

PÉCSI TUDOMÁNYEGYETEM

Fizika Doktori Iskola
Lézerfizika, nemlineáris optika és spektroszkópia program

Lítium-niobát alapú skálázható terahertzes impulzus források

PhD értekezés

Krizsán Gergő

Témavezető:

Dr. Fülöp József András



Pécs, 2022.

Tartalom

Rövidítések, angol elnevezések.....	5
1. Bevezetés.....	6
2. Előzmények	8
2.1. THz-es impulzus források	8
2.1.1. Fotovezető antenna	8
2.1.2. Plazma alapú források	10
2.1.3. Optikai egyenirányítás.....	11
2.2. Döntött impulzusfrontú gerjesztés, impulzusfront dőlés	14
2.3. A konvencionális döntött impulzusfrontú elrendezés és korlátozó tényezői	16
2.4. Újgenerációs THz források.....	19
2.4.1. Transzmissziós lépcsős rácsstruktúrát alkalmazó források.....	20
2.4.2. Reflexiós rácsstruktúrát alkalmazó forrás	22
2.5. Térfogati holografikus rács.....	23
2.6. Elektro-optikai mintavételezés.....	24
3. Motiváció, célkitűzés	26
4. Eredmények.....	27
4.1. Nemlineáris echelon lap térfogati holografikus ráccsal	27
4.1.1. Elrendezés	27
4.1.2. Térfogati holografikus rács tervezése	30
4.1.3. THz keltés modellezése	32
4.1.4. Kísérleti eredmények.....	34
4.2. Reflexiós nemlineáris lap külső strukturált reflektorral	36
4.2.1. Elrendezés	37
4.2.2. Külső strukturált fényvisszaverő tervezése	37
4.2.3. Nanoport tartalmazó folyadék	40
4.2.4. THz-es impulzusok keltési határfoka.....	41
5. Összefoglalás	43
5.1. Tézispontok	44
6. Summary	46
6.1. New scientific results.....	48
7. Köszönetnyilvánítás.....	50
8. Publikációk.....	51
8.1. Értekezéshez kapcsolódó saját publikációk.....	51
8.2. Egyéb publikációk.....	51

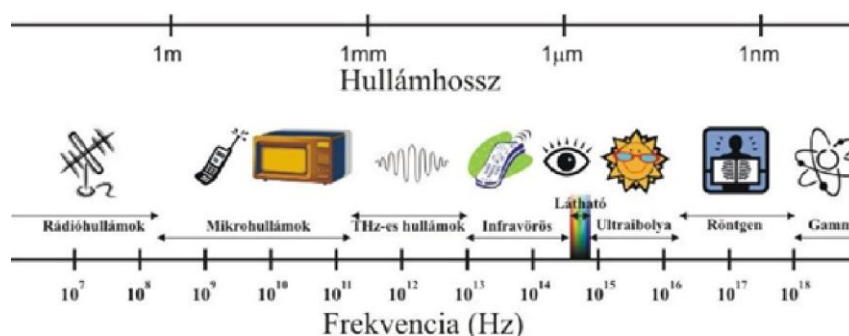
8.3.	Konferencián bemutatott előadások	51
8.4.	Konferencián bemutatott posztterek	52
9.	Irodalomjegyzék	53

Rövidítések, angol elnevezések

magyar elnevezés	angol elnevezés	magyar rövidítés	angol rövidítés
	terahertz		THz
lítium-niobát	lithium niobate		LN
sztoichiometrikus lítium-niobát	stoichiometric lithium niobate		sLN
lítium-tantalát	lithium tantalate		LT
cink-tellurid	zinc telluride		ZnTe
gallium-foszfid	gallium phosphide		GaP
gallium-arszenid	gallium arsenide		GaAs
cink-szelenid	zinc selenide		ZnSe
titán-zafír	titanium sapphire		Ti:s
itterbium	ytterbium		Yb
dikromált zselatin	dichromated gelatine	DZS	DCG
döntött impulzusfront	tilted pulse front	DIF	TPF
impulzusfront dőlés	pulse-front-tilt	IFD	PFT
döntött impulzusfrontú gerjesztés	tilted pulse front pumping	DIFG	TPFP
fotovezető antenna	photoconductive antenna	FA	PCA
nagy felületű fotovezető antenna	Large-area photoconductive antenna	NFFA	LAPA
nemlineáris echelon lap	nonlinear echelon slab	NLEL	NLES
reflexiós nemlineáris lap	reflective nonlinear slab	RNLL	RNLS
külső strukturált reflektor	external structured reflector	KSR	ESR
nemlineáris optikai anyag	nonlinear optical material	NOA	NOM
félhullám lemez	half-wave plate	FHL	HWP
térfogati holografikus rács	volume phase holographic grating	THR	VPHG
törésmutató illesztő folyadék	refractive index matching liquid	TIF	RIML
nagy törésmutatójú folyadék	high refractive index liquid	NTF	HRIL
optikai egyenirányítás	optical rectification	OE	OR
jósági tényező	figure of merit	JT	FOM
Fourier limitált	Fourier limited		FL
antireflexiós	antireflection		AR

1. Bevezetés

Terahertzes (THz) sugárzásnak szokás nevezni a $\sim 10^{12}$ Hz frekvenciával rendelkező elektromágneses hullámokat. A THz-es tartomány ($\sim 0,1 - 10$ THz) az elektromágneses spektrumon belül a mikrohullámú és infravörös tartományok között helyezkedik el (1. ábra), hullámhossza pedig a $\sim 3 - 0,03$ mm intervallumba esik. Az $E = h\nu$ és a $T = h\nu/k_b$ összefüggések segítségével az ehhez a tartományhoz kapcsolódó fotonenergia, valamint hőmérséklet is megadható, melyek értéke $0,41 - 41$ meV és $4,8 - 480$ K, ahol h a Planck állandó, k_b pedig a Boltzmann állandó. Mivel a Földön a legtöbb anyag az említett hőmérséklet-tartományon helyezkedik el, így a THz-es sugárzás számít a Földön a leggyakoribb elektromágneses hullámnak. Mindezek ellenére csak nemrég óta lehet hatékonyan és viszonylagosan nagy energiával előállítani azt.



1. ábra Az elektromágneses spektrum [1].

A femtoszekundumos lézerek utóbbi három évtizedben bekövetkezett széleskörű elterjedésének köszönhetően, a THz-es tartomány egésze elérhető lett, valamint lehetőség adódott az elektromos térerősség közvetlen mérésére is. Ultrarövid impulzusoknak (~ 100 fs) különböző nemlineáris optikai anyagokban (NOA) történő optikai egyenirányításával (OE) a $\sim 0,1-2$ THz, $\sim 1-4$ THz, valamint $\sim 0,1-10$ THz tartományok váltak elérhetővé. Ezen frekvenciatartományokba eső THz-es impulzusok tipikusan lítium-niobátban (LiNbO_3 , LN) [2], félvezetőkben (pl.: cink-tellurid (ZnTe) [3], gallium-foszfidban (GaP) [4]) vagy organikus kristályokban (pl.: DAST [5], OH1 [6], DSTMS [7,8]) kelthetők.

THz-es impulzusok kelthetők továbbá fotovezető antennákkal (FA) ($\sim 0,1-6$ THz) [9], kétszínű lézerterekkel gáz ($\sim 1-20$ THz) [10], folyadék ($\sim 1-100$ THz) [11], vagy szilárd ($\sim 0,1-2$ THz) [12] anyagok plazmájában, különbségfrekvencia-keltéssel ($\sim 10-10$ THz) [13], illetve spintronikus ($\sim 1-10$ THz) [14] forrásokkal is.

A THz-es impulzusok felhasználási területei közé tartozik a biztonságtechnika [15], időtartománybeli lineáris [16] és nemlineáris spektroszkópia [17], képalkotás és nem-destruktív anyagvizsgálat [18,19], valamint a manapság talán legnagyobb érdeklődéssel

kísért alkalmazás: töltött részecskék (elektronok [20,21], sőt ionok [22]) manipulálása, gyorsítása is.

Az alacsony THz-es frekvenciatartományon (0,1-2 THz), mely ideális a töltött részecskék gyorsítására, a LN alapú források biztosították a legnagyobb impulzusenergiát és csúcs elektromos térerősséget [23], azonban a további energianövekedésnek komoly korlátai vannak. Ennek legfőbb oka a döntött impulzusfrontú (DIF) fázisillesztéshez szükséges nagy impulzusfront-dőlési (IFD) szög ($\sim 63^\circ$).

Munkámban olyan LN alapú THz-es forrásokat szeretnék bemutatni, melyeknél a konvencionális DIF forrás korlátozó tényezőit sikerült csökkenteni vagy akár megszüntetni, így a bemutatásra kerülő forrásokban a pumpáló nyaláb mérete és ezzel a pumpáló impulzusok energiája, valamint az ezen források által keltett THz-es energia bármilyen alapvető korlátozó tényező nélkül növelhető (skalázható).

A dolgozat a nemlineáris optika témakörébe tartozik. Nemlineáris optikáról beszélünk akkor, amikor az anyag válasza a külső elektromos térre nem lineáris. Számos fizikai folyamat tartozik ide, melyek közül a dolgozat szempontjából fontosakat a felbukkanásuk helyén magyarázom meg. A dolgozat folyamán hatásfok alatt a NOA-ból kilépett THz-es energia és a NOA előtti pumpáló energia hányadosát, impulzushossz alatt az impulzus időbeli félértékszélességét, foltméret alatt pedig a lézer vagy THz nyaláb $I \geq I_0/e^2$ intenzitású részének az átmérőjét értem.

2. Előzmények

Ebben a fejezetben bemutatok néhány különböző típusú THz-es forrást és a konvencionális DIF gerjesztésen alapuló elrendezés korlátozó tényezőit. Bemutatok továbbá néhány olyan LN alapú elrendezést, melyeknél a konvencionális elrendezés korlátozó tényezőit sikerült lecsökkenteni vagy akár meg is szüntetni, valamint közvetlen előzményei a 4. fejezetben tárgyalt elrendezéseknek.

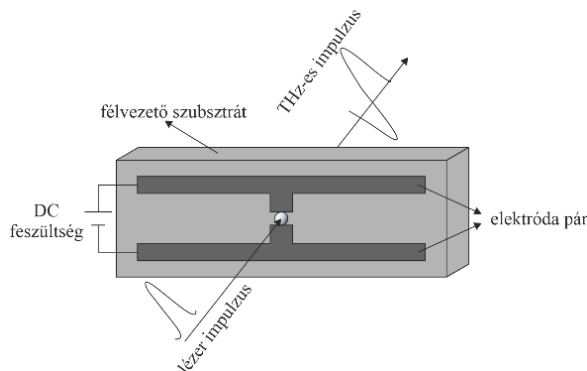
2.1. THz-es impulzus források

A THz-es forrásokat több módszer szerint is lehet csoportosítani. Megkülönböztethetünk folytonos és impulzus üzemi forrásokat, utóbbin belül is vizsgálhatunk egy-, néhány- vagy többciklusúakat. Csoportosíthatjuk az előállító közeg szerint, hogy elektronok gyorsításán vagy NOA-ok felhasználásán alapulnak. Dolgozatomban a legfontosabb ultrarövid impulzusú lézerrel meghajtott forrástípusokat mutatom be.

2.1.1. Fotovezető antenna

FA-k segítségével nemcsak előállíthatóak a THz-es impulzusok, de detektálhatóak is. Működésüket először Auston és munkatársai írták le még 1984-ben [24], sőt az első μJ energiaszintű THz-es impulzusokat is hasonló, nagy felületű fotovezető antennával (NFFA) állították elő [25].

Az elrendezés lényege, hogy egy félvezető felületen relatíve kis résközzel ($\sim 10 \mu\text{m}$) elektróda párt hoznak létre, melyet külső feszültséggel előfeszítenek. Ennek mértéke a kV/cm -es skálán mérhető. Az elektródákkal közrefogott félvezető felületét ultrarövid lézerimpulzussal (melynek frekvenciája elég magas ahhoz, hogy a félvezető elektronjait a vezetési sávba emelje) megvilágítják, így szabad töltéshordozók jönnek létre, melyek az előfeszítés hatására gyorsulni kezdenek. Az így keletkezett tranziens fotoáram (J) az annak időbeli deriváltjával arányos térerősségű egyciklusú elektromágneses impulzust hoz létre $E_{\text{THz}}(t) \propto dJ(t)/dt$, ahol E_{THz} a keltett THz-es impulzus elektromos térerőssége. Ezt az elrendezést szokás Auston kapcsolónak is nevezni. Ennek sematikus rajza a 2. ábrán látható.



2. ábra FA sematikus rajza

A THz-es impulzusok detektálásához használható ugyanaz a FA csak előfeszítés nem szükséges, helyette feszültségmérőt (pl.: lokin erősítő) köthetünk az elektródákra. A detektor antennában a keltő folyamat fordítottja játszódik le. A FA-ra érkező lézer impulzus elektron-párokat kelt a félvezetőben és ha ezzel egy időben a THz-es tér is jelen van, akkor az mozgásba hozza a töltéshordozókat, és az antenna pólusain a THz-es térrel arányos elektromos feszültség jön létre, amit mérhetünk. Az optikai impulzust a THz-es impulzushoz képest sorozatosan késleltetve a THz-es tér időbeli alakja (mintavételezhető) megállapítható.

Itt megjegyezném, hogy a többi nemlineáris optikai folyamattal szemben a FA-val előállított THz-es impulzusenergia elsősorban nem a lézer impulzusenergiájától, hanem az előfeszítés nagyságától függ. A pumpáló energiasűrűség növelésével a THz-es impulzus energiája telítődésbe megy [26].

Jelenleg a leghatékonyabb félvezetőkre épülő fotoáram-sugárzók a NFFA-k. Ilyenkor az elektródák közötti távolság jóval nagyobb, mely már a cm-es skálán mérhető [27,28]. A NFFA előfeszítési feszültsége nagy hőterheléshez vezet az ohmos veszteségek miatt (Joule-fűtés), továbbá átütést és anyagroncsolódást is okozhat. Ezen problémák elkerülése érdekében az ideális félvezetőnek széles tiltott sávval, jó hővezető képességgel és nagy töltéshordozó-mobilitással kell rendelkeznie. Míg korábban a FA-k anyaga jellemzően gallium-arszenid (GaAs) volt, később cink-szelenid (ZnSe) [29] és különösképpen 6H-SiC [30] anyagok is ígéretesnek bizonyultak.

Egy másik megoldás a NFFA megvalósítására, hogy több kis részközzel rendelkező elektródapárt helyezünk egymás mellé, melyek egészét világítjuk meg a pumpáló lézerrel. Ahhoz, hogy az egyes diódapárokból származó sugárzások ne oltsák ki egymást minden második párt ki kell takarni, vagy az általuk keltett sugárzás fázisát 180° -kal meg kell változtatni [31,32].

A FA legfontosabb felhasználási területe az időtartománybeli THz-es spektroszkópia.

2.1.2. Plazma alapú források

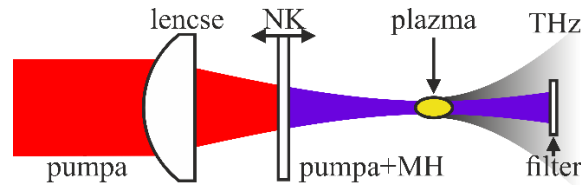
A plazma alapú források széles spektrumú és időben rövid THz-es impulzusok előállítására a legalkalmasabbak. Legfőbb előnyük, hogy az anyag roncsolási küszöbe nem korlátozza a maximálisan használható intenzitást, illetve, hogy a THz-es sávszélesség csak a pumpáló lézer impulzushosszától függ.

Az első lézerindukált gázplazma alapú THz-es forrást Hamster és társai 1993-ban publikálták [33]. Nemesgázban TW-os lézerrendszer lefókuszált nyalábjával plazmát állították elő, a THz-es sugárzást pedig a ponderomotoros erő által keltett áram hozta létre a plazmában.

Mindössze 850 μJ energiájú, 150 fs impulzushosszú kHz-es ismétlési frekvenciával rendelkező titán-zafir (Ti:s) regeneratív erősítőből származó impulzusokkal a 2000-es évben állították elő először THz-es impulzusokat [34]. Itt a plazma körül 10,6 kV/cm nagyságú kvázi-sztatikus elektromos teret alkalmaztak a levegőben. Ez az elrendezés akkoriban közel hasonló nagyságú THz-es csúcs elektromos térerősséget biztosított, mint a GaAs alapú NFFA-k.

Nagyméretű THz keltési hatások növekedéshez vezetett, amikor a femtoszekundumos lézerimpulzust a másodharmónikusával együtt használták [35]. Sőt nemrégiben további hatásfoknövekedést demonstráltak háromszínű pumpálást alkalmazva [36]. Egy másik megközelítés szerint, növelve a pumpa (és másodharmónikusa) hullámhosszát, akár 7%-os keltési hatások is elérhető [37,38]. Természetesen ehhez szükség van a közép infravörös tartományban működő lézerek fejlesztésére, hogy ebben a tartományban is nagy pumpáló energia álljon rendelkezésre.

A legelterjedtebb elrendezésben (3. ábra) a pumpa impulzust lefókuszálják egy gáz targetre, ahol plazma keletkezik. A fókuszált nyalábba egy nemlineáris kristályt helyeznek (ahol az intenzitás még kisebb, mint a roncsolási küszöb), mely előállítja a pumpa másodharmónikusát és az szintén lefókuszálódik. A kétszínű pumpálás hatására a plazmában aszimmetrikus áram jön létre, mely létrehozza a THz-es sugárzást [39,40]. A keltési hatások függ az alap és másodharmónikus közötti relatív fázistól, ami a nemlineáris kristály pumpa terjedés menti pozíciójával (kihasználva a gáz diszperzióját), vagy hullámlemez segítségével hangolható [41]. A keltési hatások függ az alkalmazott gáztól, valamint annak nyomásától is [42].



3. ábra Gázplazma forrás sematikus rajza. NK: nemlineáris kristály, MH: másodharmónikus

Érdekes, hogy bár a legtöbb folyadék, mint például a víz, erősen elnyeli a THz-es sugárzást, megmutatták, hogy folyadékok is használhatóak THz-es forrásként. A korábbiakhoz képest ilyenkor a gáz helyett, vékony folyadék filmet [43] vagy vonalat [44] használnak targetként. Az ilyen típusú források kevésbé hatékonyak, mint a gáz alapú források. Az általuk keltett THz-es impulzusok spektruma keskenyebb, ennek következtében pedig időben hosszabbak [32].

Targetként használhatóak vékony szilárd halmazállapotú fémfóliák is [45]. Nemrégiben több mJ energiájú THz-es sugárzást állítottak elő azzal, hogy ~60 J energiájú 1,5 ps impulzushosszú, 1053 nm hullámhosszú impulzust fókuszáltak vékony rézlapra. Ebben az esetben a THz keltésért az anyagból kilökődő elektroncsomó a felelős [12].

A plazma alapú forrásokkal előállított THz-es impulzusok széles spektruma általában nem detektálható elektro-optikai kristályok segítségével. Ilyen esetben a keltő folyamat kvázi fordítottja alkalmazható detektálásra. Négyhullám keverés esetében váltakozó előfeszítést alkalmazva (aminek frekvenciája megegyezik a pumpa ismétlési frekvenciájával) a pumpa és THz-es impulzus jelenlétében a keltett másodharmónikus arányos lesz a THz-es tér nagyságával [46].

2.1.3. Optikai egyenirányítás

Az optikai egyenirányítás (OE) manapság a legelterjedtebb módszer a közel egyciklusú, sőt a néhány vagy többciklusú THz-es impulzusok előállítására is. Femtoszekundumos impulzusok optikai egyenirányításával először Auston és társai állítottak elő közel egyciklusú THz-es impulzusokat lítium-tantalátban 1984-ben, melynek csúcs elektromos térerőssége 10 V/cm volt [47].

Az OE egy másodrendű nemlineáris optikai folyamat. Míg folytonos pumpálás esetén az OE a kristályon mérhető állandó feszültséget okoz [48], ultrarövid impulzusú pumpálás esetén a pumpáló impulzus különböző spektrális komponensei között létrejövő különbségfrekvenciakeltésről beszélhetünk [49]. Ilyenkor a nemlineáris polarizáció a következőképpen számolható [50]:

$$P_{NL}(\Omega) = \varepsilon_0 \chi^2 \int_{-\infty}^{\infty} E(\omega + \Omega) E^*(\omega) d\omega, \quad (1)$$

ahol ε_0 a vákuum permittivitás, χ^2 az anyag másodrendű nemlineáris szuszceptibilitása, ω az optikai, míg Ω a THz-es frekvencia. Az 1. egyenlet alapján a szűk spektrális tartományú pumpáló impulzus csak alacsony THz-es frekvenciákat, míg a szélessávú magasabb frekvenciákat is generál, így szélessávú THz-es spektrumot létrehozva.

