötlete és első demonstrálása Hebling Jánoshoz és csoportjához kapcsolódik, akik 2002-ben publikáltak nagy hatásfokú fázisillesztéssel keltett THz-es impulzusokat LN-ban [29]. Ez az eljárás tette lehetővé a THz energia és térerősség jelentős növelését közel fél mJ-ig és MV/cm-ekig [6]. Az elrendezés működésének alapja az, hogy a pumpáló impulzus impulzusfrontja a fázisfrontjához képest döntve van. A döntött impulzusfront mentén keltett THz-es sugárzás, Huygens elve alapján, az impulzusfrontra merőlegesen terjed  $v(\Omega)$  sebességgel (3. ábra). Ez egy nem-kollineáris geometriájú fázisillesztéshez vezet, ahol a THz-es sugárzás és a pumpáló impulzus terjedési iránya közötti szög megfelel a pumpáló impulzus döntött frontja és a pumpáló impulzus fázis frontja (ami merőleges a terjedés irányára) közötti  $\gamma$  döntési szögnek. A THz hullám a pumpáló impulzusfronthoz képest fix fázissal terjed, ha a következő sebességillesztési feltétel teljesül:

$$v_g(\omega_0) \cos \gamma = v(\Omega). \quad (6)$$

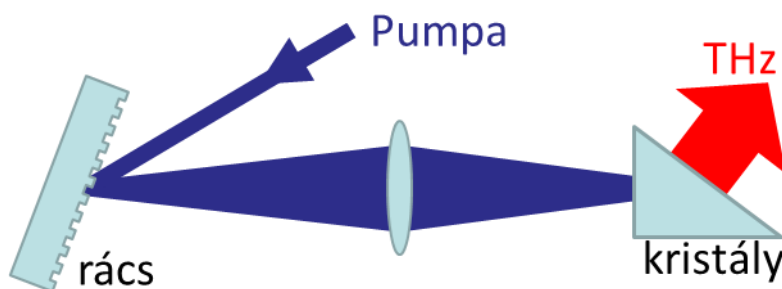
LN esetében, ahol  $v_g(\omega_0) \geq v(\Omega)$ , vagy ezzel ekvivalens módon  $n_g(\omega_0) \leq n(\Omega)$ , a (6) egyenlet teljesíthető megfelelő  $\gamma$  impulzusfront-döntési szög megválasztásával. Megjegyezzük, hogy a (6) egyenlet által megadott sebességillesztési feltétel ekvivalens egy (2) egyenletből fakadó nem-kollineáris fázisillesztési feltétellel [25]. Az alábbi egyenlet:

$$\tan \gamma = \frac{n(\omega_0)}{n_g(\omega_0)} \omega_0 \left( \frac{d\epsilon}{d\omega} \right) \Big|_{\omega_0} \quad (7)$$

összekapcsolja az impulzusfront döntést a szögdiszperzióval  $\left( \frac{d\epsilon}{d\omega} \right) \Big|_{\omega_0}$ , ahol  $\epsilon$  a deviációs szög a belépő és a kilépő sugár között. Az impulzusfront döntést egy diszperzív elem, pl.: egy prizma vagy egy rács segítségével hozhatjuk létre (4. ábra).



3. ábra Sebességillesztés impulzusfront-döntést alkalmazva. A vastag piros vonal a pumpáló impulzus impulzusfrontját jelzi, a vastag szürke a THz fázisfrontját. A vékony nyilak ezen frontok terjedési irányait és sebességét jelzik. forrás:[16]



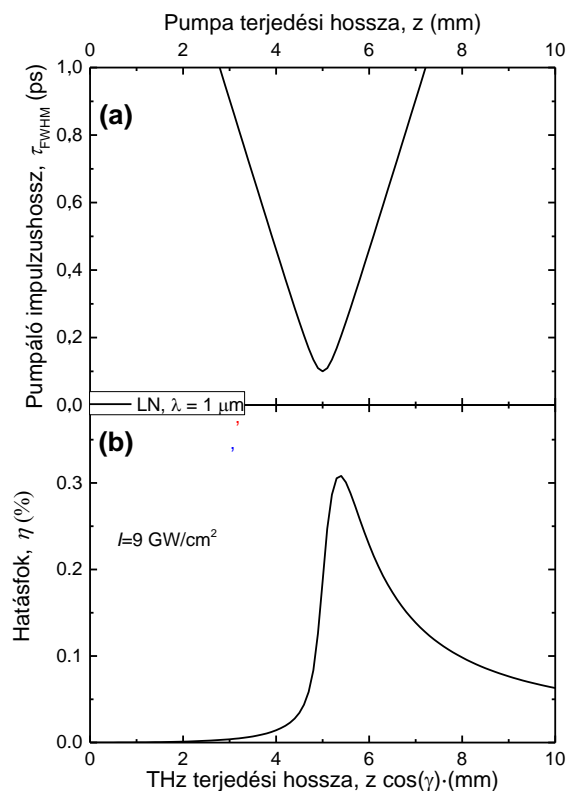
4. ábra Döntött impulzusfrontú elrendezés sematikus rajza

$n(\Omega)$  és  $n(\omega_0)$  közötti nagy különbség miatt a sebességillesztési feltétel teljesüléséhez  $62^\circ$ - $64^\circ$ -os impulzusfront döntés szükséges LN-ban. Ekkora döntési szög előállításához a kísérletekben optikai rácsot és általában lencsét is alkalmaznak a döntött impulzusfrontú elrendezésekben. A rács által létrehozott szögdiszperziót a lencse megfordítja, és újraalkotja az eredeti rövid impulzushosszat az anyagban azáltal, hogy a rács felületét a kristályba képezi le.

Az impulzusfront döntésével járó szögdiszperzióknak fontos következménye, hogy – nagy döntési szög esetén – a pumpáló impulzushossz számottevő változását okozza a terjedés során. Numerikus számolásokkal szeretném megmutatni az impulzushossz megváltozását a kristályban és a THz-keltés határfokának alakulását LN-ban, melyekkel egy másik fontos mennyiséget, az effektív kölcsönhatási hosszt vezetem be.

A 5. ábra (a) része a pumpáló impulzus időbeli hosszának megváltozását mutatja a nemlineáris anyagban való terjedés következtében. Ha a pumpáló impulzus frekvenciáját időben megfelelőképpen moduláljuk (csörpöljük az impulzust), akkor az impulzushossz az anyag közepén éri el a minimális hosszát, így maximálisan kihasználható az optimális impulzushossz. A domináns impulzusnyújtó hatás a szögdiszperzióból adódó csoportsebesség diszperzió, ami  $\text{tg}^2(\gamma)$ -tel arányos.

A 5. ábra (b) része a kapcsolódó THz-es tér felépülését mutatja a THz-keltés hatásfokával kifejezve. A legszembeütőbb, hogy a THz-es tér jelentős növekedést csak ott mutat, ahol a pumpáló impulzushossz a legközelebb van a Fourier-limithez. Fourier-limitátnak nevezzük az impulzust, amikor az időtartamának és spektrális sáv szélességének szorzata minimális, azaz az impulzus csörpöletlen. Ezen a tartományon kívül a pumpáló intenzitás lecsökken és a THz-es abszorpció meghaladja az erősítést, ami a THz-es intenzitás csökkenéséhez vezet. A THz-keltés effektív kölcsönhatási hossza  $L_{eff}$  szokásosan úgy definiálható, hogy azt a távolságot értjük alatta, ami alatt a THz-es intenzitás 5%-ról eléri a csúcs értékét. Érdekes a nemlineáris kristály hosszát az adott impulzushosszhoz választani és a kristályt úgy pozícionálni, hogy a THz-es hatásfok csúcsa egybeessen a kristály kilépő felületével.



5. ábra (a) Pumpáló impulzushossz a pumpáló impulzus terjedési hosszának,  $z$ -nek függvényében LN esetén. A pumpáló hullámhossz  $1 \mu\text{m}$ . (b) THz-keltés hatásfoka a THz terjedési hosszának függvényében. A számolások során használt paraméterek:  $100 \text{ fs}$  Fourier-limitált pumpáló impulzushossz elő-csörppel,  $9 \text{ GW/cm}^2$  pumpáló intenzitás és  $1 \text{ THz}$  fázisillesztési frekvencia

### 2.2.2. A THz-es energia növelésének korlátai

Az eddigiekben megismertük az optikai egyenirányításon alapuló THz-keltés főbb folyamatait, a most következő fejezetben áttekintjük a THz-es energia és hatásfok további növelésének korlátait. A felsorolt limitációk a félvezetőkre is érvényesek, azonban a későbbiekben látni fogjuk, hogy kedvezőbb paramétereik révén esetükben lehetőség van az energia és hatásfok további felskálázhatóságára.

**THz abszorpció és diszperzió** Az optikai egyenirányítás által keltett THz sugárzás abszorpcióját és diszperzióját az infravörös-aktív optikai fononok okozzák. A nagy abszorpció az effektív kölcsönhatási hosszt pár milliméterre korlátozza, ezáltal redukálva a kinyerhető THz-energiát. Bizonyos esetekben ezt csökkenthetjük, pl.: LN-nál [30] a kristály hűtése

kriogenikus hőmérsékletre szignifikánsan csökkenti az abszorpciós koefficiensét. Az abszorpción kívül a nemlineáris kristályon belüli hosszabb terjedési út diszperzióhoz vezet a THz-es tartományban, ami időben megnyúlt THz-es impulzusokat okoz, amiknek a csúcs térerőssége így lecsökken. LN alapú forrásoknál, mivel a szögdiszperzióból fakadó csoportkésés-diszperzió több nagyságrenddel nagyobb, mint az optikai frekvenciákon vett anyagi diszperzióból származó csoportsebesség-diszperzió, emiatt ez számít domináns diszperzív effektusnak. A diszperzióból fakadó korlátozás egy lehetséges megoldása a hosszabb pumpáló impulzushossz.

**Többfotonos abszorpció** Nagy pumpáló intenzitásokon a pumpáló sugárzás többfotonos abszorpciója miatt a nemlineáris kristályon belül szabad töltéshordozók keletkeznek. A megnövekedett szabad töltéshordozó koncentráció a keltett THz-es sugárzás abszorpciójának növekedéséhez vezet, ami így felső határt szab a használható pumpáló intenzitásnak, és a THz-keltési hatások telítődéséhez vezet. Ez a hatás különösen nagy lehet félvezető kristályoknál, amik relatíve kicsi tiltott sáv szélességgel rendelkeznek. Ennek a problémának egyik lehetséges megoldását látni fogjuk a 2.5-ös fejezetben, ahol nagy felületű ZnTe kristályt és nagy energiájú, de viszonylag alacsony pumpáló intenzitást alkalmaztak ezen korlátozás kiküszöbölésére [31]. Blanchard és társai 1,5  $\mu\text{J}$ -nyi THz-es energiát állítottak elő egy 75 mm átmérőjű ZnTe lapkával és 48 mJ pumpáló energiával 800 nm-en [26].

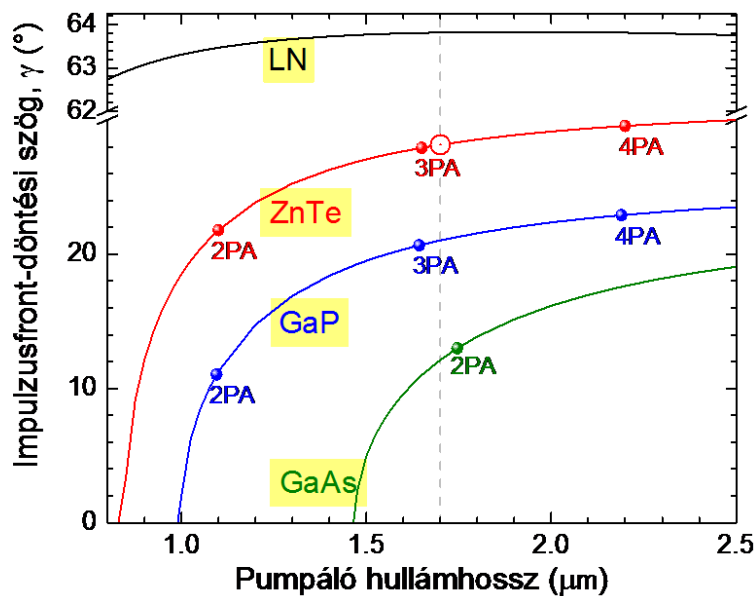
Az effektív legalacsonyabbrendű többfotonos abszorpció hullámhossza meghatározható az anyag tiltott sáv szélességének, ( $E_g$ ) és a pumpáló foton energiájának hányadosával:

$$E_g \leq n \cdot \frac{hc}{\lambda} \quad (8)$$

ahol  $n$  az abszorpció rendje,  $h$  a Planck-állandó,  $c$  a fénysebesség vákuumban,  $\lambda$  pedig a foton hullámhossza. Adott anyagra az alacsonyrendű többfotonos abszorpció hatékonyan



kiküszöbölhető hosszabb pumpáló hullámhosszak alkalmazásával. Például, ZnTe-ot és GaP-ot 1,5  $\mu\text{m}$ -en pumpálva csak a háromfotonos abszorpció lesz effektív, szemben a hagyományos 800 nm-es, vagy az 1  $\mu\text{m}$ -es pumpálással, ahol már a kétfotonos abszorpció jelenléte is redukálja a kinyerhető THz-es energiát. Azonban kollineáris elrendezéstől eltérő beállítást igénylő hullámhosszaknál általában döntött impulzusfrontú pumpálás szükséges a sebességillesztéshez. Mivel félvezetők esetén az optikai csoporttörésmutató és a THz-es törésmutató között kisebb a különbség (lásd 1. táblázat), emiatt jóval kisebb impulzusfront-döntési szög szükséges a sebességillesztéshez (6. ábra), mint LN esetében. Ez ugyancsak kisebb szögdiszperziót ( $d\epsilon/d\lambda$ ) (ld. (7) egyenlet), és kisebb csoportsebesség diszperziót eredményez, ami  $(d\epsilon/d\lambda)^2$ -vel arányos [32, 33]. Ezek eredményeképpen hosszabb effektív kölcsönhatási hossz használható (5. ábra), ami sok esetben kompenzálhatja a félvezetők kisebb effektív nemlinearitását [34].



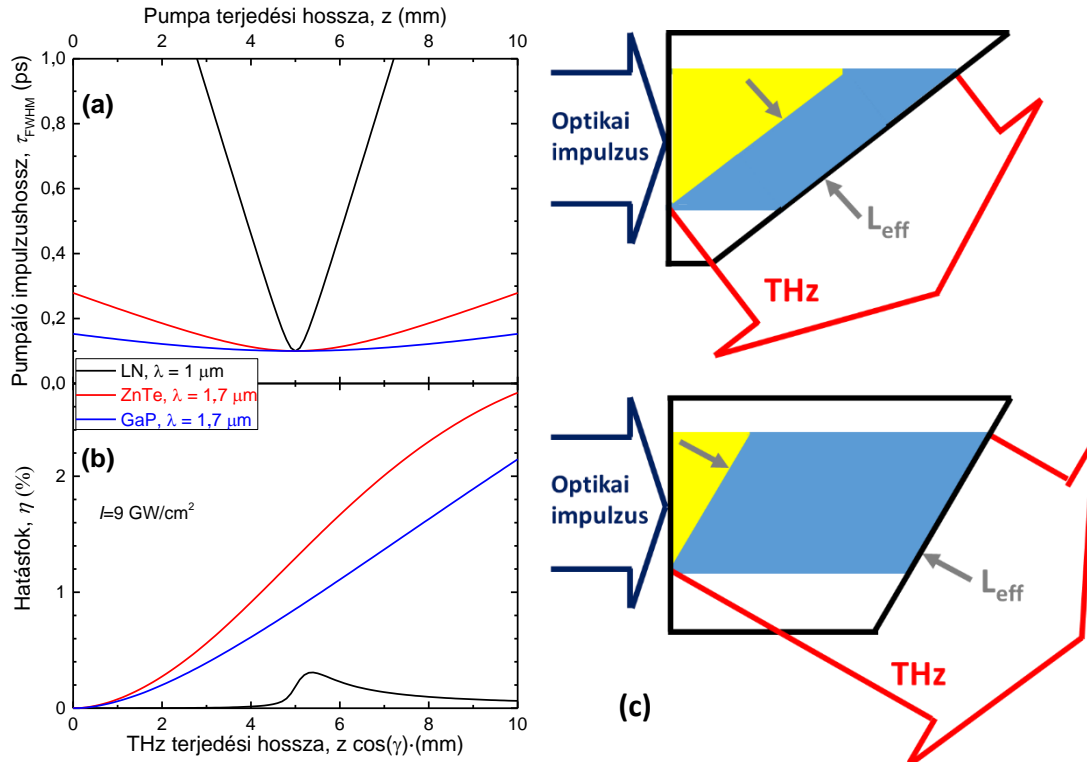
6. ábra A fázisillesztéshez szükséges impulzusfrontdöntési szög a pumpáló hullámhossz függvényében ábrázolva, különböző anyagokra. A többfotonos abszorpciók határaihoz tartozó hullámhosszakat is jelöltem.

**Impulzusfrontdöntési elrendezés** Az eddig említett hatások minden esetben fellépnek, a következő csak az impulzusfront döntése esetén. A leképező lencséből fakadó aberrációk a pumpáló impulzusfront görbüléséhez és aszimmetrikus THz-es nyalábprofilhoz vezetnek [34, 35]. Efféle torzulások csökkentik a fókuszálhatóságot és szűkítik a keltett THz-es sugárzás lehetséges alkalmazási területeit. Az említett korlátozások különösen jelentőssé válhatnak nagy energiájú THz-es impulzusok esetén, ahol nagy pumpáló foltméretet használnak, és akár meggátolhatják a THz-es impulzus szignifikáns növelését. Pálfalvi László és társai javasoltak egy új, kompakt elrendezést [35], ahol nincs szükség leképező optikára, mert a rács közvetlenül a kristály felületén helyezkedik el. Ollmann Zoltán és társai már 2012-ben megterveztek egy LN alapú kontaktrácsot [36], azonban az első elkészült példánnyal való kísérleteket Tsubouchi csoportja végezte el 2014-ben [37]. A kísérlet során bebizonyosodott, hogy a megmunkálási technológia egyelőre nem alkalmas az 1  $\mu\text{m}$ -es pumpáláshoz ideális struktúra létrehozásához, emiatt LN-hoz képest igen alacsony  $1,5 \times 10^{-4}$  hatásfokot nyertek csak ki, 0,41  $\mu\text{J}$ -nyi THz-es energiával. Az aránylag kis impulzusfrontdöntési szöget igénylő félvezetők azonban különösen alkalmasak lehetnek kontaktrácsok készítésére [34]. A 6. ábra az impulzusfront döntésének a pumpálás hullámhosszától való függését mutatja a kiválasztott félvezetőkre és LN-ra. A döntési szög az optikai és a THz-es törésmutató adatokból számolható a (7) egyenlet szerint [24, 25, 38, 39]. Általánosságban elmondható, hogy félvezetők esetén az impulzusfront döntési szöge  $30^\circ$  körüli vagy kisebb, míg LN-nál  $63^\circ$  körüli. A kisebb döntési szög az alábbi okok miatt rendkívül előnyös döntött impulzus frontú gerjesztés esetén:

- (i) az impulzushossz és a helyfüggő konverziós hatásfok csak kis mértékben változik LN-hoz képest (7. ábra (a,b)), amíg a nemlineáris anyagban terjed a pumpáló impulzus, emiatt jóval nagyobb lehet az anyag effektív hossza (7. ábra (c)), ami a THz-keltésre használható [34];

- (ii) a kristályhosszkülönbség a pumpált térrész szélén kisebb, ami csökkenti a THz-keltés térbeli inhomogenitását (7. ábra (c)); Hiba! A hivatkozási forrás nem található.
- (iii) lehetővé teszi az impulzusfrontdöntési optikákból eredő leképezési hibák csökkentését [34, 40], emiatt nagyobb pumpáló foltméret használható a hagyományos döntött impulzusfrontú elrendezésekben, amelyekhez leképezésre van szükség;
- (iv) kisebb rácssűrűségű rácsokat lehet használni a döntött impulzusfrontú gerjesztést alkalmazó elrendezésekben, ami különösen előnyös egy kontaktrácson alapuló THz-es forrás létrehozásához [35, 41].

Ez ígéretes jelöltté teszi a félvezetőket az alacsony frekvenciájú THz-es tartományban a THz-es energia és térerősség további felskálázására.



7. ábra (a) Pumpáló impulzushossz a pumpáló impulzus terjedési hosszának,  $z$ -nek függvényében LN, ZnTe és GaP esetén. LN esetén a pumpáló hullámhossz  $1 \mu\text{m}$ , ZnTe és GaP esetén  $1,7 \mu\text{m}$  volt. (b) THz-keltés hatásfoka a THz terjedési hosszának függvényében. A számolások során használt paraméterek:  $100 \text{ fs}$  Fourier-limitált pumpáló impulzushossz előcsörppel  $z = 0$ -ban,  $9 \text{ GW/cm}^2$  pumpáló intenzitás és  $1 \text{ THz}$  fázisillesztési frekvencia (c) A nagyobb döntési szög nagyobb

*kristályhosszkülönbséget eredményez (sárga terület), ami inhomogenitást okoz a THz-es nyalámban,  
L<sub>eff</sub> - effektív kölcsönhatási hossz*

**Pumpáló impulzushossz** Nemrég publikált elméleti és kísérleti tanulmányok [34, 42, 43], S3] bemutatták a pumpáló impulzushossz precíz megválasztásának fontosságát. Nagai és társai [43] megfigyelték a THz-es tér által okozott fázismodulációt a pumpáló impulzusban, ami lerövidítette az impulzus hosszát és nagyobb hatásfokú THz-keltést értek így el magasabb pumpáló teljesítményeken. Numerikus számolások [44] és kísérleti eredmények [6] mutatják, hogy a korábban szokványos ~100 fs-os pumpáló impulzushosszak helyett hosszabb impulzushosszakat (~500 fs) választva akár közel mJ energiájú, ~10 MV cm<sup>-1</sup> elektromos térerősségű THz-es impulzusokat is elő lehet állítani kriogenikusan hűtött LN-ban.

**Kaszád effektusok** Yeh és csoportja 2007-ben megmutatták [45], hogy a nagy energiájú THz-es impulzusok jelentősen módosítják az optikai pumpáló impulzus spektrumát. Megmérték a pumpáló impulzusok spektrumát döntött impulzusfronttal létrehozott fázisillesztés esetén, illetve impulzusfront döntés nélkül, fázisillesztetlen esetben. Beszámoltak a 800 nm-es központi hullámhosszal rendelkező pumpa jelentős kiszélesedéséről a spektrum vörös oldalán, optimális fázisillesztés mellett, THz-keltés közben. Azt is megmutatták, hogy a kiszélesedés mértéke csökken a fázisillesztetlenség mértékével, illetve, ha a pumpáló impulzus polarizációját az optimális THz-keltéstől elfordítják. Ezzel alátámasztották, hogy az optikai pumpáló impulzusok spektrális eltolódását és kiszélesedését a keltett THz-es sugárzás okozza. Ravi és társai 2014-ben készítettek egy modellt és kísérletileg is bemutatták [46], hogyan csökkentik a kaszád effektusok a THz-keltés hatásfokát. Ennek a nagy spektrális kiszélesedésnek a jelenlétében ugyanis a döntöttimpulzus-fronttal társult nagy szögdiszperzió fokozza a fáziseltérést, csökkenti a kölcsönhatási hosszt és így a THz-keltést.

A kaszád effektusok a szögdiszperzióból fakadó csoportkésés-diszperzióval együtt reprezentálják a legerősebb korlátozást a nagy konverziós hatásfok elérésében LN-ban, különösen 1 μm-es (vagy hosszabb hullámhosszú) pumpálás esetén. 800 nm-es pumpálás

esetén a kaszkád effektusok mellett a szabad töltéshordozókból származó abszorpció a meghatározó akadálya a nagy energiájú THz-es impulzusok előállításának.

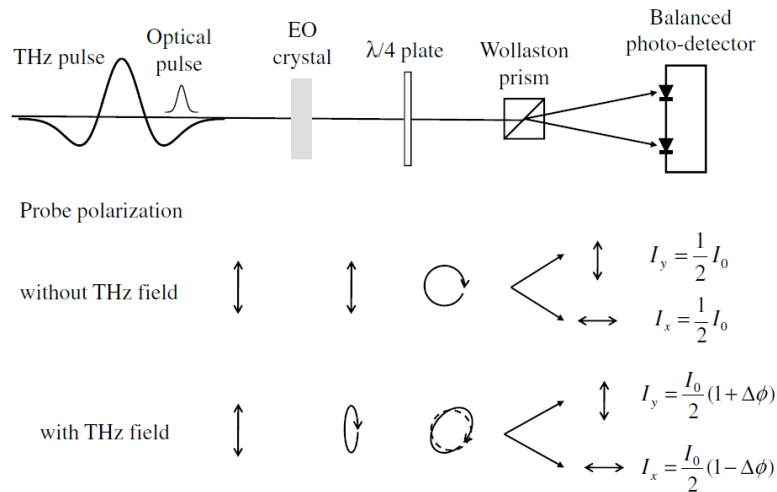
### 2.3. THz-es impulzusok detektálási módszere

Ahhoz, hogy a keletkezett THz-es impulzusokat karakterizálni tudjuk, mintavételezési technikára van szükségünk. A THz-es impulzusok időbeli alakjának detektálási módszere az ún. elektro-optikai mintavételezés, mely egy másodrendű nemlineáris optikai folyamaton, a Pockels-effektuson alapuló mintavételezési módszer, amivel az elektromos tér időbeli lefutása mérhető. A Pockels-effektus lényege, hogy egy ún. elektro-optikai kristály statikus elektromos térben kettőtörővé válik, és ennek a kettőtörésnek a mértéke arányos a tér nagyságával, megfordítva: a kettőtörés hatását mérve visszakaphatom az elektromos tér időbeli lefutását. A 8. ábra mutatja a mintavételezés sematikus rajzát.

