

PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM

Fizika Doktori Iskola

Lézerfizika, nemlineáris optika és spektroszkópia Program

**Optimalizált félvezető terahertzes források
tervezése**

Ph.D. értekezés

Mbithi Matheka Nelson

Supervisor:

Dr. Polónyi Gyula

PTE TTK Fizikai Intézet



PÉCS, 2022

1. Bevezetés

Az alacsony terahertzes (THz) frekvenciákon (0 – 10 THz) működő nagy energiájú és csúcstérerősségű THz-es források megjelenésével új alkalmazások váltak elérhetővé, úgy mint, nemlineáris spektroszkópia [1], töltött részecskék manipulálása [2], illetve hadron terápia [3]. A THz-es impulzusokat többek között döntött impulzusfrontú technikán (DIFT) alapuló optikai egyenirányítással állíthatunk elő [4]. A legnagyobb publikált THz-es impulzus energia az alacsony frekvenciájú THz-es tartományban 1.4 mJ volt, amit DIFT-tel értek el Lithium Niobátban (LN) [5]. Azonban annak, hogy tovább növeljük az energiákat és térerősségeket LN-ban, van néhány jelentős akadálya: a nemlineáris kölcsönhatás a pumpa és a THz között nyalábtorzulásokhoz vezet [6,7], a nagy impulzusfront döntési szög korlátozza a THz-keltéshez szükséges kölcsönhatási hosszat a nagy szögdiszperzió miatt [8]. Továbbá, DIFT-hez szükséges leképező optikákból eredő hibák torzítják a THz-es nyalábprofilt, ami megnehezíti a THz-es nyaláb lefókuszálását [9]. Számos technikát javasoltak és demonstráltak már, hogy a DIFT-et tovább fejlesszék [10-14]. Egyik oldalról alternatívát jelentene az organikus kristályok használata, azonban ezek erős fonon-abszorpciós csúcsokkal rendelkeznek az alacsony frekvenciájú

tartományon [15], kis méretben elérhetőek [16], és relatíve alacsony roncsolási küszöbvel rendelkeznek. Velük szemben ott vannak a félvezető anyagok, amelyek azonban kollineáris elrendezésben nem bizonyultak ígéretesnek, mert az erős kétfotonos abszorpció korlátozta a használható pumpáló intenzitást és az elérhető THz-es energiát 800 nm-es pumpáló hullámhosszon [18-20]. Amikor azonban hosszabb pumpáló hullámhosszakat alkalmaztak az alacsonyabb rendű többfotonos abszorpció kiküszöbölésére a THz-es energiát 9-szeresére ($14 \mu\text{J}$), a hatásfokot 14-szeresére (0.7%) növelték a korábbi félvezető eredményekhez képest ZnTe-ban 1700 nm-es pumpáló hullámhosszal [21,22]. A leképezési hibák kiküszöbölésére javasolták a kontaktrács technológiát, ami lehetővé tette a kollineáris elrendezés használatát hosszabb hullámhosszakon is és a további skálázhatóság lehetőségét is magában hordozta egyszerűen a kristály és a pumpáló nyaláb keresztmetszetének növelésével [10]. ZnTe anyagra alkalmazva 0.3% hatásfokot és $3.9 \mu\text{J}$ THz-es impulzus energiát sikerült előállítani [22]. Azonban ZnTe mikrobuborékokat tartalmaz a növesztési technológiából fakadóan, ami megnehezíti a használhatóságát nagyobb méretek esetén [22]. Nemrég GaP anyagú kontaktrácsot mutattak be [23]. GaP és GaAs ígéretesnek mutatkoznak, mivel könnyebben növeszthetők és olcsóbbak ZnTe-nál [24].

A disszertáció numerikus szimulációkat mutat be GaP és GaAs kontaktrácsos THz-forrásokról és három módszert, amivel a diffrakciós hatásfokot 91%, illetve 89% fölé lehet növelni GaP-ban és GaAs-ben, hogy hatékony THz-keltő kontaktrácsokat állítsunk elő hosszú pumpáló hullámhosszokon. Ezenkívül numerikus szimulációkon keresztül meghatároztam az optimális pumpálás hullámhosszát, ahol a nemlineáris törésmutató hatását és az optikai parametrikus erősítésből fakadó hullámhossz konverzió hatásfokát is figyelembe vettem.