A nemlineáris polarizáció mellett az anyag diszperziója is nagyon fontos szerepet játszik, ha a pumpáló lézerpulzus már makroszkopikus távolságokat tesz meg az anyagban. Az OE hatásfoka akkor a legnagyobb, ha teljesül a fázisillesztés feltétele, amelyet a következőképpen írhatunk le [51]:

$$\Delta \mathbf{k}(\Omega) = \mathbf{k}(\Omega) + \mathbf{k}(\omega) - \mathbf{k}(\omega + \Omega) = 0, \quad (2)$$

ahol \mathbf{k} a hullámvektor. Jelenleg $\Omega \ll \omega$, így a $\mathbf{k}(\omega + \Omega) - \mathbf{k}(\omega)$ tag közelíthető a $\partial \mathbf{k} / \partial \omega|_{\omega_0} * \Omega$ kifejezéssel. Kollineáris THz-keltés esetén a közelítést felhasználva a

$$\Delta k = \frac{[n(\Omega) - n_g(\omega_0)]\Omega}{c} \quad (3)$$

összefüggésre jutunk, ahol n és n_g a fázis, illetve a csoport-törésmutató, ω_0 a pumpáló impulzus központi frekvenciája, c pedig a fénysebesség. A fázisillesztés feltétele megfogalmazható a létrehozott THz-es sugárzás $v(\Omega)$ fázissebességével, valamint az optikai pumpáló impulzus csoportsebességével is a következőképpen [51]:

$$v(\Omega) = v_g(\omega_0). \quad (4)$$

Amennyiben ez a feltétel teljesül, illetve elhanyagolható a közeg diszperziója a THz-es tartományban, akkor egy olyan THz-es impulzus jön létre, mely elektromos térének időbeli alakját a pumpáló impulzus intenzitásburkolójának időbeli deriváltja határozza meg [52]. A leggyakrabban előforduló Gauss-alakú pumpáló impulzusokkal egyciklusú THz-es impulzusok, míg intenzitásmodulált [53] vagy impulzussorozatú pumpálás [54,55] esetén néhány, vagy többciklusú THz-es impulzusok is kelthetőek.

Tökéletes fázisillesztést feltételezve az OE hatásfoka síkhullámok esetén, elhanyagolva a pumpa abszorpcióját és (kimerülését) gyengülését, viszont figyelembe véve a THz abszorpcióját, a következőképpen írható le [56]:

$$\eta_{THz} = \frac{2\Omega^2 d_{eff}^2 L^2 I}{\varepsilon n_{NIR}^2 n_{THz} c^3} \exp[-\alpha_{THz} L / 2] \frac{\sinh^2[\alpha_{THz} L / 4]}{[\alpha_{THz} L / 4]^2}, \quad (5)$$

ahol d_{eff} az effektív nemlineáris együttható, L a nemlineáris anyag vastagsága, I a pumpa intenzitása, α_{THz} az anyag abszorpciók együtthatója a THz-es frekvencián, n_{NIR} és n_{THz} az optikai, illetve a THz-es frekvencián az anyag törésmutatója. Az 5. egyenlet segítségével

bevezethetünk egy jósági tényezőt (JT) a különböző nemlineáris kristályok összehasonlítására a következőképpen [57]:

$$JT = \frac{4 d_{eff}^2}{n_{NIR}^2 n_{THz} \alpha_{THz}}. \quad (6)$$

Az 1. táblázat tartalmazza a leggyakrabban OE-ra használt kristályok főbb paramétereit. Ezek közül legelterjedtebben használt anyag a ZnTe, mely a Ti:s lézer hullámhosszán (800 nm) kollineáris elrendezésben fázisillesztett THz keltésre alkalmas. Hátránya, hogy nagy kétfotonos abszorpcióval rendelkezik ezen a hullámhosszon, ami szabad töltéshordozók keltéséhez vezet. A keltett szabad töltéshordozók jelentősen megnövelik a THz-es abszorpciót, mely korlátozza az alkalmazható pumpáló intenzitást és alacsony keltési hatásokhoz vezet.

1. táblázat A leggyakoribb THz keltésre használt anyagok összehasonlítása [57]

Anyag	$d_{eff} \left(\frac{pm}{V} \right)$	n_{800nm}^g	n_{THz}	n_{1550nm}^g	$\alpha_{THz} (cm^{-1})$	$JT \left(\frac{pm^2 cm^2}{V^2} \right)$
CdTe	81,8		3,24	2,81	4,8	11,0
GaAs	65,6	4,18	3,59	3,56	0,5	4,21
GaP	24,8	3,67	3,34	3,16	0,2	0,72
ZnTe	68,5	3,13	3,17	2,81	1,3	7,27
GaSe	20,8	3,13	3,27	2,82	0,5	1,18
sLN	168	2,25	4,96	2,18	17	18,2
sLN, 100K					4,8	48,6
DAST	615	3,39	2,58	2,25	50	41,5

GaP esetén is megvalósul a sebességillesztés kollineáris elrendezésben, ha 1 μm -es a pumpa hullámhossza, mely az itterbium (Yb) szilárdtest lézerekre jellemző. Ilyen hullámhosszú lézerefény esetén nem lép fel kétfotonos abszorpció, csak háromfotonos. Emiatt nagyobb pumpáló intenzitás alkalmazható, és nagyobb THz keltési hatások érhetőek el, mint ZnTe kristállyal [58].

Szerves kristályok, mint pl. DAST, OH1 vagy DSTMS esetén is teljesülhet a kollineáris fázisillesztés, ehhez viszont nem megszokott lézerekkel elérhető, hanem csak optikai parametrikus erősítővel elérhető hullámhosszokra (1,35-1,5 μm) van szükség. A szerves kristályok roncsolási küszöbe jellemzően alacsony, így ezek csak kis pumpáló intenzitás mellett használhatóak [5,6,8].

A felsorolt anyagok közül a LN rendelkezik a második legnagyobb effektív nemlineáris együtthatóval. Szobahőmérsékleten jelentős a THz-es abszorpciója [59], azonban ez kriogenikus hőmérsékletre való hűtéssel jelentősen csökkenthető [60,61]. Ahogy az 1. táblázatból is kivehető a hűtött sztöchiometrikus LN (sLN) kristály rendelkezik a legnagyobb jósági tényezővel. Hátránya, hogy a THz-es fázis-, és az optikai tartományon vett csoport-törésmutatói nagyban eltérnek egymástól, így kollineáris fázisillesztés nem tud

létrejönni. Az elmúlt két évtizedben mégis ez az anyag lett a legelterjedtebben használt a nagyintenzitású THz-es forrásokban, köszönhetően a döntött impulzusfrontú gerjesztési (DIFG) sémának. Ez olyannyira igaz, hogy az optikai rácstól, leképző elemet és LN prizmat tartalmazó elrendezést mára már konvencionális forrásnak szokás hívni.

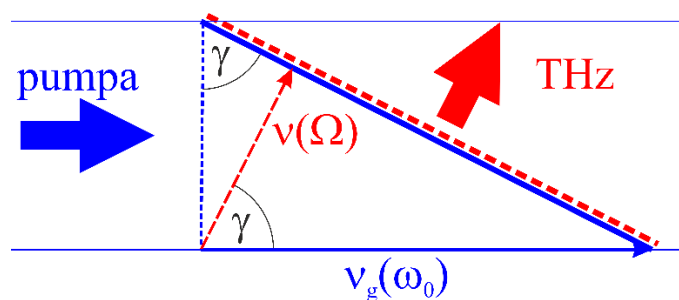
2.2. Döntött impulzusfrontú gerjesztés, impulzusfront dőlés

A DIFG-t THz keltésre 2002-ben Hebling és társai javasolták [62]. Ennek a technikának köszönhetően az elmúlt két évtizedben több nagyságrenddel megnövekedett a kelthető THz-es impulzusenergia. Ezen technikát alkalmazó elrendezések váltak a leggyakoribb alacsony frekvenciás, nagyenergiájú THz-es impulzusok forrásává.

A DIFG sematikus rajza a 4. ábrán látható [63]. A pumpa döntött intenzitásfronttal halad a nemlineáris közegben. Az impulzusfront dőlés (IFD) mértéke a fázisfronthoz képest γ . A THz-es sugárzást az indukált nemlineáris polarizáció kelti a döntött impulzusfront (DIF) mentén. A Huygens elv következtében a keltett THz-es sugárzás az impulzus frontra merőlegesen fog terjedni. A THz keltés akkor lesz hatékony, ha a döntött impulzus front, ami $v_g(\omega_0)$ sebességgel terjed, szinkronban marad a $v(\Omega)$ sebességgel terjedő THz-es térrel. Ahogy az a 4. ábrán látható ez akkor áll fenn, ha igaz a következő egyenlet:

$$v(\Omega) = v_g(\omega_0) \cos(\gamma). \quad (7)$$

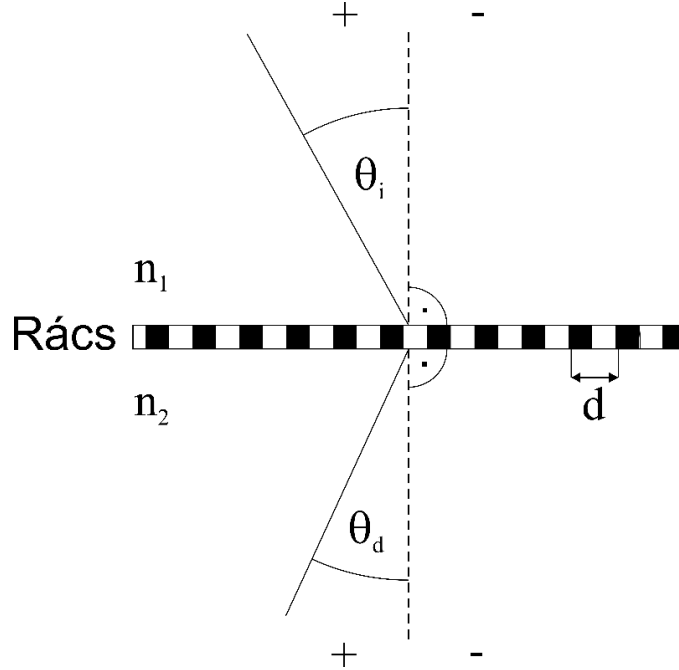
Ebből látható, hogy csak olyan anyagok alkalmasak DIFG-en alapuló THz keltésre melyeknél a THz-es tartományon vett törésmutató nagyobb, mint az optikai. Szintén a 7. egyenlet feltételéhez juthatunk, ha a 2. egyenletet nem-kollineáris fázisillesztés esetére írjuk fel [57].



4. ábra A DIF-ű sebességillesztés sematikus rajza. A vastag kék folytonos vonal a pumpa impulzusfrontját, míg a piros szaggatott vonal a THz fázisfrontot jelöli. A vékony nyilak ezen frontok sebességét és terjedési irányát jelzik.

Az IFD szögdiszperzió [64], vagy térbeli és időbeli csörpön [65] keresztül lehet létrehozni. THz-es források pumpálására eddig csak az előbbit használták. Szögdiszperziót tipikusan prizmak vagy rácok segítségével hoznak létre. LN-ban történő THz keltéshez tipikusan $\sim 63^\circ$ -os IFD-t kell létrehozni az anyagban belül, mely a levegőben még nagyobb $\sim 77^\circ$. Hatékonyan ezt a mértékű IFD-t csak rácok segítségével lehet létrehozni. A γ_r rác

által létrehozott IFD és a szögdiszperzió kapcsolatát a 8. egyenlet írja le, a 9. egyenlet pedig a rácsegyenlet. Az 5. ábrán látható a konvenció, miszerint a szögeket melyik irányba értelmezzük pozitívnak. Ha a d rácспериódus közelít a végtelenhez (nincs rácsstruktúra), akkor a rácsegyenlet visszaadja a Snellius-Descartes törési törvényt.



5. ábra A rácsegyenletnél alkalmazott konvenció a szögek értelmezésére.

$$\tan(\gamma_r) = \frac{n_2}{n_{g_2}} \lambda \frac{d\theta_d}{d\lambda} \quad (8)$$

$$n_1 \sin(\theta_i) + n_2 \sin(\theta_d) = \frac{\lambda}{d} \quad (9)$$

Ezekben n_1 a rács előtti anyag törésmutatója n_2 és n_{g_2} a rács utáni anyag fázis és csoport-törésmutatója, θ_i a rácsra való beesési szög, θ_d a rácsról diffraktált szög és λ a rácsra beeső nyaláb hullámhossza. A rács egyenletének hullámhossz szerinti deriváltjából a rács által létrehozott szögdiszperzió kifejezhető. Ezt 8. egyenletbe helyettesítve, valamint felhasználva, hogy $n_g = n - \lambda \frac{dn}{d\lambda}$ a rács által létrehozott IFD a következőképpen fejezhető ki:

$$\tan(\gamma_r) = \frac{n_{g_1} \sin(\theta_i) + n_{g_2} \sin(\theta_d)}{n_{g_2} \cos(\theta_d)}, \quad (10)$$

ahol n_{g_1} a rács előtti anyag csoport-törésmutatója. 10. egyenletből látszik, hogy a rács beesési és diffrakciós szögének változtatásával az IFD mértéke változtatható. Tipikusan a rácsokat levegőben helyezik el így $n_{g_1} = n_{g_2} = 1$ közelítés használható. A törésmutató értékeket általában kontaktrácsoot alkalmazó esetek tárgyalásánál kell figyelembe venni.

A NOA-ra történő merőleges beesés esetén, a rács és a NOA között N nagyítású leképezést alkalmazva a $\frac{d\theta_{d,NOA}}{d\lambda}$ NOA-beli szögdiszperzió a következőképpen számolható [66]:

$$\frac{d\theta_{d,NOA}}{d\lambda} = \frac{d\theta_d}{d\lambda} \frac{1}{Nn_{NOA}}, \quad (11)$$

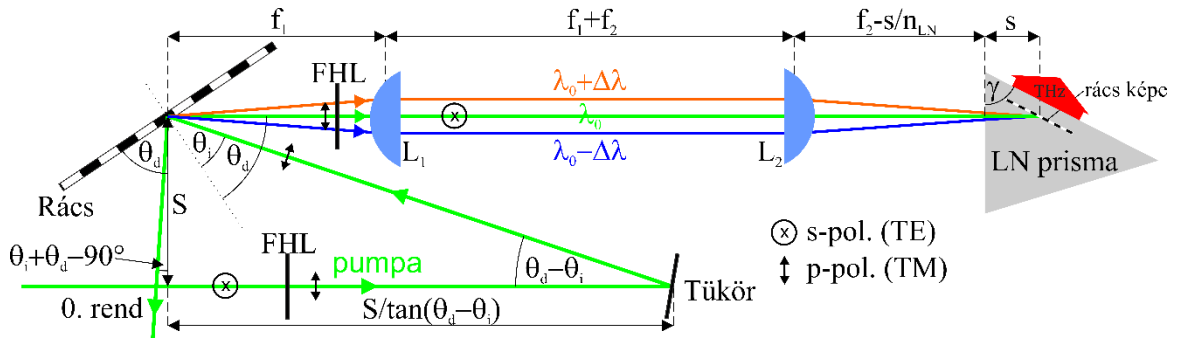
ahol n_{NOA} a NOA törésmutatója. A 8. és 11. egyenlet felhasználásával a rács által létrehozott és NOA-ban lévő IFD-i szögek között a következő kapcsolat állapítható meg:

$$\tan(\gamma_r) = \tan(\gamma)n_{g,NOA}N, \quad (12)$$

ahol $n_{g,NOA}$ a NOA csoporttörésmutatója.

2.3.A konvencionális döntött impulzusfrontú elrendezés és korlátozó tényezők

LN-ban történő OE-on alapuló, DIFG sémával rendelkező, THz-es impulzusok előállítására szolgáló konvencionális elrendezés sematikus rajza a 6. ábrán látható. A pumpa egy becsatoló tükörrre érkezik, mellyel a rácsra való beesés szöge általában változtatható. Ezzel és a rács dőlésének együttes változtatásával az IFD mértéke hangolható. A rács szögdiszperzióin keresztül létrehozza az IFD-t [64], majd egy lencse vagy teleszkóp leképezi a rács felszínét a LN kristályba. Erre azért van szükség, mert a szögdiszperzió következtében az impulzushossz megnő és az intenzitás lecsökken, így a hatékony keltés érdekében a rövid impulzushosszt a kristályon belül újra elő kell állítani. A nagyítás, valamint a refrakció miatt az IFD mértéke megváltozik, amit úgy kell beállítani, hogy a sebességillesztés feltétele a kristályban teljesüljön. A kristály prizma alakú, így a pumpa és a keltett THz is merőleges tud be, illetve kilépni a kristályból. Ez csökkenti a reflexiók veszteségeit, valamint a(z általában széles spektrumú) THz-es impulzusnál nem alakul ki szögdiszperzió. Reflexiók hatásfoka általában akkor maximális, ha a rájuk eső fény polarizációja merőleges a rács vonalaira (TM vagy p-polarizáció). A hatékony THz keltés érdekében a LN z tengelyét kell megvilágítani (kihasználva a nagy d_{33} együtthatót), mely s-polarizációs irányt követel meg (merőleges a 6. ábra síkjára). A 6. ábrán ezért két helyen is félhullám lemez (FHL) került feltüntetésre, melyek közül az első elhagyható, ha a beeső pumpa polarizációja megfelelő. Transzmissziós rácsok használatakor nem szükséges FHL használata a rács és a kristály között, hiszen a transzmissziós rácsok hatásfoka akkor maximális, ha a beeső fény polarizációja a rácsvonalakkal párhuzamos (TE vagy s-polarizációs).



6. ábra A konvencionális teleszkópos elrendezés sematikus rajza [66]. FHL: félhullám lemez, L_1 és L_2 : lencsék f_1 és f_2 fókusz távolsággal, s : A rács képének mélysége LN-ban.

A hatékony THz keltés további feltétele, hogy a rács képe párhuzamos legyen a LN prizma azon oldalával, ahol kilép a keltett THz-es impulzus. Ezt másképpen megfogalmazva úgy is lehet mondani, hogy a rács képe legyen párhuzamos a DIF-tal, vagy a Fourier limitált (FL) impulzushossz a DIF-t mentén álljon elő. Erre azért van szükség, hogy a rövid impulzushossz a kilépő oldaltól ugyanakkora távolságra jöjjön létre, így a nyalábkeresztmetszett mentén az effektív keltési hosszok minél jobban megegyezzenek. A rács képének helyét a 6. ábrán feltüntetett s paraméter változtatásával lehet hangolni. Az effektív keltési hossz többek között függ a FL impulzushossztól, a leképző elemek fókusz távolságától, az IFD (szögdiszperzió) mértékétől és a LN THz-es abszorpciójától is.

2007-ben $10 \mu\text{J}$ [67], 2014-ben $400 \mu\text{J}$ [2], 2021-ben pedig már $1,4 \text{ mJ}$ [23] THz-es impulzusenergiát demonstráltak hasonló elrendezések segítségével. Az energianövekedés a pumpáló energia (és a pumpált LN felület) növekedésének, a LN kriogenikus hőmérsékletre való hűtésének, optimálisabb pumpa impulzushossz és hullámhossz megválasztásának és a THz-es kilépő oldalon antireflexiós (AR) réteg alkalmazásának köszönhető. A további THz-es impulzusenergia, illetve keltési hatások növelésnek azonban erős korlátozó tényezői vannak.