A mérés menete a következő: THz-es tér jelenlétében a lineárisan polarizált próba impulzus áthalad az elektro-optikai kristályon és a kettőtörés miatt enyhén elliptikusan polarizálttá válik, amit a  $\lambda/4$ -es retardációs lemez cirkulárisra közelíté alakít. A polarizáció egymásra merőleges komponenseit egy wollaston prizmán felbontva egy detektorpár segítségével mérhetővé válik az intenzitásaik közti különbség, ami arányos a THz-es tér amplitúdójának nagyságával.

THz-es tér hiányában a próba impulzus nélkül halad át az elektro-optikai kristályon, hogy a polarizációja változást szenvedne, majd a  $\lambda/4$ -es retardációs lemezen áthaladva a lineáris polarizáció cirkulárisan polarizálttá válik, melyben az egymásra merőleges komponensek aránya megegyezik.

Az időbeli lefutás a THz-es impulzus és a próba impulzus egymáshoz képest való időbeli késleltetésével állítható elő. A megfelelő felbontás feltétele, hogy a próbaimpulzusnak jóval rövidebbnek kell lennie a jellemzően ps-os impulzushosszú THz-es impulzusnál.



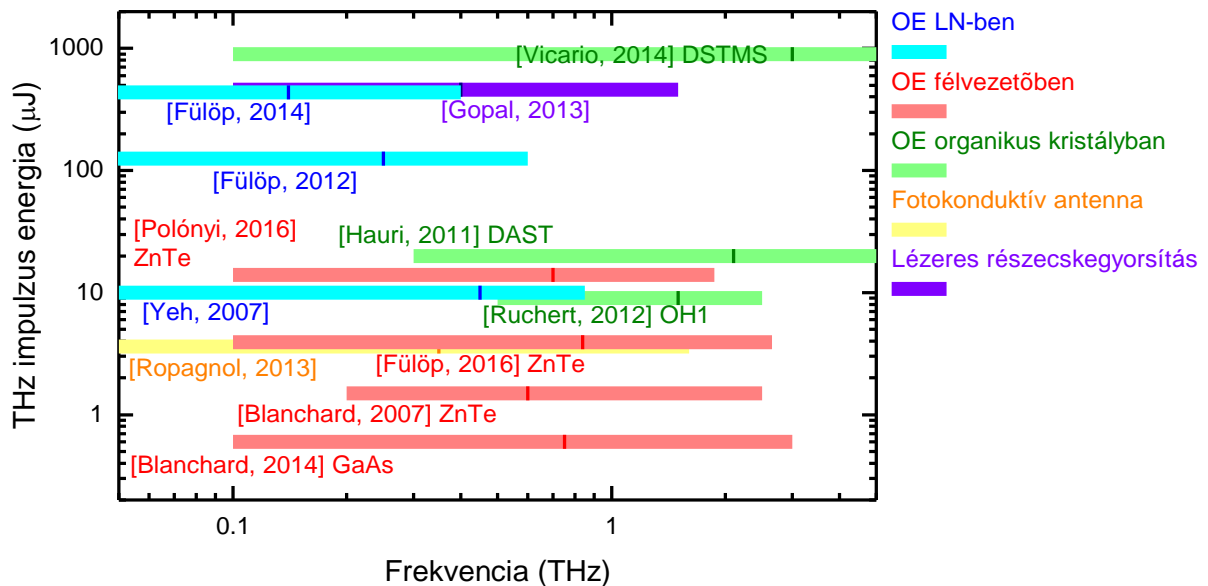
8. ábra Sematikus ábra az elektro-optikai mintavételezésről. A próba impulzus polarizációja látható lent THz-es tér jelenlétében (with THz field) és hiányában (without THz field) a polarizációs optikák után. (EO crystal – elektro-optikai kristály,  $\lambda/4$  – retardációs lemez, Wollaston prism – Wollaston prizma, Balanced photo-detector – kiegyensúlyozott detektorpár). Forrás: [47]

## 2.4. Nagy energiájú THz-es impulzusok

Jelen fejezetben az alacsony frekvenciájú, nagy energiájú THz-es impulzusok fejlődésének főbb lépcsőfokait szeretném megmutatni az első  $\mu\text{J}$ -os fotokonduktív antennától a széles spektrumú, közel 1 mJ-os szerves kristályos forrásokig. A félvezetőkristály-anyagú THz-es forrásokat a következő fejezetben ismertetem. A 9. ábra összefoglalja az eddig publikált 5 THz frekvenciánál alacsonyabb nagy energiájú forrásokat.

Ahogy azt a 2.1.1-es fejezet bevezetőjében említettem, az első  $\mu\text{J}$ -nagyságrendű THz-es impulzust 1999-ben állították elő fotokonduktív antennával [15], azonban ezt az energiát az évek során csak lassan sikerült növelni. A következő előrelépés ebben az irányban Ropagnol-hoz és társaihoz fűződik, akik 2013-ban demonstrálták intenzív, alacsony frekvenciájú THz-es impulzusok keltését ZnSe anyagú fotokonduktív antennával, aminek a különlegessége a nagy apertúrája volt. Körülbelül 3,6  $\mu\text{J}$ -os THz-es impulzusokat állítottak

elő<sup>1</sup>, 143 kV/cm-es becsült elektromos térerősséggel és  $6,8 \times 10^{-4}$ -es hatásfokkal. A keltett THz-es impulzusok a 0,05 és 1 THz közötti tartományt fedték le [48]. Az eredmény fotokonduktív antennák között kiemelkedő, azonban ennél jobb perspektívát nyújtanak az optikai egyenirányítással, döntött impulzusfrontú elrendezésben előállított THz-es impulzusok.



9. ábra Különböző technikákkal előállított THz-es impulzusok energiája a keltett impulzusok frekvenciájának függvényében

Bő egy évtizede sikerült meghaladni a 10 μJ-nyi impulzusenergiát az alacsony frekvenciájú THz-es tartományban optikai egyenirányítással. Yeh és társai 2007-ben közel egyciklusú THz-es impulzusokat állítottak elő 10 μJ-os energiával és  $6 \times 10^{-4}$ -es konverziós hatásfokkal, amit döntött impulzusfrontú elrendezésben pumpált LN-ban érték el 20 mJ pumpáló energiával és 400 fs-os pumpáló impulzushosszal. A THz-es impulzusok becsült elektromos térerőssége 250 kV/cm volt [45].

A fejlődés következő lépcsőfoka az volt, hogy felismerték, az optimális pumpáló impulzushossz szerepét a THz-keltésben. Fülöp József és társai 2012-ben optikai

<sup>1</sup> 2,3 μJ energiát mértek, azonban a detektorfej mérete kisebb volt a foltnál, ezért megszorozták ezt az értéket egy korrekciós faktoral (1,6-tal) a megmért foltméret alapján.

egyenirányításon alapuló, döntött impulzusfrontú elrendezésben több, mint 10-szer nagyobb THz-energiát (125  $\mu\text{J}$ ) állítottak elő 1,3 ps-os pumpáló impulzusokkal LN kristályban 0,25%-os hatásfokkal [49]. 2014-ben folytatva a LN alapú kísérleteket 436  $\mu\text{J}$  energiájú THz-es impulzusokat állítottak elő 0,77 %-os hatásfokkal. A hatásfok növekedését a korábbi kísérletükhöz képest az optimálishoz közelebbi impulzushosszal magyarázták. A pumpáló forrásuk megegyezett a korábban bemutatott lézerrel, ám ezúttal az impulzushossz 785 fs volt [6].

Már 2012-ben javasolták a kristály lehűtését kriogenikus hőmérsékletre, hogy az abszorpcióját csökkentsék és így az eddiginél nagyobb energiát és hatásfokot állítsanak elő. Ezt végül 2014-ben demonstráltak [6]. A korábbi, szobahőmérsékleten kapott eredményükhöz (68  $\mu\text{J}$ ) képest 2,7-szer nagyobb THz-es energiát állítottak elő (186  $\mu\text{J}$ ) azonos pumpáló körülmények mellett, ami a számításaikat alátámasztotta. A maximális konverziós hatásfok hűtött kristály esetén 0,62% volt akkora pumpáló energia mellett, ahol szobahőmérsékletű kristály esetén 0,23% hatásfokot kaptak. Bár a kristály hűtésével sikerült további növekedést elérniük, azonban ekkora pumpáló intenzitásokon már szembesültek a 2.2.2-es fejezetben említett limitációkkal, melyek egy része a nagy impulzusfrontdöntési szögre vezethető vissza.

Egy párhuzamos fejlődési irányt a szerves kristályok kutatása hozott. Hauri és csoportja 2011-ben optikai egyenirányítással DAST típusú szerves kristályban 20  $\mu\text{J}$  THz energiát ért el 2,2%-os hatásfokkal. A pumpáló lézer egy titán-zafír alapú hangolható forrás volt 1,2 és 1,5  $\mu\text{m}$  közötti hullámhosszon. [50]. Vicario és munkatársai pedig 2014-ben optikai egyenirányítással egy több darabból összerakott 400  $\text{mm}^2$ -es másik organikus kristályban az ún. DSTMS-ben 900  $\mu\text{J}$  THz energiát értek el 3%-os hatásfokkal. A pumpáló lézer egy egyedi Cr:Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> alapú forrás volt 1,25  $\mu\text{m}$  hullámhosszon[9]. A számolt elektromos térerősség nagyobb volt, mint 42 MV/cm és további növekedést jósoltak 80 MV/cm-ig megfelelő fókuszálás mellett, ráadásul a kollineáris elrendezés a THz-es nyaláb kiváló fókuszálását



eredményezte. Bár a szerves kristályok ígéretesnek tűnnek, azonban az előállításuk költséges és bonyolult, az elterjedtől eltérő hullámhosszú pumpálást igényelnek, és inkább a magasabb THz-es frekvenciák (1,5 – 5 THz) érhetőek el általuk.

A tárgyalt kísérletek lényegesebb paramétereit kigyűjtöttem az alábbi táblázatba a könnyebb összehasonlítás kedvéért:

	Ropagnol, 2013	Yeh, 2007	Fülöp, 2012	Fülöp, 2014	Hauri, 2011	Vicario, 2014
Előállítási mód <sup>2</sup>	Foto-konduktív antenna (ZnSe)	OE/LN	OE/LN	OE/LN	OE/DAST	OE/DSTMS
Pumpáló hullámhossz	400 nm	800 nm	1030 nm	1030 nm	1,2-1,5 μm	1,25 μm
Ismétlési frekvencia	10 Hz	10 Hz	10 Hz	10 Hz	100 Hz	10 Hz
Spektrális csúcs [THz]	> 1	0,5	0,25	0,15	2,1	0,15
THz energia	~ 3,6 μJ	10 μJ	125 μJ	436 μJ	20 μJ	900 μJ
Hatásfok	6,8 x 10 <sup>-4</sup>	6 x 10 <sup>-4</sup>	0,25%	0,77%	2,2%	3%

2. Táblázat – Nagy energiájú THz-es források paramétereinek összefoglaló táblázata

A bemutatott eredmények alapján elmondható, hogy a jelenleg elérhető THz források ígéretesek az alkalmazásokhoz, ám nem mindegyik forrás alkalmas további fejlesztésre.

## 2.5. Optikai egyenirányításon alapuló THz-keltés félvezetőkristályokkal

Az előző fejezetben ismertettem az eddig megvalósított fotokondukción alapuló, illetve LN, vagy organikus kristály anyagú THz-es forrásokat, most pedig rátérek az eddig megvalósított

<sup>2</sup> OE/X = optikai egyenirányítás "X" kristályban

félvezető anyagú forrásokra, amelyek optikai egyenirányítás révén valósítottak meg THz-keltést. Mivel ezekben a kísérletekben nehéz megállapítani a fejlődés egyértelmű irányát, ezért megelégedtem a kísérleti paraméterek és eredmények felsorolásával, ahol a sorbarendezés alapjának a felhasznált félvezetőanyagokat választottam (GaAs, GaP, ZnTe).

Nagai és társai 2004-ben egy 0,5 mm vastag szennyezetlen GaAs lapkában állítottak elő THz-es impulzusokat kollineáris elrendezésben, anélkül, hogy a keltett impulzusok energiáját megmérték volna. A keletkezett THz-es nyaláb spektruma körülbelül 0,5 THz-től 3-THz-ig terjedt. Pumpáló forrásként egy kompakt erbium-adalékolt szállézeret használtak 1560 nm-es hullámhosszon [51].

Imeshev és társai 2006-ban egy 0,4 mm széles és 3 mm hosszú GaAs kristályban kvázi-fázisillesztéssel  $3,3 \mu\text{W}$  átlagteljesítményű THz-es impulzusokat állítottak elő 100 MHz-es ismétlési frekvenciával, ami 33 fJ energiájú THz-es impulzusoknak felel meg, továbbá a maximális konverziós hatásfok, amit elértek  $1,6 \times 10^{-6}$  volt. A keltett THz-es sugárzás spektruma 1,78 THz és 2,49 THz közötti tartományt fedte le. Pumpáló forrásnak egy kompakt femtoszekundumos szállézeret használtak 1980 nm-es hullámhosszal [52].

Blanchard és csoportja 2014-ben GaAs-del  $5 \times 10^{-4}$ -es konverziós hatásfokot ért el, amely az addigi félvezető alapú THz-es források közül a legjobbnak számított. Félvezető kristálynak egy 22 mm vastag, 50 mm átmérőjű kristályt használtak döntött impulzusfrontú gerjesztéses elrendezésben.  $0,6 \mu\text{J}$  energiájú THz-es impulzusokat állítottak elő a korábban írt 0,05 %-os konverziós hatásfokkal, amelyek spektruma a 0,1 THz és 3 THz közötti tartományt fedte le. A pumpáló forrás 1,8  $\mu\text{m}$  hullámhosszon működött, ami lehetővé tette a kétfotonos abszorpciót kiküszöbölését, aminek ez a hatásfok köszönhető [53].

Chang és társai 2006-ban egy 1 mm vastag GaP alapú forrással  $6,5 \mu\text{W}$  átlagteljesítményű THz-es impulzusokat állítottak elő 120 MHz-es ismétlési frekvenciával, ami

54 fJ energiájú impulzusoknak felel meg, továbbá a maximális konverziós hatások  $6,5 \times 10^{-7}$  volt. A keltett THz-es sugárzás központja 0,7 THz-nél volt és 3,5 THz-ig terjedt. A pumpáló forrás 1055 nm-en működött [54]. Ugyanez a csoport 2007-ben egy GaP hullámvezetőben 120  $\mu$ W átlagteljesítményű THz-es impulzusokat állítottak elő 25 MHz-es ismétlési frekvenciával, ami 4,8 pJ energiának felel meg, ehhez 14 W teljesítményű pumpálást alkalmaztak, így a konverziós hatások  $8,6 \times 10^{-6}$ -nak számítható. A pumpáló forrás egy itterbium-adalékolt szállézer alapú lézerrendszer volt 1035 nm-es hullámhosszal [55].

Löffler és társai 2005-ben egy 2 mm vastag, 25 mm-es átmérőjű ZnTe kristályban körülbelül 540 pJ energiájú THz-es impulzusokat állítottak elő  $1,5 \times 10^{-6}$ -os konverziós hatásokkal, amelyek spektruma 0,1 THz-től 2,8 THz-ig terjedt. A pumpáló forrás egy hagyományos titán-zafír alapú lézerrendszer volt 775 nm hullámhosszon. Megmutatták, hogy egy hasonlóan pumpált GaAs alapú fotokonduktív antenna már alacsonyabb pumpáló energiánál telítődést mutat, szemben a ZnTe alapú forrással, továbbá az optikai egyenirányításon alapuló THz-keltésnél a telítődés elkerülhető a pumpáló nyaláb foltméretének növelésével. Ezeken kívül azt is bizonyították, hogy 150  $\mu$ J-t meghaladó pumpáló energiáknál a keltett THz-es impulzusok csúcsamplitúdója, impulzusenergiája és sávzélessége jobb a nagy felületű ZnTe alapú forrásnál, mint a GaAs alapú THz-es antenna esetén [31].

Blanchard és társai 2007-ben a világon először állítottak elő félvezető kristályból THz-es sugárzást  $\mu$ J-os impulzus energiával. THz-es forrásnak egy nagy felületű, 75 mm átmérőjű, 0,5 mm vastag ZnTe kristályt használtak.  $3,1 \times 10^{-5}$  konverziós hatásokkal 1,5  $\mu$ J energiájú THz-es impulzusokat állítottak elő, amelyek spektruma az 0,1 THz és 3 THz közötti tartományt fedte le. Pumpáló lézernek 800 nm-es hullámhosszú forrást használtak [26].

A 3. táblázat összefoglalja a tárgyalt kísérleteket a használt félvezető kristály, a pumpáló hullámhossz, a kapott THz-es energiák és hatások alapján. Nagai csoportjának eredményeit

(GaAs alapú forrás, 1560 nm-es pumpáló hullámhossz) a THz-es energia és hatások hiányában kihagytam a felsorolásból. Ezen kísérletek eredményei mutatják, hogy bár a félvezető alapú THz-es források által elért THz-es energiák és hatások elmaradnak a korábban bemutatott nagy teljesítményű THz-es forrásokétól, fejlődésük az elmúlt 13 évben rohamosnak tekinthető, amely a bennük rejlő kiaknázatlan lehetőségekre utal. Ezzel a fejezettel az volt a célom, hogy összehasonlítási alapot szolgáljon az eredményeim számára.

	Löffler, 2005	Chang, 2006	Imeshev, 2006	Chang, 2007	Blanchard, 2007	Blanchard, 2014
Félvezető:	ZnTe	GaP	GaAs	GaP	ZnTe	GaAs
Pumpáló hullámhossz:	755 nm	1055 nm	1980 nm	1035 nm	800 nm	1800 nm
Ismétlési frekvencia:	1 kHz	120 MHz	100 MHz	25 MHz	100 Hz	100 Hz
Spektrális tartomány [THz]:	0,1 – 2,8	0,1 – 3,5	1,78 – 2,49	0,1 – 1,5	0,1 – 3	0,1 – 3
THz energia:	540 pJ	54 fJ	33 fJ	4,8 pJ	1,5 μJ	0,6 μJ
Hatások:	$1,5 \times 10^{-6}$	$6,5 \times 10^{-7}$	$1,6 \times 10^{-6}$	$8,6 \times 10^{-6}$	$3,1 \times 10^{-5}$	$5 \times 10^{-4}$

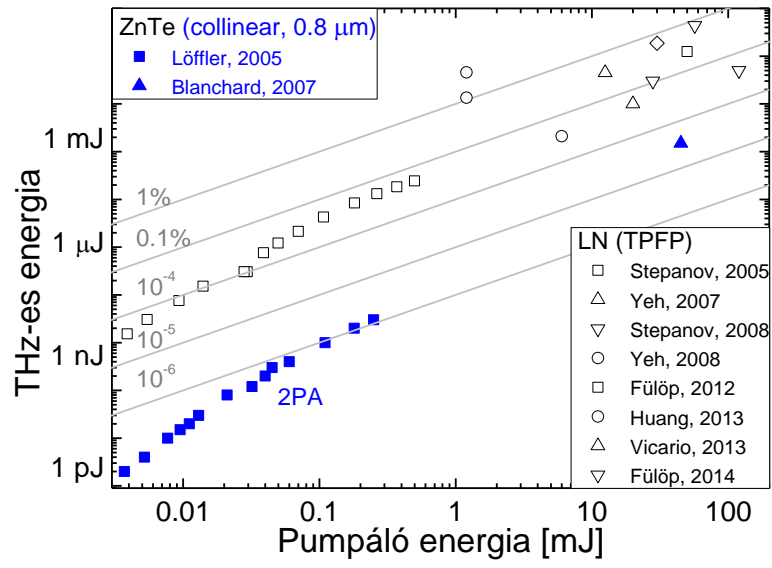
3. Táblázat – Félvezető anyagú THz-es források paramétereinek összefoglaló táblázata

### 3. Motiváció, célkitűzés

Az eddigi leghatékonyabb módszer nagy energiájú THz-es sugárzás előállítására az alkalmazások számára ideális alacsony (0,1 – 2 THz) spektrális tartományban az optikai egyenirányítás LN kristályban. Azonban ennél a módszernél a fázisillesztéshez nagymértékű (63°-os) impulzusfront-döntésre van szükség, amely kedvezőtlen az alkalmazások szempontjából. Továbbá a THz-es energia és határfok további felskálázhatóságát korlátozza a nagy szögdiszperzió [44], a leképezési optikákból jövő hibák [56] és a nemlineáris kölcsönhatás a pumpáló impulzus és a THz-es sugárzás között [46], S4].

LN-tal ellentétben a félvezetők pumpálhatók kollineáris elrendezésben, bár a határfokok 2- és fél nagyságrenddel elmarad azoktól (10. ábra). Ennek az oka a kisebb nemlineáris együtttható, az erős kétfotonos abszorpció a pumpálás hullámhosszán és a kapcsolódó szabad töltéshordozókból eredő abszorpció a THz-es frekvenciákon.

Céлом annak vizsgálata, hogy félvezető anyagú THz-es források alkalmassá tehetők-e nagy energiájú THz-es impulzusok előállítására, illetve LN viszonylatában milyen határfok érhető el. Céлом annak bizonyítása, ha elegendően hosszú hullámhosszúságú pumpálást alkalmazok, amivel elnyomhatom a két- és háromfotonos abszorpciót, akkor több nagyságrenddel növelhetem a félvezető anyagú THz-es források határfokát. Megmutatom, hogy egy új típusú kontakt-rácson alapuló félvezető anyagú THz-es forrás egyszerűen megvalósítható, optikai torzulásoktól mentes, kompakt, illetve a méretek növelésével lehetőséget ad az energia és a térerősség felskálázására. Megmutatom, hogy optimális pumpáló feltételek mellett van lehetőség tovább növelni a félvezető anyagú THz-es források határfokát, ezzel megnyitni az utat újabb, a távoli infravörös sugárzásokkal foglalkozó alkalmazások előtt.



10. ábra LN-ban és ZnTe-ban keltett THz-es energiák a pumpáló energiák függvényében. A szürkével jelölt vonalak a hatásfokokat jelzik.

## 4. Eredmények

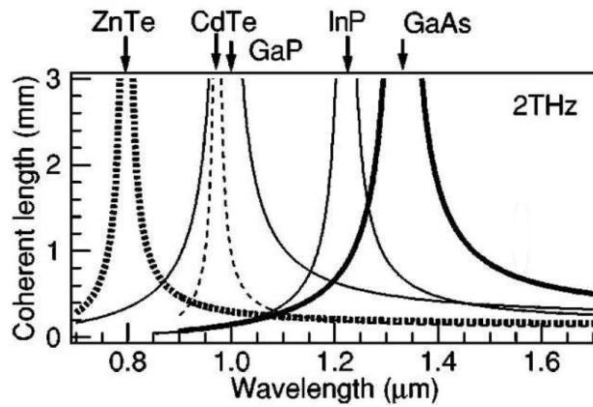
A 2.2-es fejezetben megismertük a félvezető anyagú, optikai egyenirányításon alapuló THz-keltés mögött zajló fizikai folyamatokat. A következő fejezetekben bemutatom a kísérleti és elméleti vizsgálatokat, melyek által jobban megismerjük a félvezetők (ZnTe és GaP) legfontosabb paramétereit, és alkalmasságukat THz-es forrásként. A 4.1-es fejezetben a vizsgálódás tárgyát képező anyagok megválasztását igazolom, a 4.1.1-es fejezetben az összehasonlítás alapjául szolgáló szimuláció elméleti modelljét mutatom be, a 4.1.2-es fejezetben megvizsgálom, hogyan változik a THz-keltés hatásfoka, ha ZnTe-kristályt a háromfotonos abszorpciós határhullámhossznál rövidebb, vagy hosszabb hullámhosszal pumpálok (változtatva ezzel a THz-es abszorpciót). A 4.2-es fejezetben bemutatok egy kontaktrács alapú ZnTe anyagú THz-es forrást és a hozzá kapcsolódó kísérleti eredményeinket. A 4.3-as fejezetben megvizsgálom, hogy a kristályhossz növelése okoz-e hatásfok-növekedést a THz-es impulzus energiában. A 4.4-es fejezetben a kísérleti eredmények felhasználásával megbecsülöm az irodalomból hiányzó, ZnTe kristályhoz tartozó négyfotonos abszorpciós együttható értékét. A 4.5-ös fejezetben tovább folytatom a 4.1.2-es fejezetben megkezdett elméleti összehasonlítást a hatékony THz-keltés további felskálázásához, végül összefoglalom az eredményeimet.

