

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.

1. Előzmények és célkitűzések

A femtoszekundumos lézerek utóbbi három évtizedben bekövetkezett széleskörű elterjedésének köszönhetően, a korábban nem, vagy csak nehezen elérhető terahertzes (THz-es) tartomány ($\sim 0,1-10$ THz) egésze elérhető lett, valamint lehetőség adódott az elektromos térerősség közvetlen mérésére is. Ultrarövid impulzusoknak (~ 100 fs) különböző nemlineáris optikai anyagokban történő optikai egyenirányításával 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) [1], félvezetőkben (pl.: cink-tellurid (ZnTe) [2], gallium-foszfidban (GaP) [3]) vagy organikus kristályokban (pl.: DAST [4], OH1 [5], DSTMS [6,7]) kelthetők.

A THz-es impulzusok felhasználási területei közé tartozik a biztonságtechnika, időtartománybeli lineáris és nemlineáris spektroszkópia, képalkotás és nem-destruktív anyagvizsgálat, valamint a manapság talán legnagyobb érdeklődéssel kísért alkalmazás: töltött részecskék

(elektronok [8,9], sőt ionok [10]) 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 [11], köszönhetően a döntött impulzusfrontú pumpálás elterjedésének [12]. A további energianövekedésnek, skálázhatóságnak azonban komoly korlátjai vannak.

Ennek legfőbb okai a következők: (i) korlátozott kölcsönhatási hossz a fázisillesztéshez szükséges nagy impulzusfront dőlés, valamint szögdiszperzió miatt [13], (ii) leképzési hibák (görbült impulzusfront) és a leképezés valamint szögdiszperzió együttes jelenléte miatti impulzushossz növekedés a széles pumpa nyaláb szélein [13,14], (iii) prizma alakú LN kristály nagy ékszöggel, mely különböző hullámformájú THz-es impulzusokat eredményez a THz-es nyaláb keresztmetszete mentén [15].

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 csúcsertékét, mely néhány alkalmazás szempontjából (pl. részecskegyorsítás) igen fontos.

Az elmúlt években több olyan új elrendezést javasoltak [15-19], melyek csökkentik vagy akár meg is szüntetik az (i)-(iii) korlátozó tényezőket (de nem minden esetben skálázhatóak korlátozó tényezők nélkül), azonban ezek a LN kristály felszínének mikromegmunkálását igénylik. Ez jelenleg még technológia korlátokba ütközik, a megmunkált felszín geometriája, illetve felületi minősége még nem vagy nem minden esetben megfelelő.

Munkám során szerettem volna olyan THz-es elrendezést javasolni és esetlegesen demonstrálni, mely mind méretében mind energiájában (korlátozó tényező nélkül) skálázható és jó minőségű THz-es nyalábot tud előállítani, mindezt relatív nagy hatásfok mellett. Egy további előny lenne, ha a LN felszíne nem igényelne mikromegmunkálást.

2. Módszerek

Munkám legnagyobb részét új, skálázható THz-es források tervezését tette ki. Ez korábban javasolt források továbbfejlesztését foglalta magában, melyben új optikai elemek használatára tettem javaslatot. Ilyen optikai elem volt a térfogati holografikus rács, mely használatával a transzmissziós echelon struktúrát alkalmazó elrendezésnél a leképezés elhagyható. A másik optikai elem a külső strukturált fényvisszaverő volt, melynek mikromegmunkálása jóval könnyebb, mint LN-é.

Megépítettem, demonstráltam és karakterizáltam a térfogati holografikus rácson keresztül pumpált nemlineáris echelon lapot tartalmazó elrendezést 1030 nm-es pumpálási hullámhossz és 200 fs impulzushossz esetében.

A Lorentz-Lorenz egyenlet felhasználásával olyan nagy törésmutatójú nanopor összetételű folyadékot terveztem, mely ideális lehet LN-hoz (vagy lítium-tantaláthoz) törésmutató illesztő folyadéknak, valamint a hatékony becsatolást tehet lehetővé a reflexiós nemlineáris lap és a külső strukturált reflektor között.

3. Új tudományos eredmények

[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 echelonnal 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 lehet ($>85\%$). [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]

4. 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).

5. 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)

6. Hivatkozások

- [1] J. A. Fülöp, Z. Ollmann, C. Lombosi, C. Skrobel, S. Klingebiel, L. Pálfalvi, F. Krausz, S. Karsch, and J. Hebling, *Opt. Express* **22**, 20155 (2014).
- [2] G. Polónyi *et al.*, *Optics express* **24**, 23872 (2016).
- [3] G. Polónyi, M. I. Mechler, J. Hebling, and J. A. Fülöp, *IEEE J. Sel. Top. Quantum Electron.* **23**, 1 (2017).
- [4] C. P. Hauri, C. Ruchert, C. Vicario, and F. Ardana, *Appl. Phys. Lett.* **99**, 161116 (2011).
- [5] C. Ruchert, C. Vicario, and C. P. Hauri, *Opt. Lett.* **37**, 899 (2012).
- [6] M. Shalaby and C. P. Hauri, *Nature communications* **6**, 1 (2015).
- [7] C. Vicario, A. V. Ovchinnikov, S. I. Ashitkov, M. B. Agranat, V. E. Fortov, and C. P. Hauri, *Opt. Lett.* **39**, 6632 (2014).
- [8] D. Zhang *et al.*, *Nat. Photonics* **12**, 336 (2018).
- [9] S. Turnár, J. Hebling, J. Fülöp, G. Tóth, G. Almási, and Z. Tibai, *Appl. Phys. B* **127**, 1 (2021).
- [10] L. Pálfalvi, J. Fülöp, G. Tóth, and J. Hebling, *Physical Review Special Topics-Accelerators and Beams* **17**, 031301 (2014).
- [11] B. Zhang *et al.*, *Laser Photonics Rev.* **15**, 2000295 (2021).
- [12] J. Hebling, G. Almási, I. Z. Kozma, and J. Kuhl, *Opt. Express* **10**, 1161 (2002).
- [13] J. Fülöp, L. Pálfalvi, G. Almási, and J. Hebling, *Opt. Express* **18**, 12311 (2010).
- [14] L. Tokodi, J. Hebling, and L. Pálfalvi, *J. Infrared Millim. Terahertz Waves* **38**, 22 (2017).

- [15] G. Tóth, L. Pálfalvi, J. A. Fülöp, G. Krizsán, N. H. Matlis, G. Almási, and J. Hebling, *Opt. Express* **27**, 7762 (2019).
- [16] Z. Ollmann, J. Hebling, and G. Almasi, *Appl Phys B-Lasers O* **108**, 821 (2012).
- [17] L. Pálfalvi, Z. Ollmann, L. Tokodi, and J. Hebling, *Optics Express* **24**, 8156 (2016).
- [18] L. Pálfalvi, G. Tóth, L. Tokodi, Z. Márton, J. A. Fülöp, G. Almási, and J. Hebling, *Optics express* **25**, 29560 (2017).
- [19] G. Tóth, L. Pálfalvi, Z. Tibai, L. Tokodi, J. A. Fülöp, Z. Márton, G. Almási, and J. Hebling, *Optics Express* **27**, 30681 (2019).