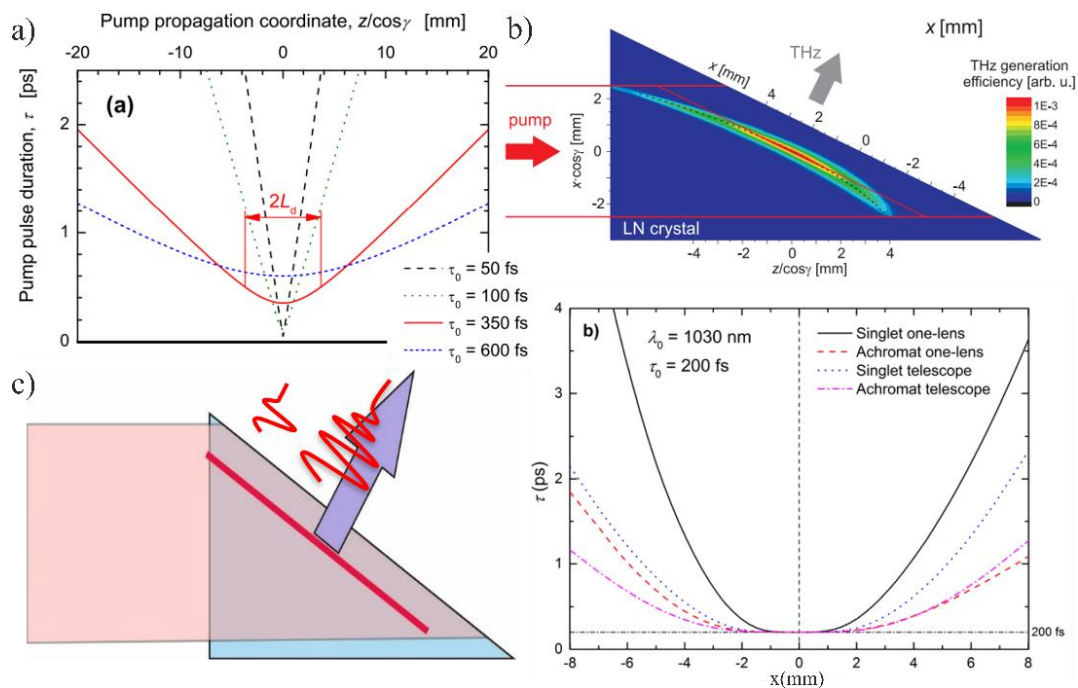
Ezek a korlátozó tényezők a következők: (i) korlátozott kölcsönhatási hossz [68], (ii) leképzési hibák és impulzushossz növekedés a széles pumpa nyaláb szélein [66,68], (iii) prizma alakú LN kristály nagy ékszöggel [69].

(i) korlátozó tényező a szögdiszperzió miatt lép fel. A pumpa NOA-ban való terjedése során, a kezdeti FL impulzushossztól függően változik az impulzushossz változásának gyorsasága (7. (a) ábra). Hosszabb kezdeti FL impulzushossz esetén hosszabb az effektív kölcsönhatási hossz, de a limitált a maximálisan kelthető THz-es frekvencia (1. egyenlet). A két folyamat ellentétes hatással van a keltési hatásokra, így létezik egy optimális FL impulzushossz, mely [68] hivatkozás szerint $\sim 500 \text{ fs}$. Itt megjegyezném, hogy ha figyelembe vesszük a pumpa spektrális kiszélesedését THz keltés közben, illetve nagy pumpa intenzitást

használunk és figyelembe vesszük az önfázis modulációt, akkor az effektív keltési hossz lerövidül és az optimális pumpa impulzushossz rövidebb lehet.

A 7. (b) (felső) ábra bemutatja, hogy a leképzés következtében az impulzusfront meggömbül. Ez a hatás limitálja a maximálisan használható pumpa nyaláb szélességet, hiszen a nyaláb szélein a keltési hatások lecsökken. Ez a csökkenés a sebesség illesztetlenség és az impulzushossz növekedéssel (7. (b) ábra) járó intenzitás csökkenés miatt következik be.

A 7. (c) ábra mutatja, hogy a nagy ékszög miatt a THz-es impulzus időbeli alakja (hullámformája) különböző lesz a THz-es nyaláb mentén. Ennek oka az, hogy a pumpa és THz-es nyaláb más utat tesz meg a prizma mentén, eredménye pedig a gyenge minőségű, aszimmetrikus THz-es nyaláb.



7. ábra a) pumpa impulzushosszának (bal oldali tengely) növekedése a LN kristályban való terjedés során (felső tengely) különböző FL impulzushosszak esetén. b) leképzési hibák felső: gömbült impulzusfront. alsó: impulzushossz az x tengely mentén különböző leképzési elrendezések esetén. c) Pirzma alak miatt különböző THz-es hullámformák az x tengely mentén. (Singlet one-lens: egyszerű egylencsés, Achromat one-lens: összetett (akromát) egylencsés, Singlet telescope: egyszerű teleszkópos, Achromat telescope: összetett (akromát) teleszkópos) [68-70]

Mindhárom felsorolt tényező korlátozza az elrendezés méretét, és így a felhasználható pumpa- és előállítható THz-es impulzusenergiát. (ii) és (iii) pedig korlátozza a THz-es nyaláb minőségét és fókuszálhatóságát, így az elektromos térerősség csúcserősségét, mely néhány alkalmazás szempontjából (pl. részecskegyorsítás) igen fontos.

2.4. Újgenerációs THz források

A fejlődő THz-es alkalmazásoknak köszönhetően az elmúlt években nagy igény mutatkozott a skalázható, hatékony és jó nyalábminőséget biztosító források iránt. Számos új forrást javasoltak az elmúlt években, ezek közül néhányat, a saját munkám közvetlen előzményeit a 2.4.1 és 2.4.2 fejezetekben részletesen bemutatom. Itt néhány szóban pár további fontosabb forrást mutatok be.

Köszönhetően a hosszabb hullámhosszú pumpálásnak [4], - így elkerülve a két és háromfotonos abszorpciót - és a kontaktrácsos technológia kivitelezhetőségének [71,72], a félvezető források jelentős fejlődésen mentek keresztül. Ilyen források segítségével akár az 1%-os keltési hatások is megközelíthető [3], vagy visszafogottabb hatások mellett egyszerű kollineáris geometriában is megvalósítható a THz keltés [73]. További fejlődést jelenthet ha a szükséges IFD-t térfogati holografikus rácsok (THR) segítségével állítjuk elő [74] vagy ha még hosszabb hullámhosszú pumpa impulzusokat használunk, így növelve a többfotonos abszorpció rendjét. Megfelelően flexibilis pumpálás esetén [75] a félvezető alapú források változtatható ciklusszámú és központi frekvenciájú többciklusú THz-es impulzusokat is előállíthatnak [76].

LN esetében is felmerült, hogy a szükséges IFD-t kontaktrács segítségével hozzák létre [77]. Sajnos ebben az esetben normális beesés esetén a ± 1 (vagy $\pm m$, ahol m egész szám) rendekbe, melyek teljesítik a sebességillesztés feltételét, a diffrakció hatások igen alacsony. Littrow elrendezésben, amikor $n_1 \sin(\theta_i) = n_2 \sin(\theta_d)$ megfelelő törésmutató illesztő folyadékot (TIF) választva a -1 rendbe nagy lehet a diffrakció hatások [78], viszont a jelenlegi technológiai korlátok nem teszik lehetővé a kellő rácssűrűség (~2800 vonal/mm) létrehozását a LN kristály felszínén. A rácssűrűség csökkenthető az impulzusfront elődöntésének segítségével és a kontaktrács létrehozása LN felszínén megvalósíthatóvá válik. Ebben az esetben csökkenthető a LN kristály ékszöge és mérsékelhetőek a leképezési hibák is [70], melyek miatt ~2x nagyobb pumpáló foltméret és energia is alkalmazhatóvá válik. Ez a hibrid megközelítés leképezés nélkül, sőt a LN kristály felszínének megmunkálása nélkül is működhet, megfelelő THR – optikai (vagy THR) rács pár alkalmazása esetén [79].

A későbbiekben olyan LN alapú forrásokat mutatok be, ahol a LN felszínén lépcsős rácsstruktúra (echelon) került kialakításra. Ezek előzménye egy olyan elrendezés, ahol az optikai rács helyett egy reflexiós echelon tükröt alkalmaztak, majd azt képezték le a LN kristályba [80]. A leképezésre az impulzusfront szegmensek divergenciájának kompenzálása és az IFD szögének a nagyításon keresztüli növelése miatt volt szükség. Ez az elrendezés

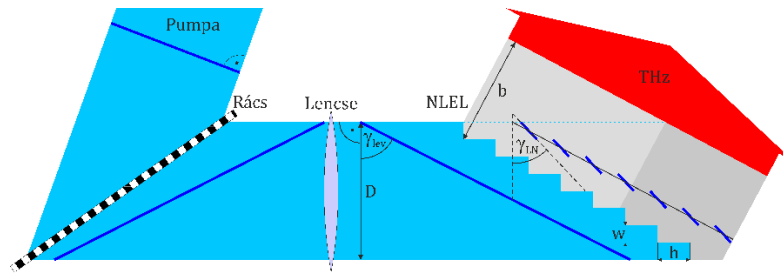
megoldást jelent az (i) korlátozó tényezőre, hiszen az echelon struktúra által létrehozott szögdiszperzió jelentősen kisebb az optikai rácséhoz képest. Ez kifejezetten előnyös rövid impulzushosszú pumpálás esetén. A közelmúltban hasonló elrendezés segítségével 1,3%-os rekord keltési hatásfokot sikerült elérni [81].

2.4.1. Transzmissziós lépcsős rácsstruktúrát alkalmazó források

2017-ben Pálfalvi és társai egy olyan elrendezésre tettek javaslatot [82], mely ötvözi a szegmentált impulzusfrontú pumpálást [80] a hibrid, elődöntést alkalmazó elrendezéssel [70]. Ahogy az a 8. ábrán látszik egy rács létrehozza az IFD-t levegőben, majd egy lencse leképezi a rács felszínét a kristályba és módosítja az IFD mértékét is, úgy, hogy az a kristály előtt a levegőben a sebességillesztés feltételének megfelelő legyen. Lencse alkalmazása azért szükséges, hogy a (közel) Littrow elrendezésben használt rács és a nemlineáris echelon lap (NLEL) által bezárt szögből fakadó úthossz- és ebből adódó impulzushossz különbség a nyaláb szélein ne rontsa le a keltési hatásfokot. A konvencionális elrendezéshez képest kisebb IFD (és szögdiszperzió) is elégséges, ezáltal mérséklődik (i) és (ii) korlátozó tényező is.

Az elrendezésben sík-párhuzamos LN lap használható, mely megoldja a (iii) korlátozó tényezőt. Ennek felszínén kialakításra kerülő echelon struktúra a folytonos impulzusfrontot szegmentálja. Míg a kristályba lépve az átlagos IFD nem változik, addig az egyes impulzusfront szegmensek dőlése a $\tan(\gamma_{LN}) = \tan(\gamma_{lev}) / n_{g, LN}$ egyenlet szerint csökken, ahol γ_{lev} és γ_{LN} az átlagos és szegmentált IFD szög levegőben és LN-ban, $n_{g, LN}$ pedig a LN csoporttörésmutatója a pumpa hullámhosszán. Az, hogy a szegmensek dőlése kisebb az átlagosénál rontja a THz keltési hatásfokot és a maximálisan kelthető THz-es frekvenciát, hiszen a szegmensek mentén nem, csak az egyes szegmensek azonos részei között teljesül a fázisillesztés.

A lépcsős rácsstruktúra szélessége w -vel és magassága h -val van jelölve a 8. ábrán. Előbbi a szegmensek méretéért, utóbbi a szegmensek által keltett THz időbeli szinkronizálásáért felelős, mérete a 100 μm -es tartományra esik.

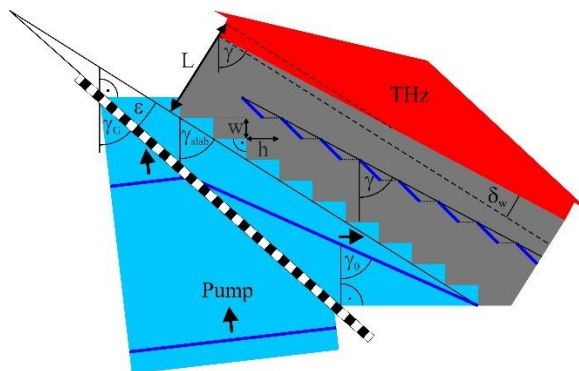


8. ábra Elődöntést és leképezést alkalmazó transzmissziós lépcsős rácsstruktúrát tartalmazó elrendezés.

2019-ben ez az elrendezés demonstrálva lett [83]. $1 \mu\text{J}$ impulzusenergiát közel egyciklusú hullámformával sikerült előállítani. A keltési hatások elmaradt a konvencionális elrendezésétől, mindössze 0,05% volt. Precízebben megmunkált lépcsős rácsstruktúrától, a LN lap vastagságának és szélességének jobban megválasztott arányától, megfelelőbb vonalsűrűségű rács alkalmazásától és kriogenikus hőmérsékletre való hűtéstől legalább egy nagyságrendű keltési hatásoknövekedés várható. Ilyen elrendezésben a pumpa hasznos átmérője (melynél a keltési hatások nem csökken jelentősen) $\sim 1 \text{ cm}$.

Ugyancsak 2019-ben Tóth és társai egy hasonló elrendezést javasoltak, ahol kis ékszögű ($>10^\circ$) LN kristály használata esetén a leképezés elhagyható [69], tehát (ii) korlátozó tényező teljesen megszüntethető. Ennek az elrendezésnek a sematikus rajza a 9. ábrán látható. A transzmissziós rácstről vízszintes a diffrakció, melyre merőleges a fázisfront. Minden szög ettől a függőleges vonaltól értendő.

Az elrendezés a következőképpen működik: A rács, mely γ_g szögben van megdöntve, létrehozza az IFD-t. Jelen esetben a γ_g elődöntés mértéke meghaladja a sebességillesztés által megkívántat, mely optimális esetben $\sim 68^\circ$. Ez továbbra is alacsonyabb, mint konvencionális elrendezés esetén, tehát (i) korlátozó tényező hatása csökken. A rács és az ékes NLEL közötti szög ε , γ_{stab} pedig a NLEL dőlési szögét jelöli. Ez utóbbi úgy van megválasztva, hogy a kristályban a γ átlagos IFD-i szög megfeleljen a sebességillesztés feltételének. Az impulzus merőlegesen esik a mikromegmunkált lépcsős rácsstruktúrára és szegmentáltá válik. Ahhoz, hogy a(z átlagos impulzusfrontra merőlegesen) keltett THz-es sugárzás merőlegesen lépjen ki a kristályból kis ékszög alkalmazása szükséges, mely az optimálisnak ítélt elrendezés esetén $\sim 8-9^\circ$. Ez az ékszög az elődöntés mértékétől függ és a konvencionális esethez képest jelentősen kisebb, tehát (iii) korlátozó tényező is nagymértékben csökken. Ez az elrendezés kifejezetten optimális rövid impulzusú pumpálás esetén és az effektív pumpa szélessége akár $\sim 2,5 \text{ cm}$ is lehet.



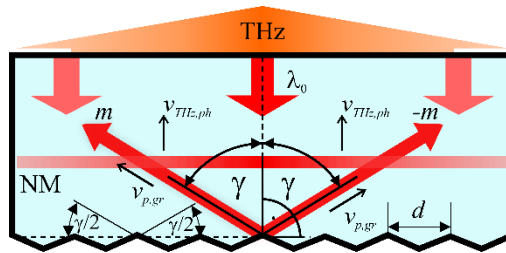
9. ábra Kis ékszöggel rendelkező transzmissziós lépcsős rácstruktúrát alkalmazó leképezésmentes elrendezés. [69]

Nemrégiben ez az elrendezés is demonstrálásra került hasonló határfokkal, mint a leképezést tartalmazó sík-párhuzamos NLEL [84]. A kis ékszög miatt mérhetővé vált a keltési határfok a LN vastagságának függvényében. A mérési adatok azt jelzik, hogy a LN kristály optimális vastagsága THz keltésre 1030 nm-es pumpáló hullámhossz és 400 fs-os impulzushossz esetén 2 mm. Hűtött LN kristály esetén, jól megmunkált lépcsős rácstruktúrával az ilyen elrendezés várható határfoka akár ~0,7% is lehet 35 mm széles kis ékszögű NLEL esetén.

2.4.2. Reflexiós rácstruktúrát alkalmazó forrás

2019-ben Tóth és társai egy másik elrendezést is javasoltak, melynél a rácstruktúra (mely a működési rend, avagy a struktúra méretétől függően hagyományos rácsnak vagy lépcsős rácsnak is tekinthető) a LN hátoldalán került kialakításra [85]. A reflexiós nemlineáris lap (RNLL) elrendezésnek a sematikus rajza a 10. ábrán látható. Ilyen struktúrát pl: gyémánt marás segítségével lehet készíteni [86].

Működési elve igen egyszerű. A pumpa merőlegesen fentről esik a kristályra. Miközben a hátoldal felé terjed a sebességillesztés hiánya miatt nem kelt THz-es sugárzást. A hátoldalon kialakított mikrostruktúráról γ szögben $\pm m$ rendbe diffraktálódik. A diffrakció akkor lesz maximális, ha a struktúra dőlésszöge $\gamma/2$, azaz blézelt. A használt m rend növekedésével a diffrakciós határfok és természetesen a struktúra mérete d is növekszik. Az $m > 20$ esetén a diffrakciós határfok eléri a ~80%-ot. A $\pm m$ diffrakciós rendek interferálnak egymással, mely csökkenti az optimális pumpa intenzitást és a keltési határfokot, de ez közel sem annyira jelentős, mint félvezetők esetén, hiszen LN tiltott sávja jóval nagyobb. A diffraktált pumpa IFD-e megegyezik a diffrakció szögével. A DIF-ra merőleges THz keletkezik, mely a kristályból merőlegesen lép ki.



10. ábra Hátoldali reflexiós rácsstruktúrát tartalmazó elrendezés. (NM: nemlineáris anyag (nonlinear material)) [85].

Bár ebben az elrendezésben (i) nem csökken (megfelelően rövid impulzushossz – magas rend használata esetén ez is) (ii) és (iii) korlátozó tényezők nem játszanak szerepet, hiszen az elrendezés nem tartalmaz leképző optikát, valamint sík-párhuzamos kristály használható. Emiatt a pumpáló energia és a kristály méretének növelésével a THz-es energia korlátozó tényező nélkül skálázható. Ilyen elrendezéstől megfelelően megmunkált hátoldali rácsstruktúra esetén 2 mm kristályhossz esetén is 1% feletti keltési hatások várható.

Egyelőre a megmunkálási nehézségek miatt még nem sikerült nagy hatásfokot demonstrálni olyan elrendezéssel, mely a LN felületének mikromegmunkálását igényli, de valószínűleg a technológia fejlődésével ez a probléma megoldódik.

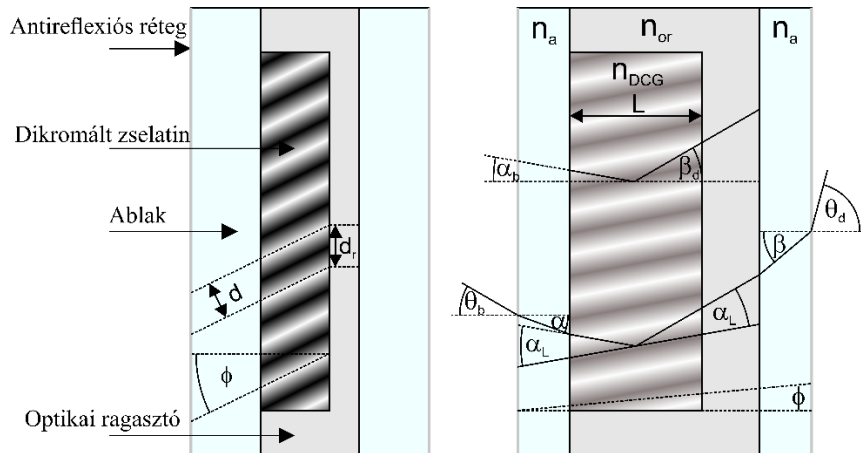
2.5. Térfogati holografikus rács

A THR-ok működési mechanizmusát leíró első modell 1969-ben jelent meg [87], melyet az évek során továbbfejlesztettek és kibővítettek. Erről egy összefoglalót ad a [88] számú hivatkozás.

THR-ok a törésmutató periodikus modulációjának köszönhetően képesek a fényt diffraktálni [89-91]. Ezt a modulációt fényérzékeny anyagokban, például fotopolimerekben [92], fotorefraktív anyagokban [93], vagy dikromált zselatinban (DZS) lehet előállítani intenzitásmodulált megvilágítással. DZS-ban akár $\Delta n = 0,25$ törésmutató változás is elérhető [94]. Ilyen nagy moduláció esetén nagy diffrakciós hatásfokot (amely a vastagság és a Δn szorzatától függ) lehet elérni vékony rácsban. Minél vékonyabb a rács annál szélesebb spektrumon lehet nagy a diffrakciós hatásfok. Magas, körülbelül 2 J/cm^2 lézerindukált roncsolási küszöbvel rendelkeznek (800 fs, 1053 nm) [95], mely jóval nagyobb LN roncsolási küszöbénél ($0,52 \text{ J/cm}^2$) [96,97]. A DZS-t általában két optikai ablak közé zárják (pl. ömlesztett kvarc vagy BK7) a stabilitás, illetve a nedvességtől és a portól való védelem érdekében [98]. A 11. (a) ábrán a THR felépítése látható.