### 4.1. Félvezető anyagának megválasztása

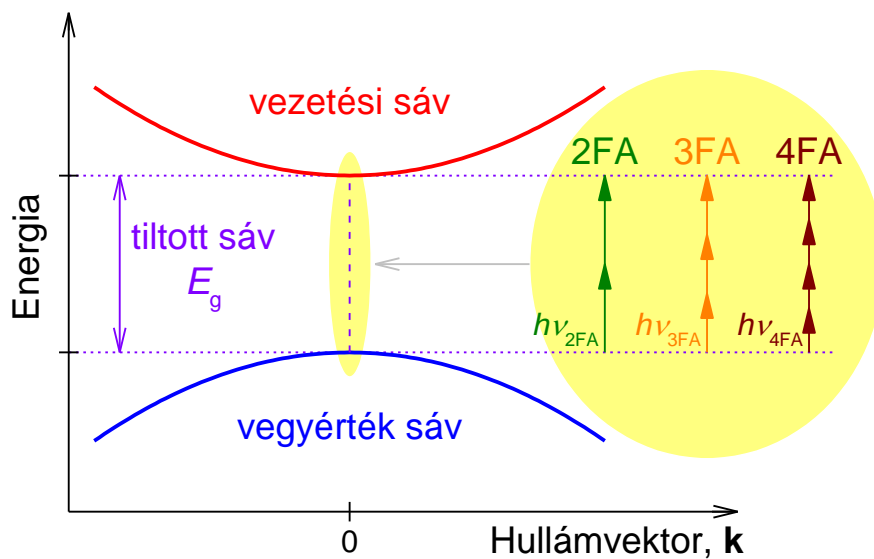
A nemlineáris anyagok között a félvezetők, mint ZnTe és GaP, széles körben használatosak THz-es impulzusok előállítására optikai egyenirányítás útján. Előnyük, hogy ma már hétköznapiak számító titán-zafír, Yb-adalékolt és Er-adalékolt lézerekkel lehetséges a kollineáris fázisillesztés például ZnTe-ban, GaP-ban és GaAs-ben rendre 0,8  $\mu\text{m}$ , 1  $\mu\text{m}$  és 1,5  $\mu\text{m}$  hullámhosszakon (11. ábra), mert ezeken a hullámhosszakon a pumpáló nyaláb és a

THz-es sugárzás a kristályokon belül egymással koherensen terjednek. Az ábrán a koherenciahossz szerepel, vagyis az a távolság, amelyen belül a hullámok fázisai egymáshoz képest  $\pi/2$ -vel vannak lemeradva, vagy előzik meg egymást. A félvezetőkre hagyományosan úgy tekintenek, mint LN-nál kevésbé hatékony THz-keltő kristályokra [57]. 2016 előtt a legnagyobb, félvezetővel elért THz energia, amint azt a 2.5-os fejezetben láttuk,  $1,5 \mu\text{J}$  volt [26], ZnTe-ban  $3 \times 10^{-5}$  hatásfokkal. A viszonylag alacsonyabb pumpa-THz konverziós hatásfok oka az erős kétfotonos abszorpció (12. ábra) a pumpálás hullámhosszán,  $0,8 \mu\text{m}$ -en, és a szabad töltéshordozók abszorpciója a THz frekvenciákon. Azonban, nem régóta ismét előtérbe került a félvezetők vizsgálata lehetséges nagyenergiájú THz-es forrásokként [34]. Hosszabb hullámhosszakon, ahol az impulzusfront döntésére szükség van, lehetséges az alacsonyrendű többfotonos abszorpció kiküszöbölése, és a belőle fakadó szabad töltéshordozók abszorpciójának csökkentése is a THz-es frekvenciákon. Ennek eredményeképpen nagyobb pumpáló intenzitás alkalmazható és nagyobb konverziós hatásfok várható. Ismétlésképpen elmondható, hogy a legújabb eredmények között,  $0,6 \mu\text{J}$ -os THz-es impulzusokat állítottak elő  $5 \times 10^{-4}$  hatásfokkal GaAs-ben  $1,8 \mu\text{m}$ -en pumpálva [53], ami elegendően hosszú hullámhossz, hogy a kétfotonos abszorpciót kioltsa, ezenkívül jelenleg aktívan kutatott terület két mikron körüli pumpáló források létrehozása félvezető anyagú THz-keltő rendszerekhez [58].





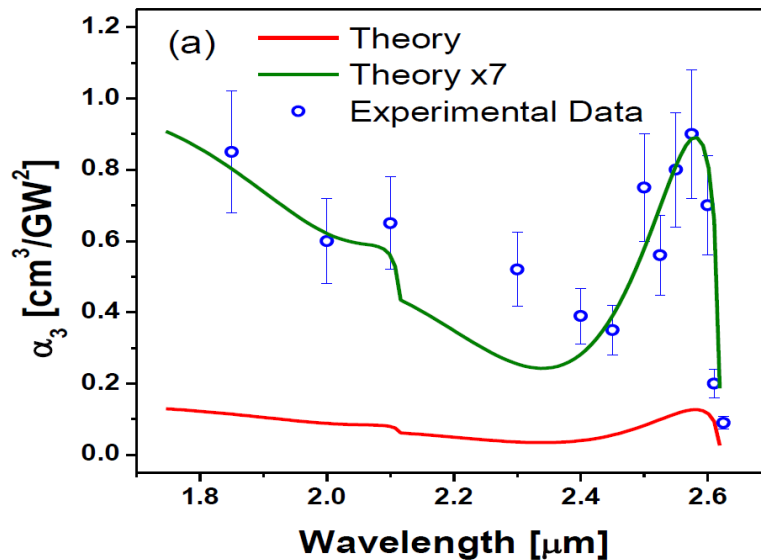
11. ábra ZnTe, CdTe, GaP, InP és GaAs koherenciahossza az optikai hullámhosszak függvényében, 2 THz-es fázisillesztési frekvenciánál, forrás: [47]



12. ábra Sematikus rajz a többfotonos abszorpció szemléltetésére. 2-3-4 FA – kettő-három-négyfotonos abszorpció

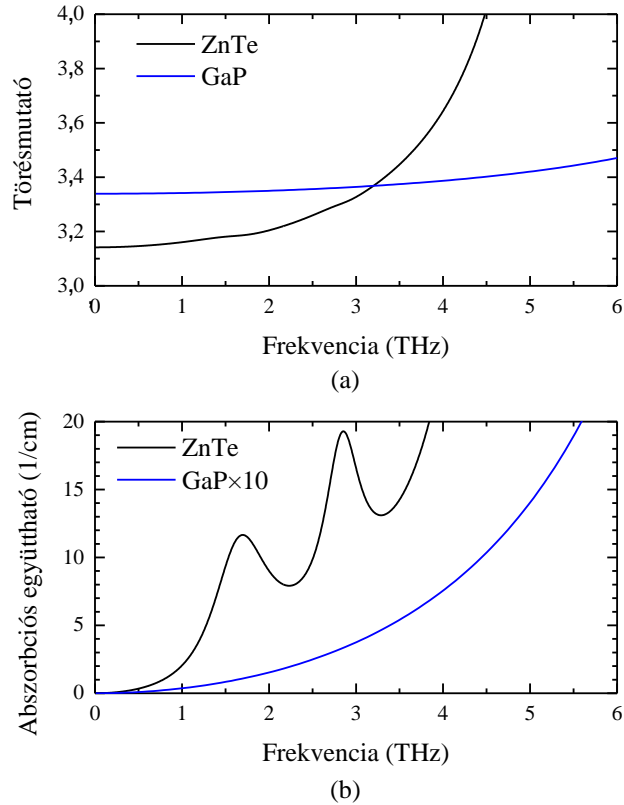
Két félvezető kristályt vizsgálunk meg a következőkben, az egyik ZnTe, aminek a jóságai tényezője kiemelkedő a félvezetők közül (1. táblázat), a másik GaP. ZnTe egy direkt tiltott sávval rendelkező félvezető, 2,26 eV-os tiltott sávszélességgel. Következésképp, 1,64  $\mu\text{m}$ -nél hosszabb pumpáló hullámhosszknál, ami a háromfotonos abszorpció határa (6. ábra, illetve (16) egyenlet), csak a négyfotonos és magasabbrendű többfotonos abszorpciók hatásai érvényesülnek. 1,45  $\mu\text{m}$  körül a háromfotonos abszorpció lokális minimuma várható ZnTe-nél.

Elméleti és kísérleti tanulmányok mutatják [59], hogy cink-blende típusú félvezetőknél ez a minimum érték körülbelül 10-15%-kal a rövidebb hullámhosszak felé található a háromfotonos abszorpciós határtól [59, 60] (13. ábra).



13. ábra GaAs háromfotonos abszorpció spektruma pikoszekundumos Z-scan mérésből, összevetve az elméleti számolás hétszeresével, forrás: [59].

Hasonló viselkedés várható GaP-tól is, amelynek esetében az indirekt (direkt) tiltott sáv szélessége 2,27 eV (2,48 eV). GaP előnye, hogy jelentősen kisebb az abszorpciója és diszperziója a THz-es tartományban, mint ZnTe-nak. Továbbá nagyobb méretekben növeszthető és jobban megmunkálható. ZnTe-hoz képest kisebb nemlineáris együtthatója talán kompenzálható az optikai egyenirányításhoz kapcsolódó hosszabb effektív kölcsönhatási hosszal, ami a kisebb impulzusfront döntési szög és diszperzió miatt van. A magasabb fonon frekvenciája és a kicsi lineáris abszorpciós együtthatója miatt különösen alkalmas magasabb frekvenciák keltésére a 2-5 THz-es vagy afölötti tartományban. A törésmutatók és lineáris abszorpciók frekvenciafüggése a 14. ábra láthatók. Ezek miatt GaP egy ígéretes jelölt a nagy intenzitású THz impulzusok keltésére.



14. ábra Törésmutató (a) és lineáris abszorpciós együttható (b) a THz-es frekvencia függvényében ZnTe-ra és GaP-ra

Mindkét félvezető tiltott sávja elegendően nagy ahhoz, hogy a pumpa két- és háromfotonos abszorpcióját el lehessen nyomni 1,65  $\mu\text{m}$ -nél hosszabb pumpáló hullámhossz használatával. Ilyen hullámhosszak elérhetők laboratóriumokban, széles körben használatos titán-zafir vagy Yb lézerek által pumpált OPA-kal, vagy Ho lézer technológiával 2,05  $\mu\text{m}$  hullámhosszon [58, 61, 62]. Más félvezetők kisebb tiltott sávokkal, mint CdTe (1,43 eV) vagy GaAs (1,43 eV) kevésbé használhatók, mert még hosszabb pumpáló hullámhossz szükséges a két- vagy háromfotonos abszorpció kiküszöbölésére, emiatt esett a választásom ezekre a félvezetőkre.

### 4.1.1. Elméleti modell

A felhasznált modell az egydimenziós, nemlineáris polarizációval számoló hullámegyenletet oldja meg a spektrális tartományban. Figyelembe veszi az anyagi- és szögdiszperzió okozta pumpáló nyaláb impulzushossz változását a terjedés függvényében, a pumpa és a THz-es nyaláb nemkollineáris terjedését a fázisillesztésnél, valamint a fonon rezonanciából és a szabad töltéshordozók abszorpciójából fakadó abszorpciót (ez utóbbiért a többfotonos abszorpció felelős) a THz-es tartományban.

Ezek az effektusok a THz-es tér Fourier-komponensének  $E(\Omega, z)$  egydimenziós egyenletében lettek figyelembe véve  $\Omega$  körfrekvencián, ami a Maxwell egyenletekből a származik, alkalmazva a lassan-változó-burkoló közelítést [34]:

$$\frac{\partial E(\Omega, z)}{\partial z} = -\frac{i\mu_0\Omega c}{2n(\Omega)} P_{NL}\left(\Omega, \frac{z}{\cos\gamma}\right) e^{i\Delta kz} - \frac{1}{2}\alpha\left(\Omega, \frac{z}{\cos\gamma}\right) E(\Omega, z), \quad (9)$$

ahol a nemlineáris polarizáció ( $P_{NL}$ ) Fourier komponense kifejezhető az anyag nemlineáris szuszceptibilitásán  $\chi^{(2)}$  keresztül:

$$P_{NL}\left(\Omega, \frac{z}{\cos\gamma}\right) = \epsilon_0\chi^{(2)} \int_0^\infty E\left(\omega + \Omega, \frac{z}{\cos\gamma}\right) E^*\left(\omega, \frac{z}{\cos\gamma}\right) d\omega. \quad (10)$$

Itt  $\epsilon_0$  és  $\mu_0$  a szabad tér permittivitása és permeabilitása,  $\alpha$  az intenzitásfüggő abszorpciók együttható,  $z$  a THz terjedési koordinátája,  $z/\cos\gamma$  a pumpa terjedési irányában a koordináta.

Kollineáris THz-keltés esetén a hullámvektor különbség  $\Delta k$  az alábbi relációval adható meg [27]:

$$\Delta k(\Omega) = k(\Omega) + k(\omega_0) - k(\omega_0 + \Omega) \approx k(\Omega) - \Omega \left. \frac{dk}{d\omega} \right|_{\omega_0} = \frac{\Omega}{c} [n(\Omega) - n_g(\omega_0)]. \quad (11)$$

Feltételeztük, hogy  $\Omega \ll \omega_0$ . Nem-kollineáris geometriánál ez így módosul:

$$\Delta k(\Omega) \approx \frac{\Omega}{c} \left[ n(\Omega) - \frac{n_g(\omega_0)}{\cos \gamma} \right], \quad (12)$$

mivel a pumpa impulzus terjedési hossza  $1/\cos \gamma$ -val hosszabb, mint a THz terjedési hossza.

A THz-es frekvenciák abszorpciójának két fő komponense van:

$$\alpha \left( \Omega, \frac{z}{\cos \gamma} \right) \approx \alpha_\epsilon(\Omega) + \alpha_{fc} \left( \Omega, \frac{z}{\cos \gamma} \right). \quad (13)$$

Az első,  $\alpha_\epsilon$ , az anyag komplex dielektrikus függvényéből meghatározható, míg a második,  $\alpha_{fc}$ , a pumpáló impulzus által keltett szabad töltéshordozókból fakad (emiatt helyfüggő). A szabad töltéshordozók sűrűsége,  $N_{fc}$ , a következőképpen számolható a pumpáló intenzitásból:

$$N_{fc} \left( \frac{z}{\cos \gamma} \right) = \frac{I\tau}{hc/\lambda_0} \left( \alpha_0 + \frac{1}{2} \beta_2 I + \frac{1}{3} \beta_3 I^2 + \dots \right). \quad (14)$$

$\tau = \tau(z/\cos \gamma)$  a pumpa impulzushossza,  $I = I(z/\cos \gamma)$  az időben átlagolt pumpáló intenzitás,  $\lambda_0 = 2\pi c/\omega_0$  a pumpa fázisillesztett központi frekvenciája,  $\alpha_0 = \alpha_\epsilon(\omega_0)$ ,  $\beta_2, \beta_3$  a lineáris, két- és háromfotonos abszorpciók együtthatói. A szabad töltéshordozókból fakadó abszorpció koefficiense,  $\alpha_{fc}$ , a Drude-modell segítségével került meghatározásra [63]:

$$\alpha_{fc} \left( \Omega, \frac{z}{\cos \gamma} \right) = 2 \frac{\Omega}{c} \operatorname{Im} \left[ \sqrt{\epsilon_{\infty} \left( 1 - \frac{\omega_p^2}{\Omega^2 + \frac{i\Omega}{\tau_{sc}}} \right)} \right], \quad (15)$$

ahol  $\epsilon_{\infty}$  a nagy-frekvenciás dielektrikus együttható,  $\tau_{sc}$  az elektron átlagos ütközési ideje,  $\omega_p = eN_{fc}^{\frac{1}{2}} (\epsilon_0 \epsilon_{\infty} m_{eff})^{-1/2}$  a plazma frekvencia,  $e$  és  $m_{eff}$  az elektron töltése és effektív tömege. Jegyezzük meg, hogy mind  $\alpha_{fc}$ , mind  $N_{fc}$  függ a pumpa terjedési koordinátájától,  $z/\cos \gamma$ -tól.

A bemenő paraméterek a következők:

- Anyag
- Pumpáló hullámhossz
- Pumpáló impulzushossz
- Fázisillesztési frekvencia
- Spektrális tartomány szélessége, ahol a THz-es spektrumot vizsgálom
- Kristályhossz
- A minimális impulzushossz helye a kristályban (csörpölés függvénye)
- Pumpáló energia
- Pumpáló folt átmérője

A fent vázolt modell az egydimenzióra egyszerűsítése a nemkollineáris THz-keltésnek. Nem vettem figyelembe, hogy a pumpáló nyaláb véges keresztmetszetű, az interakciós hossz csökken a pumpáló és a THz-es nyalábok keresztirányú eltolódása miatt, illetve a pumpáló nyaláb impulzushossza és intenzitása megváltozik a nyaláb keresztmetszete mentén.

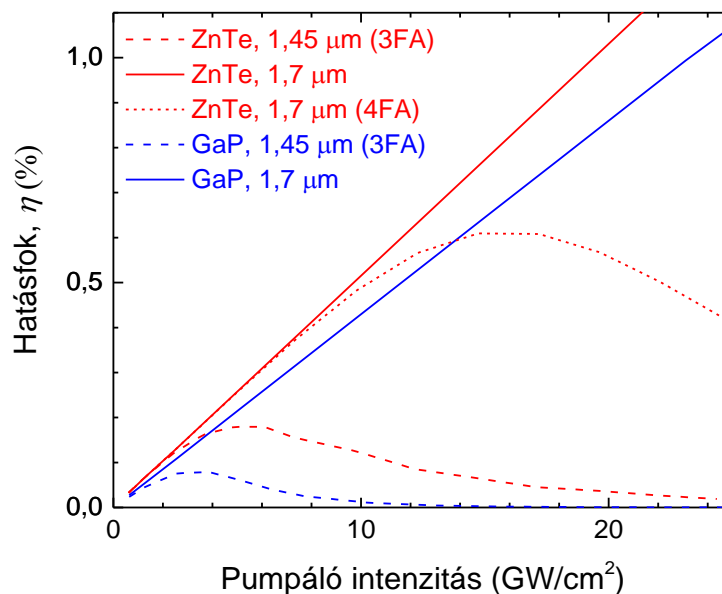
#### 4.1.2. Összehasonlítás a háromfotonos abszorpciós határhullámhossznál rövidebb és hosszabb pumpálás esetén

A szimulációkban 1,45  $\mu\text{m}$ -es pumpáló hullámhossz esetén a pumpa háromfotonos abszorpciójából fakadó szabad töltéshordozók abszorpciója a THz-es tartományban figyelembe lett véve. GaP esetén az irodalomban publikált [57, 64]  $\beta_3 = 4,2 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{GW}^2$  értéket használtam fel háromfotonos abszorpciós együtthatóként. Mivel az irodalomban nincs kapcsolódó anyag, a szimulációkban kezdetben GaP ezen paraméterét használtam fel ZnTe háromfotonos abszorpciójának becslésére, az alapján hogy a tiltott sáv szélessége a két félvezetőnek megegyezik. Később erre az együtthatóra  $\beta_3 = 1,8 \times 10^{-2} \text{ cm}^3/\text{GW}^2$ -et becsültem saját kísérleti adatok alapján, melyeket a fejezet későbbi részében mutatok majd be. Az együtthatók különbsége a görbék jellegét nem változtatta meg, csupán a maximális határfok helyét és nagyságát. A szimulációk egy részében, ahol ZnTe 1,7  $\mu\text{m}$ -en, a háromfotonos abszorpciós határhullámhosszal hosszabb hullámhosszal volt pumpálva, a négyfotonos abszorpciós együttható értékére  $\beta_4 = 4 \times 10^{-5} \text{ cm}^5/\text{GW}^3$  értéket vettem, amit szintén kísérleti adatokra való illesztés révén határoztam meg. A magasabb rendű többfotonos abszorpciók hozzájárulását az irodalomban meglévő adatok hiányában nem vettem figyelembe.

A szimulációk célja, hogy kimutassam, van-e lényeges különbség a háromfotonos abszorpciós határhullámhossznál rövidebb és hosszabb hullámhosszal való pumpálás esetén, és ha van, milyen határfokokat várunk a forrástól és milyen pumpáló intenzitást érdemes választani egy kísérletben.

A szimulációk eredményei egyértelműen mutatják, hogy szignifikáns a különbség az abszorpciós határhullámhossz két oldalán, és ahhoz, hogy nagy határfokot érjünk el, nem elegendő csak a kétfotonos abszorpció kiküszöbölése; a háromfotonos abszorpció komolyan

korlátozza a felhasználható pumpáló intenzitást, amint az a 15. ábra, a szaggatott vonalak esetén látható, amelyek ZnTe és GaP 1,45  $\mu\text{m}$ -en való pumpálását mutatják. A THz-keltés hatásfokának erős telítődése figyelhető meg már olyan alacsony pumpáló intenzitásoknál is, mint 6  $\text{GW}/\text{cm}^2$  és 3  $\text{GW}/\text{cm}^2$ , ZnTe és GaP esetén. A jósolt hatásfok maximuma  $2 \times 10^{-3}$  és  $3 \times 10^{-3}$ . Ezzel szemben, 1,7  $\mu\text{m}$ -en való pumpálás esetén és a négyfotonos abszorpció hatását elhanyagolva a THz-keltés hatásfoka lineárisan növekszik a lényegesen magasabb pumpáló intenzitásokkal (folytonos vonalak a 15. ábra). A négy-fotonos abszorpció figyelembe vételekor még 1,7  $\mu\text{m}$ -en is lesz a hatásfoknak telítődése ZnTe-ban (rövid, szaggatott vonalak a 15. ábraán). Ez a 0,6%-nak jósolt maximum 3,4-szer nagyobb, mint 1,45  $\mu\text{m}$ -es pumpálás esetén. Körülbelül 16  $\text{GW}/\text{cm}^2$  pumpáló intenzitást lehet használni ebben az esetben. Hasonló viselkedést várunk el GaP-tól is.



15. ábra Számolt THz-keltési hatásfokok a pumpáló intenzitás függvényében, ZnTe-nál (piros vonalak) és GaP-nál (kék vonalak) a háromfotonos abszorpció határhullámhossznál rövidebb- (szaggatott vonalak) és hosszabb (folytonos és pontozott vonalak) pumpáló hullámhosszak esetén. A figyelembe vett többfotonos abszorpció rendje zárójelben megtalálható a jelmagyarázatban. 100 fs-os impulzushosszt és 2.9 mm-es kristályhosszt feltételeztem. A fázisillesztési frekvenciát minden esetben a THz-es spektrum csúcsához illesztettem.

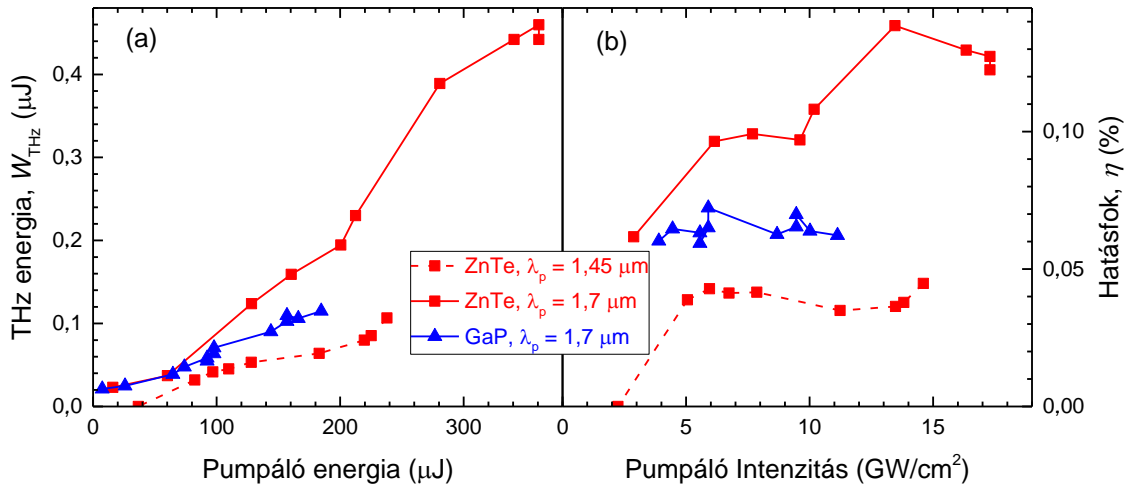
A fenti eredményeket kísérleti eredményeinkkel fogom összevetni. A különböző pumpáló hullámhosszak összehasonlítására egy, a kereskedelmi forgalomban kapható optikai



parametrikus erősítőt<sup>3</sup> (OPA) (Light Conversion, HE-TOPAS) használtunk. Ennek a pumpáló forrása egy titán-zafir lézer 1 kHz ismétlési frekvenciával. Az OPA kimenetén az impulzushossz 100 fs. A ZnTe kristálnál a pumpáló energia 240  $\mu\text{J}$ /360  $\mu\text{J}$  volt 1,45  $\mu\text{m}$ /1,7  $\mu\text{m}$  hullámhosszon. Az első kísérletben összehasonlítottam a keltett THz-es energia szempontjából a háromfotonos abszorpciós határhullámhossznál rövidebb (1,45  $\mu\text{m}$ ) és hosszabb (1,7  $\mu\text{m}$ ) hullámhosszú pumpálást. A mért THz-es energiát és hatásfokot a pumpáló energia és intenzitás függvényében a 16. ábra láthatjuk. 1,45  $\mu\text{m}$ -en való pumpálás esetén a maximális hatásfok körülbelül  $4 \times 10^{-4}$  volt 6  $\text{GW}/\text{cm}^2$ -es pumpáló intenzitás esetén, ami a három-fotonos abszorpció hatását mutatja. Magasabb intenzitásokon a hatásfok lassú csökkenése tapasztalható. 14  $\text{GW}/\text{cm}^2$  pumpáló intenzitás fölött a hatásfok ismét növekedni kezd, ami a háromfotonos abszorpció telítődésére utal. Hasonló viselkedést figyeltek meg a kétfotonos abszorpció telítődésével ZnTe-ban 0,8  $\mu\text{m}$ -es pumpáló hullámhossz esetén [65]. 1,7  $\mu\text{m}$ -es pumpálásnál, ahol csak a négyfotonos és magasabb rendű abszorpció volt hatásos, a hatásfok  $1,4 \times 10^{-3}$ -ig nő 13,5  $\text{GW}/\text{cm}^2$  pumpáló intenzitásig, majd csökkenni kezd. Ez a hatásfok 3,5-ször nagyobb, mint az 1,45  $\mu\text{m}$ -es pumpálás esetén, köszönhetően a háromfotonos abszorpció kiküszöbölésének.