2. Célok

A munka fő célkitűzése volt, hogy numerikusan megvizsgáljam hosszú infravörös hullámhosszon pumpált felskálázható és hatékony kontaktrács THz-források lehetséges THz-keltési hatásfokát és optimalizált tervezési paramétereit adjak meg.

Numerikus szimulációkon keresztül már vizsgálták ZnTe és GaP optimális pumpálási és fázisillesztési feltételeit infravörös hullámhosszokon $2\ \mu\text{m}$ alatt [25]. Az első cél ezen számolások kiterjesztése GaAs és GaP kristályokra, $2\ \mu\text{m}$ -nél hosszabb infravörös hullámhosszokra. Céлом volt, hogy meghatározzam az optimális pumpáló impulzushosszat, pumpáló intenzitást,

kristályhosszat és fázisillesztési frekvenciát, ami a legnagyobb THz-keltési hatásfokhoz vezet.

Ezek mellett korábban már előrevetítették, majd később demonstrálták, hogy az alacsonyrendű többfotonos abszorpció (TFA) kiküszöbölésével jelentősen megnövelhető a THz-keltési hatásfok [20, 26-28], mivel magasabb pumpáló intenzitást lehet alkalmazni anélkül, hogy a szabad töltéshordozók sűrűségét, és így a THz-es abszorpciójukat növelnék. Ehhez kapcsolódóan a második célom volt, numerikus szimulációkon keresztül megvizsgáljam mekkora nyereség érhető el GaAs-ben és GaP-ban a konverziós hatásfok növelésében, ha növeljük a pumpáló hullámhosszakat és kiküszöböljük az alacsonyrendű TFA-kat. Célom volt, hogy meghatározzam, hogy létezik-e praktikus limit a hullámhossz megválasztásában, amely fölé nem érdemes menni. Ezen túlmenően pedig célom volt a nemlineáris törésmutató hatásának vizsgálata a THz-keltés hatásfokára.

ZnTe kontaktrácsban 3.9 μJ energiájú THz-es impulzusokat keltettek 0.3%-os keltési hatásfokával [22]. Azonban a nagyméretű ZnTe kristályok növesztése nem könnyű, mert a növesztés során mikrobuborékok alakulnak ki, amelyek a keltési hatásfokot rontják [22]. Emiatt GaP és GaAs potenciális alternatívát nyújthatnak a félvezető alapú THz-keltésben.

További célom volt, hogy GaP és GaAs anyagú kontaktrácsokat tervezek meg. Itt az motivált, hogy a legnagyobb diffrakciós hatásfokokat eredményező paramétereket tudjam meghatározni bináris és trapezoid struktúrák elhelyezésével a félvezetők felületén, hogy minél nagyobb konverziós hatásfokú THz-forráshoz jussunk. Vizsgáltam még a diffrakciós hatások változását a struktúra falának dőlésszöge függvényében.

A következő célom volt, hogy megvizsgáljam a lehetőségét, hogy a korábban kapott diffrakciós hatásokokat hogyan lehetne tovább növelni 90% fölé különböző típusú antireflexiós rétegek felhasználásával hosszú hullámhosszú infravörös hullámhosszakon való pumpálás esetén. Itt három különböző módszert vizsgáltam numerikusan.

3. Tézispontok

- I. Numerikus szimulációkat készítettem 1 és 5 μm -es pumpáló hullámhossztartományon, hogy megvizsgáljam az előnyeiket a 2-7 fotonos abszorpció kiküszöbölésének hosszú pumpáló hullámhosszokat alkalmazva GaP-ban és GaAs-ben. Optimális 2 THz-es fázisillesztési frekvenciát és optimális 125 fs-os pumpáló impulzushosszt feltételezve 0.9%

és 1.14% hatásfokokat jósoltam GaAs-ben és GaP-ban [S1].