THR alkalmazása esetén a megszokott Littrow szögtől való eltérés esetén is nagy lehet a diffrakciós hatásfok. Ez annak köszönhető, hogy az állandó törésmutatójú síkokat a 11. ábrán látható módon ϕ szöggel megdönthetjük. Ilyenkor a hatásfok akkor maximális, ha

erre a döntött frontra vetített beesési és diffrakciós szögek megegyeznek. Ez a szög a 11. (b) ábrán α_L -ként szerepel. Tehát a módosult Littrow feltétel a következő: $\phi = (\beta_d - \alpha_b)/2$, ahol α_b a DZS-ban a diffrakció előtti, míg β_d a diffrakció utáni szög.

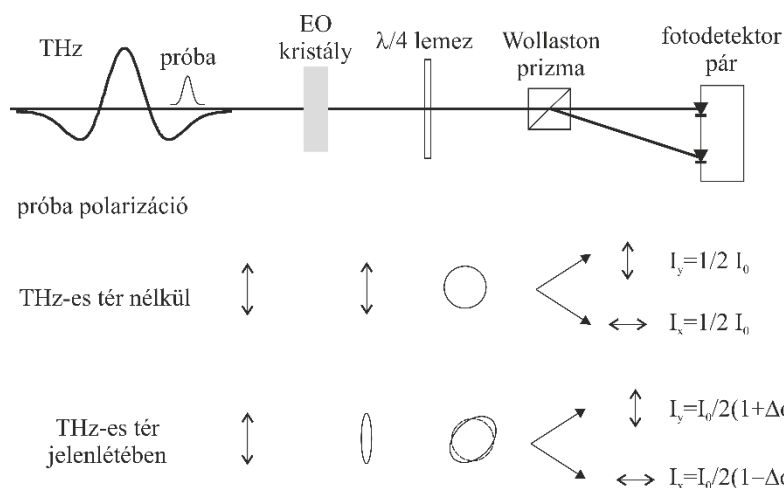


11. ábra Térfogati holografikus rács felépítése (a) és a nyalábutak a módosult Littrow feltétel teljesülése esetén (b).

A nagy diffrakciós hatásfokhoz szükséges ϕ dőlési szög meghatározásához elengedhetetlen az n_{DCG} - DZS átlagos törésmutatójának - ismerete. Ez $\sim 1,54$ a feldolgozatlan DZS esetében [99], $\sim 1,50$ $\Delta n < 0,1$ esetén, és akár $1,25$ is lehet egy erősen feldolgozott ($\Delta n > 0,1$) DZS esetén [90].

2.6. Elektro-optikai mintavételezés

Az elektro-optikai mintavételezés segítségével a Pockels-effektuson keresztül mérhető a THz-es impulzusok elektromos térerőssége. A mérés menete a következő: egy lineárisan polarizált gyenge próbanyalábot és a THz-es sugárzást egy elektro-optikai kristályon keresztülvezetjük. A THz-es térerősség nagyságától függően, a Pockels-effektus miatt a kristály kettőtörővé válik így a próbanyaláb enyhén elliptikusan polarizált lesz. Ezt követően egy $\lambda/4$ -es hullámlemez segítségével közel cirkulárisan polarizálttá alakítható a próba polarizációja, amit egy polarizáció szeparáló optikai elemmel (pl. wollaston prizma, vékonyfilm polarizátor, ...) egymásra merőleges komponensekre bontható. Ennek a két polarizációs iránynak az intenzitáskülönbsége egy detektorpár segítségével mérhető, mely arányos a THz-es tér nagyságával. Egymáshoz képest időben késleltetve a próbát és a THz-es impulzust, az utóbbi időbeli lefutása, hullámformája megállapítható. A 12. ábrán az elektro-optikai mintavételezés sematikus ábrája látható [100].



12. ábra Az elektro optikai mintavételezés sematikus rajza. EO: eletro-optikai

A pontos mérésnek több feltétele is van. 1: A próba impulzus legyen sokkal rövidebb, mint a THz-es, a jó felbontás érdekében. Ez a feltétel általában teljesül, hiszen a pumpanyaláb egy kis részét szokás próbaként felhasználni. Ha a pumpanyaláb impulzushossza mégsem elég rövid, akkor impulzus kompresszió segítségével előállítható rövidebb [101]. 2: Az elektro-optikai kristály koherenciahossza (a THz-es impulzus teljes spektrumán) legyen legalább akkora, mint a kristály vastagsága. Könnyen kezelhető kristályok érdekében általában szendvicslet struktúrák alkalmazhatóak, ahol az aktív réteg eleget tesz az előző feltételnek, a hordozó réteg pedig stabilitást ad. 3: A THz-es és próba impulzus nyalábmérete legyen közel ugyanakkora az elektro-optikai kristályon. Utóbbira azért van szükség, mert általában a széles spektrumú THz-es impulzus erősen fókuszált az elektro-optikai kristályra, így a fókuszban a nyalábkeresztmetszetmentén változhat a THz-es frekvencia relatív intenzitása.

3. Motiváció, célkitűzés

A THz-es alkalmazások (pl. részecskegyorsítás) számára nemcsak a THz-es energia, hanem a nyalábminőség, a fókuszálhatóság is fontos. Munkám során szerettem volna olyan THz-es elrendezést javasolni és esetlegesen demonstrálni, mely mind méretében mind energiájában skálázható és jó minőségű THz-es nyalábot tud előállítani, mindezt relatív nagy hatások mellett. Egy további előny lenne, ha a LN felszíne nem igényelne mikromegmunkálást, hiszen jelenleg a technológia korlátok miatt a megmunkált felszín felületi érdessége nem megfelelő.

4. Eredmények

A 2.3 fejezetben bemutattam a hagyományos DIFG alapuló THz-es elrendezést és korlátozó tényezőit. A 2.4.1 fejezetben bemutattam olyan korábban javasolt transzmissziós elrendezéseket, ahol az említett korlátozó tényezők hatása megszüntethető vagy csökkenthető, de az effektív pumpanyaláb mérete korlátozott. A 4.1 fejezetben bemutatom az általunk javasolt elrendezést. Ez hasonlóképpen transzmissziós üzemmódban működik, viszont a pumpa nyaláb és az egész elrendezés mérete, továbbá a THz-es energia korlátozó tényezők nélkül skálázható. Megfelelően megválasztott törésmutatójú folyadékok használatával a THz keltési hatások is növelhető. Ezen javasolt elrendezésnek az egyetlen hátránya, hogy a LN felszínének mikromegmunkálása szükséges, mely a jelenlegi technikai korlátok miatt költséges, időigényes és egyelőre nem elégséges a megmunkált felszín minősége.

A 4.2 fejezetben bemutatom a 2.4.2 fejezetben bemutatott hátoldali elrendezés tovább gondolt változatát, melynél nem a LN kristály felszíne van megmunkálva, hanem egy a hátoldal közelében elhelyezett fémlapé. Az elrendezés szűk keresztmetszete, hogy nagy törésmutatójú folyadékkal kell kitölteni a LN és a megmunkált fémlap közötti térrészt a hatékony becsatolás érdekében. A 4.2 fejezetben ilyen anyag előállítására és használatára is javaslatot teszek.

4.1. Nemlineáris echelon lap térfogati holografikus ráccsal

4.1.1. Elrendezés

A korábban is bemutatott transzmissziós lépcsős rácsstruktúrát alkalmazó elrendezéseknél korlátozott a pumpanyaláb mérete. THR-ot kombinálva a sík-párhuzamos NLEL-al egy skálázható elrendezést kapunk, mely működését a következőkben mutatom be [102].

Ahogy az a 13. ábrán is látható a pumpa merőlegesen esik a THR-ra. Merőleges beesés esetén, egyszerű geometriai megfontolással (vagy a 10. egyenletből) belátható, hogy a γ IFD és a diffrakció szöge megegyezik és a következő egyszerű egyenlet (mely 9. egyenletből következik) segítségével megállapítható:

$$\sin(\gamma) = \frac{\lambda_0}{n_2 d}, \quad (13)$$

ahol λ_0 a pumpa központi hullámhossza, d a rácsperiódus, n_2 pedig a rács utáni anyag törésmutatója. Ebből az egyenletből az is következik, hogyha a rács után nagyobb törésmutatójú közeg van, akkor ugyanazon γ szög eléréséhez sűrűbb rácsot kell alkalmazni.

Mivel a diffrakció és az IFD szöge megegyezik a THR és NLEL párhuzamos lehet egymással. Ez lehetővé teszi azt is, hogy a teljes elrendezés sík-párhuzamos legyen, szemben a megszokott esetekkel, ahol a Littrow konfigurációban használt rács miatt a nyalábkeresztmetszett mentén változik a csoportkésés diszperzió és így az impulzushossz.

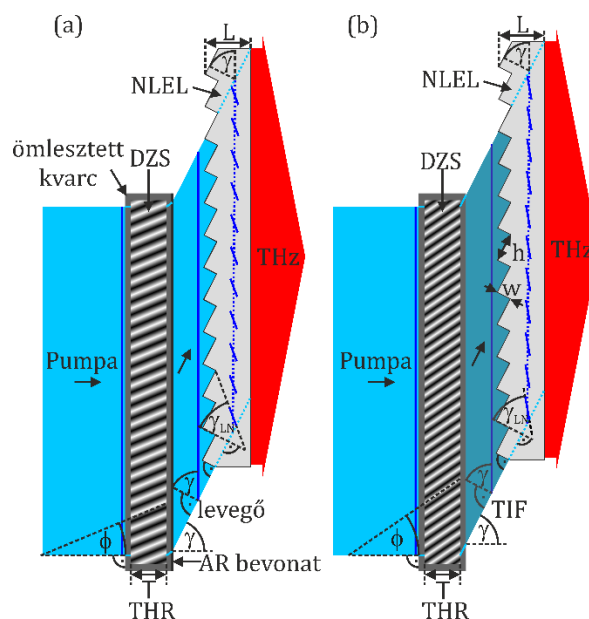
A THR rács állandó törésmutatójú síkja ϕ szöggel van megdöntve, mely előnyösen csak a -1 rendbe biztosít hatékony diffrakciót. A NLEL-en az echelon struktúra úgy van kialakítva, hogy az egyes lépcsőkre a pumpa merőlegesen esik be. A LN kristályba lépve az impulzus szegmentáltá válik, és az egyes szegmensek dőlése megváltozik, a következő egyenlet szerint:

$$\tan(\gamma_{LN}) = \frac{n_{g,2}}{n_{g,LN}} \tan(\gamma), \quad (14)$$

ahol $n_{g,2}$ a rács és NLEL közötti anyag csoporttörésmutatója a pumpa hullámhosszán. A 14. egyenletből látszik, hogy minél nagyobb a THR és NLEL közötti anyag törésmutatója (egészen LN törésmutató értékéig), annál kisebb lesz a szögműködés az impulzusfront szegmensek dőlése és az átlagos IFD között. Minél kisebb ez a különbség annál nagyobb lesz a keltési hatásfok, köszönhetően annak, hogy egyre jobban teljesül a sebességillesztés a szegmensek egészén is, nem csak az egyes szegmensek között. Erről a hatásfok növekedésről bővebben a 4.1.3 fejezetben írok.

Ahogy azt korábban is írtam LN esetében, szobahőmérsékleten a hatékony sebességillesztéshez a szükséges átlagos IFD szög $\sim 63^\circ$. A dőlt impulzusfrontra merőlegesen keltődik a THz-es sugárzás, mely a kristály hátoldalán merőlegesen lép ki. A pumpa erről a hátoldalról teljes reflexiót szenved, majd a lépcsőkön keresztül és további reflexiók után a hátoldalon kicsatolódik a kristályból, vagy elnyelődik. Ahhoz, hogy a pumpa elnyelődése ne okozzon felesleges hőtermelést, a 13. ábra tetején érdemes úgy levágni a kristályt, hogy ott a pumpa hatékonyan kicsatolódjon.

A 13. (a) ábra a legegyszerűbb levegő térközű esetet mutatja, míg a 13. (b) ábrán ömlesztett kvarc TIF-kal kitöltött eset látható. Az előbbi esetben érdemes AR bevonatot rakni a THR hátoldalára a Fresnel veszteség csökkentése érdekében. A TIF-kal kitöltött esetben ez automatikusan teljesül, sőt a LN-ba lépésnél is csökken a reflexió veszteség.



13. ábra NLEL-THR elrendezés sematikus rajza. a) levegő térközű b) törésmutató illesztőfolyadékkal kitöltött elrendezés.

Optimális esetben a legrövidebb impulzushossz a kristályban alakul ki, de a THR-ról való diffrakció után a szögdiszperzió és az amiatt kialakuló csoportsebesség diszperzió miatt jelentősen növekedik az impulzushossz. Ez megfelelő előcsőrp alkalmazásával kompenzálható és a rövid impulzushossz a kristályban előállítható. Ezt általában a csörpölt impulzuserősítő rendszerek impulzuskompresszorával állítható és optimalizálható.

Az IFD mértékének finomhangolására, csak korlátozottan van lehetőség. A THR-ra való beesés szögét állítva az IFD és diffrakció szöge is változik, mely a merőlegetől eltérő beesési szöghöz vezet a lépcsőkön és ez kismértékben növeli a reflexiós veszteségeket, továbbá az impulzusfront szegmensek dőlési szöge is változni fog. A THR és NLEL által bezárt szöget is lehet állítani, ilyenkor az impulzushossz és a keltett THz-es impulzus hullámformája is változni fog a nyalábkeresztmetszet mentén. Térbeli és időbeli csörpöt alkalmazva a THR előtt kis mértékű IFD lehet előidézni. Ilyenkor csak a keltett THz fog kis szögben a kristály hátoldalára érkezni, mely miatt minimálisan nő az ottani reflexiós veszteség, illetve a törés miatt kis mértékű szögdiszperzió kerül a THz-es impulzusba. Ez utóbbi hatás mindegyik állítási lehetőség esetében fennáll.

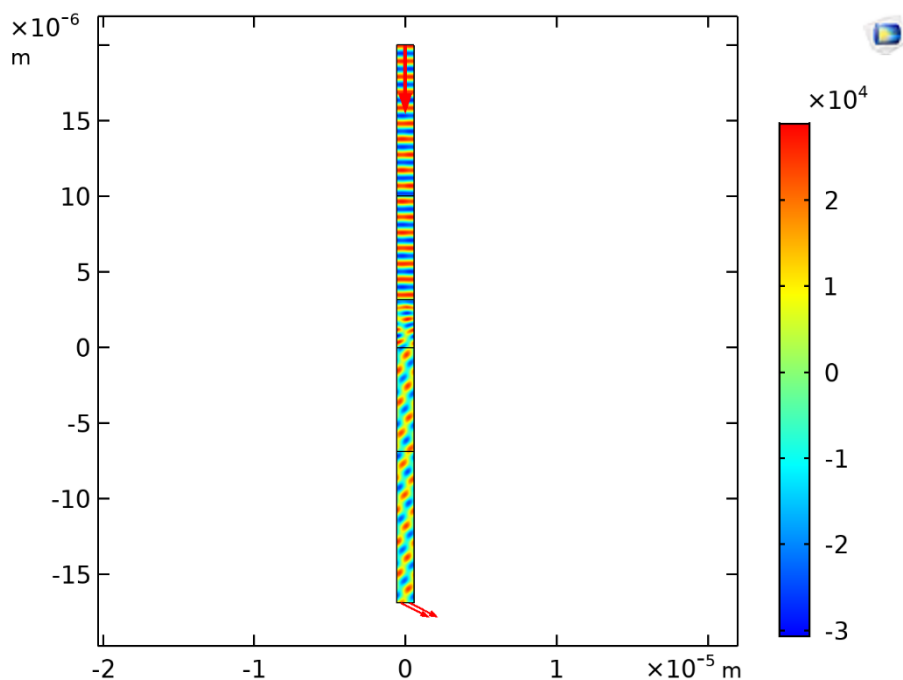
Továbbá megjegyezném, hogy a LN kristály maximális növesztési mérete, valamint a THR maximálisan megmunkálható mérete sem korlátozza az elrendezés méretét, hiszen mind a LN kristályok, mind a THR-ok egymásra rakhatóak [23,103,104]. Sőt, ahogy az a 103-mas hivatkozásban is látható, hogyha a két egymásra pakolt LN kristály optikai tengelye egymással ellentétes irányba néz, akkor az előállított THz-es impulzusokat lefókuszálva

longitudinális polarizáció is előállítható, mely fontos lehet bizonyos részecskegyorsítási sémáknál [105].

4.1.2. Térfogati holografikus rács tervezése

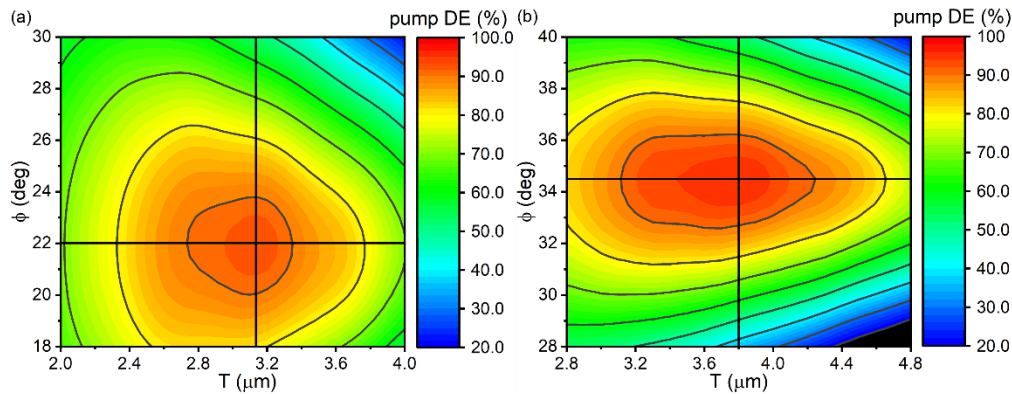
A levegő térközű és TIF-kal kitöltött elrendezésekhez a THR-ok várható diffrakációs hatásfoka numerikus szimuláció segítségével lett meghatározva COMSOL Multiphysics szoftver használatával.

A 14. ábrán a THR COMSOL szimulációja látható. A programban létre lehet hozni a rács egy periódusát, melyet a törésmutató változásával lehet ebben az esetben definiálni. A program a szimuláció során ezt az egy periódust teszi ismétlődővé. A különböző közegeket fekete vízszintes vonal választja el egymástól. Míg a bal oldali és az alsó skála a méreteket jelöli addig a színes skála az elektromágneses térerősséget mutatja. A 14. ábrán a TIF-kal kitöltött eset szimulációja látható, hiszen az alsó két felületnél a terjedés iránya nem változik (látható, hogy az elektromos térerősség értékek, valamint dőlési szögük nem változik az alsó két felület között).



14. ábra THR szimulációja COMSOL Multiphysics programban.

A pumpa diffrakációs hatásfoka a THR diffrakációs hatásfokán kívül tartalmazza a Fresnel veszteségeket is a NLEL belépő felületéig. A pumpa LN kristályba való lépésének veszteségei a 4.1.3 fejezetben tárgyalt THz keltési hatásfokban van figyelembevéve. Mindkét esetben 1030 nm-es pumpa hullámhossz volt feltételezve, valamint a THR ablakának anyaga ömlesztett kvarc volt. A 15. (a) ábra a levegőközű, míg a 15. (b) ábra a TIF-kal kitöltött esetre való számolás eredményét mutatja.



15. ábra Számolt diffrakciós hatásfok (DE) a DZS vastagságának (T) és az állandó törésmutatójú síkok dőlési szögének (ϕ) függvényében a) levegő térközű és b) TIF-kal kitöltött esetekre. A függőleges és vízszintes vonalak a legmagasabb hatásfokok helyét jelölik. (deg: szög, pump DE: pumpa diffrakciós hatásfoka) [102]

THR gyártó által megadott információk szerint, ha az állandó törésmutatójú síkok dőlési szöge nagyobb, mint 35° , akkor a gyártás során ezek a síkok görbülté válhatnak, mely rontja a diffrakciós hatásfokot. A 2.5 fejezetben tárgyaltak szerint a törésmutató modulációjának mértékétől függően a DZS átlagos törésmutatója is változik. A TIF-kal kitöltött elrendezésnél erős ($\Delta n > 0,15$) modulációt és így alacsonyabb átlagos törésmutatót feltételezve az optimális dőlési szög jóval nagyobb lenne 35° -nál. Ezt elkerülendő a TIF-kal kitöltött elrendezés esetében visszafogottabb törésmutató modulációs értéket feltételeztünk ($\Delta n = 0,1$), mely esetében az átlagos törésmutató értéke 1,5 volt. A levegőközű esetben ezzel nem volt probléma, így ott $\Delta n = 0,15$ és $n_{DZS} = 1,35$ modulációs és átlagos törésmutató értékeket használtunk.