---

<sup>3</sup> Optikai parametrikus erősítés – Másodrendű nemlineáris optikai folyamat. Optikai parametrikus erősítésről akkor beszélünk, ha egy adott frekvenciájú intenzív (pumpa) és egy alacsonyabb frekvenciájú gyengébb (jel) hullám úgy halad keresztül a nemlineáris kristályon, hogy közben a gyengébb jel megerősödik. Az energia megmaradást kielégítve a folyamat során keletkezik egy harmadik hullám is, amelynek a frekvenciája az előbbi kettőnek különbsége.



16. ábra THz energia a pumpáló energia függvényében (a) és THz-keltési hatások a pumpáló intenzitás függvényében (b) ZnTe ( $1,45 \mu\text{m}$  és  $1,7 \mu\text{m}$ -en pumpálva) és GaP ( $1,7 \mu\text{m}$ -en pumpálva) esetén. A pumpáló impulzushossz  $100 \text{ fs}$  volt.

A mért hatásfokokat összehasonlítva a korábban tárgyalt szimuláció eredményeivel azt kapjuk, hogy egy egyszerű modell segítségével megjósolhatjuk a háromfotonos abszorpció által okozott hatásfok maximumot  $1,45 \mu\text{m}$ -en és a négyfotonos abszorpció által okozott hatásfok maximumot  $1,7 \mu\text{m}$ -en, habár a mért hatásfokok négy nagyságrenddel kisebbek a számoltaknál. A különbség adódhat a kis pumpáló foltméretből, ami a kölcsönhatási hosszat korlátozza. Nagyobb foltméret esetén jobb egyezést kapunk, amit a 4.3-as fejezetben mutatok meg.

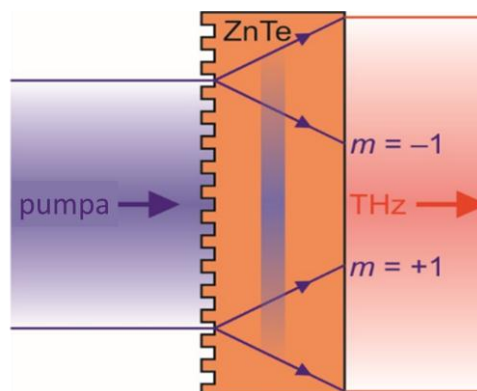
## 4.2. Kontaktrácsos félvezető THz-es forrás

Ahogy azt a 2.2.2-es fejezetben említettem, az impulzusfront döntésnek számos hátránya van, melyek megoldására született a kontaktrács ötlete [35], később az első ilyen eszköz terve [36], majd az első LN anyagú kontaktrács megvalósítása, igen alacsony hatásfokkal [37]. Bakunov és Bodrov tovább finomították a kontaktrács ötletét szimmetrikus diffrakciós rendeket tervezve [66]. Az eredményeim ezekre a tapasztalatokra épülnek.

Monolitikus, könnyen beállítható, ZnTe anyagú, kontaktrácsos THz-es forrás működését demonstráltam. A THz forrás a háromfotonos abszorpciós határhullámhossznál hosszabb

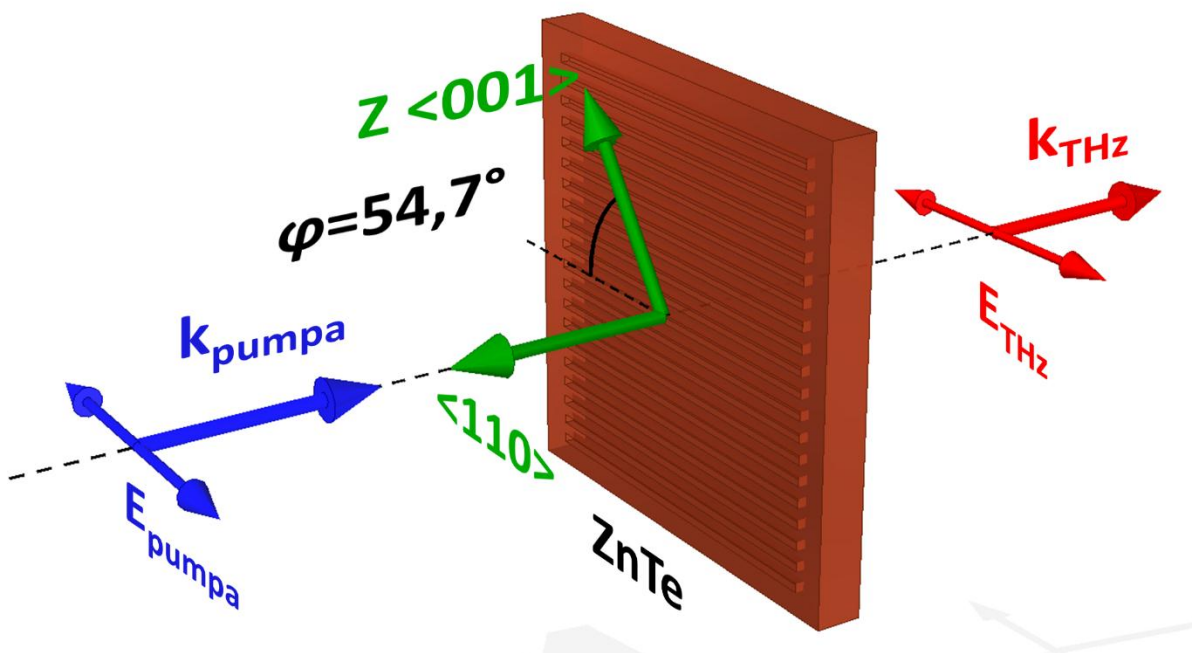
hullámhosszon, 1,7  $\mu\text{m}$ -en volt pumpálva. Ilyen hullámhosszú pumpálás lehetővé teszi a két- és háromfotonos abszorpció kiküszöbölését az ezekhez tartozó szabad töltéshordozó abszorpcióval együtt. Ennek lényeges következménye, ahogyan azt fentebb bemutattam, hogy nagyobb pumpáló intenzitás használható, és nagyobb THz-keltési hatások érhetőek el. A félvezetők infravörös hullámhosszon való pumpálása esetén a fázisillesztéshez impulzusfront döntés szükséges. Az impulzusfront döntést magában a kristályban is létre lehet hozni, ha a rács a kristály belépőfelületén helyezkedik el. Ezáltal elkerülhetjük az optikák leképezési hibáit, amelyek a döntött impulzusfrontú gerjesztés esetén fellépnek. Az alacsony impulzusfront-döntési szög (20-30°) a félvezetőket ideális kontaktrács-alapanyaggá teszi.

A félvezető anyagú kontaktrácsos THz-forrás működési alapelvét a 17. ábra mutatja. Paramétereinek meghatározásával foglalkozik a [41] cikk. Az impulzusfront döntését létrehozó rácsstruktúra a nemlineáris anyag belépő felületén helyezkedik el. Az ábrán mutatott elrendezésben a pumpáló nyaláb merőlegesen érkezik a kontaktrácsra és két szimmetrikusan terjedő diffrakciós rend  $m = \pm 1$  keletkezik a fázisillesztéshez ideális szögben. A keltett THz-es nyaláb kollinearisan terjed tovább a pumpáló nyalábbal és a kristály hátsó felületén lép ki. Az elrendezés fontos előnye, hogy plánparalel szubsztrát használható.



17. ábra Sematikus rajz a kontaktrácsos THz-forrásról kollinearisan elrendezésben, ami  $\pm 1$  rendű diffrakciós rendeket használja fel.

A ZnTe-ot, mint alapanyagot a relatíve nagy nemlineáris együtthatója ( $d_{eff} = 68,5 \text{ pm/V}$  [34]) és a tiltott sáv szélessége (2,26 eV) miatt választottuk, de a technika más félvezetőkre is alkalmazható. Az  $1,7 \text{ }\mu\text{m}$ -en való pumpálást a két- és háromfotonos abszorpció kiküszöbölése miatt választottuk. Az impulzusfront-döntési szögét 1 THz-es fázisillesztéshez állítottuk, a rácsperiódus megválasztásával ( $p = 1275 \text{ nm}$ ),  $28^\circ$ -ra. Az optikai- és a THz-es nyaláb polarizációja, a terjedési irányok, a 2 mm vastag ZnTe szubsztrát orientációi és rácsozása látható a 18. ábra.



18. ábra A kontakt-rács alapú THz-es forrás geometriája.  $E_{pumpa}$  és  $E_{THz}$  a pumpa és a THz polarizációs irányai,  $k_{pumpa}$  és  $k_{THz}$  a pumpa és THz terjedési irányai. A kristálytani tengelyeket jelölik a zöld színű számok.  $\varphi$  a rácsozás és a kristálytani Z-tengely között bezárt szöveget jelölik.

A rácsstruktúra megfelelő orientációja a dielektromos Z-tengelyhez képest az (110) orientációjú ZnTe kristály szubsztráton létfontosságú volt a hatékony THz-keltéshez. A másodrendű nemlineáris polarizáció függése  $\varphi$ -tól (ami a Z-tengely és az optikai nyaláb polarizációs iránya közötti szög), a következőképpen számolható ki:

ZnTe kristálytani osztálya  $\bar{4}3m$ . Ennek az osztálynak három megmaradó összevont mátrix eleme van és ezek közül csak egy független:  $d_{14} = d_{25} = d_{36}$ . Amikor ZnTe-ra egy optikai tér hat, a keltett THz-es sugárzás teljesítménye a tér kristályszerkezetén belüli irányától függ. Egy tetszőleges tér felírható a poláris szög  $\phi$  és az azimutális szög  $\theta$  segítségével:

$$\mathbf{E}_0 = E_0 \begin{pmatrix} \sin \phi \cos \theta \\ \sin \phi \sin \theta \\ \cos \phi \end{pmatrix} \quad (16)$$

A (16) egyenletet felhasználva és ZnTe szimmetria tulajdonságait figyelembe véve a nemlineáris polarizációra azt kapjuk, hogy

$$\begin{pmatrix} P_x \\ P_y \\ P_z \end{pmatrix} = 2\epsilon_0 d_{14} E_0^2 \begin{pmatrix} 0 & 0 & 0 & 1 & 0 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 1 & 0 \\ 0 & 0 & 0 & 0 & 0 & 1 \end{pmatrix} \begin{pmatrix} \sin^2 \phi \cos^2 \theta \\ \sin^2 \phi \sin^2 \theta \\ \cos^2 \phi \\ 2 \sin \phi \cos \phi \sin \theta \\ 2 \sin \phi \cos \phi \cos \theta \\ 2 \sin^2 \phi \sin \theta \cos \phi \end{pmatrix} \quad (17)$$

$$= 4\epsilon_0 d_{14} E_0^2 \sin \theta \begin{pmatrix} \cos \phi \sin \theta \\ \cos \phi \cos \theta \\ \sin \phi \sin \theta \cos \theta \end{pmatrix}.$$

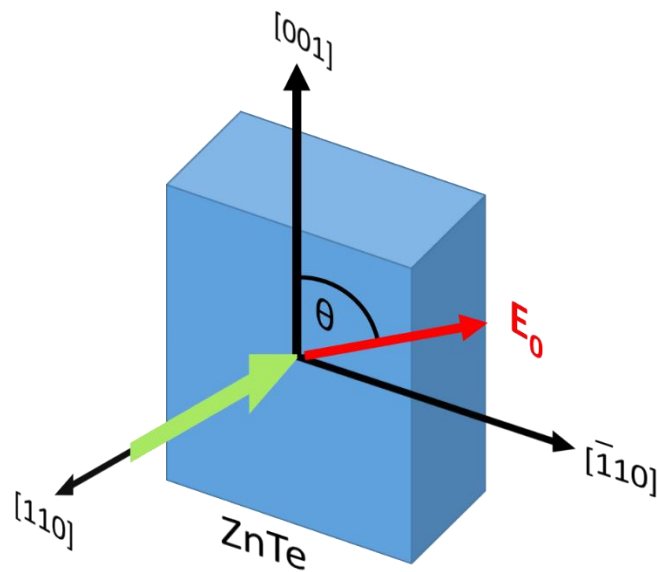
A keletkező THz-es tér párhuzamos a nemlineáris polarizációval, emiatt a THz-es sugárzás intenzitásának a szögfüggése:

$$I_{THZ}(\theta, \phi) \propto |P|^2 = 4\epsilon_0^2 d_{14}^2 E_0^4 \sin^2 \phi (4 \cos^2 \phi + \sin^2 \phi \sin^2 2\theta). \quad (18)$$

A THz-es intenzitás maximális, amikor  $\sin^2 2\theta = 1$  ( $\theta = \frac{\pi}{4}$  vagy  $\frac{3\pi}{4}$ ), tehát, amikor az optikai hullám az (110) síkban polarizált.

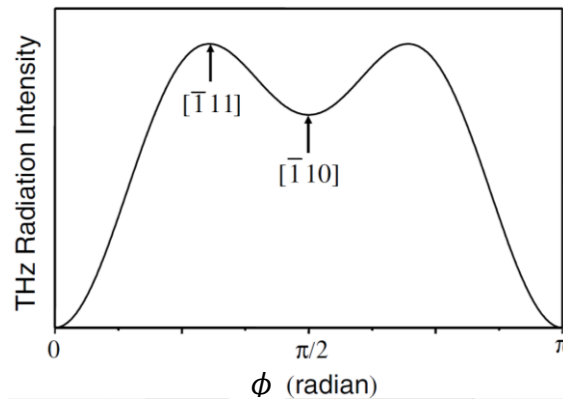
A 19. ábra egy (110) orientációjú ZnTe kristály és az arra merőlegesen érkező lézernyaláb térerősség vektorai láthatók. A lineárisan poláros optikai nyaláb a ZnTe [110] tengelye mentén terjed, a [001] tengellyel  $\phi$  szöget bezáró optikai térrel. A kisugárzott THz-es intenzitás  $\theta$  függvényében a következőképpen írható fel (18) alapján:

$$I_{THz}(\phi) = \frac{3}{4} I_{THz}^{max} \sin^2 \phi (4 - 3 \sin^2 \phi). \quad (19)$$



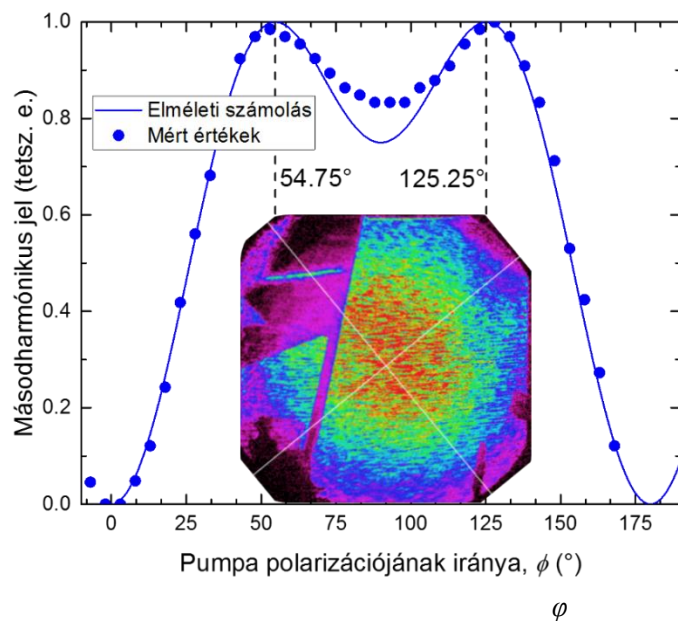
19. ábra Egy lineárisan poláros optikai hullám a ZnTe kristálynak az (110) síkjára érkezik, arra merőlegesen.  $\theta$  az optikai tér és a [001] tengely által bezárt szög.

A maximális intenzitás  $\phi = \sin^{-1} \sqrt{\frac{2}{3}}$  esetén teljesül. Ez a szög egy  $[\bar{1}11]$  vagy  $[1\bar{1}1]$  tengelyekkel párhuzamos optikai térnek felel meg. Más szavakkal, optimalizálhatjuk a THz-es intenzitást, ha az optikai teret a Zn és Te kémiai kötéseinek irányába állítjuk [ezzel kapcsolatban ld: [47] 78. oldal], a rácsozásnak pedig ezzel az optikai térrel kell párhuzamosnak lennie. A 20. ábra a szögfüggő THz-es sugárzás intenzitását mutatja.

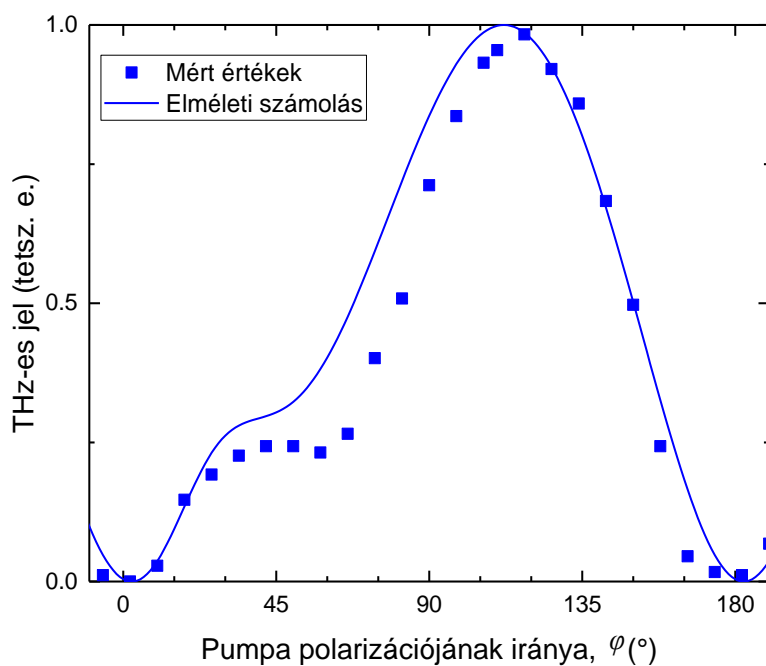


20. ábra THz-es sugárzás intenzitása az azimutális szög függvényében ZnTe-ban [47]

A (14) egyenlet alapján tehát a legnagyobb THz-keltési hatásfok  $\varphi=54,7^\circ$ -nál és  $\varphi=125,3^\circ$ -nál várható. Mivel ugyanez az összefüggés érvényes egy másik másodrendű nemlineáris folyamatra a másodharmonikus-keltésre is, ezért ezt használtam fel, hogy karakterizáljam a ZnTe kristály domén struktúráját és orientáljam a mintát a rácsozás előtt. Tehát másodharmonikus-keltettem a ZnTe szubsztráton, a laborunkban meglévő 1030 nm-es hullámhosszú lézerünkkel. A karakterizálás eredményét mutatja a 21. ábra. Az ábrán a görbe alatt a kivilágított  $20 \times 20 \text{ mm}^2$ -es szubsztrát CCD kamerával rögzített képét is láthatjuk, amin tisztán látszik, hogy a különböző kristály domének különböző orientációval helyezkednek el egymás mellett a kristályban. A  $10 \times 10 \text{ mm}^2$ -es rácsozást úgy pozicionáltuk, hogy az egész felülete a legnagyobb összefüggő doménen helyezkedjen el. A rácsozás iránya egyaránt lehet  $\varphi=54,7^\circ$ -nál és  $\varphi=125,3^\circ$ -nál, figyelembe véve, hogy a diffrakciós hatásfok transzverzális-elektromos polarizáció esetén maximális [41]. Miután a kontaktrács elkészült, megmértem a THz-es jel nagyságát a pumpáló impulzus polarizációs szögének függvényében, ezt látjuk a 22. ábra. Az aszimmetria annak köszönhető, hogy a diffrakciós hatásfok eltérő transzverzális-elektromos (párhuzamos a rácsozással) és transzverzális-mágneses (merőleges a rácsozásra) polarizáció esetén.



21. ábra Mért (körök) és számolt (vonal) másodharmónikus intenzitás értékek a pumpa polarizációs irányának,  $\phi$ -nek függvényében, ZnTe Z-tengelyétől mérve. Az inset CCD kamerával felvett másodharmónikus intenzitást mutatja.

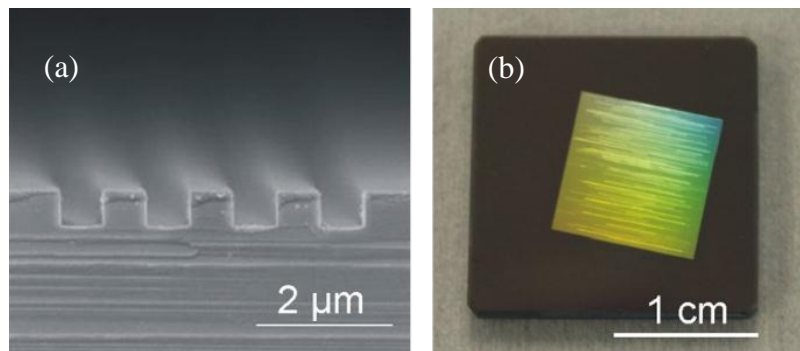


22. ábra Mért (négyzetek) és számolt (vonal) THz-es jel a pumpa polarizációs irányának függvényében.

A megmunkált rácprofil nagyjából megegyezik a tervezett bináris profillal és a legnagyobb hatásfokra optimalizálva készült. 50%-os kitöltési tényezővel, 400 nm-es profil mélységgel, a rácsvonalakkal párhuzamos polarizáció esetén összesen körülbelül 78%-os diffrakciós hatásfok várható a  $\pm 1$  rendekben.



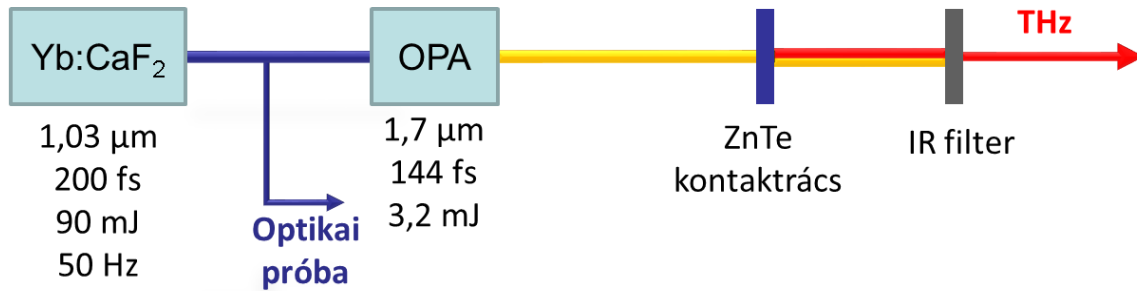
A 10x10 mm-es felületű rácsozás a Scitech Precision cégnél készült, elektronnyaláb mikrolitográfia és száraz (plazma) maratás kombinálásával. Alapból a polírozott ZnTe szubsztrátot maratásálló fém filmmel vonták be, amit egy elektronnyaláb-álló réteg követett. A bevonaton a mintázatot elektronnyaláb-litográfiával hozták létre. A mintázat a filmrétegre és ezt követően a ZnTe-ba két különböző száraz-maratási lépésben került fel. Végül a maradék fémet eltávolították és a szubsztrátot megtisztították. Közel merőleges falakat sikerült a szubsztrátba marni (23. ábra (a)), ami a magas diffrakciós hatásfok céljából szükséges. Megjegyzendő, hogy a kristály növesztésekor buborékok alakultak ki a kristályban, amik a maratás során gödrökké alakultak a kristály felszínén. A gödrök a rácprofil hibáiként jelentkeztek (fehér vonalak a 23. ábra (b) részén) és a megmunkált terület 20%-át érintették, továbbá a rácsozás hiánya hatásfokbeli csökkenést eredményezett a THz-keltésben.



23. ábra Elektron mikroszkópos felvétel a teszt példány rácprofiljáról, illetve fénykép az elkészült kontaktrácstról

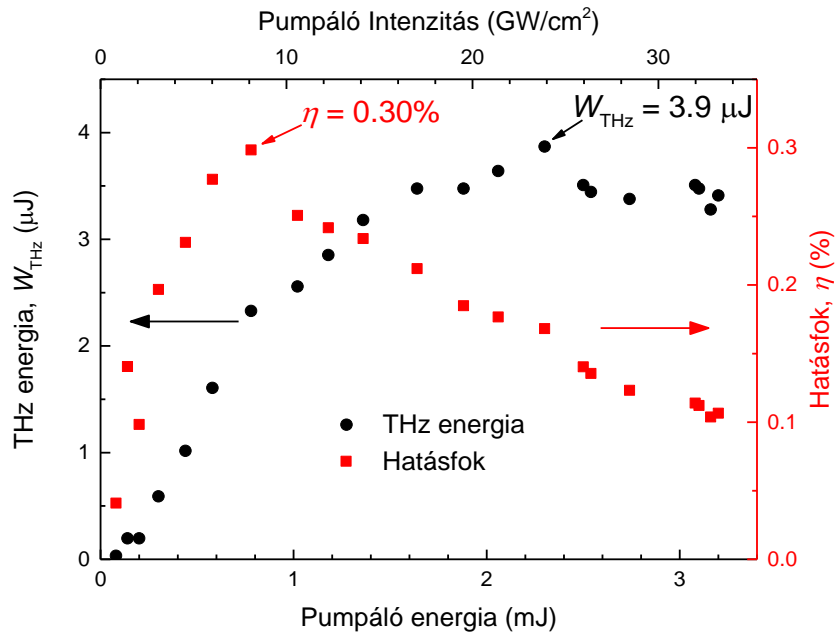
A THz-es impulzusok energiáját egy kalibrált piroelektromos detektorral (Gentec, QS9-THZ-BL) mértük. Egy teflon filterrel kiszűrtük az infravörös pumpáló nyalábot és csak a THz-es impulzusokat eresztettük át a detektorba. A detektor jelét egy oszcilloszkópon mértük, és a THz-es energiát ( $W$ ) a felvett jel feszültség modulációjából ( $V$ ) határoztuk meg a  $W = C \cdot V \cdot \tau / S$  képlet alapján, ahol a gyári kalibráció alapján  $S = 1,2$  kV/W, a korrekciós faktor,  $C \sim 1$  és az idő állandó,  $\tau = 5,1$  ms méréseink alapján. A 24. ábra mutatja a mérési elrendezést. A pumpáló forrás egy négyfokozatú OPA volt, ami 1,7  $\mu\text{m}$ -es hullámhosszú

impulzusokat állított elő és 3,2 mJ-nyi pumpáló energiát juttatott el a kontaktrácsig. Az erősítő további adatai a [67] cikkben található.