- II. A nemlineáris törésmutató és az optikai parametrikus erősítés hullámhosszfüggő hatásfokát is figyelembe véve numerikus szimulációkkal vizsgáltam a teljes THz-keltési hatásfokot GaP-ban és GaAs-ben. A használt modell alapján megállapítottam, hogy a nemlineáris törésmutató jelentősen csökkenti a THz-keltés hatásfokát és rövidíti az optimális pumpáló hullámhosszat. Ez az optimális hullámhossz GaP esetén $2\ \mu\text{m}$, míg GaAs esetén $3\ \mu\text{m}$ [S1].
- III. Numerikus szimulációk segítségével megterveztem GaP és GaAs anyagú kontaktrács THz-forrásokat bináris és trapezoid profilokkal a $2\text{-}4\ \mu\text{m}$ -es hullámhossz tartományra. A tervezési paraméterek optimális megválasztásával 69%-os és 75%-os diffrackiós hatásfokok érhetőek el a ± 1 . rendekben TE polarizációval, és 80%-82%-os hatásfokok TM polarizációval, GaAs-ben és GaP-an, ha a pumpáló nyaláb merőleges a rács felületére [S1, S2].
- IV. Mivel a megmunkálás tökéletlenségei miatt a teljesen merőleges falak nem garantálhatók, emiatt a

számolásokat kiterjesztettem a 0° -ostól eltérő falszögekre is. Megmutattam, hogy 25° -nál kisebb falszögek esetén a hatásfokvesztés kevesebb, mint 5% mind GaP-ban és GaAs-ben. Ezzel szemben 25° -nál nagyobb falszögek esetén a hatásfok monoton módon csökken a falszög növekedésével. Emiatt figyelni kell rá, hogy a fal dőlésének szöge ne haladja meg a 25° -ot [S2].

- V. Három különböző módszert vizsgáltam szimulációkon keresztül, hogy növeljem a 69-75%-os diffrakciós hatásfokokat GaP és GaAs kontaktrácsok esetén a ± 1 . rendekben, és azt tapasztaltam, hogy antireflexiós bevonat hozzáadásával 88-90%-os hatásfokok is elérhetők. 91% és 89%-os hatásfokokat vetítettem előre GaP-ban és GaAs-ben, TE polarizációban, $2.06 \mu\text{m}$ és $3 \mu\text{m}$ pumpáló hullámhosszakon, amit a Fresnel-vesztés minimalizálásával magyaráztam [S2].

Publikációk

Disszertációhoz kötődő publikációk

[S1] **N. M. Mbithi**, G. Tóth, Z. Tibai, I. Benabdelghani, L. Nasi, G. Krizsán, J. Hebling, and G. Polonyi, "Investigation of terahertz pulse generation in semiconductors pumped at long infrared wavelengths," *J. Opt. Soc. Am. B*, (2022).

[S2] Z. Tibai, **N. M. Mbithi**, G. Almási, J. A. Fülöp and J. Hebling, " Design of semiconductor contact grating terahertz source with enhanced diffraction efficiency," *Crystals*, (2022).

Előadások

[E1] **N. M. Mbithi**, G. Krizsán, G. Polónyi, Z. Tibai, J. Hebling, and J. A. Fülöp, "Highly efficient THz pulse generation in semiconductors utilizing contact-gratings technology," in *High Intensity Lasers and High Field Phenomena*, (Optical Society of America, 2020), JW1A. 13.

[E2] **N. M. Mbithi**, G. Polónyi, Z. Tibai, G. Krizsán, L. Nasi, J. Hebling, J. A. Fülöp, Design of semiconductor contact-grating terahertz source for high energy terahertz pulse generation, MedPECS Medical Conference for PhD students and Experts of clinical Sciences, May 15 (2021).

[E3] G. Krizsán, **N. M. Mbithi**, G. Polónyi, G. Tóth, M. Mechler, J. Hebling, and J. A. Fülöp, "Semiconductors as Highly Efficient Single and Multicycle Terahertz Sources," in *The European Conference on Lasers and Electro-Optics*, (Optical Society of America, 2019), cc p22.

[E4] G. Krizsán, G. Polónyi, **N. M. Mbithi**, Z. Tibai, L. Pálfalvi, Gy. Tóth, L. Nasi, J. A. Fülöp and J. Hebling, Easily adaptable and scalable semiconductor THz pulse source, 46 th IRMMW-THz (2021).