Ahogy az a 15. (a) ábrán is látható a levegőközű elrendezés esetében a THR hátoldalán AR réteg került elhelyezésre. Ezt a réteget nem terveztük meg, csak feltételeztük, hogy a veszteség értékét $\sim 17,4\%$ -ról 2% -ra csökkenti. Ebben az esetben a maximális diffrakciós hatásfok $3,15 \mu\text{m}$ DZS vastagság és $22,0^\circ \phi$ dőlési szög esetén érhető el és értéke $92,8\%$.

A TIF-kal kitöltött esetben ez az érték kissé nagyobb ($95,7\%$), köszönhetően a kisebb Fresnel veszteségeknek a THR-ban, illetve, hogy nincs veszteség a THR és TIF között, hiszen azok törésmutatója megegyezik. Ebben az esetben a feltételezett kisebb törésmutató moduláció miatt a hatékony diffrakcióhoz vastagabb DZS szükséges, melynek értéke $3,8 \mu\text{m}$. A hatékony diffrakcióhoz szükséges dőlési szög értéke ebben az esetben az ömlesztett kvarc levegőhöz képesti nagyobb törésmutatója miatt, még a nagyobb átlagos törésmutató értéket is feltételezve, a jól megmunkálható tartomány szélén van és értéke $34,5^\circ$. A 2. táblázatban a két vizsgált elrendezéshez tervezett THR paraméterei láthatóak.

2. táblázat THR optimális paraméterei a két vizsgált elrendezéshez

Elrendezés	vonalsűrűség, $1/d$, (1/mm)	átlagos törésmutató, n_{DCG}	törésmutató moduláció, Δn	DZS vastagság, T (μm)	állandó törésmutatójú síkok dőlési szöge ϕ	diffrakciós hatások (%)
levegőközű	865	1,35	0,15	3,15	22,0°	92,8
ömlesztett kvarc TIF-kal kitöltött	1297,5	1,5	0,1	3,8	34,5°	95,7

Érdekes az elrendezés kriogenikus hőmérsékletekre való hűtését is megvizsgálni, mivel a hűtés által a LN THz-es abszorpciója jelentősen csökken [59,60], így a keltési hatások és a keltett THz sugárzás spektrális szélessége is nő. A levegőközű elrendezés esetében a megvalósítás egyszerű, hiszen megmutatták, hogy a THR diffrakciós hatások több hűtési és felmelegítési ciklus után sem változik [106]. A TIF-kal kitöltött elrendezés esetében a TIF csak $\sim -40\text{ C}^\circ$ hűthető, mely csak kismértékű THz-es abszorpciócsökkenést jelenthet. Megfelelően nagy törésmutatójú és alacsony fagyáspontú folyadék használata esetén a hőmérséklet tovább csökkenthető. Erre alkalmas lehet szén-diszulfid használata, melynek törésmutatója 1,595 [107] és fagyáspontja $\sim -160\text{ C}^\circ$.

4.1.3. THz keltés modellezése

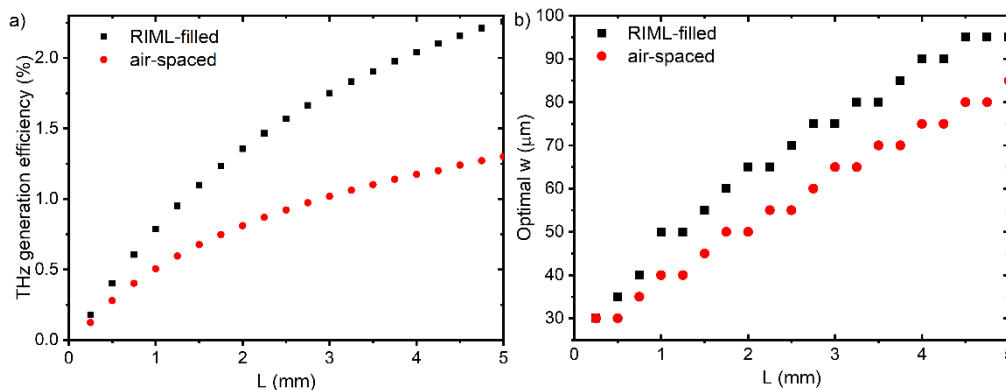
Annak érdekében, hogy a két elrendezés által keltett THz-es impulzusok és így az elrendezések teljesítőképessége összehasonlítható legyen numerikus szimulációkat végeztünk. A szimulációs modell, mely részletesen a [69,82] hivatkozásokban van leírva figyelembe vette a LN kristály abszorpcióját a THz-es tartományon, a pumpa impulzus szög- és anyagi- diszperzió miatti időbeli változását a terjedés mentén, a szegmensek és az átlagos IFD szögműködéséből adódó sebességillesztetlenséget, a szegmensek transzverzális méretének növekedését a terjedés mentén, a pumpa belépő oldali és a THz kilépő oldali Fresnel veszteségét. A modell nem tartalmaz az optikai egyenirányításon kívül nemlineáris optikai folyamatot. Emiatt a számolt hatások értékei csak $\sim 2\%$ tekinthetőek megbízhatónak [108]. A szimulációban a pumpa impulzushossza 200 fs, hullámhossza 1030 nm intenzitása 70 GW/cm^2 volt. Utóbbi kísérletekben akár jóval nagyobb 200 GW/cm^2 is lehet.

A THz keltési hatások a NLEL vastagságának (L) függvényében a 16. (a) ábrán látható. A TIF-kal kitöltött elrendezés esetében a keltési hatások akár $\sim 1,8\text{x}$ nagyobb, mint a levegőközű esetben, köszönhetően a kisebb szögműködésnek az impulzusfront szegmensek dőlése és az átlagos IFD között. Itt külön kiemelném, hogy megfelelően megmunkált NLEL esetében, számolva a pumpa diffrakciós és reflexiós veszteségeivel is, vékony ($< 2\text{ mm}$) NLEL esetében is (ami korábbi mérések szerint optimális [84]) a THz keltés várható

hatásfoka 1% felett van a TIF-kal kitöltött esetben. Sőt, ezt a hátoldalon elhelyezett THz-es AR réteggel (megfelelő számú kapton fólia réteg, optimális vastagságú kvarc lap) tovább lehet növelni. AR réteg alkalmazásával a levegő térközű esetben is elérhető az 1%-nál nagyobb keltési hatásfok.

A 16. (b) ábrán a különböző NLEL vastagságokhoz optimális w lépcső szélesség (13. ábra) látható. A lépcsőfokok magasságát az egyszerű $\tan(\gamma) = h/w$ egyenlet segítségével lehet megadni. Mint az a 16. (b) ábrán látható az optimális lépcsőfokszélesség mérete a NLEL vastagságával növekszik.

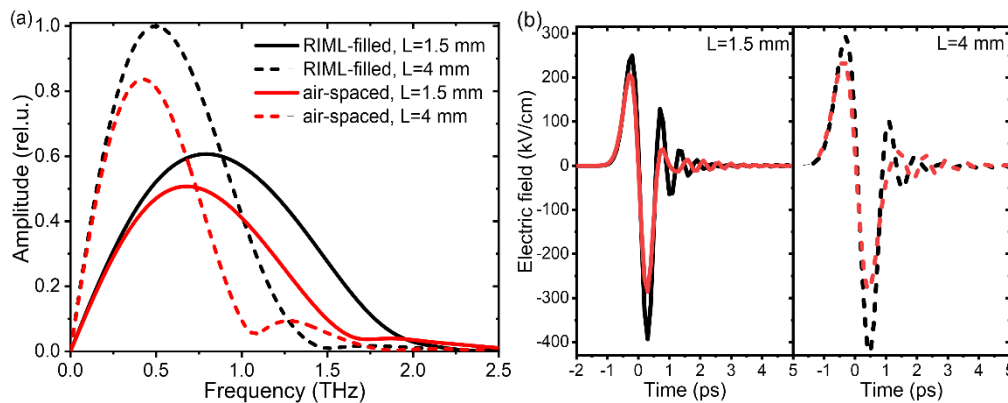
Három fő tényező határozza meg az optimális lépcsőfokok szélességet. A DIF szegmensek diffrakciója és ezek átlagos IFD-től való szögeltérésének hatása, valamint az anyag THz-es abszorpciója. A növekvő lépcsőmérettel az egyes impulzusfront szegmensek mérete (a diffrakció miatt) kevésbé növekszik, így a pumpa intenzitás a terjedés során tovább maradhat magas, ami magas keltési hatásfokot tud biztosítani hosszabb NLEL vastagságok esetén is. Másrészt, a lépcső és így az impulzusfront szegmensek méretének növekedésével az átlagos IFD-től való eltérés hatása is növekszik. Ez korlátozza a keltési hatásfokot különösen a magasabb THz-es frekvenciák esetében. Továbbá az anyagi abszorpció is limitálja a hatékonyan kelthető THz-es frekvenciákat. A 16. (b) ábrán látható optimális lépcsőméret ezen hatások közötti kompromisszumot jelent.



16. ábra a) A THz keltési hatásfok a NLEL vastagságának (L) függvényében a levegő térközű (air-spaced, piros kör) és a TIF-kal kitöltött (RIML-filled, fekete négyzet) esetekre. b) Az optimális lépcső méret (w , lásd a 13. ábrán) a NLEL vastagságának függvényében a két elrendezés esetében. (THz generation efficiency: THz keltés hatásfoka) [102]

A modell segítségével számolt amplitúdó spektrum és időbeli hullámforma a 17. ábrán látható mindkét vizsgált elrendezés esetében, 1,5 és 4 mm NLEL vastagságokra. Ahogyan az optimális lépcsőméret növekedése miatt várható volt, a NLEL vastagságának növelésével a THz-es központi frekvencia csökken. A levegőközű elrendezés esetében 0,68 THz-ről 0,43 THz-re, míg a TIF-kal kitöltött elrendezés esetében ez 0,8 THz-ről 0,5 THz-re való csökkenést jelent. A két elrendezést egymással összehasonlítva látható, hogy TIF-kal

kitöltött esetben, a várakozásoknak megfelelően, a keltett THz-es frekvencia magasabb. Ez annak köszönhető, hogy az impulzusfront szegmensek dőlési szöge közelebb van az átlagos IFD-i szöghöz. Mindkét elrendezés közel egyciklusú THz-es impulzusokat állít elő. A 17. (b) ábrán látható elektromos térerősség értékek a kristály mögött közvetlenül értendőek. Megfelelően erős fókuszálló optikai (parabola tükör) segítségével a fókuszbeli csúcs elektromos térerősség elérheti a több tíz MV/cm-es értékeket.



17. ábra Számolt amplitúdó spektrum (a) és időbeli alak (b) a levegő térközű (piros) és TIF-kal (fekete) kitöltött esetekben, 1,5 (folytonos) és 4 mm (szaggatott) NLEL vastagság esetén. [102]

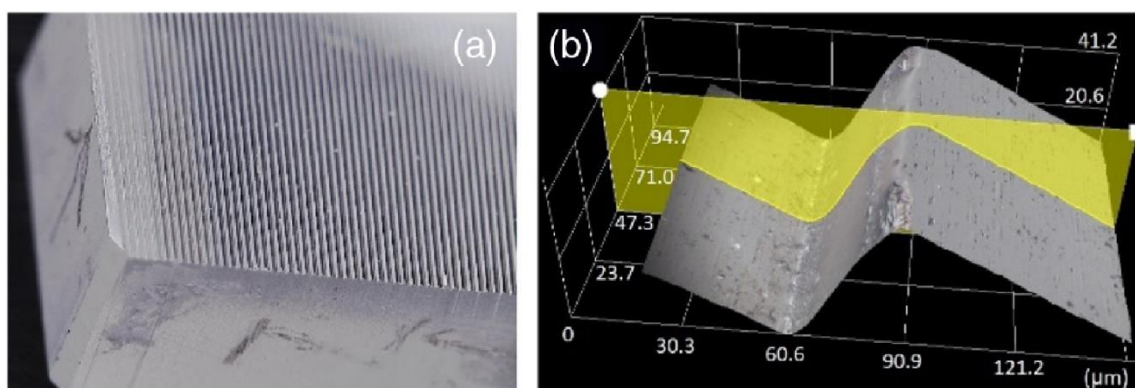
4.1.4. Kísérleti eredmények

A levegőközű elrendezés (13. (a) ábra) működése demonstrálva lett. A kísérletben használt THR-ot a Wasatch Photonics készítette el. A THR vonalsűrűsége 865 vonal/mm volt és nem rendelkezett AR réteggel sem az első sem a hátsó oldalon. A mért diffrakciós hatásfok 76% volt, ami igen közel áll a számolt 77,4%-hoz. Ezek alapján az mondható el, hogy a THR szimulációs modellje megbízható és megfelelő megmunkálás esetén a számítottakkal közel megegyező hatékonyságú rács készíthető.

A pumpa impulzus 1030 nm központi hullámhosszal, 200 fs Fourier limitált impulzushosszal, és maximum 1 mJ impulzusenergiával rendelkezett. A kísérletben ugyan az a NLEL prototípus volt használva, mint a [83] hivatkozásban. A magassága 5 mm (párhuzamos a lépcsős rács vonalaival) a szélessége 8 mm és a vastagsága $L=3$ mm volt. A lépcső szélessége $w=50$ μm volt.

A 18. (a) ábrán a prototípus NLEL perspektivikus képe látható. A prototípus NLEL-nak a lépcsők belépő felületén a felületi érdesség, atomerő mikroszkópos mérések szerint, ~ 120 nm. Optikai mikroszkópos mérések szerint a megmunkált lépcsők felülete görbe, mely ~ 20 -30%-kal is csökkentheti a kristály hasznos felületét. Ez a 18. (b) ábrán is látható. A THz keltésre irányuló mérések szobahőmérsékleten lettek elvégezve, de a NLEL kriogenikus hőmérsékletre számolt paraméterek alapján lett megmunkálva. Továbbá a kristály kis mérete

(szélessége) miatt a hasznosan pumpált felület mérete (teljes kristályvastagság mentén kölcsönható pumpa és THz-es nyaláb) is kicsi volt. Megfelelően nagy NLEL-t alkalmazva a várható keltési hatásfok $\sim 2x$ nagyobb lehet.

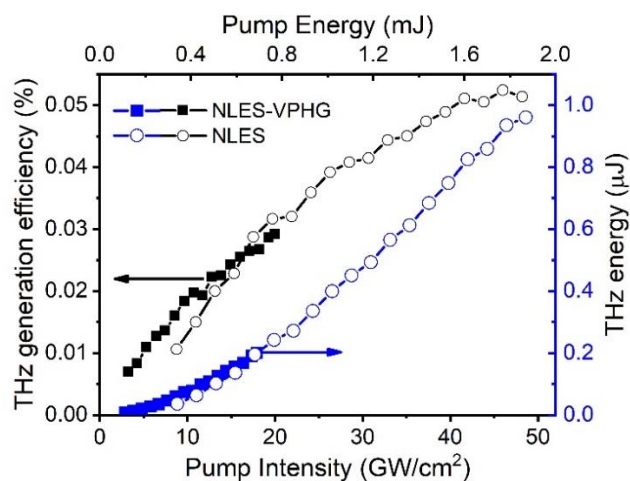


18. ábra a) NLEL perspektivikus nézete 20x nagyítást alkalmazva. b) Egyetlen lépcsőfok rekonstruált felületi topológiája 700x-es nagyítást alkalmazva [83].

Az optimális keltés feltétele, hogy a rövid impulzushossz és így a nagy intenzitás a kristályban álljon elő. Ehhez szükség volt a pumpa impulzus előcsörpölésére, melyet a regeneratív erősítő utáni kompresszorban lévő rácsok közötti távolság változtatásával értünk el.

A THz-es energia kalibrált piroelektromos detektorral (Sensor- und Lasertechnik, THz 20) volt mérve közvetlenül a NLEL kilépő felülete után. Mivel nem csak a THz lép ki NLEL hátoldalán hanem a pumpa, illetve annak másodharmónikusa is, így szükséges volt filter(ek) használata is. Ennek érdekében egy réteg feketepapírt és egy teflon ablakot használtunk, melyek transzmissziója korábban meg lett határozva és a THz-es energia megállapításánál figyelembe lett véve.

A levegőközű NLEL-THR elrendezés mérési eredményei a 19. ábrán vannak ábrázolva (teli szimbólumok). Mint ahogy az ábrán látható az elrendezéssel előállított THz-es energia manapság már nem mondható nagynak, csupán közel $0,2 \mu\text{J}$ volt. Ez az éppen rendelkezésre álló alacsony pumpáló energia, és a korábban felsorolt nem optimális elrendezés méret és rossz lépcsős rács megmunkálásnak tudható be. Biztató, hogy eddig az energiaszintig a THz-es energia közel négyzetesen növekedett a pumpáló intenzitással. A maximális keltési hatásfok $0,03\%$ -volt. A 19. ábrán látható továbbá, hogy a levegőközű NLEL-THR elrendezés által keltett THz-es energia és keltési hatásfok hasonló a leképezést tartalmazó elrendezéséhez. Ezáltal bizonyítottuk, hogy a leképezést elhagyva és előcsörpölve az impulzust a hatásfok nem csökken. Várhatóan nagyobb NLEL-t használva a leképezés miatti korlátozó tényezők hangsúlyosabbak lennének, és a két elrendezés közötti különbség jobban láthatóvá válna.



19. ábra Mért THz keltési hatásfok (teli fekete négyzet és baloldali fekete tengely) és a keltett THz-es impulzusenergia (teli kék négyzet és jobboldali tengely) a pumpáló intenzitás (alsó tengely) és pumpáló energia (felső tengely) függvényében levegőgözü NLEL-THR elrendezés esetében. Az összehasonlítás érdekében a kör szimbólumokkal a korábbi leképezést tartalmazó NLEL elrendezés mért adatai láthatóak. [102]

Itt megemlíteném, hogy a leképezést tartalmazó NLEL elrendezés esetében az optikai rács roncsolási küszöbe ($\sim 100 \text{ GW/cm}^2$, mely a nagyítás miatt $\sim 50 \text{ GW/cm}^2$ volt a NLEL belépő felszínén) limitálta a pumpáló intenzitást. Ez a geometria és intenzitásbeli különbség kisebb vonalsűrűségű rács alkalmazása esetén előnyösebb lehetne, de a maximálisan használható intenzitást továbbra is a rács roncsolási küszöbe korlátozná. Ez a NLEL-THR elrendezés esetében nem áll fenn (a leképezés hiányában), hiszen a foltméret a rácson és a NLEL belépő struktúrált felületén megegyezik, az előcsörp alkalmazása miatt viszont a THR-on jelentősen kisebb lesz az intenzitás. Ebben az esetben várhatóan a LN többfotonos abszorpciójából adódó szabad töltéshordozók THz-es abszorpciója korlátozza majd az optimális intenzitást. 1030 nm-es pumpálási hullámhossz esetében ez akár 200 GW/cm^2 is lehet.

4.2. Reflexiós nemlineáris lap külső struktúrált reflektorral

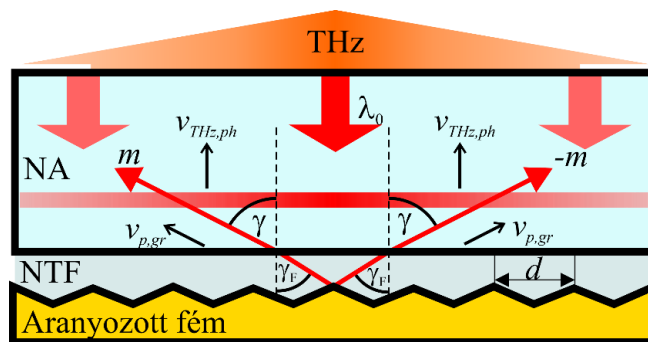
A 2.4.2 fejezetben bemutatott RNLL elrendezés csak egy optikai elemet tartalmaz. Egy sík-párhuzamos LN lapot melynek hátoldalán került kialakításra a blézelt rácsstruktúra. Az elrendezés korlátozó tényező nélkül skálázható, egyetlen hátránya, hogy a LN lap hátoldalának mikromegmunkálása szükséges, mely a jelenleg még nem elég jó minőségű. Viszont fémek mikromegmunkálása már ipari szinten is mindennapos. Szinkrotron és szabadelektron lézerek által előállított elektromágneses sugárzások (tipikusan röntgen, UV és infravörös tartományok) felhasználására, diagnosztizálására elterjedt a különböző típusú fém struktúrák előállítása [109,110]. A következőkben egy olyan elrendezést mutatok be, melynél nem a RNLL hátoldala, hanem egy a hátoldal közelében elhelyezett fémfelület,

úgynevezett külső strukturált reflektor (KSR), van megmunkálva és ez hozza létre a sebességillesztés feltételét teljesítő IFD-t.