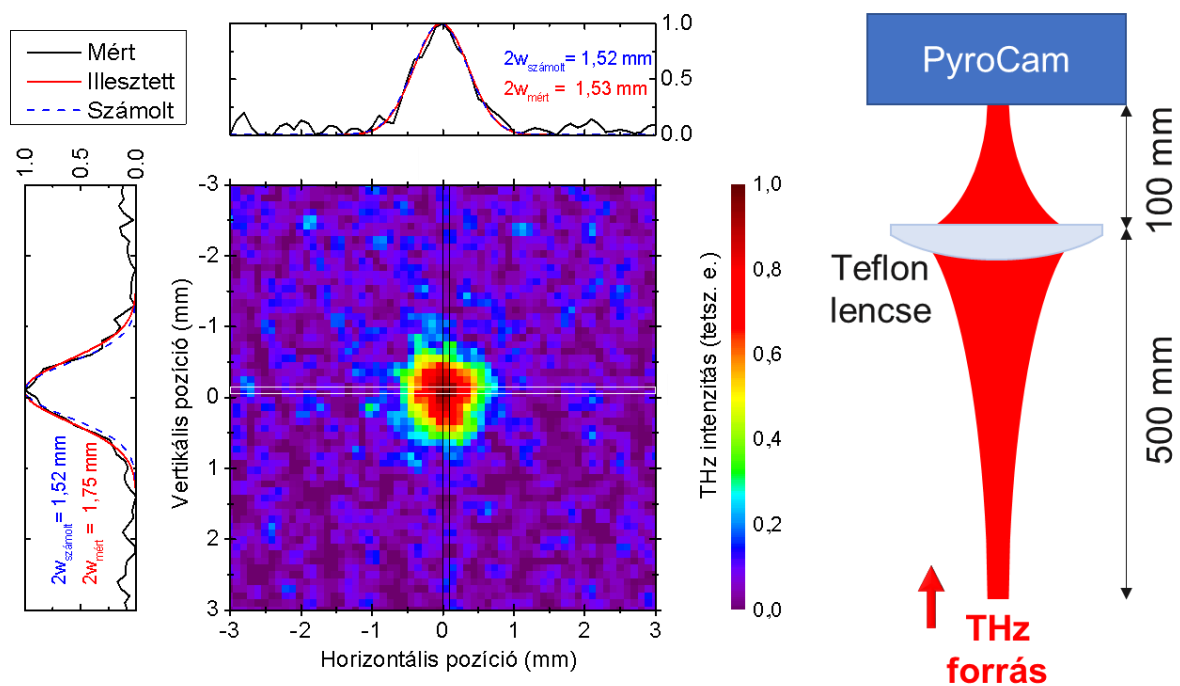
24. ábra Kontaktrács kísérleti elrendezése. A pumpáló forrás egy négyfokozatú OPA volt, amit egy Yb:CaF<sub>2</sub> forrás hajtott meg, lehetővé téve nagy pumpáló energiák használatát 1,7 μm hullámhosszon.

3,9 μJ THz impulzus energiát mértünk a kontaktrács forrásból (25. ábra, fekete körök), 0,17%-os hatásfokkal (25. ábra, piros négyzetek). Összehasonlításképp, félvezetőforrásból az eddigi legmagasabb THz-es impulzus energia 1,5 μJ volt. A maximális hatásfok 0,3% volt 2,3 μJ THz-es energiánál. A hatásfok így 6-szor nagyobb, mint bármely korábban publikált félvezető forrásé [53], és 97-szer nagyobb, mint a korábban publikált legmagasabb érték ZnTe alapú forrás esetén [26]. Az előbbi GaAs alapú forrással érték el a kétfotonos abszorpciós határhullámhossznál hosszabb, de még a háromfotonos abszorpciós határhullámhossznál rövidebb pumpáló hullámhosszal [53]. Az utóbbit pedig ZnTe 0,8 μm-es kollineáris pumpálásával, amit erősen limitált a kétfotonos abszorpció. Megjegyzendő, hogy LN alapú kontaktrácsforrással – részben technikai okokból – eddig csak nagyon alacsony THz-keltési hatásfokot tudtak előállítani ( $1,5 \times 10^{-4}$ ) [37]. Az itt bemutatott eredmények tisztán mutatják a félvezető alapú kontaktrácsban rejlő lehetőségeket úgy az energia, mint a hatásfok szempontjából.



25. ábra Mért THz energia (fekete kör) és a THz-keltés hatásfoka (piros négyzet) a pumpáló energia és intenzitás függvényében

A kollineáris elrendezés geometriájának egyik lényeges következménye a THz-es nyaláb nagyon jó fókuszálhatósága. Ezt illusztrálja a piroelektromos kamera (Ophir Spiricon, PyroCam III) képe a THz-es fókuszfoltról (26. ábra), ahol a foltméretnek a diffrakciós limittől való relatív eltérése körülbelül csak 15% volt. A diffrakció limit becsléséhez Gauss-nyalábos terjedést tételeztünk fel, ahol a kezdeti nyalábméret megegyezett a pumpa foltméretével a kontaktrácson.



26. ábra THz nyaláb profil és a hozzá tartozó mérési elrendezés. A vertikális irányban a felvett nyalábkép csak alig nagyobb, mint a várt diffrakciólimitált foltméret, míg horizontális síkban a mért és számolt méretek megegyeznek.

Elektro-optikai mintavételezés során egy közel egy-ciklusú THz-es hullámformát kaptunk (27. ábra). A mintavételezéshez egy (110) orientációjú, 0,1 mm vastagságú ZnTe kristályt használtunk, ami egy 2 mm vastag inaktív szubsztráton helyezkedett el, Mintavételezéshez az optikai parametrikus erősítőt meghajtó 1,03  $\mu\text{m}$  hullámhosszú, 200 fs-os impulzusokat használtuk. A csúcstérerősség körülbelül 0,57 MV/cm volt, amit a mért 3,9  $\mu\text{J}$  impulzus energiából, a 2,1  $\text{mm}^2$  fókuszolt méretéből és a hullámformából (27. ábra) a következőképpen becsültem:

Az intenzitást és a térerősséget összekapcsolja az alábbi kifejezés:

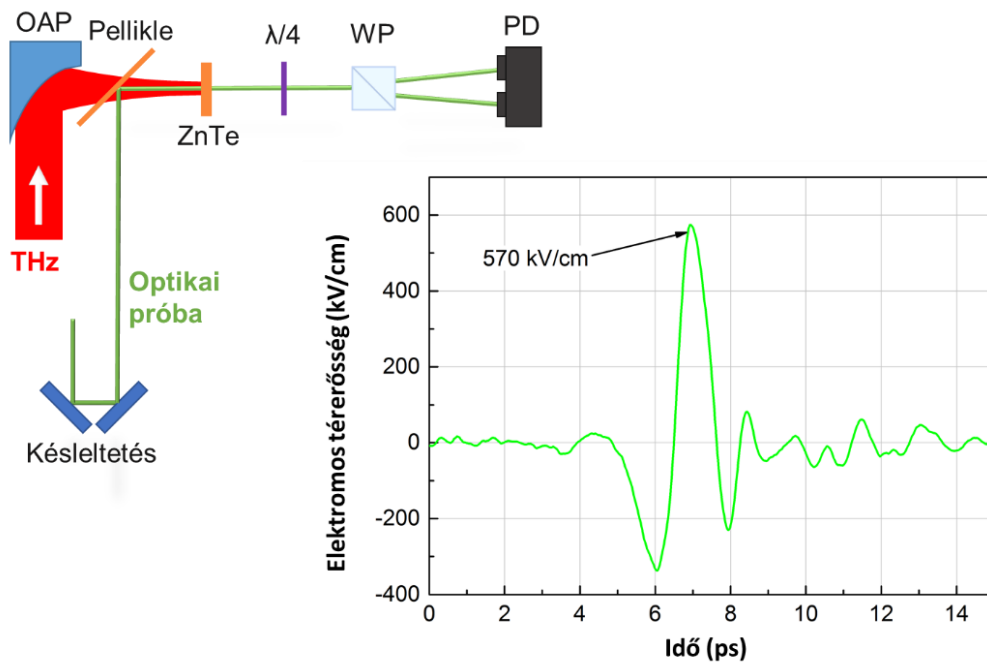
$$I = \frac{1}{2} \epsilon_0 c \mathcal{E}(t)^2 \quad (20)$$

ahol  $\epsilon_0$  a vákuum permittivitás és  $c$  a fénysebesség, továbbá az intenzitást kifejezhetjük a teljesítményen és a nyalábméreten keresztül,  $I=P/A$ -val. Így a térerősségre azt kapjuk, hogy

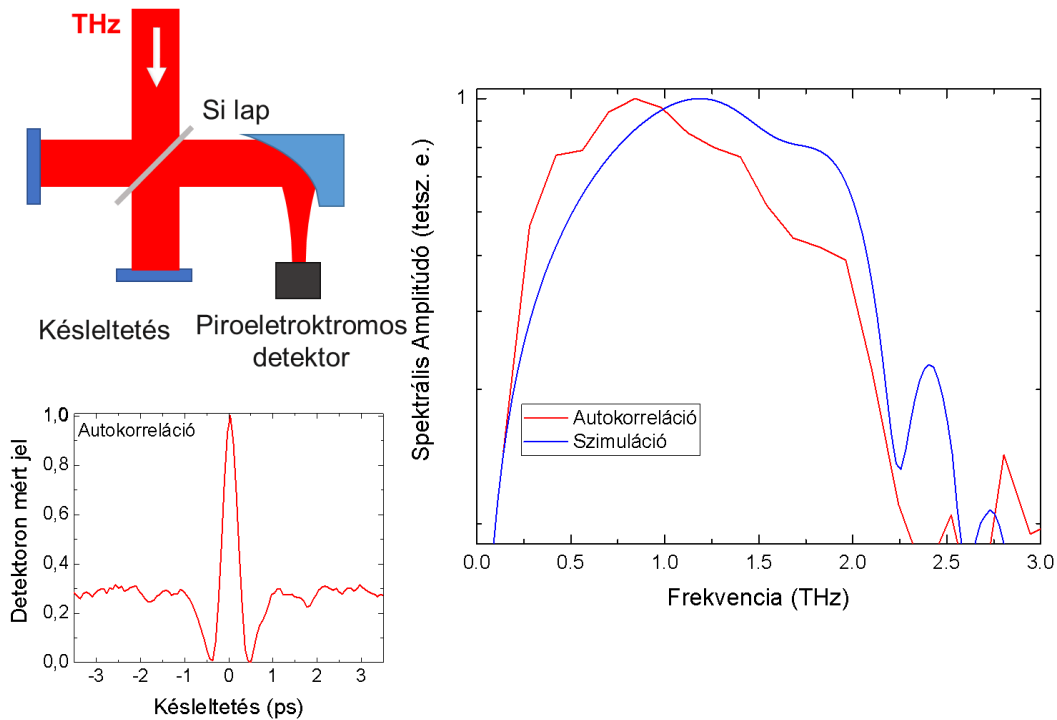
$$\mathcal{E}(t) = \sqrt{\frac{2P}{A\epsilon_0 c} \cdot \frac{f(t)}{\int f(t)^2 dt}} \quad (21)$$

ahol a szorzat második tagja a hullámforma ( $f(t)$ ) normálásáért felelős.

A THz-es spektrumot Fourier transzformációs spektroszkópiával mértük meg, hogy elkerüljük a relatíve hosszú mintavételező impulzusból fakadó torzítást. Ehhez a tér autokorrelációt mértük meg egy Michelson interferométerrel, ami egy szilícium nyalábosztóból és egy piroelektromos energiamérőből, mint detektorból állt. A THz-es spektrum az interferogram Fourier transzformációja révén állt elő. A spektrális intenzitás maximuma 0,9 THz-nél volt, és egészen 2,3 THz-ig csengett le (28. ábra).



27. ábra Elektro-optikai mintavételezés kísérleti elrendezése (OAP – Off-axis parabola, Pellikle – THz-es nyaláb számára áttetsző optikai tükör,  $\lambda/4$  – retardációs lemez, WP – Wollaston-prizma, PD – fotodióda-pár) és a THz-es impulzus felvett időbeli alakja

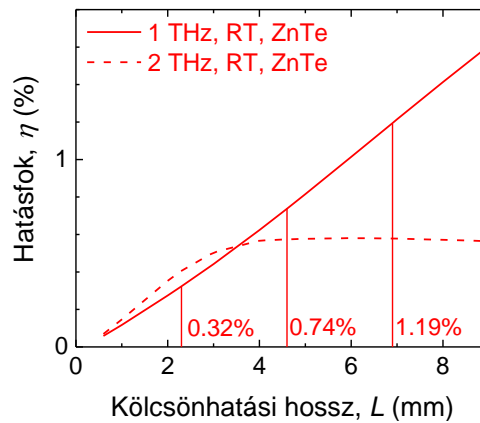


28. ábra Autokorrelációs mérési elrendezés, felvett jel és a belőle számolt spektrum a számolások által kapott spektrummal együtt ábrázolva. A mért és számolt spektrumok között kicsi az eltérés, a THz-es impulzusok frekvenciája alacsony.

Ebben a fejezetben demonstráltam egy kompakt, monolitikus, finom beállítást nem igénylő, félvezető anyagú THz-forrást. A félvezetőt a háromfotonos abszorpciós határhullámhosszánál hosszabb hullámhosszon pumpáltuk miközben kontaktrács hozta létre a döntöttimpulzus-frontot az anyagban. A kollineáris elrendezés felhasználóbarát és a THz-es nyaláb kitűnő fókuszálását teszi lehetővé. A bemutatott hatásfok hatszor nagyobb volt, mint a korábban publikált legnagyobb hatásfokú félvezető alapú forrásé és két nagyságrenddel nagyobb, mint a legnagyobb hatásfokú ZnTe alapú forrásé. A kapott nagy hatásfokok hasonlóak nagy energiájú LN alapú forrásokéhoz [6], ami azt mutatja, hogy a nagyenergiájú THz-es források kiváló alapanyagai lehetnek a félvezető alapú kontaktrácsok.

### 4.3. Extrém nagy hatásfokú félvezető THz-forrás

A korábban bemutatott modellen alapuló számolásaim szerint további hatásfok növekedés érhető el, ha az anyagvastagságot növeljük (29. ábra), emiatt a ZnTe kontaktrács után egy vastagabb prizmat vágattunk ugyanebből az anyagból. [34] cikk alapján kiszámoltam a félvezető kristályban szükséges impulzusfront döntési szögét az optimális fázisillesztéshez 1,7  $\mu\text{m}$  pumpáló hullámhosszra, kiszámítottam az impulzusfront döntéséhez szükséges rács rácsállandóját és megterveztem az elrendezés geometriáját.

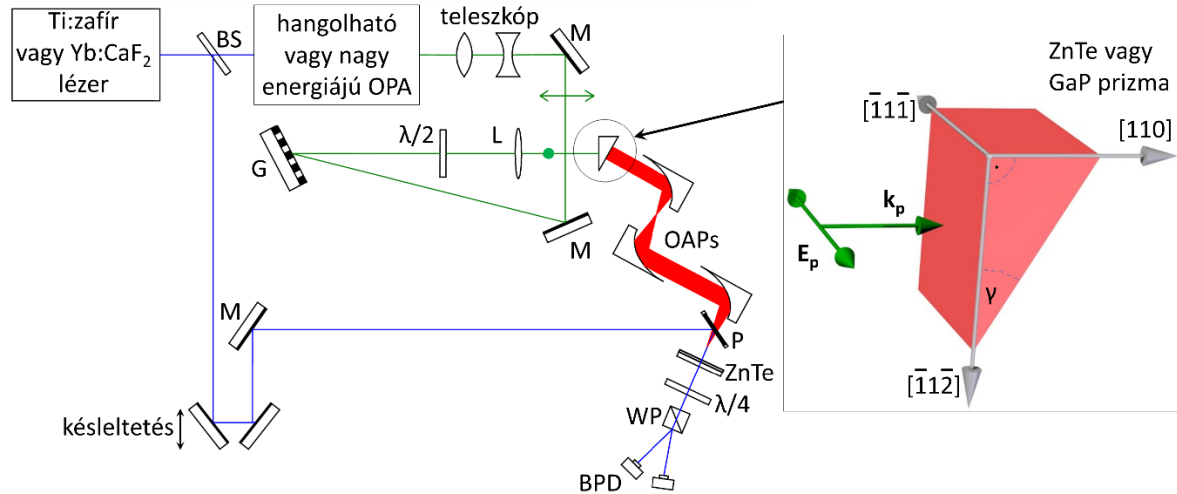


29. ábra Szimuláció THz-keltésre. A THz-keltés hatékonysága a kristályhossz növekedésével 1 (folytonos vonal) illetve 2 THz-es (szaggatott vonal) fázisillesztési frekvencia esetén. A pumpáló paraméterek: 1,7  $\mu\text{m}$  pumpáló hullámhossz, 144 fs impulzushossz, 8,1  $\text{GW}/\text{cm}^2$  pumpáló intenzitás. Ezutóbbi adat megfelel a korábbi kísérletben a maximális hatásfokhoz tartozó pumpáló intenzitásnak (25. ábra)

A nagyintenzitású THz-es impulzusok keltésére a korábban bemutatott négyfokozatú optikai parametrikus erősítőt használtunk pumpáló forrásként. A kísérleti elrendezést mutatja a 30. ábra. A THz-es impulzusokat egy (110) orientációjú ZnTe prizmban keltettük, hagyományos, döntött impulzusfrontú elrendezésben, ahol egy 600 1/mm-es rácsállandójú ráccsal és egy 200 mm-es fókusztávolságú lencsével a minimális optikai leképezési hibákra optimalizáltuk a rendszert a korábbi tervek alapján. A  $\lambda/2$ -es retardációs lemezzel a rácsról horizontális polarizációban diffraktálódó nyaláb polarizációját vertikálisra forgattuk, hogy a

kristály  $[1\bar{1}1]$  tengelyével párhuzamos legyen a maximális THz-keltéshez (ld. 4.2-es fejezet).

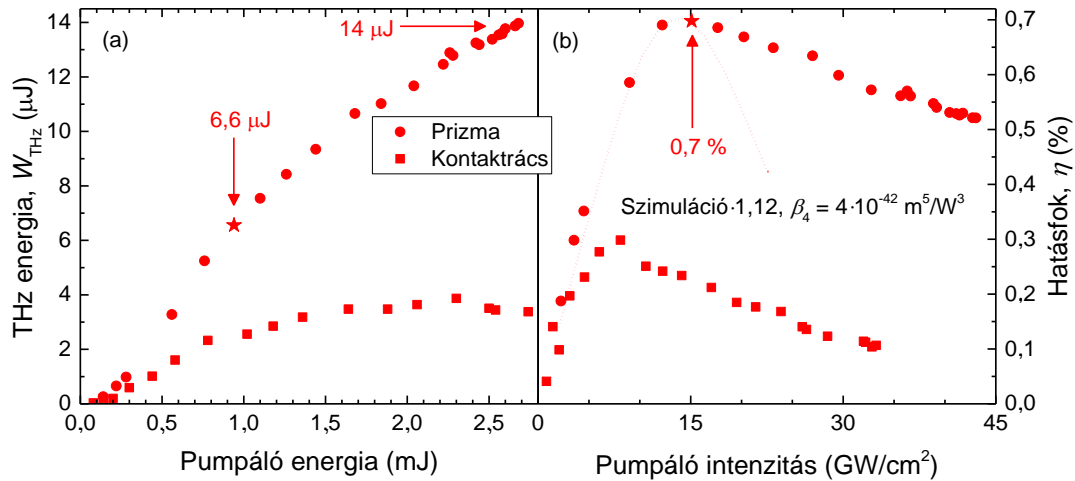
A THz-es energiát a kontaktrácsos kísérletben leírt módon mértük meg.



30. ábra Kísérleti elrendezés (BS – nyálábosztó, M – tükör, G – optikai rács,  $\lambda/2$ ,  $\lambda/4$  – retardációs lemezek, L – lencse, OAPs – Off-axis parabolák, P – pellikle, THz-es nyáláb számára áttetsző optikai tükör, WP – Wollaston-prizma, BPD – fotodetektor-pár), a pumpa polarizációjának és a kristály orientációjának viszonya

Eredményeink a 31. ábra láthatók. A nagyobb pumpáló energia révén nagyobb pumpáló foltméret és jelentősen megnövekedett THz-es energia és hatások vált elérhetővé. A mért maximális THz-es energia  $14 \mu\text{J}$  volt 0,5%-os hatásokkal. A korábbi legnagyobb THz-es impulzus energia félvezetőforrásból  $1,5 \mu\text{J}$  volt. Az általunk mért legnagyobb hatások pedig 0,7% volt  $15 \text{ GW}/\text{cm}^2$  pumpáló intenzitás esetén és  $6,6 \mu\text{J}$  THz-es energiával. A csökkenő hatások ezen pumpáló intenzitás érték fölött a négyfotonos abszorpcióval hatásával magyarázható. Az elért maximális hatások 14-szer nagyobb, mint a legnagyobb korábbi érték félvezetőforrásból [53], és 220-szor nagyobb, mint a legnagyobb előállított érték ZnTe forrásból [26], ez is alátámasztja a kristályhossz növelésének hatásoknövelő hatását.

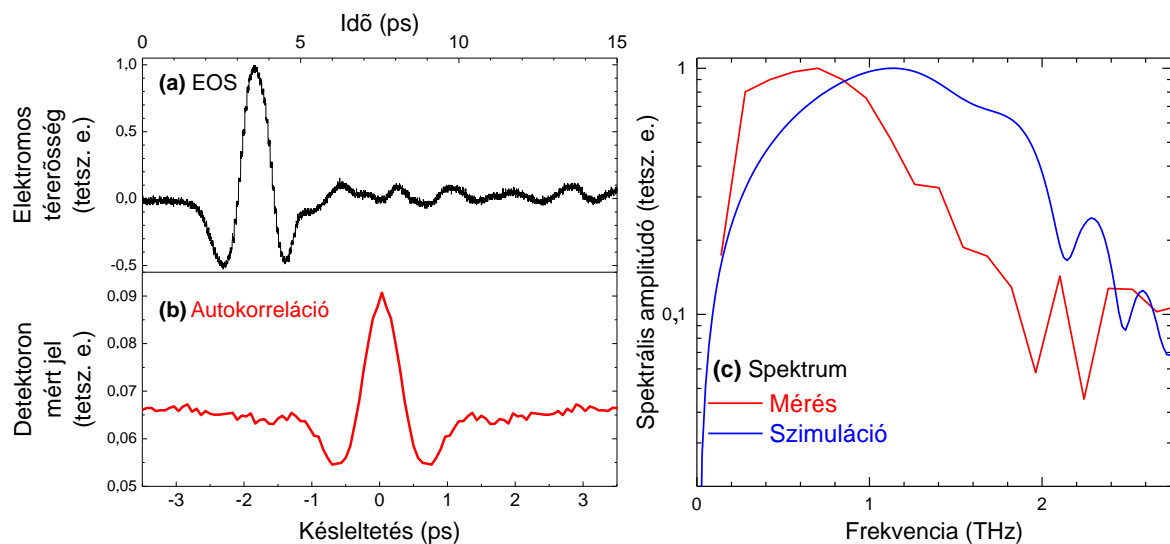




31. ábra THz energia a pumpáló energia függvényében (a) illetve THz-keltési hatások a pumpáló intenzitás függvényében (b) ZnTe esetén nagy energiájú OPA forrással, 1,7  $\mu\text{m}$  pumpáló hullámhosszon. A szaggatott vonal a szimulációhoz tartozik, ami a négy-fotonos abszorpció figyelembevételével készült

Megmértük a THz-es impulzusok hullámformáját elektro-optikai mintavételezéssel, az előző fejezetben leírt módon. Hogy elkerüljük a meglehetősen hosszú mintavételezési impulzusokból fakadó torzítást a spektrumban, ezért Fourier transzformációs spektroszkópiával is karakterizáltuk a THz-es impulzusokat szintén az előző fejezetben említett autokorrelációs módszerrel.

Az elektrooptikai mintavételezésből egy közel egyciklusú THz-es hullámalak adódott (32. ábra). Az autokorrelációs mérésből készített spektrumon jól látható, hogy a THz-es impulzusok spektruma befedi a teljes tartományt 0,1 THz-től 2 THz-ig egy intenzitás maximummal 0,7 THz-nél. A mért spektrum a szimulációból számolt spektrummal jó közelítéssel megegyezik.