[E5] G. Polónyi, P. Nugraha, **N.M. Mbithi**, G. Krizsán, B. Monoszlai, M. Mechler, G. Tóth, J. Hebling, and J. Fülöp, "Highly Efficient Scalable Semiconductor Terahertz Sources," in *2019 44th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz)*, (IEEE, 2019), 1-3.

[E6] J. A. Fülöp, G. Polónyi, K. Gergő, **N. M. Mbithi**, P. S. Nugraha, G. Almási, L. Pálfalvi, Z. Tibai, G. Tóth, and J. Hebling, "Novel intense single-and multicycle THz sources," in *2020 45th International Conference on Infrared, Millimeter, and Terahertz Waves (IRMMW-THz)*, (IEEE, 2020), 1-2.

[E7] J. A. Fülöp, G. Almási, G. Krizsán, **N. M. Mbithi**, M. I. Mechler, P. S. Nugraha, L. Pálfalvi, G. Polónyi, A. Sharma, and Z. Tibai, "Microstructured Intense THz Sources," in *Terahertz Science and Applications*, (Optica Publishing Group, 2019), TTh4D. 4.

Egyéb publikációk

[S3] M. H. Abufadda, **N. M. Mbithi**, G. Polonyi, P. S. Nugraha, A. Buzady, J. Hebling, L. Molnar, and J. A. Fulop, "Absorption of Pulsed Terahertz and Optical Radiation in Earthworm Tissue and Its Heating Effect," *J Infrared Millim Te* **42**, 1065-1077 (2021).

Irodalomjegyzék

1. T. Kampfrath, K. Tanaka, and K. A. Nelson, "Resonant and nonresonant control over matter and light by intense terahertz transients," *Nat. Photonics* **7**, 680-690 (2013).
2. P. Salén, M. Basini, S. Bonetti, J. Hebling, M. Krasilnikov, A. Y. Nikitin, G. Shamuilov, Z. Tibai, V. Zhaunerchyk, and V. Goryashko, "Matter manipulation with extreme terahertz light: Progress in the enabling THz technology," *Phys. Rep.* **836-837**, 1-74 (2019).
3. L. Palfalvi, J. A. Fulop, G. Toth, and J. Hebling, "Evanescent-wave proton postaccelerator driven by intense THz pulse," *Phys Rev Spec Top-Ac* **17**, 031301 (2014).
4. J. Hebling, G. Almasi, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, "Velocity matching by pulse front tilting for large-area THz-pulse generation," *Opt. Express* **10**, 1161-1166 (2002).
5. B. Zhang, Z. Ma, J. Ma, X. Wu, C. Ouyang, D. Kong, T. Hong, X. Wang, P. Yang, L. Chen, Y. Li, and J. Zhang, "1.4-mJ High Energy Terahertz Radiation from Lithium Niobates," *Laser & Photonics Reviews* **15**(2021).
6. C. Lombosi, G. Polónyi, M. Mechler, Z. Ollmann, J. Hebling, and J. A. Fülöp, "Nonlinear distortion of intense THz beams," *New J. Phys.* **17**(2015).
7. K. Ravi, W. R. Huang, S. Carbajo, X. J. Wu, and F. Kartner, "Limitations to THz generation by optical rectification using tilted pulse fronts," *Opt. Express* **22**, 20239-20251 (2014).
8. J. A. Fulop, L. Palfalvi, M. C. Hoffmann, and J. Hebling, "Towards generation of mJ-level ultrashort