4.2.1. Elrendezés

A RNLL-KSR elrendezés sematikus rajza a 20. ábrán látható [111]. Az elrendezés mindössze három részből áll. A sebességillesztéshez nagy IFD-i szöget megkövetelő sík-párhuzamos NOA-ból, pl.: LN-ból vagy lítium-tantalátból (LT), a KSR-ból, mely létrehozza az IFD-t és nagy törésmutatójú folyadékból (NTF), mely hatékony becsatolást tesz lehetővé az első kettő között.

A pumpanyaláb merőlegesen fentről esik a NOA-ra, és sebességillesztés hiányában, miközben a KSR-ig terjed nem kelt THz-es sugárzást. A KSR-ról $\pm m$ rendekbe diffraktálódik és mivel normális beesése volt a rács struktúrára, a diffrakció szögével megegyező lesz az IFD szöge (10. egyenlet). A pumpa a Snellius-Descartes törvény szerint megtörik a NTF és a NOA felületén. Egyszerű geometriai megfontolással belátható, hogy az IFD szöge meg fog egyezni a NA-ban való γ terjedési szöggel. A DIF-ra (vízszintes piros vonal) merőlegesen THz-es sugárzás keletkezik, mely merőlegesen lép ki a sík-párhuzamos NOA tetején.



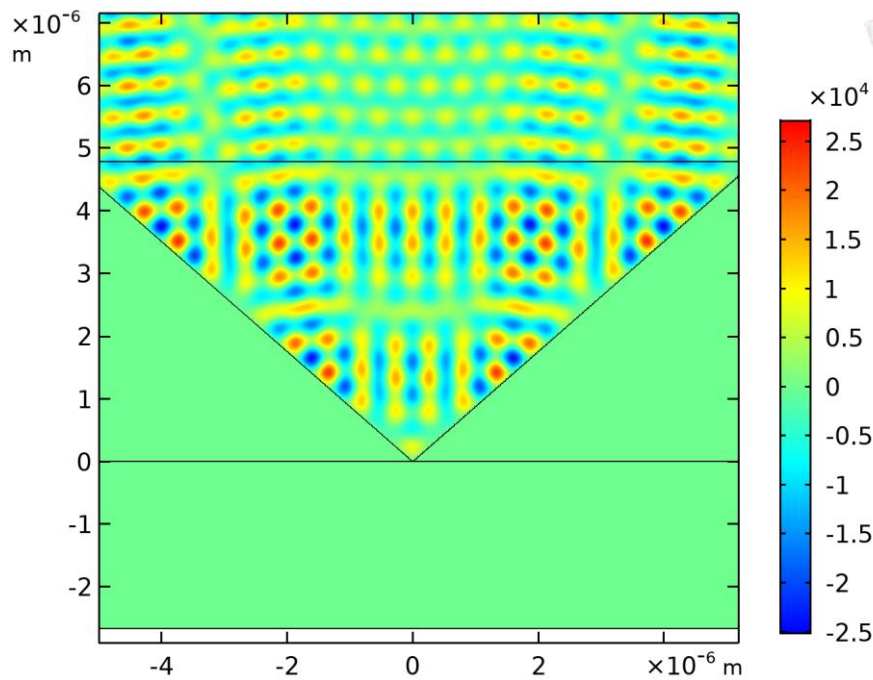
20. ábra RNLL-KSR elrendezés sematikus rajza. NA: nemlineáris anyag, NTF: nagy törésmutatójú folyadék.

4.2.2. Külső strukturált fényvisszaverő tervezése

Ahhoz, hogy a pumpa minél nagyobb hányada részt tudjon venni a THz keltésben fontos, hogy a KSR diffrakciós hatásfoka nagy legyen. Annak érdekében, hogy ez maximalizálva legyen numerikus szimulációt végeztünk COMSOL Multiphysics program segítségével néhány diffrakciós rendre.

Hasonlóan a THR COMSOL-os szimulációjához, ebben az esetben is a rács egy periódusa lett létrehozva. Jelen esetben a két törésmutatójú anyag határfelületének definiálásával lehetett ezt megtenni. A 21. ábrán a bal oldali és alsó skálák a struktúra

méretét jelölik, míg a jobb oldali színes skála az elektromos térerősséget. Ahogy az az ábrán is látszódik az elektromágneses hullám a fém felületről a megfelelő irányokba visszaverődik.



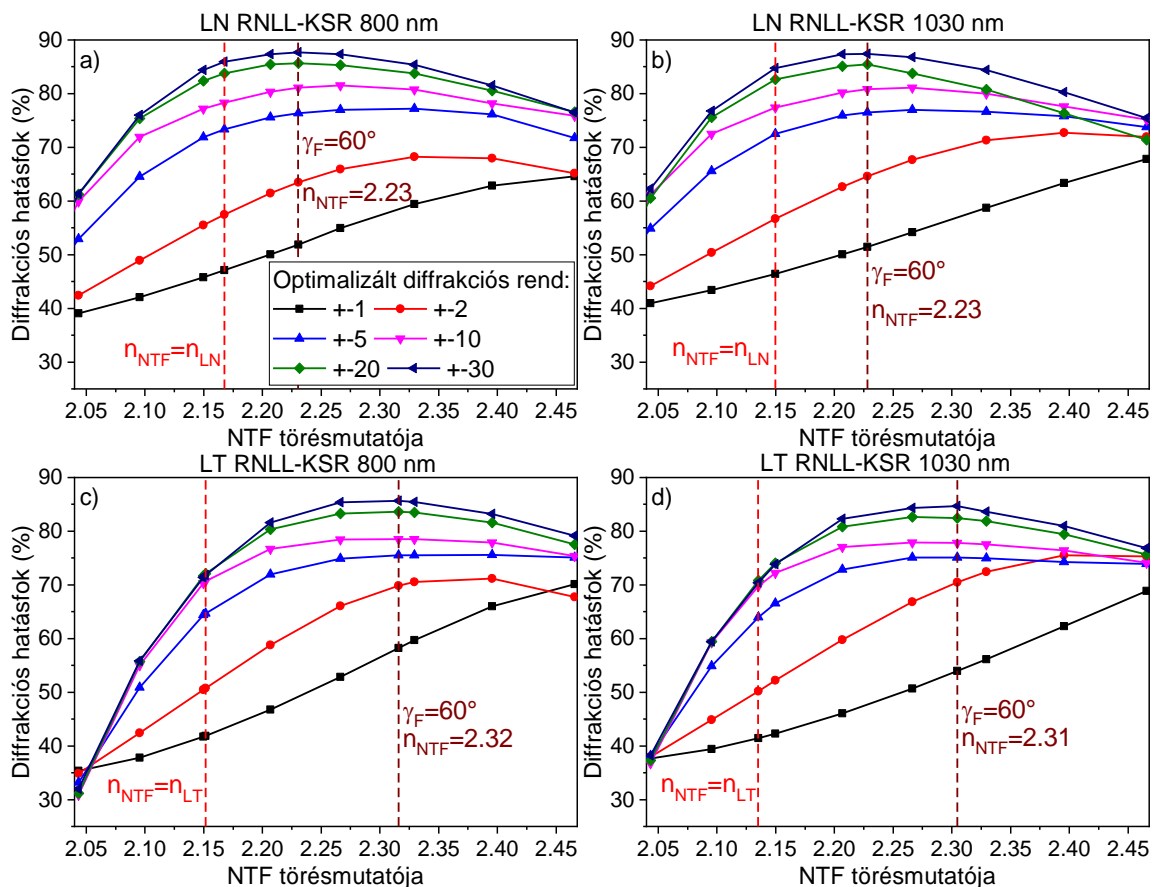
21. ábra COMSOL ábra a KSR szimulációjához.

A számolt diffrakciós hatások magába foglalta az egyes felületek reflexiós veszteségét (kivéve a pumpa levegő-NA felületén lévő reflexiós veszteséget, melyre AR réteg helyezhető), valamint az arany abszorpcióját is. A számolt hatások a NTF törésmutatójának függvényében lettek ábrázolva a 22. ábrán.

A szimulációk LN (22. (a) és (b) ábra) és LT (22. (c) és (d) ábra)) NOA lettek elvégezve 800 (22. (a) és (c) ábra) és 1030 (22. (b) és (d) ábra) nm-es pumpálást feltételezve. Minden esetben a diffrakciós rend növekedésével növekszik a diffrakciós hatások is. A számolt maximális diffrakciós rend a 30. volt, melyet számítási kapacitás okokból nem növeltünk tovább. A 22. ábra összes esetén látszódik az is, hogy a diffrakciós rend növekedésével a diffrakciós hatások egyre kevésbé növekszik, így 30.-nál nagyobb rendek esetében a diffrakciós hatások növekedés már nem lenne számottevő. A diffrakciós rend növelésével az is látszódik, hogy a hatások akkor lesz maximális, ha a NTF-ban a γ_F diffrakciós szög 60° . Az ábrák jobbkez felőli részén a szaggatott bordó vonal ezt az esetet mutatja. Az ábrák balkéz felőli részén a piros szaggatott vonal pedig azt az esetet, amikor az n_{NTF} NTF törésmutatója megegyezik a NOA törésmutatójával. Lényegében ez az utóbbi eset értelmezhető az egyszerű RNLL elrendezés eseteként is. Mindkét pumpa hullámhossz esetében a maximális diffrakciós hatások 87 és 85% a LN és LT NOA-okra.

A 22. ábráról egyértelműen látszódik az is, hogy az RNLL-KSR elrendezés esetében a maximális hatásfok mindig nagyobb, mint az RNLL esetben. Ez a hatásfoknövekedés az $m=30$ diffrakciós rendnél csak $\sim 2\text{-}3\%$ LN esetében, de sokkal jelentősebb $\sim 14\%$ LT-nál.

A RNLL-KSR diffrakciós hatásfoknövekedése a következőképpen magyarázható: A NOA-ban a sebességillesztés feltétele által megkívánt IFD-i szöget kell előállítani, mely $\sim 63^\circ$ LN és $\sim 69^\circ$ LT esetében. A diffrakciós hatásfok akkor maximális (ha a blézelés feltétele teljesül), ha a szimmetrikus fűrészfog jellegű rácsprofil dőlésszöge $\gamma/2$. Ha $\gamma > 60^\circ$ akkor a rács egymás melletti periódusai kissé kitakarják (nem kívánt irányba reflektálják) a diffraktált pumpanyalábot. Ez a hatás csak éppen fellép LN esetében, de jelentős LT-nál. Ha a NTF törésmutatója nagyobb, mint a NOA-é, akkor a NTF-ban lévő diffrakciós szög kisebb lehet és megfelelő NTF törésmutatót választva $\gamma_F = 60^\circ$ teljesülhet. Ennél nagyobb törésmutatójú NTF használva a NTF-NOA határfelületen a reflexiós veszteségek jelentősebbé válnak, így a számolt diffrakciós hatásfok csökken. Tehát a RNLL-KSR elrendezés különösképpen előnyös olyan anyagoknál, ahol a sebességillesztés feltételéhez szükséges IFD-i szög nagyobb, mint 60° .



22. ábra Számolt diffrakciós hatásfokok a NTF törésmutatójának függvényében az 1-30 rendekre LN (a és b) és LT (c és d) esetében a RNLL-KSR elrendezésre 800 (a és c), illetve 1030 nm-es (b és d) pumpáló hullámhosszok esetén. A bal oldali szaggatott vonal esetében

a NTF törésmutatója megegyezik a NA-éval. A jobb oldali szagatott vonal esetében a diffrakciós szög 60° a NTF-ban.

Itt megjegyezném, hogy a RNLL-KSR elrendezés félvezetők esetében is hasznos lehet, ahol aszimmetrikus fűrészfog jellegű rácprofil alkalmazható, így a pumpa hatékonyan csak a -m rendbe diffraktálódik. Ha csak egy rendbe diffraktálódik a pumpa, akkor a $\pm m$ rendekbe diffraktált és egymással interferáló pumpanyalábok nem korlátozzák az optimális pumpaintenzitás maximumát.

4.2.3. Nanoport tartalmazó folyadék

Ahhoz, hogy a pumpa diffrakciós hatásfoka maximális legyen, az előző fejezetben tárgyaltak szerint a NTF-ban lévő diffrakciós szög 60° kell legyen. Ehhez szükséges, hogy a NTF törésmutatója nagyobb legyen a NOA-énál. A szükséges n_{NTF} törésmutató értéket a következő egyszerű egyenlet segítségével lehet meghatározni:

$$n_{NA} \sin(\gamma) = n_{NTF} \sin(\gamma_F), \quad (15)$$

ahol n_{NOA} a NOA törésmutatója. LN és LT esetében a maximális diffrakciós hatásfokhoz szükséges n_{NTF} értéke 2,23 és 2,32. Legjobb tudomásunk szerint nem létezik ilyen NTF, főleg nem olyan, ami a pumpa hullámhosszokon átlátszó, illetve az intenzív megvilágítás hatására nem bomlik el.

Megoldás jelentethet nanoport tartalmazó folyadék használata, mely törésmutatóját a Lorentz-Lorenz egyenlet segítségével lehet kiszámolni [112]:

$$\frac{n_{NTF}^2 - 1}{n_{NTF}^2 + 2} = \frac{V_{nano}}{V} \cdot \frac{n_{nano}^2 - 1}{n_{nano}^2 + 2} + \left(1 - \frac{V_{nano}}{V}\right) \cdot \frac{n_f^2 - 1}{n_f^2 + 2}, \quad (16)$$

ahol V_{nano}/V a nanopor térfogat része a folyadékban, n_f és n_{nano} pedig a folyadék és nanopor törésmutatójának értéke. Mind a folyadéktól, mind a nanoportól elvárás az, hogy ne legyen jelentős abszorpciója a pumpa hullámhosszán, illetve relatív nagy törésmutatója legyen. A fényszórás csökkentése érdekében a nanorészecskéktől további elvárás az, hogy nagyságuk kisebb legyen, mint $0,1\lambda_0 n_{NTF}$ értéke.

Folyadékok tekintetében vizsgáltuk víz, etilén-glikol és szén-diszulfid használatát is. Mivel utóbbinak van a legnagyobb törésmutatója [107], illetve nagy intenzitások mellett is használható a továbbiakban a számolásoknál ennek a folyadéknak a törésmutatóját feltételeztük. Nanopor esetében kézenfekvő gallium-foszfid használata, hiszen a pumpa hullámhosszokon átlátszó, és félvezető léte miatt szikra kisüléssel is létrehozható [113]. Felvetődött továbbá molibdén-diszulfid vagy molibdén-diszelenid felhasználása is, melyek törésmutatója 4 feletti, illetve nanoporjuk kereskedelmi forgalomban is egyszerűen és viszonylag olcsón beszerezhető.

Itt megjegyezném, hogy manapság ezek a nanoporok gömb alakú nanorészecskékből is állhatnak [114]. Fontos továbbá megemlíteni, hogy a nanorészecskék törésmutatója méretfüggő [115-117], illetve méretük is változó. Tipikusan csak átlagos részecskeméretet szokás megadni. Ezek miatt a 16. egyenlet által meghatározott törésmutató érték csak kiindulási pontnak tekinthető és minden egyes keverés után létrehozott nanoport tartalmazó folyadékot tesztelni kell, azok törésmutatóját egyedileg kell meghatározni. A 3. táblázatban a két vizsgált NOA-hoz szükséges optimális törésmutatójú nanoport tartalmazó folyadékhoz tartozó törésmutató értékek és nanopor koncentráció látható 800 és 1030 nm-es pumpálási hullámhosszok esetére.

3. táblázat A kiválasztott anyagok és keverékük törésmutatója LN és LT NA-okhoz.

NA	λ_0 (nm)	n_{NTF}	folyadék	n_f	nanopor	n_{nano}	V_{nano}/V (%)
LN	800	2,23	CS ₂	1,61	GaP	3,18	55
LT		2,32					61
LN	1030	2,23		1,6		3,11	57
LT		2,31					62

Gyakorlati szempontból nem egyértelmű, hogy a nanoport hogyan lehet eloszlatni (diszpergálni) a folyadékban, hiszen az egyes nanorészecskék között fellépő kohéziós erő miatt nagyméretű agglomerátumok formálódhatnak. Ezek eloszlatására hasznos lehet ultrahangos homogenizáló használata esetlegesen felületaktív anyagok hozzáadása a keverékhez [118,119].

Nanopor tartalmazó folyadékok helyett használható lenne olyan megfelelő törésmutatójú anyag, mely olvadáspontja alacsony. Kissé felmelegítve, majd visszahűtve az elrendezést az optikai kontaktus megvalósulhatna az egyes optikai elemek között. Ilyen alkalmas anyag lehet az amorf szelén, melynek törésmutatója $\sim 2,4$ [120] és olvadási hőmérséklete ~ 50 C°.

Ilyen NTF-ok más elrendezésekben, sőt más alkalmazási területeknél is alkalmasak lehetnek nagy törésmutatójú anyagok közötti (pumpa)nyaláb hatékony csatolására.

4.2.4. THz-es impulzusok keltési hatásfoka

A numerikus szimulációk elvégzésére a 4.1.3 fejezetben leírt modell erre az elrendezésre alakított változata volt használva. Ez lényegében annyit jelent, hogy a RNLL-KSR esetében nincs szegmentált impulzusfront, így ennek figyelembevételére nem volt szükség. Továbbra is igaz, hogy mivel a modell nem tartalmazza a THz visszahatását a pumpára az eredmények maximum 2%-os hatásfokig tekinthetőek valósnak [108].

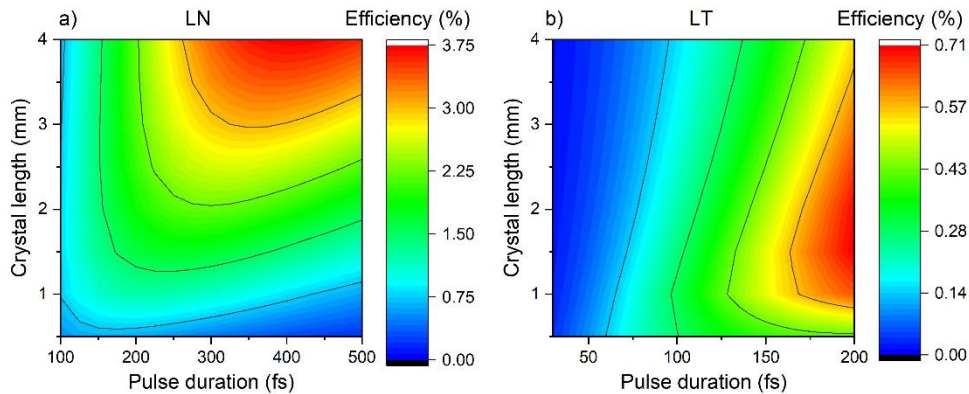
LN-nak és LT-nak hasonlóan nagy a nemlineáris optikai együtthatója [121], de LT THz-es abszorpciója [122] jelentősebb LN-énál [59]. Mindemelett tipikus pumpáló intenzitások mellett 800 nm-en a háromfotonos abszorpció által indukált szabadföltéshordozók THz-es

abszorpciója LN-ban egy nagyságrenddel nagyobb [123], mint LT anyagi abszorpciója. Ennek következtében 800 nm-en LT míg 1030 nm-en LN a jobb választás. LT mellett szól még az az érv is, hogy roncsolási küszöbe $\sim 2x$ nagyobb, mint LN-é [96,124]. Hasonlóan a [85] hivatkozásban leírtakhoz a pumpa csúcsintenzitása a következő gyökös összefüggéssel volt figyelembevéve:

$$I_0 = I_0^* \sqrt{\frac{100 \text{ fs}}{\tau_0}}, \quad (17)$$

ahol τ_0 a pumpa impulzushossza, I_0^* pedig a pumpa csúcsintenzitása 100 fs-os impulzushossz esetén. LN és LT esetében $I_0^* = 100 \text{ GW/cm}^2$ és $I_0^* = 200 \text{ GW/cm}^2$ -nek volt feltételezve. Ilyenkor a pumpa csúcsintenzitás kb. fele a roncsolási küszöbének.