32. ábra A THz-es impulzusok időbeli alakja elektro-optikai mintavételezéssel mérve (a), autokorrelációs jel Michelson-interferométerrel mérve (b), spektrális amplitúdó (c)

Szót kell még ejteni a detektorok kalibrálási hibájáról. A tudományterület jelenlegi kiforratlanságának köszönhetően a különböző gyártók detektorai által mért értékek között akár egy kettes faktor is lehet. Felmerül a kérdés, hogy az itt bemutatott  $14 \mu\text{J}$  és 0,7%-os hatásfok következhet-e kalibrálási hibából, ezért elvégeztem egy összehasonlító mérést 800 nm-es pumpáló hullámhosszon, 100 fs-os pumpáló impulzushosszakkal, 1 kHz-es ismétlési frekvenciával. A THz-keltésre egy 2 mm vastag (110) orientációjú ZnTe kristályt használtam. Ugyanezzel a detektorral  $15 \text{ GW}/\text{cm}^2$ -es pumpáló intenzitás mellett  $5 \times 10^{-6}$  hatásfokot mértem. Összehasonlításképp, Blanchard [26] csoportja  $2 \times 10^{-5}$  hatásfokot mért hasonló intenzitáson egy 0,5 mm vastag ZnTe kristállyal, 800 nm-es pumpáló hullámhosszal és 100 Hz-es ismétlési frekvenciával. Az általunk kapott négyszer kisebb hatásfok oka a magasabb ismétlési frekvencia lehetett, ami miatt kevesebb ideje van a szabad töltéshordozóknak rekombinálnodni a pumpáló impulzusok között, ezáltal a koncentrációjuk jóval magasabb a pumpálási folyamat alatt. Összehasonlítva az  $5 \times 10^{-6}$ -os hatásfokot a 0,7%-os hatásfokkal, elmondható, hogy a nagymértékű növekedést nem okozhatta téves kalibráció.

Kísérletileg bemutattam, hogy a kettő- és háromfotonos abszorpciós határhullámhossznál hosszabb hullámhosszakkal pumpált ZnTe félvezető egy új utat kínál a nagyenergiájú THz-es impulzusok extrém nagy hatásfokú előállítására. A szabad töltéshordozókból fakadó THz-es abszorpció csökkentésével és az alacsonyrendű többfotonos abszorpció kioltásával lehetővé vált nagy intenzitású pumpálás, ami a THz-keltés hatásfokát számottevően megnövelte. Tehát félvezető alapú THz-es források alkalmasak lehetnek a bevezetőben említett nagy energiájú THz-es alkalmazásokhoz.

#### 4.4. Négyfotonos abszorpciós együttható ZnTe-ban

A kísérleti eredményeket felhasználva megbecsültem a négyfotonos abszorpciós együttható értékét. Legtöbbször a korábban tárgyalt modellt használtam, azonban az esetek egy kis részében egy bonyolultabb modellt is megvizsgáltunk, ami az előbbieken túl számolt még a pumpa nemlineáris refrakciójával (Kerr-effektus), az önfázismodulációval (ÖFM) és a THz-es tér visszahatásával a pumpára (kaskád effektusok). A Kerr-effektus egy harmadrendű nemlineáris folyamat. Lényege, hogy az adott anyag törésmutatója elektromos tér hatására megváltozik. Ez a törésmutatóváltozás, amely függ az intenzitástól, hozza létre az önfázismodulációt, amely során nagy intenzitások hatására az optikai impulzusok nagyobb intenzitású komponensei áthaladás során nagyobb törésmutatójú közeggel találkoznak a nemlineáris anyagban a kisebb intenzitásúakhoz képest, így időbenváltozó fázis keletkezik. A kaskád effektusról pedig már a 2.2.2-es fejezetben volt szó.

A szimulációban az előző fejezetben bemutatott kísérleti paramétereket használtam fel, 1,7  $\mu\text{m}$  pumpáló hullámhosszal, 144 fs pumpáló impulzushosszal, a pumpáló intenzitás értékének változtatása mellett. A pumpa terjedési hossza 2,9 mm volt, ami megfelel a

THz-keltés kölcsönhatási hosszának, ha a kristály 2,5 mm hosszú, és az impulzusfront döntési szöge 1 THz-hez tartozó fázisillesztés esetén ZnTe-ban  $\gamma = 28^\circ$  ( $2,9 \text{ mm} \times \cos(\gamma) = 2,5 \text{ mm}$ ).

Az illesztéssel kapcsolatban fontos kitérnem a mérés hibáira. Mivel a kísérletek külföldön történtek rendkívül limitált lézeridővel, ezért nem volt alkalmunk a méréseket többször is megismételni. A négyfokozatú OPA forrásból jövő impulzusenergia értékének szórása kb. 5%-on belül mozgott, míg a THz-es jelekét 10% körülire becsültük. Az alábbi egyenletekből megadható a számolt hatásfok,  $\eta$  relatív hibája:

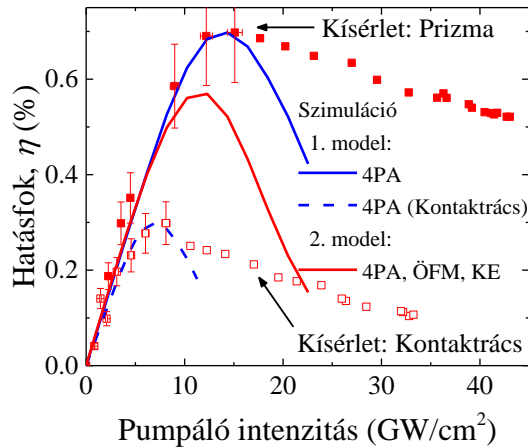
$$\eta = \frac{W_T}{W_P} \quad (22)$$

$$\Delta\eta = \left| \frac{\partial\eta}{\partial W_T} \Delta W_T \right| + \left| \frac{\partial\eta}{\partial W_P} \Delta W_P \right| = \frac{1}{W_P} \Delta W_T + \frac{W_T}{W_P^2} \Delta W_P \quad (23)$$

$$\frac{\Delta\eta}{\eta} = \frac{W_P}{W_T} \cdot \frac{1}{W_P} \Delta W_T + \frac{W_P}{W_T} \cdot \frac{W_T}{W_P^2} \Delta W_P = \frac{\Delta W_T}{W_T} + \frac{\Delta W_P}{W_P} \quad (24)$$

ahol  $W_T$  a mért THz-energia,  $W_P$  a mért pumpáló energia,  $\Delta$  a szórás. A hatásfok relatív hibáját így a pumpáló energia mérés relatív hibájának és a THz-energia mérés relatív hibájának összegéből kapjuk, ami alapján 15%-kal számolhatunk.

A 33. ábra látható négyzetek a ZnTe prizmához és a kontaktrácshoz tartozó eredmények, a folytonos görbék pedig a számolások eredményei. A kék színű görbe tartozik az eredeti modellhez, amely csak a négyfotonos abszorpció hatását vette figyelembe, míg a piros a kiegészített modellhez tartozik, ahol már az önfázis moduláció és a kaszkád effektusok is figyelembe vannak véve.



33. ábra Mért és számolt THz-keltési hatásfokok a pumpáló intenzitás függvényében ZnTe esetén. Teli négyzetek: Mért adatok a korábban leírt döntött impulzusfrontú elrendezésben ZnTe prizmával. Üres négyzetek: Mért adatok a korábban leírt ZnTe anyagú kontaktráccsal. A vonalak a szimulációkhoz tartoznak különböző tényezők figyelembevételével (4PA – négyfotonos abszorpció, ÖFM – önfázis moduláció, KE – kaszkád effektusok). Az áttekinthetőség érdekében a hibaterjedést csak a releváns pontoknál jelöltem.

A hatásfok négyfotonos abszorpció miatti telítődése 15 GW/cm<sup>2</sup>-nél megfigyelhető, és jól reprodukálható szimulációval is. Ennél nagyobb pumpáló intenzitások esetén a szimuláció jóval gyorsabb hatásfokcsökkenést mutat, mint amit kísérletileg megfigyeltünk. Ezen eltérés miatt a négyfotonos együttható értékének becslésekor az illesztésnél csak a telítődésig vettem figyelembe a kísérleti pontokat.

Lehetséges magyarázatként figyelembe vettük a nemlineáris refrakciót (Kerr effektus). ZnTe nemlineáris törésmutatója  $n_2 = 1,2 \times 10^{-4} \text{ cm}^2/\text{GW}$  [68], ami több mint két nagyságrenddel nagyobb LN-énál, aminek a tiltott sávja is jóval nagyobb [69]. Összehasonlítva az első modellt, ami csak a négyfotonos abszorpció hatását veszi figyelembe, a második modellel, ami tartalmazza az ÖFM-t és a kaszkád effektusokat, azt mondhatjuk, hogy a nemlineáris folyamatok tovább csökkentik a hatásfokot. Ezek mellett a második modell is hasonlóan gyors ütemű hatásfokcsökkenést jósol erősebb intenzitásokon, a mért eredményekkel ellentétben.  $\beta_4$  értékének változtatása nincs semmilyen hatással erre a csökkenésre. Emiatt arra a következtetésre jutottunk, hogy a THz-keltés maximális hatásfokához tartozó intenzitás értékének meghatározásánál elég a négyfotonos abszorpciót figyelembe vennünk, vagyis az első modellt használunk. Továbbá, a szabad töltéshordozók törésmutató járulékának csak

elhanyagolható hatása volt a csúcs térerősségre és hatásfokra, és részleteiben kicsiny hatása a THz-es hullám alakjára és spektrumára. Magasabb rendű abszorpciós folyamatot nem vettünk figyelembe, mert nem állt rendelkezésre adat az együtthatókról.

Megjegyzendő, hogy ugyanazt a  $\beta_4$  értéket fel lehet használni egy másik mérési sorozat pontjainak illesztésére, amit ZnTe kontaktrácscsal végeztünk [S2]. A THz-keltés intenzitástól való függése észrevehetően hasonló függést mutat, mint a korábbi kísérleté, bár a hatásfok csúcsa körülbelül fele akkora pumpáló intenzitásnál jelenik meg  $\sim 8 \text{ GW/cm}^2$ -nél  $15 \text{ GW/cm}^2$  helyett. Ez azzal magyarázható, hogy kontaktrács esetén a plusz és mínusz elsőrendek konstruktív interferenciája révén a tényleges pumpáló intenzitás, ami a THz-keltésben részt vesz, valójában kétszer akkora, mint ami a kontaktrácsra érkező intenzitásból számolható, a kisebb hatásfok pedig a rövidebb kristályhosszal, illetve a rács veszteségeivel.

Az alkalmazások számára legérdekesebb pumpálóintenzitás-tartomány a THz-keltés hatásfokának maximumáig tart. Ebben a tartományban a szabad töltéshordozók egyszerű modellje, amit használtam, elég jó egyezést mutat a kísérleti eredményekkel. Itt a kísérleti eredményekre illesztett számolásból a  $\beta_4 = 4 \times 10^{-5} \text{ cm}^5/\text{GW}^3$  becsülhető. Nagyobb pumpáló intenzitásokon a THz-keltés kísérletileg mért hatásfokának eltérését a szimulációtól a négyfotonos abszorpció által indukált szabad töltéshordozók abszorpciójának esetleges telítődése okozhatja. Ennek a figyelembevételével eddig nem foglalkoztunk, de a jövőbeli kutatásokban szerepet kaphat.

A fenti munkával hozzájárultam a ZnTe-alapú források továbbfejlesztéséhez a publikált irodalomból eddig hiányzó négyfotonos abszorpciós együttható értékének becslésével.

## 4.5. További lehetőségek a félvezető anyagú THz-es források hatásfokának növelésére

Numerikus szimulációkat készítettem félvezetőkristályokban keltett nagyhatásfokú, nagy térerősségű THz-es sugárzás előállításához szükséges optimális paraméterek meghatározására. A szimulációkat ZnTe és GaP kristályokon végeztem.

A szimulációk során a pumpa hullámhosszára  $1,7 \mu\text{m}$ -t használtam. Minden esetben a négyfotonos abszorpció volt a legalacsonyabb rendű többfotonos abszorpció, ami a számolásokat befolyásolta. Az előző fejezetben megmutattam, hogy milyen eredményt kaptam ZnTe esetén a négyfotonos abszorpció becslésére az általunk mért adatok alapján. Mivel nincs elérhető adat GaP négyfotonos együtthatójának értékére, ezért a szimuláció során ezt az értéket használtam fel mindkét anyag esetén.

Alább következik egy tanulmány a pumpa impulzushosszának, intenzitásának és a kristály hosszának hatásáról az elérhető THz-es csúcstérerősségre, hullámformára, THz-keltési hatásfokra és a spektrum alakjára. A szimulációk az 4.1.1-es fejezetben bemutatott egyszerűbb modellel készültek. Az eredményeket az egyes anyagokra külön tárgyalom.

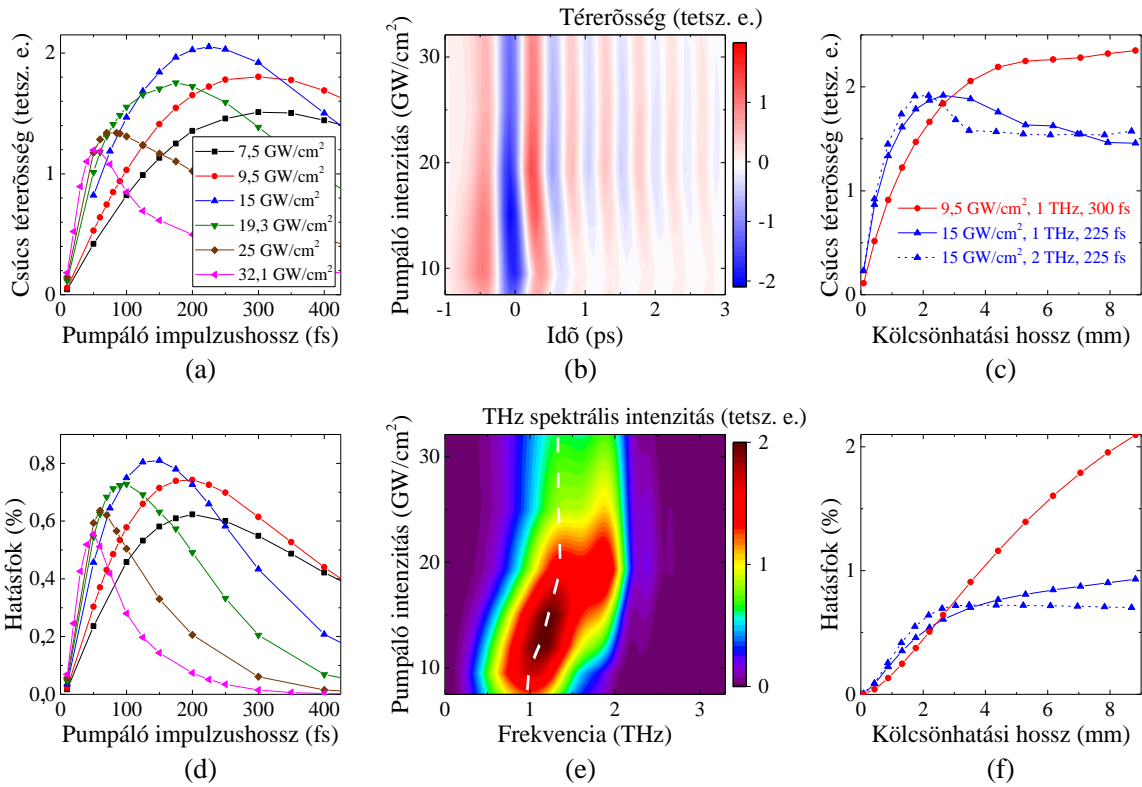
### 4.5.1. Cink-tellurid (ZnTe)

A 34. ábra (a) része mutatja a számolt csúcs térerősségeket a Fourier-limitált impulzushosszak függvényében különböző intenzitásokra. Megjegyzendő, hogy a pumpáló impulzus hosszának változtatásával fix intenzitáson a pumpáló energiát is változtatjuk. A pumpa hullámhossza  $1,7 \mu\text{m}$ , a kölcsönhatási hossz  $2,5 \text{ mm}$ . Minden görbe esetén a THz-es fázisillesztés frekvenciát a spektrális maximum frekvenciájához illesztettem iterációkon keresztül.

A legalacsonyabb pumpáló intenzitásnál,  $7,5 \text{ GW/cm}^2$ -nél az elérhető csúcstérerősség először együtt növekszik az impulzushosszal, majd eléri maximumát  $\sim 325 \text{ fs}$ -nál. Hosszabb impulzushosszaknál a csúcstérerősség csökkenni kezd. A 34. ábra (d) részén a THz-keltés hatásfoka a pumpáló impulzushossz függvényében hasonló viselkedést mutat, azonban a csúcstérerősség eltolódott az előbbihez képest rövidebb impulzushosszhoz ( $200 \text{ fs}$ ). A különbség a térerősség és a hatásfok között a THz-es tartományba tartozó anyagi diszperzió hatásával magyarázható.

A kezdeti növekedés oka az alacsonyabb frekvenciájú THz-es spektrális komponensek nagyobb hatásfokkal való keltődése, ha az impulzushossz megnő (és a spektrum beszűkül), mivel ZnTe-nál a lineáris abszorpciókoefficiens kisebb alacsony THz-es frekvenciákon (14. ábra), azonban az optikai egyenirányítás hatásfoka a THz frekvenciájának négyzetével növekszik, így ez a két egymással ellentétes folyamat együttes hatására egy optimális impulzushossz keletkezik.





34. ábra A szimuláció eredményei egy 2,5 mm kölcsönhatási hosszú ZnTe-ra, ami 1,7  $\mu\text{m}$  hullámhosszon volt pumpálva. Csúcs térerősség (a) és THz-keltési hatások (d) a Fourier-limitált impulzushossz függvényében különböző pumpáló intenzitásokra. A THz-es impulzusok elektromos térerősségének időfüggése (b) és spektrális intenzitása (e) különböző pumpáló intenzitásokra. A fehér szaggatott vonal az (e) panelen a fázisillesztési frekvenciát jelzi. Csúcs térerősség (c) és THz-keltési hatások (f) a kölcsönhatási hossz függvényében a megadott pumpáló intenzitásokon, impulzushosszakon és fázisillesztési frekvenciákon.

Ha az intenzitást  $10 \text{ GW/cm}^2$ -re növeljük, a tér és a hatások növekszik, de a hozzátartozó optimális impulzushossz nem változik. Ha tovább növeljük az intenzitást  $15 \text{ GW/cm}^2$ -re, az optimális impulzushossz lecsökken a maximális térerősséghez és hatásokhoz tartozó 225 fs-ra és 150 fs-ra. Ebben a négyfotonos abszorpció keltette szabad töltéshordozók abszorpciója mutatkozik meg. A szabad töltéshordozók abszorpciójának spektrális függésével magyarázható az optimális impulzushossz rövidülése a pumpáló intenzitás növekedésével. A szabad töltéshordozók abszorpciója alacsony THz-es frekvenciákon a legerősebb és erőteljesen csökken a magasabb frekvenciákon, emiatt kedvezőbbek a rövidebb pumpáló impulzusok, amik hatékonyabban keltenek magasabb THz-es frekvenciákat.

A 34. ábra (b) része mutatja a THz-es hullámalakot (az elektromos térerősség időfüggését) a pumpáló intenzitás függvényében, a maximális térerősséghez tartozó optimális pumpáló impulzushossz esetén. A hullámforma csörpöltté válik a THz-es tartományban lévő anyagi diszperzió által, ami tisztán látható, különösen magasabb intenzitások esetén, magasabb átlagos THz-es frekvenciákkal. A 34. ábra (e) része a THz-es spektrumot mutatja a pumpáló intenzitás függvényében a maximális térerősséghez tartozó optimális pumpáló impulzushosszak esetén. Tisztán látható a THz-es spektrum eltolódása a magasabb frekvenciák felé az alacsonyabb frekvenciákon erősebben mutakozó szabad töltéshordozók által keltett abszorpció miatt, növekvő pumpáló intenzitások esetén. A 2,5 THz feletti spektrális komponensek ZnTe nagy lineáris együttthatója miatt erősen el vannak nyomva (lásd 14. ábra).

Ahogy 34. ábra (a) és (d) részei mutatják, a legnagyobb elektromos térerősség és hatásfok (0,81 %) is ugyanakkora pumpáló intenzitás esetén, 15 GW/cm<sup>2</sup>-nél érhető el (225 fs-os és 150 fs-os pumpáló impulzushossz esetén, ahogy azt korábban már tárgyaltuk). Érdeemes megjegyezni, hogy a maximális hatásfokot ugyanakkora pumpáló intenzitásnál mértük ki, körülbelül 150 fs-os pumpáló impulzushossz esetén, ahogy a korábbi fejezetben a 33. ábra láthattuk. Magasabb intenzitásokon a szabad töltéshordozókból származó abszorpció elnyomja a THz-keltést és a térerősség illetve a hatásfok maximuma lecsökken (34. ábra (a) és (d)).

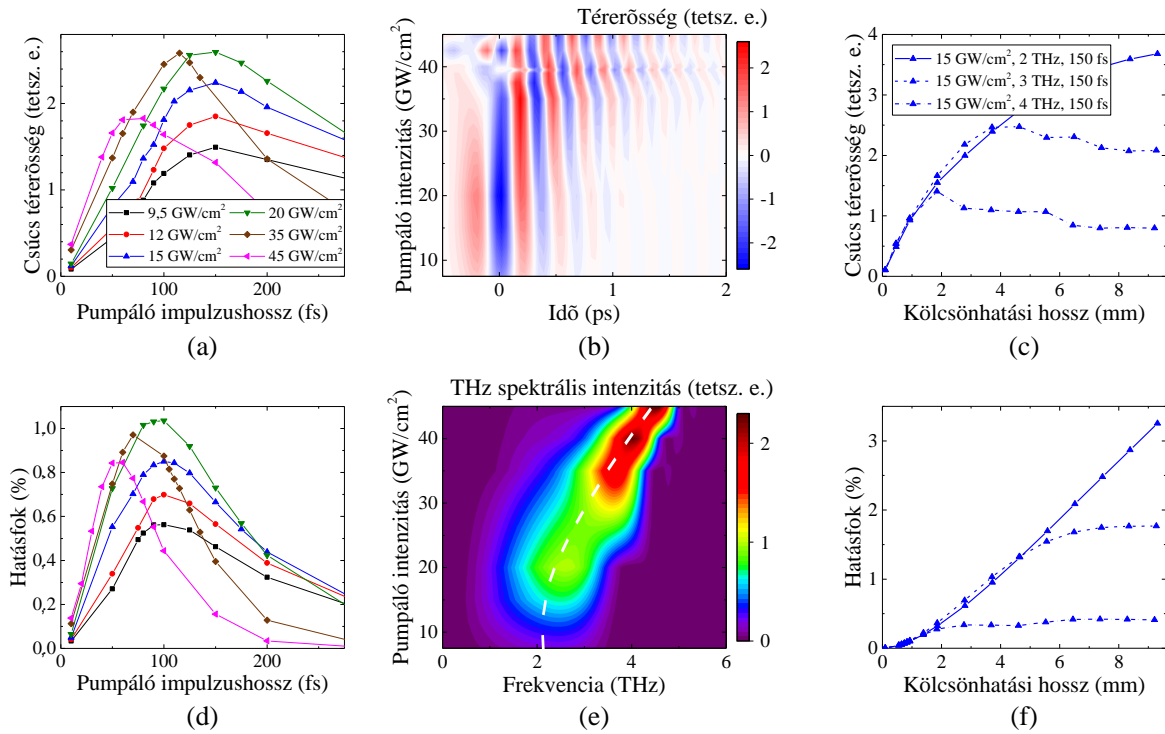
A csúcs térerősség és hatásfok növekedése a kölcsönhatási hosszal látható a 34. ábra (c) és (f) grafikonjain. 15 GW/cm<sup>2</sup> pumpáló intenzitás és 225 fs pumpáló impulzushossz esetén (ami a maximális térerősséghez tartozik), a csúcs térerősség hirtelen növekszik majdnem 3 mm-es (2 mm-es) kölcsönhatási hosszakig 1 THz-es (2 THz-es) fázisillesztési frekvencia esetén (34. ábra (c)). Ezt egy lassabb csökkenés követi, amit uralkodóan az anyagi diszperzió korlátozó hatása okoz. A hozzátartozó hatásfok hirtelen növekszik körülbelül 3,5 mm-ig (2,5 mm-ig). E fölött a hosszúság fölött a négyfotonos abszorpció megakadályozza a további

lényeges növekedést. Ha alacsonyabb pumpáló intenzitást és hosszabb pumpáló impulzushosszat ( $9,5 \text{ GW/cm}^2$ ,  $\sim 300 \text{ fs}$ ) használunk, a négyfotonos abszorpció hatása elnyomható és lehetővé válik hosszabb kölcsönhatási-hosszat használunk nagyobb hatékonysággal (34. ábra (c) és (f)). Ebben az esetben nagyobb csúcs térerősség és folyamatosan növekedő határfok érhető el akár 9 mm-es kölcsönhatási-hosszig is.

#### 4.5.2. Gallium-foszfid (GaP)

A GaP esetén a 35. ábra (a) része mutatja a számolt csúcs térerősséget a Fourier-limitált impulzushosszak függvényében, különböző pumpáló intenzitásokra. A pumpáló hullámhossz  $1,7 \mu\text{m}$  és a THz-keltés kölcsönhatási hossza  $2,7 \text{ mm}$ . Kis intenzitásokra  $150 \text{ fs}$ -os pumpa impulzushossz esetén kapjuk a legnagyobb térerősséget. Ez jelentősen rövidebb, mint ZnTe esetén ( $\sim 325 \text{ fs}$ ). Ennek az az oka, hogy a kisebb lineáris abszorpciók együttható és diszperzió jelentősen szélesebb spektrum keltését teszi lehetővé akár körülbelül  $4 \text{ THz}$ -ig is. Ez egyértelműen megfigyelhető a 35. ábra (e) részének spektrumján. Magasabb frekvenciák nagyobb határfokkal kelthetők rövidebb impulzusokkal.

$20 \text{ GW/cm}^2$  pumpáló intenzitásig nincs változás az optimális impulzushosszban. A maximális határfokhoz tartozó optimális pumpáló impulzushossz ebben az intenzitás tartományban  $100 \text{ fs}$  (35. ábra (d)).