- THz pulses by optical rectification," *Opt. Express* **19**, 15090-15097 (2011).
9. H. Hirori, A. Doi, F. Blanchard, and K. Tanaka, "Single-cycle terahertz pulses with amplitudes exceeding 1 MV/cm generated by optical rectification in LiNbO₃," *Appl. Phys. Lett.* **98**, 091106 (2011).
 10. L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, "Novel setups for extremely high power single-cycle terahertz pulse generation by optical rectification," *Appl. Phys. Lett.* **92**(2008).
 11. M. Tsubouchi, K. Nagashima, F. Yoshida, Y. Ochi, and M. Maruyama, "Contact grating device with Fabry–Perot resonator for effective terahertz light generation," *J Optics letters* **39**, 5439-5442 (2014).
 12. L. Pálfalvi, Z. Ollmann, L. Tokodi, and J. Hebling, "Hybrid tilted-pulse-front excitation scheme for efficient generation of high-energy terahertz pulses," *Opt. Express* **24**, 8156-8169 (2016).
 13. L. Pálfalvi, G. Tóth, L. Tokodi, Z. Márton, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, "Numerical investigation of a scalable setup for efficient terahertz generation using a segmented tilted-pulse-front excitation," *Opt. express* **25**, 29560-29573 (2017).
 14. P. S. Nugraha, G. Krizsan, C. Lombosi, L. Palfalvi, G. Toth, G. Almasi, J. A. Fulop, and J. Hebling, "Demonstration of a tilted-pulse-front pumped plane-parallel slab terahertz source," *Opt. Lett.* **44**, 1023-1026 (2019).
 15. C. Vicario, B. Monoszlai, and C. P. Hauri, "GV/m Single-Cycle Terahertz Fields from a Laser-Driven Large-Size Partitioned Organic Crystal," *Phys. Rev. Lett.* **112**(2014).
 16. 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(2)SiO(4) laser," *Opt. Lett.* **39**, 6632-6635 (2014).
17. H. A. Hafez, X. Chai, A. Ibrahim, S. Mondal, D. Férachou, X. Ropagnol, and T. Ozaki, "Intense terahertz radiation and their applications," *J Optics-Uk* **18**(2016).
 18. F. Blanchard, L. Razzari, H.-C. Bandulet, G. Sharma, R. Morandotti, J.-C. Kieffer, T. Ozaki, M. Reid, H. Tiedje, and H. Haugen, "Generation of 1.5 μ J single-cycle terahertz pulses by optical rectification from a large aperture ZnTe crystal," *Opt. Express* **15**, 13212-13220 (2007).
 19. J. Xu, B. Globisch, C. Hofer, N. Lilienfein, T. Butler, N. Karpowicz, and I. Pupeza, "Three-octave terahertz pulses from optical rectification of 20 fs, 1 μ m, 78 MHz pulses in GaP," *J. Phys. B At. Mol. Opt. Phys.* **51**(2018).
 20. G. Polonyi, B. Monoszlai, G. Gaumann, E. J. Rohwer, G. Andriukaitis, T. Balciunas, A. Pugzlys, A. Baltuska, T. Feuerer, J. Hebling, and J. A. Fulop, "High-energy terahertz pulses from semiconductors pumped beyond the three-photon absorption edge," *Opt. Express* **24**, 23872-23882 (2016).
 21. 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:Opt. Phys.* **25**, B6-B19 (2008).
 22. J. A. Fülöp, G. 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**(2016).
 23. M. Bashirpour, W. Cui, A. Gamouras, and J. M. Menard, "Scalable Fabrication of Nan gratings on

- GaP for Efficient Diffraction of Near-Infrared Pulses and Enhanced Terahertz Generation by Optical Rectification," *Crystals* **12**, 684 (2022).
24. N. M. Mbithi, G. Tóth, Z. Tibai, I. Benabdelghani, L. Nasi, G. Krizsán, J. Hebling, and G. Polonyi, "Investigation of terahertz pulse generation in semiconductors pumped at long infrared wavelengths," *J. Opt. Soc. Am. B* **Submitted**(2022).
 25. G. Polónyi, M. I. Mechler, J. Hebling, and J. A. Fülöp, "Prospects of Semiconductor Terahertz Pulse Sources," *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **23**, 1-8 (2017).
 26. 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 μm ," *Appl. Phys. Lett.* **105**(2014).
 27. K. L. Vodopyanov, "Optical THz-wave generation with periodically-inverted GaAs," *Laser Photonics Rev.* **2**, 11-25 (2008).
 28. J. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, "Design of high-energy terahertz sources based on optical rectification," *Opt. express* **18**, 12311-12327 (2010).