A szimulációs eredmények a 23. ábrán láthatóak LN (a) és LT (b) esetén. Ahogyan az ábrán látható a hasznos kristályvastagság jelentősen rövidebb LT esetében köszönhetően a nagyobb THz-es abszorpciójának. A kétszer nagyobb pumpáló intenzitás ellenére szobahőmérsékleten a THz keltési hatások jóval alacsonyabb LT esetében (0,71%), mint LN-ében (3,75%). Nagyintenzitású erősítőrendszerek esetében a tipikus impulzushossz 100, illetve 200 fs 800, illetve 1030 nm-en. Ehhez az értékekhez tartozó THz keltési hatások 0,3, illetve 2,2% LT és LN esetében.



23. ábra Számolt THz keltési hatások szobahőmérsékleten LN esetében 1030 nm-es pumpáló hullámhosszot a) és LT esetében 800 nm-es pumpálási hullámhosszot feltételezve. A pumpa csúcsintenzitása a roncsolási küszöb felének volt feltételezve. (Crystal length: kristály vastagság, Pulse duration: impulzushossz, Efficiency: hatások). [111]

Szén-diszulfidot használva a nanoport tartalmazó folyadékban, lehetővé teszi a RNLL-KSR elrendezés kriogenikus hőmérsékletre ($\sim 160 \text{ C}^\circ$) való hűtését (amorf szelén használata is). Jelenleg a szakirodalomban nem áll rendelkezésre adat LT alacsony hőmérsékletű THz-es abszorpciójára, de feltételezhetően hasonlóan viselkedik, mint LN-é [61]. Ezt feltételezve alacsony hőmérsékleten a keltési hatások várhatóan meghaladja majd az 1%-ot LT esetében is.

5. Összefoglalás

Célkitűzésemmel összhangban javaslatot tettem, egy méretében korlátozó tényező nélkül skálázható transzmissziós lépcsős rácsstruktúrát alkalmazó elrendezésre. A NLEL-ot kombinálva THR-csal a leképző optika elhagyható és az elrendezés teljesen sík-párhuzamos lesz. Az elrendezés (ii) és (iii) korlátozó tényezőktől (prizma alak és leképzési hibák) mentessé válik, továbbá (i) korlátozó tényező (korlátozott kölcsönhatási hossz a nagy szögdiszperzió miatt) is csökken. Megmutattam, hogy ilyen elrendezésekhez egyszerűen lehet THR-ot tervezni, mely számolt diffrakciós hatásfoka közel megegyezik a mérttel. Javaslatot tettem arra, hogy a THR és NLEL között kereskedelmi forgalomban elérhető TIF legyen alkalmazva, mely csökkenti az elrendezés reflexiós veszteségeit és növeli a THz keltési hatásfokot. Numerikus szimulációk segítségével összehasonlítottuk a két javasolt, levegőközű és TIF-kal kitöltött elrendezést. Utóbbi hatásfoka $\sim 1,8x$ nagyobb, mint előbbié. Numerikus szimulációk segítségével megmutattuk továbbá, hogy különböző kristályvastagságok esetén létezik egy optimális lépcsőméret, valamint az elrendezés közel egyciklusú THz-es impulzusok generálására képes. A várható keltési hatásfok 2 mm-es NLEL vastagság esetén is 1% feletti a TIF-kal kitöltött esetben szobahőmérsékleten. A levegőközű elrendezés egyszerűen kriogénikus hőmérsékletre hűthető, mely tipikusan $\sim 2x$ hatásfoknövekedéssel jár. Hűtött esetben a levegőközű elrendezés várható hatásfoka is 1% feletti. Megfelelő folyadékot használva a THR és NLEL között a TIF-kal kitöltött eset is kriogénikus hőmérsékletre hűthető, ezzel tovább növelve a keltési hatásfokot. Ilyen elrendezések segítségével előállított THz-es impulzusok várhatóan jól fókuszálhatóak és alkalmasak lehetnek nagy térerősséget megkövetelő alkalmazásokhoz, pl. részecskegyorsításra.

A levegőközű elrendezést a korábban már használt prototípus NLEL-al demonstráltam, $\sim 0,2 \mu\text{J}$ THz-es impulzusenergiát $\sim 0,03\%$ keltési hatásfokkal előállítva, alacsony pumpaintenzitás mellett. Ez a keltési hatásfok közel megegyezett a leképző optikát tartalmazó elrendezésével. Nagyobb NLEL-ot alkalmazva várhatóan a korlátozó tényezők nagyobb szerepet játszanak majd és a leképző optikát tartalmazó NLEL elrendezés hatásfoka csökkenni fog, míg NLEL-THR-é nem.

Javaslatot tettem egy olyan elrendezésre, mely a RNLL módosított változata. Itt nem a NOA hátoldalán kerül kialakításra a reflexiós rácsstruktúra, hanem egy a hátoldal közelében elhelyezett fém felületen. Az elrendezés előnye, hogy nem igényli a NOA mikromegmunkálását, csak a fémfelületét, mely jóval egyszerűbb és jobb minőségű is. Az

elrendezés hátránya, hogy a sík-párhuzamos NOA és a KSR között NTF alkalmazása szükséges, mely létrehozása nem kézenfekvő. Numerikus rácsszimulációk segítségével megmutattuk, hogy megfelelően nagy törésmutatójú NTF alkalmazása esetén a RNLL elrendezéshez képest az RNLL-KSR diffrakciós hatásfoka növekszik. Ez a hatás egyre jobban megfigyelhető, ha a sebességillesztéshez szükséges IFD mértéke jobban meghaladja 60° -ot. Numerikus szimulációk segítségével a THz keltési hatásfokot is szimuláltuk. LN-ot alkalmazva 1030 nm-es pumpálási hullámhossz esetén a keltési hatásfok már 2 mm-es kristályhossz esetén is $\sim 2\%$ szobahőmérsékleten, tipikus 200 fs-os pumpa impulzushosszt feltételezve. LT és 800 nm-es pumpa hullámhossz esetében a keltési hatásfok a nagyobb anyagi abszorpció miatt jelentősen kisebb, de várhatóan kriogenikus hűtéssel ez is nagymértékben növekedhet.

Végül, javaslatot tettem nanoport tartalmazó folyadék elkészítésére, mely várható nagy törésmutatója miatt alkalmas lehet NTF-nak a RNLL-ESR elrendezésben. 800 és 1030 nm pumpa hullámhosszokra megadtam a szükséges nanopor térfogatarányokat a megfelelő törésmutatójú NTF előállítására LN és LT NOA-okhoz, ahol a kiindulási folyadék szén-diszulfid, míg a nanopor GaP volt.

5.1. Tézispontok

[1] Javaslatot tettem térfogati holografikus rács alkalmazására a nemlineáris echelon lapot alkalmazó elrendezésben. Térfogati holografikus rács alkalmazásával a leképző optika elhagyható és az elrendezés sík-párhuzamos lehet. Ennek köszönhetően az elrendezés mérete korlátozó tényező nélkül növelhető. Ezáltal az elérhető THz-es energia csak a rendelkezésre álló pumpa energiától és a keltési hatásfoktól függ. Numerikus szimulációk segítségével az elrendezéshez térfogati holografikus rácsot terveztünk, valamint megmutattuk, hogy törésmutató illesztő folyadékot használva a térfogati holografikus rács után, a reflexiós veszteségek csökkenthetőek és a THz keltési hatásfok növelhető. [S2]

[2] Alacsony pumpaintenzitás mellett demonstráltam a prototípus nemlineáris echelonon kombinált térfogati holografikus rácsot tartalmazó elrendezést, mely THz keltési hatásfoka közel megegyezett a leképző optikát tartalmazó elrendezésével. A maximálisan keltett THz-es energia $0,2 \mu\text{J}$ volt $0,03\%$ keltési hatásfok mellett. [S2]

[3] Javaslatot tettem külső strukturált reflektor használatára sík-párhuzamos nemlineáris optikai anyag lapokkal kombinálva. Az elrendezés előnye, hogy a nehezen megmunkálható nemlineáris optikai anyag helyett, csak egy fémlap mikromegmunkálása szükséges, mely ipari szereplők számára kézenfekvő. Az elrendezés hatékony működéséhez nagy

törésmutatójú folyadék alkalmazása szükséges a nemlineáris optikai anyag és a külső strukturált reflektor között. Hasonló elrendezés különösképpen előnyös olyan nemlineáris optikai anyagok esetében, ahol a sebességillesztéshez szükséges IFD-i szög nagyobb, mint 60° . Numerikus szimulációkkal megmutattuk, hogy 800 és 1030 nm-es pumpálási hullámhosszt, valamint lítium-niobát és lítium-tantalát anyagokat feltételezve továbbá megfelelően nagy diffrakciós rendet választva a diffrakciós hatások kiemelkedően magasak lehetnek ($>85\%$). [S1]

[4] Javaslatot tettem nanoport tartalmazó folyadék előállítására, mely nagy törésmutatójú folyadékként alkalmazható lenne a reflexiós nemlineáris lap – külső strukturált reflektort használó elrendezésben. Lítium-niobát és lítium-tantalát nemlineáris optikai anyagok, valamint 800 és 1030 nm pumpálási hullámhosszokhoz megadtam a szükséges anyagok törésmutatóját, valamint a nanoport tartalmazó folyadékban lévő nanopor térfogatarányát. [S1]

6. Summary

In the past two-decade terahertz (THz) pulse sources went through a rapid development thanks to the increasing pump energies and the tilted pulse front excitation scheme. Increasing the THz generation efficiency and scaling the size of the conventional THz pulse sources, which contains an optical grating, imaging optical element and a prism shape lithium niobate (LN) crystal, have strong limitations. These are the following: (i) Limited interaction length due to angular dispersion. (ii) Imaging errors, which results curved pulse fronts and pump pulse lengthening at the sides of large pump beams. (iii) Prism shape of the LN crystal with a large ($\gamma \approx 63^\circ$) wedge angle, resulting in different temporal waveform along the THz beam. Energy scalability is limited by (i)-(iii), while the availability of uniform THz beam is limited mainly by (ii) and (iii). The good beam quality is required by many high-field application e.g., particle acceleration. In the past few years extensive effort has been made to reduce or even eliminate these limitations.

Our group proposed several new setups for THz generation. All of them requires the microstructuring of the LN surface. In some cases a contact grating should be created in the front side of the LN crystal [70,78], in others microstructuring a stair-step (echelon) structure is needed [69,82,83]. Depending on the pre-tilt angle introduced by the optical grating (and on the use of any imaging element) a nonlinear echelon slab (NLES) or a NLES with small wedge angle can be used. Meanwhile all of these proposed setups are reducing the limitations, they are not scalable without any principal limitations. During my work one of my goals was to design a setup, which is scalable without any limitations and can produce THz pulses with relatively high efficiency.

The latest proposed setup requires the microstructuring of the back surface of a plane-parallel LN slab [85]. This reflective nonlinear slab (RNLS) is scalable and according to numerical simulations it can have high diffraction and high THz generation efficiency. The bottleneck of the setup is the microstructuring of the nonlinear material, which is not well developed yet. In my work I tried to find a solution for that problem too.

Diffraction in volume phase holographic grating (VPHG) arise from the periodically modulated refractive index. It can provide high diffraction efficiency even when it is used off from the Littrow configuration, because the constant refractive index plane can be tilted (slanted). This enables to have high diffraction efficiency only in one diffraction order even at normal incidence. In this case, because of simple geometrical reasons, the diffraction efficiency will be equal with the pulse-front-tilt angle.

Combining the VPHG with the NLES enables to omit the imaging optical element and allows a completely plan-parallel configuration of the setup [102]. The setup is free from (ii) and (iii) limitations and (i) is reduced too. Furthermore, it is scalable without any principal limitation. Using a commercially available refractive index matching liquid (RIML) between the grating and the NLES reflection losses can be reduced. Furthermore, the angle difference between the average and segmented pulse-front-tilts will be smaller, resulting in smaller dephasing effect. This increases the THz generation efficiency and allows the generation of higher THz frequency components too.

Numerical simulations performed by COMSOL Multiphysics predict >90% diffraction efficiency for both air-spaced (antireflection coating is applied at the back surface of the grating) and RIML-filled cases. The THz generation capability of the two suggested setups was compared by numerical simulations. Supposing 1030 nm pump wavelength, 200 fs pulse duration and 70 GW/cm² peak pump intensity the THz generation efficiency can exceed 1% in case of the RIML-filled case at room temperature even in a 2 mm thick crystal. Cryogenic cooling of the setups are also possible. In case of the air-spaced setup the cooling is straightforward and can result in increased (>1%) THz generation efficiency. The RIML allows cooling down to ~40 C°, which enables a small efficiency increase. Using a liquid with appropriately high refractive index and low freezing point, like carbon disulfide, can allow temperatures down to ~-160 C°.

The air spaced setup working principle was demonstrated in a proof-of-principle experiment. For that purpose, a small prototype NLES was used (the same as in Ref. [83]) in combination with a 865 line/mm VPHG. The grating diffraction efficiency (without antireflection coating) was 76%, which is close to the simulated 77.4%. This suggest that the diffraction efficiency of such gratings can be well predicted.

In the experiment the pump energy was limited to 1 mJ. With that 0.2 μJ THz pulse energy with 0.03% conversion efficiency was produced. The generation efficiency and pulse energy were nearly the same as with the NLES setup containing imaging. The scalability of the NLES-VPHG setup means that it can keep the same conversion efficiency at large sizes too, but in our case the NLES was too small to have substantial difference between the setups. With larger NLES, higher pump intensity, better echelon parameters and better microstructured surface quality the expected THz generation efficiency is at least one order of magnitude higher. With cryogenic cooling and antireflection coating for THz another factor of three increasement can be expected.

I suggested to use an external structured reflector (ESR) in case of the RNLS setup, because the microstructuring of a metal plate is much easier and can be done with better surface quality [111]. In this case the ESR is placed near to the back side of the plan-parallel nonlinear material. For efficient incoupling between them a high refractive index liquid (HRIL) is needed. Numerical simulation suggests that the diffraction efficiency (~85%) will be maximum (at diffraction orders higher than 10) if the diffraction angle is 60° in the HRIL. For this the HRIL refractive index value should be 2.23 and 2.32 for LN and lithium tantalate (LT) nonlinear materials at 1030 and 800 nm, respectively. According to our best knowledge there is no liquid with such high refractive index.

One solution to produce this HRIL is to disperse nanopowder in liquid and make a nanocomposite liquid. Both liquid and nanopowder should have relatively high refractive index and low absorption in the pump wavelength. The size of the nanoparticles should be less than the tenth of the wavelength in the nanocomposite liquid, to reduce scattering losses. I selected carbon disulfid as liquid because it is stable at high intensity applications too. For the nanopowder gallium phosphide was an obvious choice, but molybdenum disulfide or molybdenum diselenide can be a good choice too.

6.1.New scientific results

[1] I suggested to use volume phase holographic grating in combination with the nonlinear echelon slab. In the resulted setup any imaging element can be omitted and the whole setup can become plan-parallel and scalable without any principal limitations. With numerical simulations volume phase holographic grating have been designed for the setup. Furthermore, we showed that applying a refractive index matching liquid between the grating and the slab reflection losses can be decreased, and THz generation efficiency can be increased. [S2]

[2] At low pump intensity proof-of principle experiment had been demonstrated with a prototype nonlinear slab in combination with a volume phase holographic grating. The THz generation efficiency was nearly the same as with the setup containing imaging element. The maximum conversion efficiency was 0.03% and the generated maximum THz pulse energy was 0.2 μJ . [S2]

[3] I suggested to use an external structure reflector in combination with a plane-parallel nonlinear slab. Microstructuring a metal plate is much easier and can be made with a better surface quality. For efficient incoupling between the external structured reflector and the nonlinear material slab a high refractive index liquid has to be used. The setup is especially

advantageous for nonlinear materials requiring pulse-front-tilt angle bigger than 60° . With numerical simulations we showed that for lithium niobate and lithium tantalate materials at 800 and 1030 nm pump wavelengths at appropriately high diffraction order the diffraction efficiency can be exceptionally high ($>85\%$). [S1]

[4] I suggested to use nanocomposite liquid as high refractive index liquid in the reflective nonlinear echelon slab – external structured reflector setup. I have selected materials for the nanocomposite liquid and gave their refractive index and the nanopowder concentration values for lithium niobate and lithium tantalate nonlinear materials at 800 and 1030 nm pump wavelengths. [S1]

7. Köszönetnyilvánítás

Köszönöm Fülöp József András témavezetőmnek a PhD tanulmányaim első felében nyújtott segítségét és támogatását. Szeretnék köszönetet mondani Hebling János Professor Úrnak, aki felkarolta ötleteimet, támogatta szakmai előrehaladásomat és akár konfliktusokat is felvállalva képviselte érdekeimet. Almási Gábor Intézetigazgató Úrnak, aki lehetővé tette, hogy PhD ösztöndíjam lejártá után is az intézetben dolgozhassak. Kollégáimnak, Pálfalvi Lászlónak, Tóth Györgynek, Tibai Zoltánnak, Polónyi Gyulának és Priyo Syamsul Nugrahanak, akik segítségére és szakmai tanácsaira mindig számíthattam. Köszönöm Lóki Andreának, aki nélkül az intézeti élet elképzelhetetlen lenne.

Szeretnék köszönetet mondani Édesapámnak és Édesanyámnak, akik rendíthetetlenül támogatnak az élet minden területén. Nem utolsó sorban pedig feleségemnek Marcellának, aki boldogságot csempész minden egyes közösen töltött pillanatba.

Köszönöm a támogatást a Nemzeti Kutatási Fejlesztési és Innovációs Hivatalnak (2018-1.2.1-NKP-2018-00010).

A dolgozat az Innovációs és Technológiai Minisztérium ÚNKP-20-3 és ÚNKP-21-4 kódszámú Új Nemzeti Kiválóság Programjának a Nemzeti Kutatási, Fejlesztési és Innovációs Alapból finanszírozott szakmai támogatásával készült.

8. Publikációk

8.1. Értekezéshez kapcsolódó saját publikációk

[S1] **G. Krizsán**, Z. Tibai, J. Hebling, L. Pálfalvi, G. Almási, and G. Tóth, „*Lithium niobate and lithium tantalate based scalable terahertz pulse sources in reflection geometry*”, *Opt. Express* **28**, 34320 (2020).

[S2] **G. Krizsán**, Z. Tibai, G. Tóth, P. S. Nugraha, G. Almási, J. Hebling, and J. A. Fülöp, „*Uniformly scalable lithium niobate THz pulse source in transmission geometry*”, *Opt. Express* **30**, 4434 (2022).

8.2. Egyéb publikációk

[S3] P. S. Nugraha, **G. Krizsán**, Gy. Polónyi, M. Mechler, J. Hebling, Gy. Tóth, and J. Fülöp, „*Efficient semiconductor multicycle terahertz pulse source*”, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **51**, 094007 (2018).

[S4] P. S. Nugraha, **G. Krizsán**, Cs. Lombosi, L. Pálfalvi, Gy. Tóth, G. Almási, J. A. Fülöp, and J. Hebling, „*Demonstration of a tilted-pulse-front pumped plane-parallel slab terahertz source*”, *Opt. Lett.* **44**, 1023 (2019)

[S5] Gy. Tóth, L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, **G. Krizsán**, N. H. Matlis, G. Almási, and J. Hebling, „*Numerical investigation of imaging-free terahertz generation setup using segmented tilted-pulse-front excitation*”, *Opt. Express* **27**, 7762 (2019).

[S6] V. Stummer, T. Flöry, **G. Krizsán**, Gy. Polónyi, E. Kaksis, A. Pugžlys, J. Hebling, J. A. Fülöp, and A. Baltuška, „*Programmable generation of terahertz bursts in chirped-pulse laser amplification*”, *Optica* **7**, 1758 (2020)

[S7] Sz. Turnár, **G. Krizsán**, J. Hebling and Z. Tibai „*Waveguide structure based electron acceleration using THz pulses*”, *Optics Express* (2022, Elfogadva)

[S8] N. M. Mbithi, Gy. Tóth, Z. Tibai, I. Benabdelghani, L. Nasi, **G. Krizsán**, J. Hebling and Gy. Polónyi „*Investigation of terahertz pulse generation in semiconductors pumped at long infrared wavelengths*”, *Optics Express* (2022, Beadva)

[S9] Z. Tibai, **G. Krizsán**, Gy. Tóth, G. Almási, G. Illés, L. Pálfalvi and J. Hebling „*Scalable Microstructured Semiconductor THz Pulse Sources*”, *Optics Express* (2022, Beadva)

8.3. Konferencián bemutatott előadások

[E1] **G. Krizsán**, Gy. Polónyi, T. Kroh, Gy. Tóth, Z. Tibai, N. H. Matlis, F. X. Kärtner and J. Hebling, „*Demonstration of Imaging-Free Terahertz Generation Setup Using Segmented*”

Tilted-Pulse-Front Excitation," Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC) (2021)

[E2] **G. Krizsán**, Z. Tibai, G. Almási, Gy. Tóth, L. Pálfalvi and J. Hebling „*New Generation Terahertz Pulse Sources Utilizing Volume Phase Holographic Gratings*” in *Optica High-brightness Sources and Light-driven Interactions Congress 2022*, Technical Digest Series (Optica Publishing Group, 2022), paper HF3B.6.