35. ábra A szimuláció eredményei egy 2,7 mm kölcsönhatási hosszú GaP-ra, amit 1,7  $\mu\text{m}$  hullámhosszon pumpáltak. Csúcs térerősség (a) és THz-keltési hatások (d) a Fourier-limitált impulzushossz függvényében különböző pumpáló intenzitásokra. A THz-es impulzusok elektromos térerősségének időfüggése (b) és spektrális intenzitása (e) különböző pumpáló intenzitásokra. A fehér szaggatott vonal az (e) panelen a fázisillesztési frekvenciát jelzi. Csúcs térerősség (c) és THz-keltési hatások (f) a kölcsönhatási hossz függvényében a megadott pumpáló intenzitásokon, impulzushosszakon és fázisillesztési frekvenciákon

A legjobb térerősség és hatások 20  $\text{GW}/\text{cm}^2$  pumpáló intenzitásnál 150 fs és 100 fs pumpáló impulzushosszaknál figyelhető meg. Ez az intenzitás magasabb, mint a kapcsolódó érték ZnTe-nál (15  $\text{GW}/\text{cm}^2$ ). Ennek oka, hogy GaP-nál a szabad töltéshordozók abszorpciós koefficiense kisebb, mint ZnTe-nál. Még ha ugyanazzal a négyfotonos abszorpció együtthatóval is számoltam, a többi anyagi paraméter, mint például az elektron effektív tömege, amelyek hatással vannak a szabad töltéshordozók abszorpciójára, különböznek [34].

Ennél magasabb intenzitásokra a maximum csökken a négyfotonos abszorpció fellépése következtében. A szabad töltéshordozók abszorpciója eltolja a THz-es spektrumot a magasabb frekvenciák felé (35. ábra (e)) és az optimális pumpáló impulzushossz rövidebbé válik. A keltett magasabb frekvenciájú THz-es impulzusokra nagyobb hatással van az anyagi diszperzió, amint azt a 35. ábra (b) részén, a hullámalakokban megfigyelhetjük.

35. ábra (c) és (f) részei mutatják a csúcs térerősség és a hatásfok függését a kölcsönhatási hosszától a 2 THz, 3 THz, és 4 THz fázisillesztési frekvenciákra. A 36. ábra mutatja az idekapcsolódó THz-es hullámformák (a-c) és normalizált spektrumok (d-f) függését a kristályhosszal. A pumpáló hullámhossz 1700 nm, az intenzitás  $15 \text{ GW/cm}^2$ , a pumpáló impulzushossz 150 fs. Ez utóbbi a 36. ábra alapján az optimális érték a legerősebb csúcs térerősség elérésére.

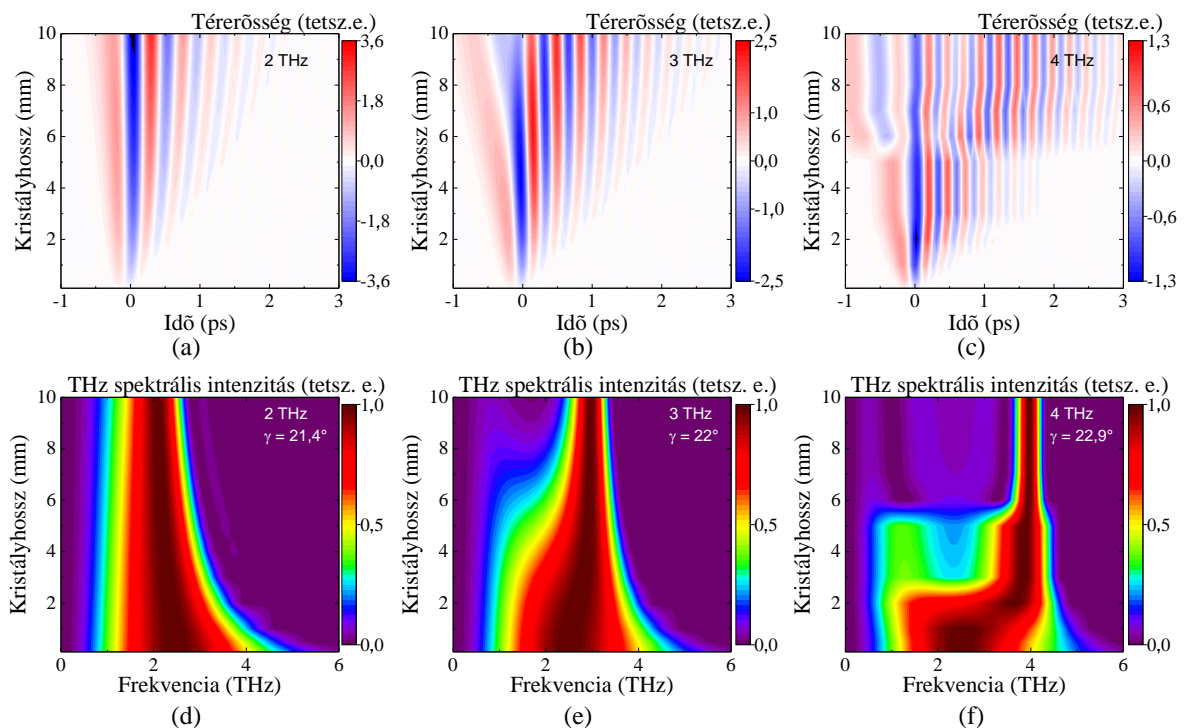
2 THz-hez tartozó fázisillesztés esetén a csúcs térerősség monoton nő a vizsgált kölcsönhatási hosszak teljes tartományán (35. ábra (c)), ahol a hullámforma egy moderált hosszabbodást és csörpöt mutat (36. ábra), GaP kis anyagi diszperziója miatt. Hasonlóképpen, a hatásfok monoton növekszik, 4 mm fölött közel lineárisan, a kölcsönhatási hosszal (35. ábra (f)). Egy nagyon széles, 5 THz-et meghaladó spektrum kelthető akár egy 1 mm kölcsönhatási hosszú GaP mintában (36. ábra). Ez a spektrum fokozatosan szűkül 3 THz alá 9 mm-es kölcsönhatási hosszt elérve.

3 THz-es fázisillesztési frekvenciánál a csúcs térerősség 4 mm-es kölcsönhatási hosszig növekszik, majd ezt követi egy lassú csökkenés hosszabb kölcsönhatási hosszaknál (35. ábra (c)). A hatásfok 6 mm-es kölcsönhatási hosszig növekszik, majd nagyjából stagnál egy konstans érték körül (35. ábra (f)). Az anyagi diszperzió hatása a THz-es tartományban hangsúlyosabbá válik a növekvő fázisillesztési frekvenciával és kölcsönhatási hosszal. Egyik oldalról a diszperzió egy erősebben csörpölt hullámformához vezet, amit a 36. ábra (b) részén tisztán megfigyelhetünk. Másik oldalról a fázisillesztés sáv szélességét fokozatosan csökkenti (36. ábra (e)). Körülbelül 6 mm feletti kölcsönhatási hossz esetén beszűkül egy keskeny sávvá a 3 THz-es fázisillesztési frekvencia körül. Ennek az eredménye egy többciklusú hullámalak (36. ábra (b)).

Ez a jelenség hangsúlyosabbá válik ennél is magasabb fázisillesztési frekvenciáknál, például 4 THz-nél. A legnagyobb csúcs térerősséget már elég kicsi, 2 mm-es kölcsönhatási

hossz esetén elérjük (35. ábra (c)). Ugyanígy, lényeges erősödés nem figyelhető meg e fölött a hossz fölött a határfokban(35. ábra (f)). Ez a kezdeti széles spektrum gyors beszűkülésével társul egy igen csak keskeny sávra (36. ábra (f)). A kapcsolódó hullámforma pedig többciklusú impulzussá alakul (36. ábra (c)).

Ezek az eredmények egyértelműen mutatják a kristályhossz és a fázisillesztési frekvencia megfelelő megválasztását, de ugyanakkor a GaP, mint THz-es forrás sokoldalúságát is. Alkalmos szélessávú forrásnak nagy térerőségekkel, de mellette keskenysávú forrásként is megállja a helyét nagy spektrális intenzitással. Utóbbi esetben széles körben való hangolhatóságot érhetünk el az impulzusfront döntési szögének változtatásával, akár 7 THz-ig is [30, 70]. A kapcsolódó sokciklusú hullámforma akár alkalmas lehet új alkalmazásokra is, például töltött részecskék gyorsítására.



36. ábra A THz-es impulzusok hullámformái különböző vastagságú GaP kristályra, különböző fázisillesztési frekvenciákon, 2 THz-en (a), 3 THz-en (b), 4 THz-en (c). A pumpáló intenzitás  $15 \text{ GW/cm}^2$ , a pumpáló hullámhossz  $1,7 \mu\text{m}$ , és a pumpáló impulzushossz  $150 \text{ fs}$ . (d) – (f) a kapcsolódó normalizált THz-es spektrumokat mutatja

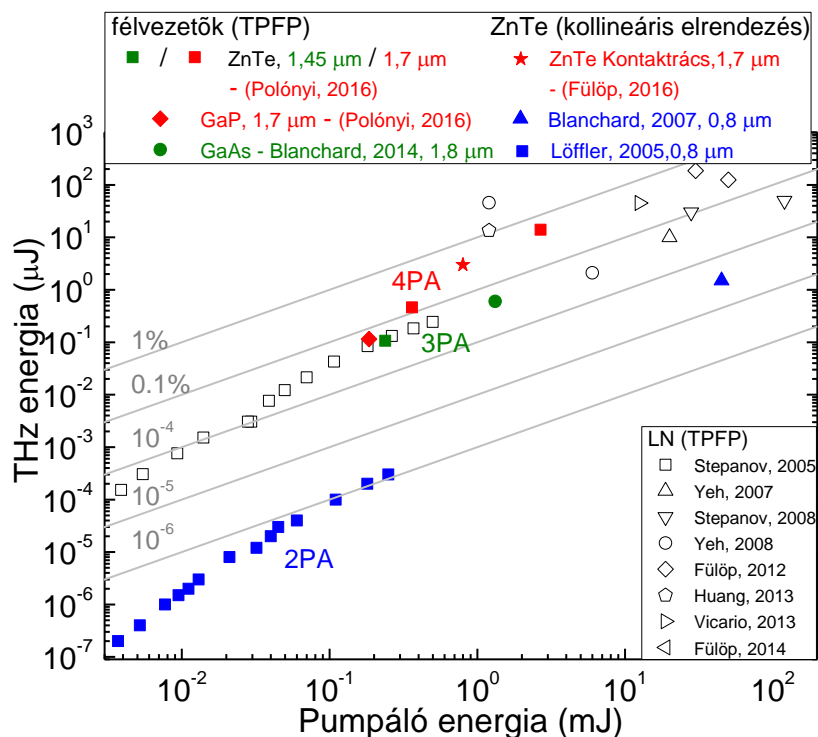
## 5. Összefoglalás

A célkitűzésekkel összhangban sikerült olyan félvezető alapú THz-es forrásokat demonstrálni, melyek hatásfoka megközelíti, vagy meghaladja a hagyományos LN anyagú forrásokét. Ezek a források ígéretes alternatívákat jelentenek a nagy hatásfokú THz-keltésre, kiküszöbölve más technológiák egyes hátrányait is.

Számolások segítségével megvizsgáltam félvezetőkben (ZnTe, GaP) lévő lehetőségeket optikai egyenirányításon alapuló THz-keltés szempontjából. Megmutattam, hogy nagyobb THz-es energiák és hatásfokok érhetőek el, ha a kettő- és háromfotonos abszorpció kiküszöböléséhez elegendően hosszú hullámhosszat választunk pumpáláshoz. Ezt kísérletileg is kimutattam. Demonstráltam ZnTe-alapú kontaktrács működését THz-keltésre, az irodalomban meglévő eredményeknél százszor jobb hatásfokkal és nagyobb THz-es energiákkal. Azon állítás teszteléseként, hogy a hosszabb kristályhossz nagyobb hatásfokot és THz-energiákat tesz lehetővé, egy a kontaktrácsnál vastagabb prizmával döntött-impulzusfrontú elrendezést használva további hatásfok és THz-energianövekedést értem el. Számolások szerint megbecsültem ZnTe-nak az irodalomban eddig ismeretlen értékű négyfotonos abszorpciós együtthatóját kísérleti eredményeink és számolásaim révén. További számolások segítségével útmutatást adtam ZnTe és GaP kristályok optimális pumpáló paramétereinek meghatározására, végül megmutattam, hogy GaP kristály sokoldalú alapanyag lehet THz-es forrás készítésére, ugyanis általa képesek lehetünk széles spektrumú, egyciklusú THz-es impulzusok előállítására, de ugyanúgy, szűk spektrumú, többciklusú THz-es impulzusok előállítására is, a különböző THz-es alkalmazásokhoz igazodva.

Az alábbi grafikon (37. ábra) segíti a már publikált eredmények között elhelyezni a saját eredményeinket. Az üres szimbólumok a korábbi LN-anyagú forrásokhoz tartoznak, míg a kék színűek a ZnTe kristályt 800 nm-en pumpálva (ahol a kétfotonos abszorpció még aktív) elért

THz-es energiákat mutatják. Látható, hogy körülbelül 2,5 nagyságrendi különbség van az eredmények között. A piros színű szimbólumok ahhoz az eredményeinkhez tartoznak, ahol a félvezetőket a háromfotonos abszorpciós határhullámhossznál hosszabb hullámhosszon pumpáltuk, ezzel pedig olyan forrásokat állítottunk elő, melyek hatásfoka versenyképes a korábbi nagyhatásfokú LN-anyagú rendszerekével. Ezen kívül, amíg a LN alapú források felskálázhatósága erősen limitált, a félvezetők lehetővé teszik a dolgozatban szereplő hatásfokok és energiák továbbnövelését a kristályhossz- és pumpáló felület növelésével, optimális impulzushossz, pumpáló intenzitás és pumpáló hullámhossz választásával. A félvezetők ezen tulajdonságai kedvezővé teszik őket kontaktrácsként való felhasználásra, mely által az alkalmazásokhoz kompakt, monolitikus, könnyen beállítható forrás áll majd rendelkezésre rendkívüli fókuszálhatósággal.



37. ábra LN-ban, ZnTe-ban, GaP-ban és GaAs-ban keltett THz-es energiák a pumpáló energiák függvényében.



Az eredményeim alapján elmondható, hogy félvezető anyagú, nagyhatásfokú THz-es források új osztálya van kialakulóban, amik felskálázhatók a mJ-szintű THz-es energiáig.

## 5.1. Tézispontok

1. Kísérletileg megmutattam, hogy ha a kétfotonos abszorpció kiküszöbölésére elegendően hosszú pumpáló hullámhosszat (1450 nm) választunk ZnTe-ban, akkor a THz keltés hatásfoka több mint egy nagyságrenddel növelhető ( $[26], 4 \cdot 10^{-4}$ ). Demonstráltam további 3,5-szeres növekedést ( $1,4 \cdot 10^{-3}$ ), amikor a háromfotonos abszorpciót is kiküszöböltem (1700 nm). [S1]
2. Elsőként valósítottam meg egy monolitikus, könnyen beállítható, ZnTe félvezető anyagú, kontaktrácsos THz-es forrást és demonstráltam annak működését nagy hatásfokkal (0,3%), egyciklusú THz-es impulzusokkal, továbbá megmutattam, hogy a THz-es nyaláb diffrakciós limithez közeli feltételre fókuszálható. A forrás egyszerűen, a pumpáló feltétel és energia növelésével felskálázható mJ-szintű THz-es energiákra. [S2]
3. Nagy energiájú pumpáló forrást használva 1700 nm-es pumpálás mellett 0,7%-os hatásfokot és  $14 \mu\text{J}$ -nyi THz-es impulzusenergiát állítottam elő ZnTe félvezető kristállyal, hagyományos döntött impulzusfrontú elrendezést használva. A mért impulzusenergia közel 10-szer nagyobb, a hatásfok pedig 220-szorosa a korábban mások által ZnTe-ban elértnél. [S1]
4. Kísérleti eredményeinket és numerikus szimulációkat felhasználva  $(4 \pm 1) \cdot 10^{-5} \text{ cm}^5/\text{GW}^3$  értékű becslést adtam ZnTe kristály esetén a négyfotonos abszorpció együttható értékére. [S1,S3]

5. Megmutattam, hogy ZnTe és GaP esetén található optimális impulzushossz és ahhoz tartozó pumpáló intenzitás, ami a legnagyobb THz-es térerősséget illetve THz-keltési hatásfokot adja. Ehhez elegendően hosszú hullámhosszat kell választunk (1700 nm), hogy a két- és háromfotonos abszorpciót kiküszöböljük. A maximális térerősség előállításához ZnTe kristályban  $15 \text{ GW/cm}^2$  pumpáló intenzitás és 225 fs pumpáló impulzushossz szükséges, GaP-ban ezekre a paraméterekre  $20 \text{ GW/cm}^2$  és 150 fs adódott. A maximális hatásfokra ZnTe kristályban  $15 \text{ GW/cm}^2$  pumpáló intenzitás és 150 fs pumpáló impulzushossz szükséges, GaP-ban ezekre a paraméterekre  $20 \text{ GW/cm}^2$  és 100 fs adódott. Ezen paraméterek meghatározása segítheti a további kísérletek megtervezését. [S3]
6. Megvizsgáltam a THz-es spektrum és a hullámforma függését a kristályhossztól, különböző fázisillesztési frekvenciákon, GaP-ban 1700 nm hullámhosszon való pumpálás esetén. Megmutattam, hogy GaP-ban fázisillesztési frekvenciától függően, de elsősorban kisebb vastagságú kristályhosszakkal ( $L < 5 \text{ mm}$ ) nagyobb sávszélességű impulzusokat kelthetünk, míg a vastagabb kristályokkal ( $L > 5 \text{ mm}$ ), 3-4 THz-es fázisillesztéssel kelthetők keskeny sávszélességű, többciklusú, nagy spektrális intenzitású impulzusok. [S3]

## 6. Summary

The widespread availability of table-top laser sources triggered the development of various types of laser-driven pulsed terahertz (THz) sources. This development now enables to routinely provide THz pulses with unprecedented energies and peak electric and magnetic field strengths throughout the entire THz spectral range. Intense pulses at low terahertz frequencies of 0.1–2 THz are an enabling tool for nonlinear THz spectroscopy, for strong field control of matter [71], and for constructing compact particle accelerators, for enhancement of high-harmonic generation [72, 73], electron undulation [1], electron bunch acceleration [1, 2, 5] and for proton acceleration for hadron therapy [3, 4].

The low-frequency part of the THz spectrum (0.1 to 2 THz) is optimally fitting to such applications mentioned before. Up to now, optical rectification in lithium niobate ( $\text{LiNbO}_3$ , LN) in combination with tilted pulse front pumping has been the most efficient source in this spectral range. However, the large pulse front tilt angle ( $63^\circ$ ) is disadvantageous for applications and makes the further increase of the THz energy challenging due to the limited interaction length [44], the imaging errors [56] and the nonlinear interaction between the pump and the THz [46], S4].

Contrary to LN, semiconductors, such as ZnTe or GaP, are widely used with collinear phase matching for optical rectification in the low-frequency THz range, although they were considered as less efficient for THz generation [57]. The highest THz energy reported from a semiconductor source was only 1.5  $\mu\text{J}$  [53]. The reason for the low efficiency was the smaller nonlinear coefficient and the strong two-photon absorption at the pump wavelength, associated with the free-carrier absorption at THz frequencies. Two-photon absorption can be avoided and free carrier absorption can be decreased if we use longer pump wavelengths. Therefore at longer pump wavelengths, typically requiring tilted pulse-front pumping, it is possible to suppress low-

order multiphoton absorption. As a result, a higher pump intensity can be used and a higher THz generation efficiency can be expected.

I have carried out a comparative study both numerically and experimentally in ZnTe pumping below and above the three-photon absorption edge and I could demonstrate the increase in efficiency as the low-order multi-photon absorption was suppressed [S1].

For pumping ZnTe at longer wavelength we need to tilt the pulse-front for phase-matching. Fortunately, the required pulse front tilt is less than half for semiconductors than for LN, therefore the angular dispersion is smaller and the reduced variation of pump pulse duration allows for longer effective length, with which the smaller nonlinear coefficient can be compensated.

A solution to omit the handicaps of the tilted pulse front pumping was suggested by Pálfalvi et al [35]. A grating structure directly on the surface of the crystal could substitute the entire tilted pulse front scheme. The incoming pump diffracts at the entry surface of the crystal, then it propagates with the right pulse front tilt to generate THz radiation. A symmetric arrangement, utilizing the two diffraction orders, can be used in a convenient collinear geometry with perpendicular incidence of the pump for excellent THz beam quality. I have carried out experiments with the first ZnTe based contact-grating THz source and demonstrated high efficiency and focusability [S3]. My calculations showed that the efficiency can be increased further with the crystal length, and I have demonstrated it with a thicker ZnTe prism in a conventional tilted pulse front pumping setup. The obtained THz pulse energy is 14 times higher than from any semiconductor and efficiency is 220 times higher than from a ZnTe source.

Based on the results of the experiments and simulations, I have given an estimation of the four-photon absorption coefficient of ZnTe, which was unknown in the literature [S1].

I have given practical guidelines through simulation data for the optimal pumping parameters of ZnTe and GaP THz sources, and finally I have shown that GaP is a versatile THz source which can be tailored both to single-cycle, and to multi-cycle THz applications [S2].

## 6.1. New Scientific Results

1. I have demonstrated both numerically and experimentally that ZnTe pumped at an infrared wavelength sufficiently long to suppress two-photon absorption (1450 nm) can have more than one order of magnitude higher efficiency ([26],  $4 \cdot 10^{-4}$ ). I have also shown that this efficiency can be further increased by 3.5 times ( $1.4 \cdot 10^{-3}$ ) if we eliminate the three-photon absorption as well pumping at 1700 nm. [S1]
2. I have demonstrated the first ZnTe based, compact, monolithic, and alignment-free contact-grating THz source with high efficiency (0.3%) single-cycle THz pulses. Furthermore, I have shown that the THz beam can be focused near to the diffraction limit. This source is easy to up-scale to the mJ level THz pulse energies by increasing the pump spot size and energy. [S2]
3. With a high energy pumping source at 1700 nm, I was able to get 0.7% efficiency and 14  $\mu$ J THz pulse energy from a ZnTe prism in a conventional tilted-pulse-front pumping setup. The measured pulse energy is about ten times, and the efficiency is about 220 times higher than the previously reported results from ZnTe source. [S1]
4. With our experimental and numerical results I was able to give a  $(4 \pm 1) \cdot 10^{-5} \text{ cm}^5/\text{GW}^3$  estimation to the so far unknown four-photon absorption coefficient of ZnTe. [S1, S3]
5. In the case of ZnTe and GaP pumped at sufficiently long wavelengths to suppress two- and three-photon absorption I have shown the optimal pumping parameters for effective THz generation and maximal peak electric field. For maximum peak electric field in ZnTe 15  $\text{GW}/\text{cm}^2$  pump intensity and 225 fs pump pulse duration are necessary, meanwhile in GaP these values are 20  $\text{GW}/\text{cm}^2$  and 150 fs respectively. For maximum efficiency in ZnTe 15

GW/cm<sup>2</sup> pump intensity and 150 fs pump pulse duration are necessary, and in GaP these values are 20 GW/cm<sup>2</sup> and 100 fs respectively. These results give practical guidelines to prepare more effective semiconductor sources. [S3]

6. I have investigated the dependence of the waveform and the normalized spectra on the interaction length for fixed phase-matching frequencies of 2 THz, 3 THz and 4 THz in GaP for pumping at 1700 nm. I have demonstrated that a very broad spectrum can be generated in thinner ( $L < 5$  mm) crystals, meanwhile in thicker ( $L > 5$  mm) crystals with 3 – 4 THz phase-matching as the spectrum rapidly collapses the corresponding waveform evolves into a many-cycle pulse. As a consequence, GaP as a THz source can be tailored to the needs of the applications. [S3]

## 7. Köszönetnyilvánítás

Szeretnék köszönetet mondani Hebling János Professzor Úrnak, hogy lehetővé tette számomra a munkát, és biztatott, hogy folytassam a tanulmányaimat. Konzulensemnek Fülöp Józsefnek, hogy egyengette a munkámat fáradhatatlanul és nem mondott le rólam. Kollégáimnak, elsősorban Monoszlai Balázsnak, Lombosi Csabának és Ollmann Zoltánnak, akiknek a segítségére mindig számíthattam, és akik nélkül ez a munka sem valósulhatott volna meg. Köszönöm továbbá Mechler Mátyásnak, akihez bizalommal fordulhattam a kérdéseimmel. Köszönöm Lóki Andreának is, akinek a munkája és biztatása felbecsülhetetlen.

Szeretnék köszönetet mondani családomnak, apukámnak, testvéreimnek, és menyasszonyomnak, továbbá barátaimnak, közösségemnek, hogy mellettem voltak, támogattak és lehetővé tették, hogy ez a munka elkészüljön.

Köszönöm Istennek, akitől kaptam azt, aki vagyok, és aki miatt itt lehetek.

## 8. Saját publikációk

### 8.1. Az értekezéshez kapcsolódó saját publikációk

#### Referált folyóiratban megjelent publikációk

- [S1] **Gy. Polónyi**, B. Monoszlai, G. Gäumann, E. J. Rohwer, G. Andriukaitis, T. Balciunas, A. Pugzlys, A. Baltuska, T. Feurer, J. Hebling, and J. A. Fülöp, „*High-energy terahertz pulses from semiconductors pumped beyond the three-photon absorption edge*” *Optics Express* **24** (21), 23872-23882 (2016).
- [S2] J. A. Fülöp, **Gy. Polónyi**, B. Monoszlai, G. Andriukaitis, T. Balciunas, A. Pugzlys, G. Arthur, A. Baltuska, and J. Hebling, “*Highly efficient scalable monolithic semiconductor terahertz pulse source,*” *Optica*, **3**, 1075-1078 (2016).
- [S3] **Gy. Polónyi**, M. I. Mechler, J. Hebling, and J. A. Fülöp, “*Prospects of semiconductor terahertz pulse sources,*” *IEEE Journal of Selected Topics in Quantum Electronics*, **23** (4), 1-8 (2017).

#### Előadások

- [E1] **Gy. Polónyi**, B. Monoszlai, M. I. Mechler, J. Hebling, J. A. Fülöp „*Prospects of Semiconductor THz Pulse Sources*” 23rd International Congress on Photonics in Europe, 2017 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe - EQEC 2017), 25-29 June 2017, Munich, Germany, CC-2.2 SUN
- [E2] J. A. Fülöp, B. Monoszlai, **Gy. Polónyi**, G. Andriukaitis, T. Balciunas, Cs. Lombosi, E. Kaksis, G. Gäumann, G. Fan, T. Kanai, A. Pugzlys, T. Feurer, G. Arthur, A. Baltuska, J.



Hebling „*Highly Efficient Semiconductor Terahertz Pulse Sources Pumped Above the Three-Photon Absorption Edge*” International Conference on Ultrafast Phenomena, 17 - 22 July 2016 Santa Fe, USA, UTu2A.7

- [E3] **Gy. Polónyi**, B. Monoszlai, G. Andriukaitis, G. Gäumann, T. Balciunas, A. Pugzlys, A. Baltuska, T. Feuer, J. Hebling, J. A. Fülöp „*Highly Efficient Semiconductor Terahertz Pulse Source Pumped Above the Three-Photon Absorption Edge*” 5th EOS Topical Meeting on Terahertz Science & Technology (TST 2016), 8-11 May 2016, Pécs, Hungary,

## **Poszterek**

- [P1] **Gy. Polónyi**, B. Monoszlai, G. Andriukaitis, T. Balciunas, Cs. Lombosi, G. Gäumann, T. Feuer, G. Arthur, A. Baltuska, J. Hebling, J. A. Fülöp „*Highly Efficient Semiconductor Terahertz Pulse Sources*” Magyar Fizikus Vándorgyűlés, 2016. Június 17, Szeged, Magyarország
- [P2] **Gy. Polónyi**, B. Monoszlai, G. Andriukaitis, G. Gäumann, T. Balciunas, A. Pugzlys, A. Baltuska, T. Feuer, J. Hebling, J. A. Fülöp „*Highly Efficient Semiconductor Terahertz Pulse Sources Pumped Above the Three-Photon Absorption Edge*” Conference on Lasers and Electro-Optics, (Optical Society of America, 2016), San Jose, USA
- [P3] **Gy. Polónyi**, B. Monoszlai, G. Andriukaitis, T. Balciunas, Z. Ollmann, G. Gaumann, Cs. Lombosi, A. Pugzlys, G. Arthur, T. Feuerer, A. Baltuska, J. Hebling, J. A. Fülöp „*Novel sources for high-field THz science using semiconductors*” ELI-ALPS 3th User Workshop, 5-6 November 2015, Szeged, Hungary

## 8.2. Egyéb publikációk

### Referált folyóiratban megjelent publikációk

- [S4] Cs. Lombosi, **Gy. Polónyi**, M. Mechler, Z. Ollmann, J. Hebling, and J. A. Fülöp, „*Nonlinear distortion of intense THz beams*” New Journal of Physics **17**, 083041 (2015).

### Előadások

- [E4] J. A. Fülöp, B. Monoszlai, **Gy. Polónyi**, G. Andriukaitis, A. Baltuska, and J. Hebling „*Prospects of Highly Efficient Semiconductor Contact-Grating THz Pulse Sources*” Optical Terahertz Science and Technology (OTST 2017), 2-7 April 2017, University College London, London, UK
- [E5] J. A. Fülöp, **Gy. Polónyi**, B. Monoszlai, G. Andriukaitis, T. Balciunas, A. Pugzlys, A. Baltuska, J. Hebling „*Semiconductor THz source scalable to mJ energy*” 41st International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves, (IRMMW-THz 2016), 25-30 September 2016, Copenhagen, Denmark (ISBN: 9781467384858)
- [E6] G. Andriukaitis, E. Kaksis, **G. Polónyi**, J. A. Fülöp, A. Pugzlys, A. Baltuska „*220-fs 110 mJ Yb:CaF<sub>2</sub> Multipass Booster*” 2015 European Conference on Lasers and Electro-Optics - European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe - EQEC 2015), 21-25 June 2015, Munich, Germany
- [E7] Z. Ollmann, Cs. Lombosi, **Gy. Polónyi**, L. Pálfalvi, J. Hebling, J. A. Fülöp „*Generation and nonlinear distortion of high-energy THz pulses from LiNbO<sub>3</sub>*” 22nd International Congress on Photonics in Europe, 2015 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe and European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe - EQEC 2015), 21-25 June 2015, Munich, Germany

- [E8] **Gy. Polónyi**, Z. Ollmann, G. Gaumann, Cs. Lombosi, T. Feurer, J. Hebling, J. A. Fülöp „*Routes to High-Energy THz Pulse Generation: LiNbO<sub>3</sub> and Semiconductors*” German THz Conference 2015, 8-10 June 2015, Dresden, Germany
- [E9] G. Andriukaitis, E. Kaksis, **G. Polónyi**, J. A. Fülöp, A. Baltuska, A. Pugzlys „*220-fs 110-mJ Yb:CaF<sub>2</sub> cryogenic multipass amplifier*” Conference on Lasers and Electro-Optics, (Optical Society of America, 2015), 10-15 May 2015, San Jose, USA
- [E10] Z. Ollmann, Cs. Lombosi, **Gy. Polónyi**, L. Pálfalvi, J. Hebling, J. A. Fülöp „*Generation and Nonlinear Distortion of High-Energy THz Pulses*” Optical Terahertz Science & Technology Conference (OTST 2015), 8-13 March 2015, San Diego, USA,
- [E11] G. Andriukaitis, E. Kaksis, **G. Polónyi**, J. A. Fülöp, A. Baltuska, A. Pugzlys „*110-mJ Femtosecond Pulses at 50 Hz from a Cryogenic Multipass Yb:CaF<sub>2</sub> Amplifier*” Advanced Solid State Lasers 2014, 16-21 November 2014, Shanghai, China
- [E12] Cs. Lombosi, Z. Ollmann, **Gy. Polónyi**, L. Pálfalvi, J. Hebling, J. A. Fülöp „*Nonlinear Distortion of Intense THz Beams*” 4th EOS Topical Meeting on Terahertz Science & Technology (TST 2014), 11-14 May 2014, Camogli, Italy

## Poszterek

- [P4] J. A. Fülöp, Z. Ollmann, Cs. Lombosi, B. Monoszlai, **Gy. Polónyi**, L. Pálfalvi, G. Almási, J. A. Fülöp „*Cutting-edge Terahertz Sources. The Terahertz Facility at ELI-ALPS*” ELI-ALPS 2nd User Workshop, 11-12 September 2014, Szeged, Hungary
- [P5] Z. Ollmann, Z. Tibai, Cs. Lombosi, L. Pálfalvi, **Gy. Polónyi**, G. Almási, J. A. Fülöp, J. Hebling „*Highest-Energy THz Pulses and their Unique Applications*” Lézer Tea 2014, 2014. április 23, Szeged, Magyarország

## 9. Irodalomjegyzék

- [1] J. Hebling, J. A. Fülöp, M. I. Mechler, L. Pálfalvi, C. Tőke, and G. Almási, “Optical manipulation of relativistic electron beams using THz pulses,” 2011.
- [2] L. J. Wong, A. Fallahi, and F. X. Kärtner, “Compact electron acceleration and bunch compression in THz waveguides,” *Opt. Express*, vol. 21, pp. 9792–9806, Apr 2013.
- [3] L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Tóth, and J. Hebling, “Evanescent-wave proton postaccelerator driven by intense THz pulse,” *Phys. Rev. ST Accel. Beams*, vol. 17, p. 031301, Mar 2014.
- [4] A. Sharma, Z. Tibai, and J. Hebling, “Intense terahertz laser driven proton acceleration in plasmas,” *Physics of Plasmas*, vol. 23, no. 6, p. 063111, 2016.
- [5] E. A. Nanni, W. R. Huang, K.-H. Hong, K. Ravi, A. Fallahi, G. Moriena, R. J. Dwayne Miller, and F. X. Kärtner, “Terahertz-driven linear electron acceleration,” vol. 6, p. 8486, Oct. 2015.
- [6] J. A. Fülöp, Z. Ollmann, C. Lombosi, C. Skrobol, S. Klingebiel, L. Pálfalvi, F. Krausz, S. Karsch, and J. Hebling, “Efficient generation of THz pulses with 0.4 mJ energy,” *Opt. Express*, vol. 22, pp. 20155–20163, Aug 2014.
- [7] H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, “Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO<sub>3</sub>,” *Applied Physics Letters*, vol. 98, no. 9, p. 091106, 2011.
- [8] M. Sajadi, M. Wolf, and T. Kampfrath, “Terahertz-field-induced optical birefringence in common window and substrate materials,” *Opt. Express*, vol. 23, pp. 28985–28992, Nov 2015.

- [9] C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri, “Generation of 0.9-mJ THz pulses in DSTMS pumped by a Cr:Mg<sub>2</sub>SiO<sub>4</sub> laser,” *Opt. Lett.*, vol. 39, pp. 6632–6635, Dec 2014.
- [10] D. Auston and P. Smith, “Generation and detection of millimeter waves by picosecond photoconductivity,” *Applied Physics Letters*, vol. 43, no. 7, pp. 631–633, 1983.
- [11] C. Fattinger and D. Grischkowsky, “Terahertz beams,” *Applied Physics Letters*, vol. 54, no. 6, pp. 490–492, 1989.
- [12] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. Falcone, “Subpicosecond, electromagnetic pulses from intense laser-plasma interaction,” *Physical Review Letters*, vol. 71, no. 17, p. 2725, 1993.
- [13] D. H. Auston, K. Cheung, J. Valdmanis, and D. Kleinman, “Cherenkov radiation from femtosecond optical pulses in electro-optic media,” *Physical Review Letters*, vol. 53, no. 16, p. 1555, 1984.
- [14] D. You, D. Dykaar, R. Jones, and P. Bucksbaum, “Generation of high-power sub-single-cycle 500-fs electromagnetic pulses,” *Optics letters*, vol. 18, no. 4, pp. 290–292, 1993.
- [15] D. A. Turton, G. H. Welsh, J. J. Carey, G. D. Reid, G. S. Beddard, and K. Wynne, “Alternating high-voltage biasing for terahertz large-area photoconductive emitters,” *Review of Scientific Instruments*, vol. 77, p. 083111, aug 2006.
- [16] M. C. Hoffmann and J. A. Fülöp, “Intense ultrashort terahertz pulses: generation and applications,” *Journal of Physics D: Applied Physics*, vol. 44, no. 8, p. 083001, 2011.
- [17] D. J. Cook and R. M. Hochstrasser, “Intense terahertz pulses by four-wave rectification in air,” *Opt. Lett.*, vol. 25, pp. 1210–1212, Aug 2000.

- [18] K.-Y. Kim, A. Taylor, J. Glowina, and G. Rodriguez, “Coherent control of terahertz supercontinuum generation in ultrafast laser–gas interactions,” *Nature photonics*, vol. 2, no. 10, pp. 605–609, 2008.
- [19] G. Rodriguez and G. L. Dakovski, “Scaling behavior of ultrafast two-color terahertz generation in plasma gas targets: energy and pressure dependence,” *Optics express*, vol. 18, no. 14, pp. 15130–15143, 2010.
- [20] M. Bass, P. A. Franken, J. F. Ward, and G. Weinreich, “Optical rectification,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 9, pp. 446–448, Dec 1962.
- [21] J. Morris and Y. Shen, “Far-infrared generation by picosecond pulses in electro-optical materials,” *Optics Communications*, vol. 3, no. 2, pp. 81 – 84, 1971.
- [22] K. H. Yang, P. L. Richards, and Y. R. Shen, “Generation of farinfrared radiation by picosecond light pulses in LiNbO<sub>3</sub>,” *Applied Physics Letters*, vol. 19, no. 9, pp. 320–323, 1971.
- [23] R. Sutherland, “Handbook of nonlinear optics second edition, revised and expanded,” *OPTICAL ENGINEERING-NEW YORK-MARCEL DEKKER INCORPORATED-*, vol. 82, 2003.
- [24] K. Wynne and J. J. Carey, “An integrated description of terahertz generation through optical rectification, charge transfer, and current surge,” *Optics Communications*, vol. 256, no. 4, pp. 400 – 413, 2005.
- [25] J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson, “Generation of high-power terahertz pulses by tilted-pulse-front excitation and their application possibilities,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 25, pp. B6–B19, Jul 2008.

- [26] F. Blanchard, L. Razzari, H.-C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J.-C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. F. Tiedje, H. K. Haugen, and F. A. Hegmann, “Generation of 1.5  $\mu$ J single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal,” *Opt. Express*, vol. 15, pp. 13212–13220, Oct 2007.
- [27] K. L. Vodopyanov, “Optical generation of narrow-band terahertz packets in periodically-inverted electro-optic crystals: conversion efficiency and optimal laser pulse format,” *Opt. Express*, vol. 14, pp. 2263–2276, Mar 2006.
- [28] Y.-S. Lee, T. Meade, V. Perlin, H. Winful, T. B. Norris, and A. Galvanauskas, “Generation of narrow-band terahertz radiation via optical rectification of femtosecond pulses in periodically poled lithium niobate,” *Applied Physics Letters*, vol. 76, no. 18, pp. 2505–2507, 2000.
- [29] J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, “Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation,” *Opt. Express*, vol. 10, pp. 1161–1166, Oct 2002.
- [30] J. Hebling, A. Stepanov, G. Almási, B. Bartal, and J. Kuhl, “Tunable THz pulse generation by optical rectification of ultrashort laser pulses with tilted pulse fronts,” *Applied Physics B*, vol. 78, pp. 593–599, Mar 2004.
- [31] T. Löffler, T. Hahn, M. Thomson, F. Jacob, and H. G. Roskos, “Large-area electro-optic ZnTe terahertz emitters,” *Opt. Express*, vol. 13, pp. 5353–5362, Jul 2005.
- [32] J. Hebling, “Derivation of the pulse front tilt caused by angular dispersion,” *Optical and Quantum Electronics*, vol. 28, pp. 1759–1763, Dec 1996.
- [33] O. E. Martinez, J. P. Gordon, and R. L. Fork, “Negative group-velocity dispersion using refraction,” *J. Opt. Soc. Am. A*, vol. 1, pp. 1003–1006, Oct 1984.

- [34] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, “Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification,” *Opt. Express*, vol. 18, pp. 12311–12327, Jun 2010.
- [35] L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, “Novel setups for extremely high power single-cycle terahertz pulse generation by optical rectification,” *Applied Physics Letters*, vol. 92, no. 17, p. 171107, 2008.
- [36] Z. Ollmann, J. Hebling, and G. Almási, “Design of a contact grating setup for mJ-energy THz pulse generation by optical rectification,” *Applied Physics B*, vol. 108, no. 4, pp. 821–826, 2012.
- [37] M. Tsubouchi, K. Nagashima, F. Yoshida, Y. Ochi, and M. Maruyama, “Contact grating device with fabry-perot resonator for effective terahertz light generation,” *Opt. Lett.*, vol. 39, pp. 5439–5442, Sep 2014.
- [38] H. H. Li, “Refractive index of ZnS, ZnSe, and ZnTe and its wavelength and temperature derivatives,” *Journal of Physical and Chemical Reference Data*, vol. 13, no. 1, pp. 103–150, 1984.
- [39] M. Schall, M. Walther, and P. Uhd Jepsen, “Fundamental and second-order phonon processes in CdTe and ZnTe,” *Phys. Rev. B*, vol. 64, p. 094301, Aug 2001.
- [40] M. Kunitski, M. Richter, M. D. Thomson, A. Vredenburg, J. Wu, T. Jahnke, M. Schöffler, H. Schmidt-Böcking, H. G. Roskos, and R. Dörner, “Optimization of single-cycle terahertz generation in LiNbO<sub>3</sub> for sub-50 femtosecond pump pulses,” *Opt. Express*, vol. 21, pp. 6826–6836, Mar 2013.
- [41] Z. Ollmann, J. Fülöp, J. Hebling, and G. Almási, “Design of a high-energy terahertz pulse source based on ZnTe contact grating,” *Optics Communications*, vol. 315, pp. 159 – 163, 2014.



- [42] M. I. Bakunov, S. B. Bodrov, and M. V. Tsarev, “Terahertz emission from a laser pulse with tilted front: Phase-matching versus cherenkov effect,” *Journal of Applied Physics*, vol. 104, no. 7, p. 073105, 2008.
- [43] M. Nagai, M. Jewariya, Y. Ichikawa, H. Ohtake, T. Sugiura, Y. Uehara, and K. Tanaka, “Broadband and high power terahertz pulse generation beyond excitation bandwidth limitation via  $\chi(2)$  cascaded processes in LiNbO<sub>3</sub>,” *Opt. Express*, vol. 17, pp. 11543–11549, Jul 2009.
- [44] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, M. C. Hoffmann, and J. Hebling, “Towards generation of mJ-level ultrashort THz pulses by optical rectification,” *Opt. Express*, vol. 19, pp. 15090–15097, Aug 2011.
- [45] K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, J. Hebling, and K. A. Nelson, “Generation of 10  $\mu$ J ultrashort terahertz pulses by optical rectification,” *Applied Physics Letters*, vol. 90, no. 17, p. 171121, 2007.
- [46] K. Ravi, W. R. Huang, S. Carbajo, X. Wu, and F. Kärtner, “Limitations to THz generation by optical rectification using tilted pulse fronts,” *Opt. Express*, vol. 22, pp. 20239–20251, Aug 2014.
- [47] Y.-S. Lee, *Principles of terahertz science and technology*, vol. 170. Springer Science & Business Media, 2009.
- [48] X. Ropagnol, F. Blanchard, T. Ozaki, and M. Reid, “Intense terahertz generation at low frequencies using an interdigitated ZnSe large aperture photoconductive antenna,” *Applied Physics Letters*, vol. 103, no. 16, p. 161108, 2013.
- [49] J. A. Fülöp, L. Pálfalvi, S. Klingebiel, G. Almási, F. Krausz, S. Karsch, and J. Hebling, “Generation of sub-mJ terahertz pulses by optical rectification,” vol. 37, p. 557, 2012.

- [50] C. P. Hauri, C. Ruchert, C. Vicario, and F. Ardana, “Strong-field single-cycle THz pulses generated in an organic crystal,” *Applied Physics Letters*, vol. 99, no. 16, p. 161116, 2011.
- [51] M. Nagai, K. Tanaka, H. Ohtake, T. Bessho, T. Sugiura, T. Hirosumi, and M. Yoshida, “Generation and detection of terahertz radiation by electro-optical process in GaAs using 1.56  $\mu\text{m}$  fiber laser pulses,” *Applied Physics Letters*, vol. 85, no. 18, pp. 3974–3976, 2004.
- [52] G. Imeshev, M. E. Fermann, K. L. Vodopyanov, M. M. Fejer, X. Yu, J. S. Harris, D. Bliss, and C. Lynch, “High-power source of THz radiation based on orientation-patterned GaAs pumped by a fiber laser,” *Opt. Express*, vol. 14, pp. 4439–4444, May 2006.
- [53] F. Blanchard, B. E. Schmidt, X. Ropagnol, N. Thiré, T. Ozaki, R. Morandotti, D. G. Cooke, and F. Légaré, “Terahertz pulse generation from bulk GaAs by a tilted-pulse-front excitation at 1.8  $\mu\text{m}$ ,” *Applied Physics Letters*, vol. 105, no. 24, p. 241106, 2014.
- [54] G. Chang, C. J. Divin, C.-H. Liu, S. L. Williamson, A. Galvanauskas, and T. B. Norris, “Power scalable compact THz system based on an ultrafast Yb-doped fiber amplifier,” *Opt. Express*, vol. 14, pp. 7909–7913, Aug 2006.
- [55] G. Chang, C. J. Divin, J. Yang, M. A. Musheinish, S. L. Williamson, A. Galvanauskas, and T. B. Norris, “Gap waveguide emitters for high power broadband THz generation pumped by Yb-doped fiber lasers,” *Opt. Express*, vol. 15, pp. 16308–16315, Dec 2007.
- [56] J. A. Fülöp and J. Hebling, *Recent Optical and Photonic Technologies*, ch. Applications of Tilted-Pulse-Front Excitation. 01 2010.
- Elérhető:<https://www.intechopen.com/books/recent-optical-and-photonic-technologies/applications-of-tilted-pulse-front-excitation>.
- [57] M. C. Hoffmann, K.-L. Yeh, J. Hebling, and K. A. Nelson, “Efficient terahertz generation by optical rectification at 1035 nm,” *Opt. Express*, vol. 15, pp. 11706–11713, Sep 2007.

- [58] G. Tóth, J. A. Fülöp, and J. Hebling, “Periodically intensity-modulated pulses by optical parametric amplification for multicycle tunable terahertz pulse generation,” *Opt. Express*, vol. 25, pp. 28258–28272, Nov 2017.
- [59] D. Peceli, P. Olszak, C. Cirloganu, S. Webster, L. Padilha, T. R. Ensley, H. Hu, G. Nootz, D. J. Hagan, and E. W. V. Stryland, “Three-photon absorption of GaAs and other semiconductors,” in *Nonlinear Optics*, p. NTu1B.6, Optical Society of America, 2013.
- [60] C. M. Cirloganu, P. D. Olszak, L. A. Padilha, S. Webster, D. J. Hagan, and E. W. V. Stryland, “Three-photon absorption spectra of zinc blende semiconductors: theory and experiment,” *Opt. Lett.*, vol. 33, pp. 2626–2628, Nov 2008.
- [61] P. Malevich, G. Andriukaitis, T. Flöry, A. J. Verhoef, A. Fernández, S. Ališauskas, A. Pugžlys, A. Baltuška, L. H. Tan, C. F. Chua, and P. B. Phua, “High energy and average power femtosecond laser for driving mid-infrared optical parametric amplifiers,” *Opt. Lett.*, vol. 38, pp. 2746–2749, Aug 2013.
- [62] M. Hemmer, D. Sánchez, M. Jelínek, V. Smirnov, H. Jelinkova, V. Kubecek, and J. Biegert, “2  $\mu\text{m}$  wavelength, high-energy Ho:YLF chirped-pulse amplifier for mid-infrared OPCPA,” *Opt. Lett.*, vol. 40, pp. 451–454, Feb 2015.
- [63] P. Yu and M. Cardona, “Fundamentals of semiconductors. physics and materials properties, 3rd rev. and enlarged edn,” 2005.
- [64] V. Nathan, A. H. Guenther, and S. S. Mitra, “Review of multiphoton absorption in crystalline solids,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 2, pp. 294–316, Feb 1985.
- [65] S. A. Ku, C. M. Tu, W.-C. Chu, C. W. Luo, K. H. Wu, A. Yabushita, C. C. Chi, and T. Kobayashi, “Saturation of the free carrier absorption in ZnTe crystals,” *Opt. Express*, vol. 21, pp. 13930–13937, Jun 2013.

- [66] M. I. Bakunov and S. B. Bodrov, “Terahertz generation with tilted-front laser pulses in a contact-grating scheme,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 31, pp. 2549–2557, Nov 2014.
- [67] G. Andriukaitis, E. Kaksis, G. Polónyi, J. Fülöp, A. Baltuska, and A. Pugzlys, “220-fs 110-mJ yb:caf<sub>2</sub> cryogenic multipass amplifier,” in *CLEO: 2015*, p. SM1P.7, Optical Society of America, 2015.
- [68] A. A. Said, M. Sheik-Bahae, D. J. Hagan, T. H. Wei, J. Wang, J. Young, and E. W. V. Stryland, “Determination of bound-electronic and free-carrier nonlinearities in ZnSe, GaAs, CdTe, and ZnTe,” *J. Opt. Soc. Am. B*, vol. 9, pp. 405–414, Mar 1992.
- [69] R. DeSalvo, A. A. Said, D. J. Hagan, E. W. V. Stryland, and M. Sheik-Bahae, “Infrared to ultraviolet measurements of two-photon absorption and  $n_2$  in wide bandgap solids,” *IEEE Journal of Quantum Electronics*, vol. 32, pp. 1324–1333, Aug 1996.
- [70] T. Tanabe, K. Suto, J. Nishizawa, K. Saito, and T. Kimura, “Tunable terahertz wave generation in the 3- to 7-THz region from gap,” *Applied Physics Letters*, vol. 83, no. 2, pp. 237–239, 2003.
- [71] T. Kampfrath, K. Tanaka, and K. A. Nelson, “Resonant and nonresonant control over matter and light by intense terahertz transients,” *Nat Photon*, vol. 7, pp. 680–690, Sept. 2013.
- [72] E. Balogh, K. Kovacs, P. Dombi, J. A. Fulop, G. Farkas, J. Hebling, V. Tosa, and K. Varju, “Single attosecond pulse from terahertz-assisted high-order harmonic generation,” *Phys. Rev. A*, vol. 84, p. 023806, Aug 2011.
- [73] K. Kovács, E. Balogh, J. Hebling, V. Tosa, and K. Varjú, “Quasi-phase-matching high-harmonic radiation using chirped THz pulses,” *Phys. Rev. Lett.*, vol. 108, p. 193903, May 2012.