[E3] **G. Krizsán**, Z. Tibai, G. Almási, Gy. Tóth, L. Pálfalvi és J. Hebling „*Újgenerációs Terahertzes Impulzusforrások Térfogati Holografikus Rácsok Alkalmazásával*” az ELFT Magyar Fizikus Vándorgyűlésen (2022)

8.4. Konferencián bemutatott poszterek

[P1] P. S. Nugraha, **G. Krizsán**, Gy. Polónyi, M. I. Mechler, J. Hebling, Gy. Tóth and J. A. Fülöp „Efficient semiconductor multicycle terahertz pulse source.” In *Terahertz Science and Technology EOS Topical Meeting 6th* (2018)

[P2] Gy. Tóth, L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, L. Tokodi, **G. Krizsán**, N. H. Matlis, G. Almási and J. Hebling „*Terahertz generation setups using segmented tilted-pulse-front excitation*” In *2019 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC)*, pp. 1-1. IEEE, 2019.

[P3] **G. Krizsán**, Z. Tibai, Gy. Tóth, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling. "*LiNbO₃ and GaP Based Scalable Terahertz Pulse Sources in Reflection Geometry.*" in *OSA High-brightness Sources and Light-driven Interactions Congress 2020 (EUVXRAY, HILAS, MICS)*, OSA Technical Digest (Optica Publishing Group, 2020), paper JW1A.8.

[P4] **G. Krizsán**, V. Stummer, T. Flöry, E. Kaksis, A. Pugžlys, A. Baltuška, G. Polónyi, and J. A. Fülöp, "*Generation of Continuously-Tunable, Narrowband THz Pulses from Phase-Locked Femtosecond Pulse Bursts,*" in *OSA High-brightness Sources and Light-driven Interactions Congress 2020 (EUVXRAY, HILAS, MICS)*, OSA Technical Digest (Optica Publishing Group, 2020), paper JW1A.7.

9. Irodalomjegyzék

- [1] http://www.physics.ttk.pte.hu/files/TAMOP/HJ-UM_Terahertz Impulzusok eloallitasa es alkalmazasa/01_Introduction.pdf.
- [2] J. A. Fülöp, Z. Ollmann, C. Lombosi, C. Skrobol, S. Klingebiel, L. Pálfalvi, F. Krausz, S. Karsch, and J. Hebling, *Opt. Express* **22**, 20155 (2014).
- [3] G. Polónyi *et al.*, *Optics express* **24**, 23872 (2016).
- [4] G. Polónyi, M. I. Mechler, J. Hebling, and J. A. Fülöp, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **23**, 1 (2017).
- [5] C. P. Hauri, C. Ruchert, C. Vicario, and F. Ardana, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 161116 (2011).
- [6] C. Ruchert, C. Vicario, and C. P. Hauri, *Opt. Lett.* **37**, 899 (2012).
- [7] M. Shalaby and C. P. Hauri, *Nature communications* **6**, 1 (2015).
- [8] C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri, *Opt. Lett.* **39**, 6632 (2014).
- [9] J. Yousaf, A. Dhiflaoui, A. Yahyaoui, B. Hakim, M. Zarouan, W. Zouch, T. Aguil, and H. Rmili, *The Applied Computational Electromagnetics Society Journal (ACES)*, 1242 (2020).
- [10] D. Kuk, Y. Yoo, E. Rosenthal, N. Jhaji, H. Milchberg, and K.-Y. Kim, *Appl. Phys. Lett.* **108**, 121106 (2016).
- [11] I. Dey *et al.*, *Nature communications* **8**, 1 (2017).
- [12] G. Liao *et al.*, *Proceedings of the National Academy of Sciences* **116**, 3994 (2019).
- [13] Y. J. Ding, *JOSA B* **31**, 2696 (2014).
- [14] T. Seifert, S. Jaiswal, M. Sajadi, G. Jakob, S. Winnerl, M. Wolf, M. Kläui, and T. Kampfrath, *Appl. Phys. Lett.* **110**, 252402 (2017).
- [15] J. F. Federici, B. Schulkin, F. Huang, D. Gary, R. Barat, F. Oliveira, and D. Zimdars, *Semiconductor Science and Technology* **20**, S266 (2005).
- [16] S. L. Dexheimer, *Terahertz spectroscopy: principles and applications* (CRC press, 2017).
- [17] J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, and K. A. Nelson, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **14**, 345 (2008).
- [18] M. Koch, S. Hunsche, P. Schumacher, M. Nuss, J. Feldmann, and J. Fromm, *Wood Science and Technology* **32**, 421 (1998).
- [19] P. Knobloch *et al.*, *Physics in Medicine & Biology* **47**, 3875 (2002).
- [20] D. Zhang *et al.*, *Nat. Photonics* **12**, 336 (2018).
- [21] S. Turnár, J. Hebling, J. Fülöp, G. Tóth, G. Almási, and Z. Tibai, *Appl. Phys. B* **127**, 1 (2021).
- [22] L. Pálfalvi, J. Fülöp, G. Tóth, and J. Hebling, *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams* **17**, 031301 (2014).
- [23] B. Zhang *et al.*, *Laser Photonics Rev.* **15**, 2000295 (2021).
- [24] D. H. Auston, K. P. Cheung, and P. R. Smith, *Appl. Phys. Lett.* **45**, 284 (1984).
- [25] D. You, R. Jones, P. Bucksbaum, and D. Dykaar, *Opt. Lett.* **18**, 290 (1993).
- [26] J. T. Darrow, X.-C. Zhang, D. H. Auston, and J. D. Morse, *IEEE Journal of Quantum Electronics* **28**, 1607 (1992).
- [27] P. Benicewicz and A. Taylor, *Opt. Lett.* **18**, 1332 (1993).
- [28] T. H. T. Hattori, K. T. K. Tukamoto, and H. N. H. Nakatsuka, *Japanese Journal of Applied Physics* **40**, 4907 (2001).
- [29] X. Ropagnol *et al.*, *Opt. Express* **24**, 11299 (2016).
- [30] X. Ropagnol, M. Bouvier, M. Reid, and T. Ozaki, *Journal of Applied Physics* **116**, 043107 (2014).

- [31] H. Hafez, X. Chai, A. Ibrahim, S. Mondal, D. Férachou, X. Ropagnol, and T. Ozaki, *Journal of Optics* **18**, 093004 (2016).
- [32] J. A. Fülöp, S. Tzortzakis, and T. Kampfrath, *Advanced Optical Materials* **8**, 1900681 (2020).
- [33] H. Hamster, A. Sullivan, S. Gordon, W. White, and R. Falcone, *Physical review letters* **71**, 2725 (1993).
- [34] T. Löffler, F. Jacob, and H. Roskos, *Appl. Phys. Lett.* **77**, 453 (2000).
- [35] D. Cook and R. Hochstrasser, *Opt. Lett.* **25**, 1210 (2000).
- [36] V. Vaičaitis, O. Balachninaite, U. Morgner, and I. Babushkin, *Journal of Applied Physics* **125**, 173103 (2019).
- [37] V. Y. Fedorov and S. Tzortzakis, *Physical Review A* **97**, 063842 (2018).
- [38] A. D. Koulouklidis, C. Gollner, V. Shumakova, V. Y. Fedorov, A. Pugžlys, A. Baltuška, and S. Tzortzakis, *Nature communications* **11**, 1 (2020).
- [39] M. Kress, T. Löffler, S. Eden, M. Thomson, and H. G. Roskos, *Opt. Lett.* **29**, 1120 (2004).
- [40] X. Xie, J. Dai, and X.-C. Zhang, *Physical review letters* **96**, 075005 (2006).
- [41] K.-Y. Kim, J. H. Glowina, A. J. Taylor, and G. Rodriguez, *Opt. Express* **15**, 4577 (2007).
- [42] G. Rodriguez and G. L. Dakovski, *Opt. Express* **18**, 15130 (2010).
- [43] A. N. Tsyppin, E. A. Ponomareva, S. E. Putilin, S. V. Smirnov, S. A. Shtumpf, M. V. Melnik, E. Yiwen, S. A. Kozlov, and X.-C. Zhang, *Opt. Express* **27**, 15485 (2019).
- [44] L.-L. Zhang *et al.*, *Physical Review Applied* **12**, 014005 (2019).
- [45] A. Gopal *et al.*, *Physical review letters* **111**, 074802 (2013).
- [46] N. Karpowicz, X. Lu, and X.-C. Zhang, *Journal of Modern Optics* **56**, 1137 (2009).
- [47] D. H. Auston, K. Cheung, J. Valdmanis, and D. Kleinman, *Physical Review Letters* **53**, 1555 (1984).
- [48] M. Bass, P. Franken, J. Ward, and G. Weinreich, *Physical Review Letters* **9**, 446 (1962).
- [49] R. W. Boyd, *Nonlinear optics* (Academic press, 2020).
- [50] K. L. Vodopyanov, *Opt. Express* **14**, 2263 (2006).
- [51] A. Nahata, A. S. Weling, and T. F. Heinz, *Appl. Phys. Lett.* **69**, 2321 (1996).
- [52] K. Wynne and J. J. Carey, *Opt. Commun.* **256**, 400 (2005).
- [53] T. Feurer, J. C. Vaughan, and K. A. Nelson, *Science* **299**, 374 (2003).
- [54] K.-L. Yeh, J. Hebling, M. C. Hoffmann, and K. A. Nelson, *Opt. Commun.* **281**, 3567 (2008).
- [55] V. Stummer, T. Flöry, G. Krizsán, G. Polónyi, E. Kaksis, A. Pugžlys, J. Hebling, J. A. Fülöp, and A. Baltuška, *Optica* **7**, 1758 (2020).
- [56] R. L. Sutherland, *Handbook of nonlinear optics* (CRC press, 2003).
- [57] J. Hebling, K.-L. Yeh, M. C. Hoffmann, B. Bartal, and K. A. Nelson, *JOSA B* **25**, B6 (2008).
- [58] M. C. Hoffmann, K.-L. Yeh, H. Y. Hwang, T. S. Sosnowski, B. S. Prall, J. Hebling, and K. A. Nelson, *Appl. Phys. Lett.* **93**, 141107 (2008).
- [59] M. Unferdorben, Z. Szaller, I. Hajdara, J. Hebling, and L. Pálfalvi, *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* **36**, 1203 (2015).
- [60] X. Wu, C. Zhou, W. R. Huang, F. Ahr, and F. X. Kärtner, *Opt. Express* **23**, 29729 (2015).
- [61] A. Buzády, R. Gálos, G. Makkai, X. Wu, G. Tóth, L. Kovács, G. Almási, J. Hebling, and L. Pálfalvi, *Opt. Mater. Express* **10**, 998 (2020).
- [62] J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, *Opt. Express* **10**, 1161 (2002).

- [63] M. C. Hoffmann and J. A. Fülöp, *Journal of Physics D: Applied Physics* **44**, 083001 (2011).
- [64] J. Hebling, *Opt. Quantum Electron* **28**, 1759 (1996).
- [65] S. Akturk, X. Gu, E. Zeek, and R. Trebino, *Opt. Express* **12**, 4399 (2004).
- [66] L. Tokodi, J. Hebling, and L. Pálfalvi, *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* **38**, 22 (2017).
- [67] K.-L. Yeh, M. Hoffmann, J. Hebling, and K. A. Nelson, *Appl. Phys. Lett.* **90**, 171121 (2007).
- [68] J. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, *Optics express* **18**, 12311 (2010).
- [69] G. Tóth, L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Krizsán, N. H. Matlis, G. Almási, and J. Hebling, *Optics Express* **27**, 7762 (2019).
- [70] L. Pálfalvi, Z. Ollmann, L. Tokodi, and J. Hebling, *Opt. Express* **24**, 8156 (2016).
- [71] Z. Ollmann, J. A. Fülöp, J. Hebling, and G. Almási, *Opt. Commun.* **315**, 159 (2014).
- [72] M. Bashirpour, W. Cui, A. Gamouras, and J.-M. Ménard, *Crystals* **12**, 684 (2022).
- [73] J. A. Fülöp, G. Polónyi, B. Monoszalai, G. Andriukaitis, T. Balciunas, A. Pugzlys, G. Arthur, A. Baltuska, and J. Hebling, *Optica* **3**, 1075 (2016).
- [74] G. Krizsán, G. Polónyi, N. Mbithi, Z. Tibai, L. Pálfalvi, G. Tóth, L. Nasi, J. Fülöp, and J. Hebling, in *2021 46th International Conference on Infrared, Millimeter and Terahertz Waves (IRMMW-THz)* (IEEE, pp. 1.
- [75] G. Tóth, J. A. Fülöp, and J. Hebling, *Opt. Express* **25**, 28258 (2017).
- [76] P. Nugraha, G. Krizsán, G. Polónyi, M. Mechler, J. Hebling, G. Tóth, and J. Fülöp, *Journal of Physics B: Atomic, Molecular and Optical Physics* **51**, 094007 (2018).
- [77] L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, *Appl. Phys. Lett.* **92**, 171107 (2008).
- [78] Z. Ollmann, J. Hebling, and G. Almási, *Appl. Phys. B* **108**, 821 (2012).
- [79] G. Krizsán, Z. Tibai, G. Almási, G. Tóth, L. Pálfalvi, and J. Hebling, in *High-Brightness Sources and Light-Driven Interactions Congress* (OSA, Budapest 2022).
- [80] B. K. Ofori-Okai, P. Sivarajah, W. R. Huang, and K. A. Nelson, *Opt. Express* **24**, 5057 (2016).
- [81] L. Guiramand, J. Nkeck, X. Ropagnol, T. Ozaki, and F. Blanchard, *Photonics Research* **10**, 340 (2022).
- [82] L. Pálfalvi, G. Tóth, L. Tokodi, Z. Márton, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, *Opt. Express* **25**, 29560 (2017).
- [83] P. S. Nugraha, G. Krizsán, C. Lombosi, L. Pálfalvi, G. Tóth, G. Almási, J. A. Fülöp, and J. Hebling, *Opt. Lett.* **44**, 1023 (2019).
- [84] G. Krizsán, G. Polónyi, T. Kroh, G. Tóth, Z. Tibai, N. H. Matlis, F. X. Kärtner, and J. Hebling, in *2021 Conference on Lasers and Electro-Optics Europe & European Quantum Electronics Conference (CLEO/Europe-EQEC)* (IEEE, 2021), pp. 1.
- [85] G. Tóth, L. Pálfalvi, Z. Tibai, L. Tokodi, J. A. Fülöp, Z. Márton, G. Almási, and J. Hebling, *Opt. Express* **27**, 30681 (2019).
- [86] D. Huo, Z. J. Choong, Y. Shi, J. Hedley, and Y. Zhao, *Journal of Micromechanics and Microengineering* **26**, 095005 (2016).
- [87] H. Kogelnik, *The Bell System Technical Journal* **48**, 2909 (1969).
- [88] B.-R. David, *Understanding diffraction in volume gratings and holograms* (InTech, 2013).
- [89] T. A. Shankoff, *Appl. Opt.* **7**, 2101 (1968).
- [90] I. K. Baldry, J. Bland-Hawthorn, and J. G. Robertson, *Publ. Astron. Soc. Pac* **116**, 403 (2004).
- [91] B. Pierre-Alexandre, G. Patrick, L. M. H. Serge, C. L. Philippe, and A. J. J. Claude, *Opt. Eng.* **43**, 2603 (2004).

- [92] J. Lawrence, F. O'Neill, and J. Sheridan, *Optik* **112**, 449 (2001).
- [93] V. Passaro and F. Magno, *Laser physics* **17**, 231 (2007).
- [94] L. D. Dickson, R. D. Rallison, and B. H. Yung, *Appl. Opt.* **33**, 5378 (1994).
- [95] P. Rambo, J. Schwarz, and I. Smith, *Opt. Commun.* **260**, 403 (2006).
- [96] H. Chen, X. Chen, Y. Zhang, and Y. Xia, *Laser Physics* **17**, 1378 (2007).
- [97] Q. Meng, B. Zhang, S. Zhong, and L. Zhu, *Applied Physics A* **122**, 1 (2016).
- [98] Samuel C. Barden, James A. Arns, Willis S. Colburn, and Joel B. Williams, *Publ. Astron. Soc. Pac* **112**, 809 (2000).
- [99] D. R. Richard and R. S. Scott, in *Proc.SPIE1992*.
- [100] Y.-S. Lee, *Principles of terahertz science and technology* (Springer Science & Business Media, 2009), Vol. 170.
- [101] J. E. Nkeck, L. Guiramand, X. Ropagnol, and F. Blanchard, *JOSA B* **38**, 2715 (2021).
- [102] G. Krizsán, Z. Tibai, G. Tóth, P. S. Nugraha, G. Almási, J. Hebling, and J. A. Fülöp, *Optics Express* **30**, 4434 (2022).
- [103] M. J. Cliffe, D. M. Graham, and S. Jamison, *Applied Physics Letters* **108**, 221102 (2016).
- [104] A. Zanutta, M. Landoni, M. Riva, and A. Bianco, *Monthly Notices of the Royal Astronomical Society* **469**, 2412 (2017).
- [105] M. T. Hibberd *et al.*, *Nature Photonics* **14**, 755 (2020).
- [106] N. Tamura, G. J. Murray, P. Luke, C. Blackburn, D. J. Robertson, N. A. Dipper, R. M. Sharples, and J. R. Allington-Smith, *Appl. Opt.* **45**, 5923 (2006).
- [107] S. Kedenburg, M. Vieweg, T. Gissibl, and H. Giessen, *Opt. Mater. Express* **2**, 1588 (2012).
- [108] K. Ravi, W. R. Huang, S. Carbajo, X. Wu, and F. Kärtner, *Opt. Express* **22**, 20239 (2014).
- [109] B. Chae, Y. D. Yun, H.-Y. Kim, C. K. Ryu, S. Lefrançois, and P. Dumas, *Synchrotron Radiation News* **30**, 6 (2017).
- [110] <https://www.inprentus.com/products>.
- [111] G. Krizsán, Z. Tibai, J. Hebling, L. Pálfalvi, G. Almási, and G. Tóth, *Optics Express* **28**, 34320 (2020).
- [112] M. Trikeriotis, R. Rodriguez, M. F. Zettel, A. Bakandritsos, W. J. Bae, P. A. Zimmerman, C. K. Ober, and E. P. Giannelis, in *Advances in Resist Materials and Processing Technology XXVI* (International Society for Optics and Photonics, 2009), p. 72732A.
- [113] S. Kala, P. Rawat, and F. E. Kruis, *Materials Today: Proceedings* **28**, 96 (2020).
- [114] O. Mangla and S. Roy, *Materials Letters* **143**, 48 (2015).
- [115] L. B. Scaffardi and J. O. Tocho, *Nanotechnology* **17**, 1309 (2006).
- [116] N. Venkatram, R. Sathyavathi, and D. N. Rao, *Opt. Express* **15**, 12258 (2007).
- [117] M. Li and J. Li, *Materials Letters* **60**, 2526 (2006).
- [118] F. Müller, W. Peukert, R. Polke, and F. Stenger, *International Journal of Mineral Processing* **74**, S31 (2004).
- [119] How to disperse nanopowder and nanoparticles?, <https://www.us-nano.com/inc/sdetail/48896>.
- [120] G. Navarrete, H. Márquez, L. Cota, J. Siqueiros, and R. Machorro, *Appl. Opt.* **29**, 2850 (1990).
- [121] J. Hebling, A. Stepanov, G. Almási, B. Bartal, and J. Kuhl, *Appl. Phys. B* **78**, 593 (2004).
- [122] A. Buzády, M. Unferdorben, G. Tóth, J. Hebling, I. Hajdara, L. Kovács, and L. Pálfalvi, *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* **38**, 963 (2017).
- [123] S.-C. Zhong *et al.*, *Opt. Express* **23**, 31313 (2015).

[124] Y. Zhang, X. Chen, H. Chen, and Y. Xia, *Applied surface science* **253**, 8874 (2007).